

# 3 Aspekte der nichtlinearen Optik

In Kapitel 2 sind einige Experimente zur Ausbreitung von Terawatt-Laserpuls in Luft vorgestellt worden. Diese haben die Entwicklung von Anwendungsmöglichkeiten in der Atmosphärenfernerkundung zum Ziel. Oft stehen jedoch Fragen im Vordergrund, die der Grundlagenforschung in der Laseroptik zuzuordnen sind. Dies geschieht aber nicht allein aus einem zusätzlichen Interesse heraus. Denn die Untersuchung der besonderen Phänomene ist ein notwendiger Bestandteil der Entwicklung neuer Messmethoden. Somit ist es zu verstehen, dass die Arbeiten, die in der Anfangsphase des Teramobile-Projekts durchgeführt worden sind, hauptsächlich bei Forschern Interesse hervorgerufen haben, die in dem Gebiet der Wechselwirkung von intensivem Laserlicht mit Materie arbeiten. Gleichzeitig spielt der Dialog mit diesen Forschern und die Auseinandersetzung mit ihren Publikationen eine große Rolle in der Arbeit des Teramobile-Teams.

Die beobachteten besonderen Phänomene – als Beispiele seien die Filamentierung und die Weißlichterzeugung genannt, die für diese Arbeit bedeutende und übergeordnete Begriffe darstellen – gehören zum Gebiet der nichtlinearen Optik. Im Mittelpunkt steht dabei der Effekt, dass der Brechungsindex der meisten transparenten Medien bei sehr hohen Strahlungsfeldern eine intensitätsabhängige Komponente zeigt. Dies wird als der nichtlineare Brechungsindex bezeichnet, symbolisiert durch den Koeffizienten  $n_2$ . Das Zusammenspiel dieses Effekts mit weiteren nichtlinearen, aber auch linearen, hat einige Erscheinungen zur Folge, die sich zunächst anschaulich erklären lassen. Sehr schnell gerät man jedoch in einen Bereich einer stark zunehmenden Vielfalt der Phänomene, von deren Komplexität Experiment und Theorie gleichermaßen betroffen sind. Seit Beginn der neunziger Jahre, eingeleitet durch die Entwicklung der *Chirped Pulse Amplification* [Strickland und Mourou, 1985], befindet sich die Erforschung der Wechselwirkung kurzer, hochintensiver Laserpulse mit gasförmiger Materie in einer Phase der Sammlung von Erfahrungen. Die Ergebnisse der Teramobile-Experimente sind dabei Teile des Puzzles und ihre Behandlung bleibt oft eher phänomenologisch und noch ohne sichere oder vollständige theoretische Erklärung.

Abschnitt 3.1 enthält eine kurze Einführung in die nichtlineare Optik. In den folgenden Abschnitten werden, geordnet nach den Phänomenen, die Auswertung und Deutung der Experimente präsentiert. Ein Schwerpunkt liegt dabei im Vergleich mit der vorhandenen Literatur.

## 3.1 Grundlagen der nichtlinearen Optik

Zu den wichtigsten Grundlagen der klassischen, linearen Optik zählen das Superpositionsprinzip und die Frequenzerhaltung. Diese folgen aus der Tatsache, dass Größen wie der Brechungsindex  $n$  Materialkonstanten sind. Erscheinungen wie Brechung und Reflexion oder Größen wie die Ausbreitungsgeschwindigkeit hängen nur von der Frequenz des Lichts ab, nicht aber von der Intensität. Diese Prinzipien werden nun durch sehr hohe Intensitäten außer Kraft gesetzt. Da entsprechend starke optische Strahlungsfelder praktisch nur mittels Laserlicht erzeugt werden, konnte die Veränderung der optischen Eigenschaften von Materie erst nach der Erfindung des Lasers [Maiman, 1960] experimentell nachgewiesen werden. Als Geburtsstunde der nichtlinearen Optik wird die Entdeckung der Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG) durch Franken et.al [1961] angesehen. Standardwerke zu den Grundlagen und wichtigsten Phänomenen der nichtlinearen Optik wurden von Shen [1984] und Boyd [1992] verfasst. (Die Bemerkung aus dem Vorwort von Shen: „*The vast amount of knowledge generated over the years is scattered everywhere in the literature. Beginners in nonlinear optics often have a hard time acquainting themselves with the many facets of the field. Even workers in nonlinear optics may sometimes have difficulty finding some rudimentary information about a subarea of the field they are not familiar with.*“ ist wohl auch heute noch sehr zutreffend, zumindest wenn man ihn auf die neueren Entwicklungen seit dem Erscheinen der genannten Lehrbücher bezieht.)

### 3.1.1 Polarisation und nichtlineare optische Suszeptibilität

Ein elektrisches Feld erzeugt Dipolmomente in einem dielektrischen Medium. Die Polarisation  $\mathbf{P}$  ergibt sich aus der Summe der Dipole in einem bestimmten Volumen. Wirkt ein Wechselfeld  $\mathbf{E}(t)$ , so entsteht eine zeitabhängige Polarisation, die wiederum ein Wechselfeld abstrahlt. Dabei gilt die Beziehung

$$\mathbf{P}(t) = \chi \varepsilon_0 \mathbf{E}(t) \quad (3-1)$$

mit  $\chi = \varepsilon - 1$  ( $\varepsilon$  ist die Dielektrizitätskonstante des Mediums). Der Koeffizient  $\chi$  heißt optische Suszeptibilität. Ihr linearer Anteil wird im Weiteren mit  $\chi^{(1)}$  bezeichnet. Ist die Polarisation nichtlinear, so treten nicht vernachlässigbare Terme höherer Ordnung auf:

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 [\chi^{(1)} \mathbf{E} + (\chi^{(2)} \mathbf{E}) \mathbf{E} + ((\chi^{(3)} \mathbf{E}) \mathbf{E}) \mathbf{E} + \dots]. \quad (3-2)$$

Bei  $\chi^{(1)}$ ,  $\chi^{(2)}$ ,  $\chi^{(3)}$ , ... handelt es sich um Tensoren. Die vektorielle Schreibweise in Gleichung 3-2 bedeutet z.B. für den zweiten Term, dass  $\chi^{(2)}$  ein Tensor dritter Stufe ist und

$$|(\chi^{(2)}\mathbf{E})\mathbf{E}|_i = \sum_j \sum_k \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k \equiv P_i^{(2)} \quad (3-3)$$

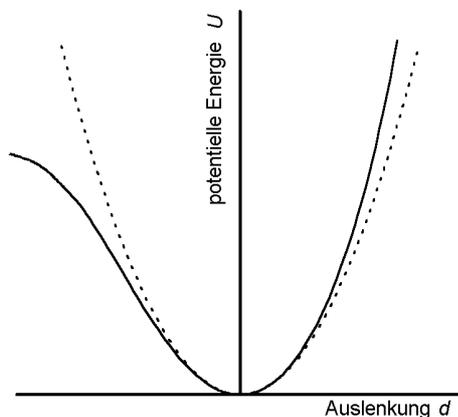
die Komponenten der Polarisation zweiter Ordnung darstellen. Die  $\chi$ -Tensoren seien hier reell, das heißt, das Medium ist verlustfrei.

Eine Lichtwelle habe vereinfacht die Form  $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \sin(\omega t)$ , dann stellt sich die nichtlineare Polarisation folgendermaßen dar:

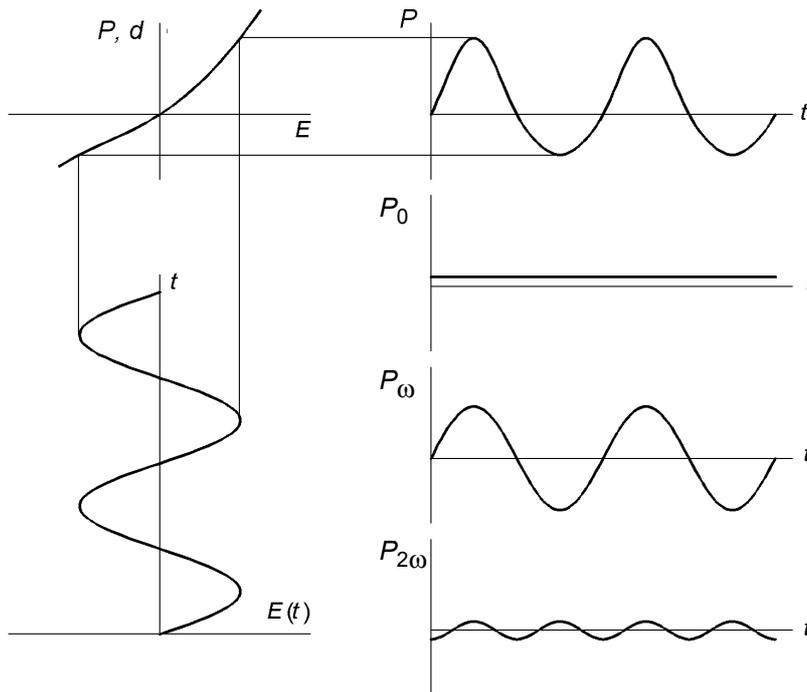
$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \varepsilon_0 [\chi^{(1)} \mathbf{E}_0 \sin(\omega t) + (\chi^{(2)} \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 \sin^2(\omega t) + ((\chi^{(3)} \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 \sin^3(\omega t) + \dots] \\ &= \chi^{(1)} \varepsilon_0 \mathbf{E}_0 \sin(\omega t) + \frac{\varepsilon_0}{2} (\chi^{(2)} \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 [1 - \cos(2\omega t)] \\ &\quad + \frac{\varepsilon_0}{4} ((\chi^{(3)} \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 [3 \sin(\omega t) + \cos(3\omega t)] + \dots \\ &= \mathbf{P}_\omega^{(1)} + \mathbf{P}_0^{(2)} + \mathbf{P}_{2\omega}^{(2)} + \mathbf{P}_\omega^{(3)} + \mathbf{P}_{3\omega}^{(3)} + \dots \end{aligned} \quad (3-4)$$

In der unteren Zeile geben die hochgestellten Zahlen in Klammern die Ordnung der Polarisation an, der tiefgestellte Index steht für die Schwingungsfrequenz (Vielfache der Grundfrequenz) des jeweiligen Terms. Der Index 0 weist auf eine konstante Polarisation hin, die so genannte optische Gleichrichtung. Es sei darauf hingewiesen, dass die Größen  $\mathbf{P}_{m\omega}^{(l)}$  ( $l$  und  $m$  seien ganzzahlig) hier willkürlich eingeführt wurden, um das Ergebnis der Zwischenzeile übersichtlich zusammenzufassen. Sie sind nicht identisch mit den Größen  $\mathbf{P}^{(l)}$ , die sich aus der allgemeinen Zerlegung der Polarisation in die einzelnen Ordnungen in Gleichung 3-2 ergeben und entsprechend Gleichung 3-3 definiert sind.

In Anlehnung an die Rechnung in Gleichung 3-4 lässt sich die nichtlineare Polarisation, die durch ein starkes äußeres Feld hervorgerufen wird, im Bild des **klassischen Oszillators**



**Bild 3-1.** Vergleich eines harmonischen Potentials (gestrichelte Linie) mit dem realen, anharmonischen Potential eines elastisch gebundenen Elektrons (durchgezogene Linie).



**Bild 3-2.** Die nichtlineare Kennlinie des Elektrons (links oben) bewirkt die Umwandlung einer eingestrahlten Sinuswelle in eine anharmonische Schwingung, deren Fourier-Zerlegung bis zur zweiten Ordnung dargestellt ist.

verstehen. Die elektrische Feldstärke  $E$  einer Lichtwelle der reinen Frequenz  $\omega$  übt eine Kraft  $F_{el}$  auf die Elektronen aus und bewirkt eine Auslenkung aus ihrer Ruhelage. Die Summe der dadurch erzeugten Dipolmomente bildet die Polarisation des Mediums, für die im linearen Fall Gleichung 3-1 gilt. Solange die Kräfte klein sind, gilt für die Auslenkung  $d \sim F_{el}$  bzw. für die Polarisation  $P \sim E$ . Ist aber die Feldstärke des eingestrahlten Lichts so groß, dass die Bindung der Elektronen nicht mehr durch ein harmonisches Potential genähert werden kann (siehe Bild 3-1), so ist die Kennlinie der Elektronen nicht mehr gerade sondern gekrümmt. Dieser Fall ist in Bild 3-2 graphisch dargestellt. Die Zerlegung der Polarisation in ihre Grundwellen entspricht dem Auftreten von Termen mit Frequenzen  $m\omega$  in Gleichung 3-4. Es handelt sich hierbei um die Erzeugung höherer Harmonischer einer monochromatischen Lichtwelle (näheres dazu in Abschnitt 3.1.3).

Isotrope Medien wie Gase, Flüssigkeiten und Glas, aber auch viele Kristalle besitzen **Inversionssymmetrie**. Das heißt, dass sich bei wechselndem Vorzeichen des einwirkenden Feldes  $E$  auch das Vorzeichen der Polarisation umkehren muss. Für die zweite Ordnung der Polarisation heißt dies

$$-P^{(2)} = \epsilon_0(\chi^{(2)}(-E))(-E) = \epsilon_0(\chi^{(2)}E)E = P^{(2)}. \quad (3-5)$$

Aus dieser Beziehung folgt eindeutig, dass

$$\chi^{(2)} = 0 \quad (3-6)$$

gelten muss. Gleiches gilt für alle höheren geraden Ordnungen. Bei einem inversionssymmetrischen Medium wäre die Kennlinie in Bild 3-2 symmetrisch im Ursprung. Man erkennt leicht, dass die Zerlegung der resultierenden Welle dann weder konstante ( $P_0$ ) noch geradzahlig frequenzvervielfachte Anteile (z.B.  $P_{2\omega}$ ) aufweisen kann, wohl aber ungeradzahlige. Dies spiegelt die Beziehung zwischen der Ordnungszahl der Polarität und der Vervielfachung der Grundfrequenz in Gleichung 3-4 wieder.

### 3.1.2 Der intensitätsabhängige Brechungsindex

Unabhängig davon, dass wie gesehen bei einem großen Teil der Medien  $\chi^{(2)}$  verschwindet und damit keine Nichtlinearitäten zweiter Ordnung auftreten, zeigt Gleichung 3-4, dass eine Polarisation mit der Grundwellenlänge  $\omega$  der eingestrahlten Lichtwelle nur in erster und dritter Ordnung auftritt (dabei seien eventuell auftretende Terme höherer Ordnungen wegen der Abnahme der  $\chi$ -Beträge vernachlässigt). Es gilt also  $\mathbf{P}_\omega = \mathbf{P}_\omega^{(1)} + \mathbf{P}_\omega^{(3)}$ . Unter der vereinfachenden Annahme, dass die einfallende Lichtwelle linear polarisiert ist, ergibt sich somit für die effektive Suszeptibilität  $\chi_{\text{eff}}$ , definiert gemäß Gleichung 3-1 als Koeffizient der Polarisation mit Frequenz  $\omega$ , die Beziehung

$$\chi_{\text{eff}} - \chi^{(1)} \sim \chi^{(3)} |E|^2. \quad (3-7)$$

Für den Brechungsindex gilt  $n^2 = \epsilon = 1 + \chi_{\text{eff}}$ . Unter der gegebenen Voraussetzung, dass der nichtlineare Anteil klein ist gegen  $1 + \chi^{(1)}$  kann man den Brechungsindex als Summe der Form

$$n = n_0 + n_2 I \quad \text{mit} \quad n_2 \sim \frac{1}{n_0 c \epsilon_0} \chi^{(3)} \quad (3-8)$$

darstellen. Dabei wird  $n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}$  linearer Brechungsindex genannt,  $I = \frac{1}{2} n_0 c \epsilon_0 |E|^2$  ist die Intensität der Lichtwelle und  $c$  die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum.

Die Vorfaktoren in der Verknüpfung von  $n_2$  und  $\chi^{(3)}$  hängen von der jeweiligen Konvention und dem Einheitensystem ab. Häufig zu finden ist die Beziehung  $n_2 [\text{cm}^2/\text{W}] = (12\pi^2/n_0^2 c_0) 10^7 \chi^{(3)} [\text{esu}]$  (zuweilen mit einer 8 an Stelle der 12), die das mks- mit dem cgs-System verbindet. Entscheidend ist aber die Proportionalität der Größen. Die Bestimmung des Koeffizienten des intensitätsabhängigen Brechungsindex  $n_2$  ist gleichbedeutend mit der Bestimmung der Suszeptibilität dritter Ordnung. Dabei ist allerdings zu beachten,

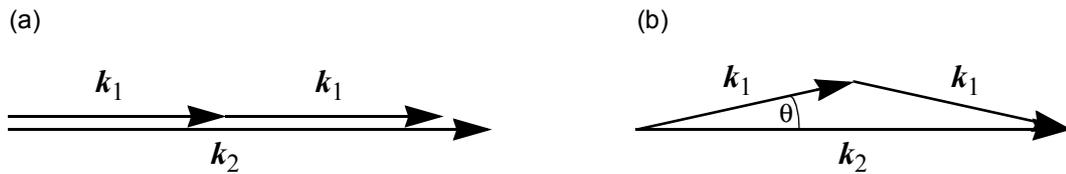
dass es für den nichtlinearen Brechungsindex eines Mediums keinen universal gültigen Wert gibt. Es gibt einerseits einen unverzögerten Anteil (Polarisation der gebundenen Elektronen), andererseits verzögerte Effekte. So kommt bei nicht sehr kurzen Laserpulsen ( $\sim 1$  ns) ein Raman-Anteil  $n_R$  hinzu [Sprangle et al. 2002]. Manche Autoren definieren einen Koeffizienten  $n_{2,\text{total}}$ , andere schreiben  $n_{\text{NL}} = n_2 + n_R$ . Im Folgenden sei – wie in experimentellen Veröffentlichungen weitgehend üblich – mit  $n_2$  der effektive Wert als Summe aller Effekte bei den jeweils verwendeten Laserpulsen gemeint. Dies weicht formal von der Definition in Gleichung 3-8 ab, für Femtosekundenpulse scheint jedoch nur der unverzögerte Anteil eine Rolle zu spielen, wodurch Gleichung 3-8 wiederum Gültigkeit hat. So haben Nibbering et al. [1997] für **Luft** und Pulslängen im Bereich von **100 fs** den Wert  $n_2 = 3 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$  bestimmt, während bis dahin  $n_2(\text{Luft}) = 5,6 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2/\text{W}$  [Pennington et al., 1989; Hellwarth et al. 1990; Shimoji et al., 1989] angenommen wurde. Der höhere Wert geht jedoch auf Messungen mit Nanosekundenpulsen zurück. Völlig andere Beträge wurden bei Verwendung von cw-Laserlicht in Luft auf Grund von thermischen Nichtlinearitäten gemessen [Bentley et al., 2000]. Diese spielen bei kurzen Pulsen keine Rolle.

Der nichtlineare, intensitätsabhängige Brechungsindex hat direkt zwei der in dieser Arbeit wichtigsten Phänomene zur Folge, auf die in den folgenden Abschnitten 3.2 und 3.4 eingegangen wird: zum einen die Selbstfokussierung (SF) – über die, neben anderen Methoden,  $n_2$  bestimmt wird [Shimoji et al., 1989] – zum anderen die Selbstphasenmodulation (SPM).

### 3.1.3 Frequenzvervielfachung und -mischung

In Gleichung 3-4 sowie in der grafischen Darstellung in Bild 3-2 taucht ein Polarisationsanteil mit der doppelten Frequenz  $2\omega$  des eingestrahnten monochromatischen Lichts als nichtlinearer Effekt zweiter Ordnung auf. Formal ergeben sich aus den höheren Ordnungen Terme für sämtliche Vielfache von  $\omega$ . Inwieweit diese von null verschieden sind bzw. in welchem quantitativen Verhältnis sie zueinander stehen, hängt von den einzelnen  $\chi$ -Tensoren ab. Wie bereits gezeigt (Gleichung 3-6), kann eine **Frequenzverdopplung** (SHG) nur in nicht inversionssymmetrischen Medien stattfinden, also praktisch nur in bestimmten Klassen von Kristallstrukturen (in speziellen Fällen, z.B. durch Grenzflächeneffekte oder bei von außen induzierten Symmetriebrechungen, kann SHG auch in anderen Medien vorkommen).

Neben der Struktur des Mediums spielt für die Effizienz der Frequenzumwandlung die **Phasenanpassung** eine große Rolle. Wenn die erzeugte Welle sich nicht mit der Geschwindigkeit ihrer Erzeugung ausbreitet, also nicht mit der Grundwelle in Phase ist,



**Bild 3-3.** Phasenanpassungsdiagramm der Frequenzverdopplung. (a) Fehlende Anpassung bei einem Medium mit normaler Dispersion. (b) Phasenanpassung durch Winkelunterschied der einzelnen Wellen bzw. Photonen bei annormaler Dispersion. (Eingestrahelte Welle:  $k_1 = k(\omega)$ , erzeugte Welle:  $k_2 = k(2\omega)$ )

kommt es zur Auslöschung der über eine bestimmte Wechselwirkungslänge  $L$  erzeugten Welle. Im Photonenbild erklärt man die Phasenanpassung damit, dass neben der Energieerhaltung  $\hbar 2\omega = \hbar\omega + \hbar\omega$  auch die Erhaltung des Impulses  $\Sigma \hbar k$  gewährleistet sein muss. Daraus ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$k_2 = k_1 + k_1 \Leftrightarrow \frac{2\omega n(2\omega)}{c} = 2 \frac{\omega n(\omega)}{c} \Leftrightarrow n(2\omega) = n(\omega) \quad (3-9)$$

( $k_1$  ist die Wellenzahl der eingestrahelten Photonen, in diesem Fall der Frequenz  $\omega$ ,  $k_2$  steht für das erzeugte Photon, hier mit der Frequenz  $2\omega$ ). SHG findet also nur dann (optimal) statt, wenn der Brechungsindex des Mediums bei den beiden Frequenzen gleich ist. Gleichung 3-9 gilt aber nur für den eindimensionalen Fall, das heißt wenn Grundwelle und Verdoppelte dieselbe Ausbreitungsrichtung haben. Die Impulserhaltung betrifft im allgemeinen Fall die Wellenvektoren  $k$ . Es ist aber leicht zu sehen, dass bei normaler Dispersion ( $n$  wird mit zunehmender Frequenz größer) die Phasenanpassung auch bei Einbeziehung aller Raumrichtungen in keinem Fall möglich ist (Bild 3-3 a). Bild 3-3 (b) zeigt, wie die Erhaltung der Photonenimpulse bei annormaler Dispersion leicht zu erfüllen ist, wenn zwei Photonen der Grundfrequenz mit um  $2\theta$  verschiedener Ausbreitungsrichtung vorhanden sind.

Zur effizienten Erzeugung der zweiten Harmonischen von Laserlicht verwendet man doppelbrechende Kristalle. Sie besitzen für verschiedene Polarisationsrichtungen („o“ und „e“) unterschiedliche Brechungsindizes. Unter einem bestimmten Winkel der optischen Achse des Kristalls zur Polarisation des einfallenden Lichts (o) stellt sich ein Zustand ein, in dem  $n_o(\omega) = n_e(2\omega)$  gilt und ein großer Teil der Lichtenergie in die zweite Harmonische umgewandelt wird, die dann in e-Richtung polarisiert ist.

Prinzipiell gelten die bisherigen Ausführungen auch für die Erzeugung der weiteren höheren Harmonischen. Die Intensität der  $m$ -ten Harmonischen hängt von der Suszeptibilität  $\chi^{(m)}$  und der Wechselwirkungslänge  $L$  ab, aber auch von der  $m$ -ten Potenz der Lichtinten-

sität  $I_0$ , da es sich bei der Erzeugung um einen  $m$ -Photonenprozess handelt. Im absorptionsfreien Fall gilt für die Intensität allgemein [Zürl und Graener, 1998]

$$I_{m\omega} \sim (\chi^{(m)} m \omega)^2 I_0^m L^2 \frac{\text{sinc}^2(L/L_c)}{(L/L_c)^2} \quad \text{mit} \quad L_c = 2/\Delta k. \quad (3-10)$$

Der Faktor  $\text{sinc}^2(L/L_c)$  ist ein Maß für die Fehlanpassung der Phase.  $L_c$  wird dabei als Kohärenzlänge bezeichnet. Man sieht, dass der Faktor gegen eins geht, wenn die Kohärenzlänge viel größer ist als die Wechselwirkungslänge. Dies ist gegeben, wenn der Phasenunterschied

$$\Delta k = k_{m\omega} - mk_\omega = \frac{m\omega}{c}[n(m\omega) - n(\omega)] \quad (3-11)$$

gegen null geht. Zuweilen wird die Länge  $\pi/\Delta k$ , unterhalb welcher Phasen Anpassungsfaktor größer als 0,4 ist, Kohärenzlänge genannt.

Die **Frequenzverdreifachung** (THG) ist als  $\chi^{(3)}$ -Prozess zwar zunächst in allen Kristallen möglich, eine gute Phasen Anpassung lässt sich jedoch schwer realisieren. Um bei Laserlicht eine hohe Konversionseffizienz zu erhalten, wird daher üblicherweise erst ein Teil des Lichts frequenzverdoppelt. In einem weiteren Kristall werden dann die  $\omega$ - und  $2\omega$ -Wellen gemischt. Bei der **Erzeugung der Summenfrequenz** oder allgemeiner der **Frequenzmischung** gelten weitgehend die gleichen Gesetze wie für die Frequenzvervielfachung. Die Regeln müssen nur auf alle möglichen Kombinationen von Photonen verschiedener Frequenzen, die sich in einander umwandeln, verallgemeinert werden. Werden zum Beispiel zwei Frequenzen in ein nichtlineares Medium eingestrahlt, kann außer der Summenfrequenz auch die **Differenzfrequenz** entstehen (beides  $\chi^{(2)}$ -Prozesse). Die Phasen Anpassung bestimmt, welcher Prozess bevorzugt ist. Die Differenzerzeugung ist im Prinzip ein Drei-Photonenprozess, bei dem ein Photon vernichtet wird und zwei neue entstehen ( $\omega_1 = \omega_2 + \omega_3$ ), wobei die zweite eingestrahelte Frequenz die eigene Verstärkung – und folglich die Differenzerzeugung – stimuliert. Dieser Prozess findet daher unter den Namen **optisch parametrische Verstärkung** vielfache Anwendung.

In den folgenden Abschnitten, die nach den experimentellen Ergebnissen dieser Arbeit ausgerichtet sind, werden weitere Phänomene der nichtlinearen Optik eingeführt. Die zugehörigen theoretischen Erläuterungen bauen größtenteils auf den hier dargestellten Grundlagen auf.

## 3.2 Filamentierung kurzer Laserpulse

Wird ein Laserstrahl mit einem gaußförmigen Strahlprofil fokussiert, so ist die Verkleinerung des Strahldurchmessers aufgrund der Beugung begrenzt. Der geringste erreichbare Radius  $w_0$  (halbe  $1/e^2$ -Breite der Intensität) an der Strahltaile hängt vom Fokussierwinkel  $\theta$  ab. Als Maß der Länge der Fokusregion gilt  $2z_R$ , wobei die **Rayleigh-Länge**  $z_R$  definiert ist als der Abstand zu beiden Seiten von der Taille (die Position sei  $z_0$  genannt), bei dem der Strahlradius  $\sqrt{2}w_0$  beträgt. Für die Rayleigh-Länge gilt

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} = \frac{w_0}{\theta}. \quad (3-12)$$

Der rechte Teil der Gleichung stellt die Näherung für kleine  $\theta$  dar (eigentlich  $\tan\theta$ ). In Vorwärtsrichtung ist  $\theta$  der Halbwinkel der Strahlverbreiterung im Fernfeld und wird Divergenz genannt. Bei einer Wellenlänge von 800 nm ergibt sich für eine Strahltaile  $w_0$  von 100  $\mu\text{m}$   $2z_R = 8$  cm und  $\theta = 2,5$  mrad (z.B.  $f = 2$  m bei einem Anfangsstrahl mit 1 cm Durchmesser). Bei  $w_0 = 10$   $\mu\text{m}$  erhält man  $2z_R = 0,8$  mm.

Mitte der sechziger Jahre fanden Forscher am MIT (Cambridge, Massachusetts) und am IBM Research Laboratory (San Jose, Kalifornien) heraus, dass sich intensive Laserstrahlen in Flüssigkeiten aufgrund nichtlinearer Wechselwirkung mit dem Medium selbst auf Durchmesser der Größenordnung einiger Wellenlängen fokussieren und über Strecken, die bei weitem die Rayleigh-Länge übersteigen, in solchen Dimensionen „gefangen“ (*trapped*) bleiben [Chiao et al., 1964; Garmire et al., 1966; Brewer et al., 1968]. Sie verwenden den Ausdruck *self-trapping*, sprechen von selbstinduzierten dielektrischen Wellenleitern und prägen in diesem Zusammenhang den Begriff „Filament“. In den Experimenten wurden gütegeschaltete Laser mit Pulslängen im Nanosekundenbereich und Leistungen in der Größenordnung von 100 kW verwendet. Es gelang jedoch auch schon, 1ps-Pulse mit 20 MW Leistung zu erzeugen, wodurch Unterschiede bei der Filamentierung sehr kurzer Pulse zu den Ergebnissen mit längeren Pulsen sichtbar wurden [Brewer und Lee, 1968]. In Natriumdampf erzeugten Bjorkholm und Ashkin [1974] 12 cm lange Filamente mit einem cw-Farbstofflaser bei nur 20 mW Leistung. Dies ist auf eine hohe Nichtlinearität durch die Nähe der gewählten Laserfrequenz zu einer der starken Na-D-Resonanzen zurückzuführen.

Ende der achtziger Jahre begann die Erforschung der Wechselwirkung der nun vorhandenen hochintensiven Subpikosekundenpulsen mit Gasen, vor allem bei hohen Drücken. Zunächst stand die Weißlichterzeugung (SCG) im Vordergrund, wobei Aspekte der Filamentierung, das heißt die Selbstfokussierung und vor allem die Ionisation des Mediums,

eher als störend angesehen wurden [Corkum et al., 1986]. Anfang der neunziger Jahre schließlich entwickelte sich ein großes Interesse an der Erzeugung langer ( $> 10$  m) und ca.  $100 \mu\text{m}$  breiter Filamente in Luft bei Atmosphärendruck [Braun et al., 1995]. Dabei wurde beobachtet, dass jedes einzelne Filament weitgehend unabhängig von den Parametern der Pulse etwa 1 mJ der Pulsenergie trägt.

### 3.2.1 Erklärungsmodelle

Seit über dreißig Jahren existiert – zumindest bis zum Ende der neunziger Jahre – ein Streit unter den Forschern, welches von zwei Modellen, *moving focus* [Loy und Chen, 1969; Strickland und Corkum, 1994; Brodeur et al., 1997] oder *self-guiding* bzw. *self-channeling* [Brewer et al., 1968; Braun et al., 1995; Nibbering et al., 1996], die Filamentierung korrekt beschreibt (siehe Erläuterungen zu beiden Modellen weiter unten).

Grundlage aller Modelle ist jedoch zunächst die **Selbstfokussierung** (SF), die durch das Phänomen des nichtlinearen Brechungsindex – auch (optischer) **Kerr-Effekt** genannt (Gleichung 3-8) – hervorgerufen wird. Wenn ein Laserstrahl in seinem Profil ein sehr hohes Intensitätsmaximum aufweist, um das herum die Intensität radial abfällt – dies gilt z.B. für den Idealfall einer reinen Gauß-Mode –, so ist dort der Brechungsindex und somit die optische Dicke des Mediums gegenüber der Umgebung erhöht. Das heißt, das Licht erzeugt (zum Teil ohne Verzögerung, siehe Abschnitt 3.1.2) eine so genannte Kerr-Linse. Die Abnahme der Lichtgeschwindigkeit an besagtem Maximum im Strahlprofil führt zur Krümmung der Wellenfront und somit zu einer weiteren Verstärkung der Intensitätsspitze. Die SF kann aber nur dann stattfinden, wenn der Kerr-Effekt die Beugung des Strahls überkompensiert. Nach der Theorie von Marburger [1975] gibt es für einen kollimierten (beugungsbegrenzten) Strahl in einem bestimmten Medium eine **kritische Leistung** (nicht Intensität), oberhalb derer er selbstfokussiert. Die Größe  $P_{\text{kr}}$  variiert für verschiedene Strahlprofilformen leicht (typischerweise Faktoren  $< 2$ ). Für Gauß-Profile gilt etwa

$$P_{\text{kr}} = \frac{\lambda^2}{2\pi n_0 n_2}, \quad (3-13)$$

wobei  $\lambda$  die Laserwellenlänge,  $n_0$  der lineare Anteil und  $n_2$  der Koeffizient des nichtlinearen Anteils des Brechungsindexes ist.  $P_{\text{kr}}$  hängt nicht vom Strahldurchmesser  $2w_0$  ab. Bei  $\lambda = 800$  nm gilt für **Femtosekundenpulse in Luft**  $P_{\text{kr}} \approx 3$  GW. Da bei einsetzender SF der Durchmesser nicht in einfacher Form von der Weglänge  $z$  abhängt, ist der Punkt, an dem der Strahl kollabieren sollte, nicht leicht zu berechnen. Marburger erhält für die leistungsabhängige Selbstfokussierlänge die Formel

$$z_f = \frac{0,184 w_0^2 k_0}{\sqrt{P/P_{kr} - 0,852}} \quad (3-14)$$

mit  $k_0 = 2\pi/\lambda_0 = n_0\omega_0/c$ . (Bei Marburger und anderen Autoren steht 0,367 im Zähler, da er mit dem  $1/e$ - statt  $1/e^2$ -Radius des Intensitätsprofils rechnet.) Hier nun spielt der Strahldurchmesser eine erhebliche Rolle. Für den Fall, dass der Strahl zusätzlich am Ort  $z = 0$  mit einer Optik der Brennweite  $f$  fokussiert wird, lässt sich nach Marburger die einfache Linsengleichung anwenden:

$$\frac{1}{z_{fR}} = \frac{1}{z_f} + \frac{1}{f}, \quad (3-15)$$

wobei  $z_{fR}$  die resultierende Fokusslänge aus der SF und der anfänglichen Krümmung der Wellenfront ist.

Im Prinzip ist der Durchmesser des Fokuspunkts nicht nach unten begrenzt. Bei  $z_f$  erhält man aus der Rechnung eine Singularität, der Strahl kollabiert. Tatsächlich stoppt die SF, wenn eine bestimmte Intensität erreicht ist. Dafür werden in den verschiedenen Modellen bzw. für verschiedene Medien unterschiedliche Gründe angeführt, z.B. eine Sättigung des Kerr-Effekts durch Nichtlinearitäten höherer Ordnung. Bei Glas kommt es aber unter Umständen zur Zerstörung des Materials.

Das *moving focus-Modell* besagt, dass jeder „Zeitscheibe“ eines Pulses wegen des Anstiegs und Abfalls der Leistung entlang der Ausbreitungsrichtung eine andere Selbstfokussierlänge (Gleichung 3-14) entspricht und das Filament somit als langgezogene Fokusregion zu verstehen ist. Bei längeren Pulsen würde sich diese Region anfangs sogar in Vor- und Rückrichtung ausbreiten, ausgehend vom zeitlich ersten Fokus, der nicht dem kleinsten  $z_f$  entspricht [Loy und Shen, 1969; Shen, 1984]. Der Durchmesser des Filaments hängt von dem Effekt ab, der die Fokussierung begrenzt. Spätestens geschieht dies, wenn die Intensität den Ionisationsgrenzwert übersteigt [Marburger, 1975]. Strickland und Corkum [1994] argumentieren, dass bei der SF von kurzen (Femtosekunden-) Pulsen nicht Ionisation der limitierende Faktor sein könne, da eine ausreichende Anzahl freier Elektronen einen deutlichen Energieverlust der Pulse bewirken müsste, der in Experimenten nicht beobachtet wird. Sie schlagen stattdessen vor, dass nach der starken spektralen Verbreiterung (SCG, siehe Abschnitt 3.4) des Laserlichts die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) die Fokussierung stoppt. Die GVD hat einen um so größeren Einfluss, je kürzer der Puls ist. Dies müsste sich in einem zeitlichen Auseinanderlaufen des Pulses äußern. Es wird jedoch nicht ganz klar, wie dies mit dem *moving focus*-Bild einhergeht.

Das **self-guiding-Modell** geht von der Selbstfokussierung eines kurzen Pulses als Einheit aus. Diverse lineare und nichtlineare Effekte können dabei die räumliche und zeitliche Form des Pulses stark verändern. Die Fokussierung wird schließlich durch einen Mechanismus, oder eine Kombination mehrerer, gestoppt. Es entsteht eine Balance zwischen der defokussierenden Wirkung dieses Mechanismus, zusammen mit der normalen Beugung, und der weiterhin wirkenden SF. Das Modell entwickelte sich vor allem in Verbindung mit Experimenten zu langen Filamenten in Luft. Die Veröffentlichung von Braun et al. [1995], die damit die von ihnen gemessenen Filamente von über 20 m Länge erklären, wird zu diesem Thema am häufigsten zitiert. Im Medium Luft, um das es in dieser Arbeit geht, sorgt die **Multiphotonionisation** (MPI) für die Defokussierung.

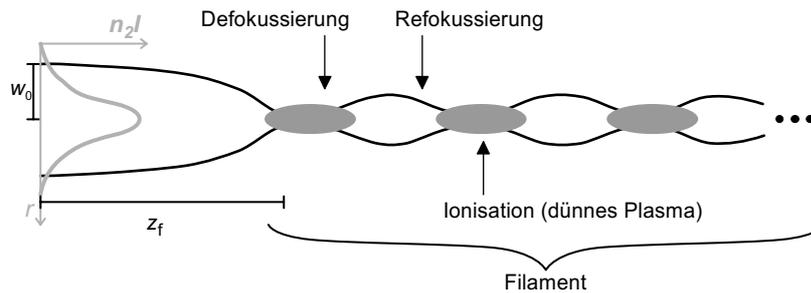
- Es folgen einige Grundlagen zur Ionisation von Luft mittels kurzer Laserpulse: Für Zeiten (Pulsauern)  $\leq 1$  ps spielt Stoßionisation, aber auch Rekombination und Anlagerung, keine große Rolle. Wichtig sind hier MPI und Tunnelionisation (TI), die z.B. durch feldbedingte Herabsetzung der Potentialbarriere ausgelöst wird. Für ein bestimmtes Ionisationspotential der Moleküle und bei fester Wellenlänge des Laserlichts gibt es einen Bereich geringerer Laserintensität (Keldysh-Parameter  $\gamma_K \gg 1$ ), in dem praktisch nur MPI stattfindet, und einen höherer Intensität ( $\gamma_K \ll 1$ ), in dem TI vorherrscht [Keldysh, 1965]. Nach Sprangle et al. [2002] lässt sich der Parameter in der Form

$$\gamma_K = 2,3 \cdot 10^6 \sqrt{\frac{U_{\text{ion}}[\text{eV}]}{\lambda^2[\mu\text{m}^2] \cdot I[\text{W}/\text{cm}^2]}} \quad (3-16)$$

darstellen. Für  $\lambda = 0,8 \mu\text{m}$  und ein Ionisationspotential  $U_{\text{ion}}$  von 15,6 eV bei Stickstoff (78% Luftanteil) und 12,1 eV bei Sauerstoff (21%) erhält man  $\gamma_K = 1$  für die Intensität  $I = 1,2 \cdot 10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ . Dies liegt nur leicht über dem Wert der kritischen Intensität  $I_{\text{kr}}$ , bei der Ionisation einsetzt. Empirisch ist  $I_{\text{kr}} = 4 \cdot 10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$  bestimmt worden [Kasparian et al., 2000a]. Die Dichte freier Elektronen  $\rho$ , die an einem Ort entsteht, den der Laserpuls durchläuft, ergibt sich aus der Ratengleichung

$$\frac{\partial}{\partial t} \rho(t) = \sigma^{(K)} I^K(t) [N_0 - \rho(t)], \quad (3-17)$$

wobei  $N_0$  die anfängliche neutrale Teilchendichte und  $\sigma^{(K)} I^K$  die zeitabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit ist.  $\sigma^{(K)}$  enthält den Koeffizienten für die  $K$ -Photonenabsorption  $\beta^{(K)}$  und die  $K$ -fache Photonenenergie. Bei Luft ( $\text{N}_2$  und  $\text{O}_2$ ) ist  $K$  für 800nm-Pulse ungefähr 10 ( $K_{\text{O}} = 8$ ,  $K_{\text{N}} = 11$ ). Aus der Elektronendichte ergibt sich die Plasmafrequenz



**Bild 3-4.** Schematische Darstellung des *self-guiding* eines Femtosekundenpulses in Luft als abwechselnde Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung. Der nichtlineare Anteil des Brechungsindex im neutralen Medium (graue Kurve) hat die radiale Form der Pulsintensität  $I(r)$ . Die schwarzen Linien zeigen den Strahldurchmesser  $2w$  an. Der Anfangsbereich (links) zeigt in der Kurvenform den bekannten Verlauf der Selbstfokussierung. Die grauen Ovale zeigen Bereiche an, in denen die Luft ionisiert wird.

$$\omega_p = \sqrt{\rho e^2 / (m_e \epsilon_0)}, \quad (3-18)$$

wobei  $e$  und  $m_e$  die Elektronenladung und -masse sind. Ist  $\omega_p$  gleich der Lichtfrequenz  $\omega$ , steht in Gleichung 3-18 die so genannte kritische Plasmadichte  $\rho_{kr}(\omega)$ , oberhalb derer das Plasma für das Licht undurchsichtig wird. Bei 800 nm ist  $\rho_{kr} = 1,7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ , die Teilchendichte von Luft bei Normaldruck ist aber nur etwa  $2,5 \cdot 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ . •

Die defokussierende Wirkung der freien Elektronen ergibt sich aus der Herabsetzung des Brechungsindex um den Wert

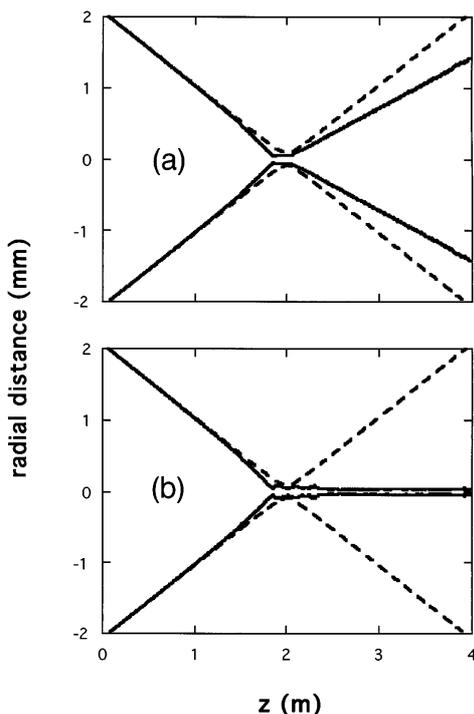
$$\Delta n_e = -\frac{\omega_p^2}{2\omega^2} = -\frac{\rho}{2\rho_{kr}(\omega)}. \quad (3-19)$$

Man kann sich das Filament im *self-guiding*-Bild nun als Raum denken, in dem sich SF und Plasmadefokussierung die Waage halten ( $n_2 I = \Delta n_e$ ). Beide Terme erreichen die Größenordnung  $\Delta n \approx 10^{-5}$ . Ursprünglich war die Vorstellung eher die einer gleichmäßigen Balance, die anhält, bis sie durch Energieverlust zerstört wird und das Filament abbricht. Neuere experimentelle Ergebnisse sowie Erkenntnisse aus Simulationen (siehe weiter unten) sprechen für ein dynamisches Gleichgewicht durch abwechselnde Fokussierung und Defokussierung. Bild 3-4 zeigt schematisch diese Form des *self-guiding*-Modells. Dabei müssen zwischen den defokussierenden Bereichen, v.a. am Anfang des Filaments, nicht unbedingt ausgedehnte neutrale Zonen auftreten. Hierfür sprechen die Hochspannungsexperimente (siehe Abschnitt 2.3). Mehrere Gruppen haben die Elektronendichte von Filamenten in Luft experimentell bestimmt [La Fontaine et al., 1999; Schillinger und Sauerbrey, 1999; Tzortzakis et al., 1999]. Die Ergebnisse liegen im Bereich von  $10^{12}$  bis

$10^{16}$  Elektronen pro  $\text{cm}^3$ . Die Spitzenwerte einzelner Filamente scheinen am oberen Rand dieses Bereichs zu liegen, was auch der Erwartung aus der Balancevorstellung des *self-guiding* entspricht [Braun et al., 1995]. Somit beträgt der maximale Anteil an einfach ionisierten Luftmolekülen nur etwa  $10^{-3}$ .

Obwohl sich bei der Betrachtung des *moving focus*-Modells einige Unstimmigkeiten zeigen – auf die hier nicht näher eingegangen werden soll –, mag es bei bestimmten (kondensierten) Medien und längeren (ns) Pulsen die Phänomene korrekt beschreiben. Als allgemeine Theorie der Filamentierung, und speziell bei Femtosekundenpulsen in Luft, scheint es allerdings ungeeignet zu sein. Diese Auffassung steht im Gegensatz zu Brodeur et al. [1997]. Ihre Argumentation, nach der die Reichweite der Filamentierung auf etwa die zweifache Rayleigh-Länge  $2z_R$  bezogen auf den Anfangsradius  $w_0$  des Strahls (siehe Gleichung 3-12) begrenzt ist, erscheint aber nicht sehr stichhaltig. Bei einem direkten Vergleich zwischen einem Experiment mit vorfokussierten Pulsen ( $f = 2$  m) und Simulationen beider Modelle sprachen sich Lange et al. [1998] klar für das *self-guiding*-Modell aus, vor allem hinsichtlich der Länge der Filamente (siehe Bild 3-5).

Letztendlich liegt der Hauptnachteil des *moving focus*-Modells in der sehr festgelegten und eingeschränkten Sicht auf das Phänomen Filamentierung. Denn bisher gibt es keine Anzeichen für eine einfache Modellvorstellung, mit der man die Vorgänge quantitativ, wenn



**Bild 3-5.** Abbildung aus [Lange et al., 1998]. Simulation der Ausbreitung eines fokussierten Pulses mit Gauß-Profil durch Luft. Anfangsbedingungen:  $\tau = 120$  fs,  $E_0 = 3,9$  mJ,  $w(0) = 3,5$  mm  $\Leftrightarrow r(0) = 2$  mm (HWB),  $f = 2$  m. Die durchgezogenen Linien zeigen die Halbwertsbreite der Intensität an. (a) *Moving focus*-Modell. (b) *self-guiding*-Modell (NLSE, SVEA, radialsymm., paraxiale Näherung), Filamentdurchmesser  $\sim 100$   $\mu\text{m}$ . Die gestrichelten Linien zeigen die lineare Ausbreitung in Vakuum an ( $w_0 = 150$   $\mu\text{m}$ , Rayleigh-Länge  $z_R = 9$  cm). In einem Experiment mit vergleichbaren Parametern haben die Autoren über 3 m lange Filamente mit einem Durchmesser von  $\sim 380$   $\mu\text{m}$  gemessen.

auch nur grob, erklären, geschweige denn die Eigenschaften der Filamente durch analytische Berechnung vorhersagen könnte. Daher werden seit Ende der neunziger Jahre große Anstrengungen unternommen, das Phänomen ausgehend vom der *self-guiding*-Vorstellung numerisch zu simulieren. Anstoß zu diesen Bemühungen waren Experimente, bei denen Filamente über Strecken von ca. 100 m (Durchmesser <0,5 mm [Brodeur et al. 1997]), bzw. über 200 m Länge (Durchmesser <2 mm [La Fontaine et al., 1999]) sowie in Filamenten erzeugtes Weißlicht durch Rückstreuung aus bis zu 13 km Entfernung [Wöste et al., 1997] gemessen wurde.

### 3.2.2 Numerische Simulationen – nichtlineare Schrödinger-Gleichung

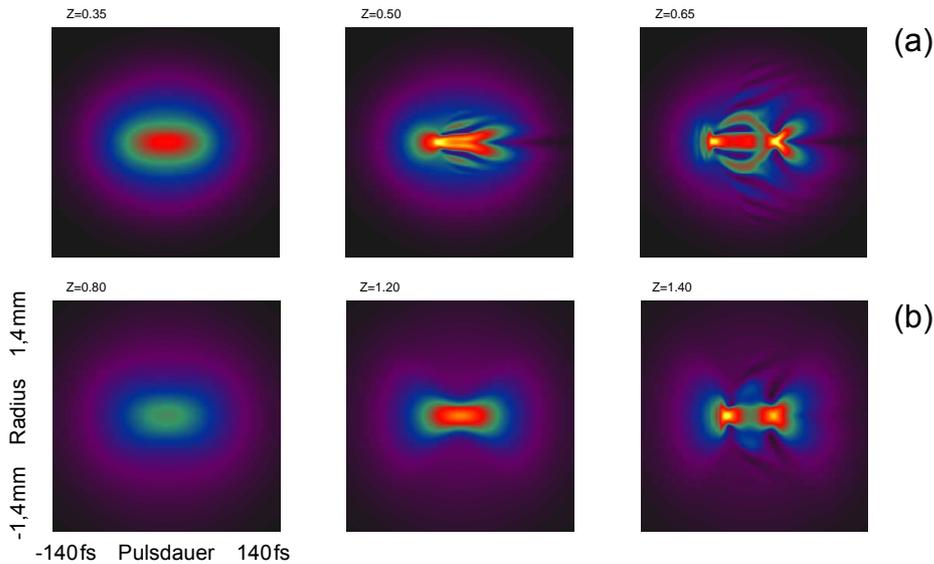
Eine exakte Simulation der Lichtausbreitung über nur wenige Meter bedeutet einen Rechenaufwand, der bis heute die vorhandenen Kapazitäten übersteigt. Die Notwendigkeit der Vereinfachung birgt, ähnlich wie die Experimente, mit denen die numerischen Rechnungen oft in enger Beziehung stehen, die Gefahr von Fehlinterpretationen. Die Verwendung der nichtlinearen Schrödinger-Gleichung (NLSE) hat sich zum Standardverfahren der numerischen Simulation entwickelt [Mlejnek et al., 1998; Chiron et al., 1999; Couairon und Bergé, 2000; Aközbek et al., 2001]. Für die Ausbreitung eines elektrischen Felds  $E(x,y,z,t)$  gilt die Wellengleichung

$$\left( \nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{E} = \frac{1}{\epsilon_0 c^2} \left( \frac{\partial \mathbf{J}}{\partial t} + \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2} \right), \quad (3-20)$$

mit der Stromdichte  $\mathbf{J} \sim \rho \mathbf{E}$ . Für eine linear polarisierte, radialsymmetrische Welle, die sich in  $z$ -Richtung als  $\mathbf{E} = \text{Re}[E_0(r,z,t) \exp(ik_0 z - i\omega_0 t)] \hat{\mathbf{e}}_z$  ausbreitet, folgt daraus in der Näherung einer sich gegenüber der Frequenz  $\omega$  langsam ändernden Einhüllenden  $E_0$  (*slowly varying envelope approximation*, SVEA) die NLSE in der Form

$$\begin{aligned} \frac{\partial E_0}{\partial z} = & \frac{i}{2k_0} \nabla_{\perp}^2 E_0 - i \frac{k''}{2} \frac{\partial^2 E_0}{\partial \tau^2} + i \frac{k_0 n_2}{2} \left( |E_0|^2 + \int_{-\infty}^{\tau} R^{(3)}(\tau - \tau') |E_0(\tau')|^2 d\tau' \right) E_0 \\ & - i \frac{k_0}{2\rho_{\text{kr}}} \rho E_0 - \frac{\beta^{(K)}}{2} |E_0|^{2K-2} E_0. \end{aligned} \quad (3-21)$$

Die Variable  $\tau$  steht für die retardierte Zeit  $t - z/v_g$ , wobei  $v_g \equiv (\partial k / \partial \omega|_{\omega_0})^{-1}$  die Gruppengeschwindigkeit des Pulses ist. Der erste Term der rechten Seite beinhaltet den Laplace-Operator bezüglich des transversalen Strahlradius  $r_{\perp} = \sqrt{x^2 + y^2}$ . Der zweite Term mit  $k'' \equiv \partial^2 k / \partial \omega^2|_{\omega_0}$  steht für die GVD. Der dritte stellt den Kerr-Effekt dar (siehe Gleichung



**Bild 3-6.** Abbildung aus [Skupin, 2001]. Numerische Simulation der Ausbreitung von kurzen Pulsen (100 fs volle HWB,  $\lambda = 775$  nm,  $w_0 = 0,7$  mm) in Luft mittels einer 2D+1-SVEA-NLSE mit Kerr-Effekt, MPI, Plasmadefokussierung und GVD. Dargestellt ist die Feldamplitude  $|E_0|$ . Die Skalen links unten gelten für alle Bilder. Die Ausbreitungslänge  $z$  ist in Meter angegeben. (a) Pulsleistung  $9,9$  GW =  $5,8P_{kr}$ . (b) Pulsleistung  $3,4$  GW =  $2P_{kr}$  ( $n_2 = 5,6 \cdot 10^{-19}$  cm<sup>2</sup>/W wurde hier angenommen).

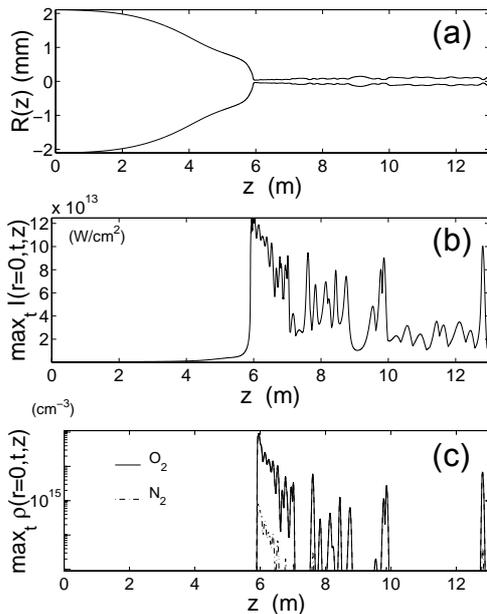
3-8), wobei hier aber berücksichtigt wird, dass dieser teilweise verzögert auftreten kann, was durch die Response-Funktion dritter Ordnung  $R^{(3)}$  ausgedrückt wird. Der vierte Term enthält die Herabsetzung des Brechungsindex durch die mit der Dichte  $\rho$  vorhandenen freien Elektronen (Gleichung 3-19). Der fünfte schließlich ist der Verlustterm der MPI (vergleiche Gleichung 3-17). Das Gleichungssystem, durch dessen numerische Lösung man zum Beispiel die Lichtintensität  $I(r, z, \tau) \sim |E_0|^2$  bestimmt, wird durch Gleichung 3-17, also die zeitliche Ableitung der Elektronendichte  $\rho$  komplettiert.

Gleichung 3-21 enthält Komponenten, die zuweilen zur Reduzierung des Rechenaufwands vernachlässigt werden, wenn begründet werden kann, dass die Effekte klein sind, z.B. der GVD ( $k'' \approx 0$ ) oder der Verzögerung der nichtlinearen Polarisierung ( $R^{(3)} \rightarrow \delta$ -Funktion). Andererseits kann man das Gleichungssystem auch noch erweitern, z.B. durch Terme für höhere Ordnungen der Nichtlinearität (Sättigung des Kerr-Effekts) oder durch weitere Terme der Plasmaentstehung (Lawinenionisation) oder -reduzierung (Rekombination). Welche Teile in den jeweiligen Simulationen eine deutliche Wirkung haben und welche weniger wichtig sind, ist Gegenstand der aktuellen Forschung. Diese Frage wird auch bei der Behandlung der spektralen Pulseigenschaften (Abschnitt 3.4) aufgegriffen.

Bild 3-6 zeigt ein Beispiel für eine Simulation einer radialsymmetrischen Pulsausbreitung (2D-Raum+Pulszeit) durch numerische Lösung der NLSE wie in Gleichung 3-21, jedoch ohne  $R^{(3)}$ -Verzögerung. Gerechnet wurde mit einer dynamischen Diskretisierung zur Optimierung des Verhältnisses zwischen Rechengenauigkeit und Zeitaufwand. Dargestellt ist die Feldamplitude  $|E_0|$  (Standardfarbskala) an mehreren Punkten der Ausbreitung  $z$  für unfokussierte 100 fs lange Pulse bei zwei unterschiedlichen Anfangsenergien. Nach Gleichung 3-14 erhält man mit den Parametern der Simulation die Selbstfokussierlänge  $z_R = 0,47$  m im Fall (a) und  $z_R = 1,3$  m im Fall (b). Diese Werte geben recht genau das Einsetzen der Ionisation bei der Simulation wieder, die folglich mit der Formel von Marburger konsistent ist.

Bei der höheren Leistung (Bild 3-6 a), d.h. dem 5,8-fachen der kritischen Leistung der SF (Gleichung 3-13), bestätigt die Simulation die Vorstellung der abwechselnden Fokussierung und Defokussierung, wie sie in Bild 3-4 dargestellt ist. Ein Großteil der Ringstruktur, die durch die Defokussierung entsteht, beugt sich dort, wo die Luft nicht ionisiert ist, zurück zur Mittelachse. Mlejnek et al. [1998] sprechen davon, dass intensive (Sub-)Pulse erst erzeugt, dann absorbiert werden und das Wellenpaket dann wieder durch neue Pulse „aufgefüllt“ wird. Bei einer Eingangsleistung von nur  $2P_{kr}$  (b) ist fast keine Ringstruktur zu sehen, der Puls scheint sich auf der Mittelachse zu teilen. Dies ähnelt dem Phänomen der **Pulsaufspaltung** (*pulse splitting*), das in Simulationen ohne Ionisation sowie experimentell, mit 90fs-Pulsen der Leistung  $\sim 2P_{kr}$  in BK7-Glas, beobachtet worden ist [Ranka et al., 1996]. Den Effekt hat man daher hauptsächlich der Wirkung der GVD zugeordnet, trotzdem ist es möglich, dass in der Realität MPI die dominante Rolle spielt. In diesem Zusammenhang erscheinen noch weitere Begriffe, wie z.B. Selbstverkürzung oder soliton-ähnliche Ausbreitung von Pulsen. Bei der Untersuchung dieser Effekte wird die Bedeutung von MPI und GVD verglichen [Bergé und Couairon, 2001].

Ein weiteres Beispiel mit einer etwas erweiterten NLSE ist in Bild 3-7 dargestellt. Ein 50fs-Puls mit einer Leistung von ca.  $30P_{kr}$  bildet ein über 6 m langes Filament aus. Auf der Mittelachse schwankt das Intensitätsmaximum etwa zwischen  $2 \cdot 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> und  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> (Teilbild b). Da die Plasmadichte  $\rho$  von  $I^K$  ( $K \geq 8$ ) abhängt, gibt  $\rho$  die Struktur der Intensität in deutlich verstärkter Form wieder (man beachte die logarithmische Skala in Teilbild c). Aus demselben Grund treten freie Elektronen nur im sehr achsennahen Bereich auf [Skupin, 2001]. Interessant ist, dass Sauerstoff aufgrund des etwas geringeren Ionisationspotentials bzw.  $K$ -Werts hundertmal mehr ionisiert wird als Stickstoff. Am Anfang des Filaments ist die Elektronendichte über mehr als einen Meter relativ hoch. Vermutlich überschneiden sich hier De- und Refokussierung noch, wie in Bild 3-6 (a) zu sehen ist.



**Bild 3-7.** Abbildung aus [Couairon et al., 2002]. Simulation der Ausbreitung von unfokussierten Pulsen mit 50 fs Länge und 5 mJ Energie. Ähnliches Verfahren wie bei Bild 3-6, jedoch mit zur Hälfte verzögertem Kerr-Effekt und getrennter Behandlung der Ionisation von  $N_2$  und  $O_2$ . (a) Halbwertsbreite des Pulses. (b) Zeitlicher Maximalwert der axialen Intensität und (c) der Elektronendichte getrennt für beide Moleküle.

Dahinter treten die Bereiche hoher Ionisation in zunehmenden Abständen auf. Dies könnte die Erklärung für das perlschnurartige Nachleuchten der lasergelenkten Hochspannungsentladung in Bild 2-27 sein, wenn man annimmt, dass höher ionisierte Bereiche im Laserkanal auch heißeres Plasma durch Ionisationslawinen bei der Entladung hervorrufen (es sei bemerkt, dass das Leuchten links im Bild an einer Drahtspitze beginnt, der helle Punkt rechts aber keinen Kontakt zur Elektrode hat). Die Beziehung zwischen Filamentlänge und dem Auftreten von Plasma ist für die Blitzanwendung von großer Bedeutung.

Für starke Fluktuationen der Intensität sprechen auch Beobachtungen bei Experimenten des Teramobile-Projekts, die bei aktuell stattfindenden (plasmaspektroskopische Fernerkundung, siehe im Ausblick). Bei der Optimierung der Plasmaemission von einer festen Oberfläche unter Laserbeschuss wirken sich geringe Änderungen der Pulslänge zuweilen deutlich aus, wenn durch die veränderte Pulsleistung die Filamente entlang der Ausbreitungsrichtung um weniger als einen Meter verschoben werden.

In Versuchen mit Einzelfilamenten beobachtet man, dass diese Energie in der Größenordnung von 1 mJ tragen, bzw. etwa 5% bis 20% der Pulsenergie. Gemeint ist damit die Energie, die innerhalb eines Radius von ca. 100  $\mu\text{m}$  gebündelt ist. Die große Bedeutung der Lichtenergie, die sich in einem gewissen Abstand zur Mittelachse und damit deutlich außerhalb des intensiven, ionisierenden Kanals befindet, zeigt sich in Versuchen, bei denen Lochblenden von z.B. 400  $\mu\text{m}$  Durchmesser [Aközbeek et al., 2002] ein aktives Filament zerstören. Ein beeindruckendes Experiment, das die Vorstellung von einem für die dyna-

mische Ausbreitung des Filaments notwendigen **Photonenreservoir** (auch *photon bath*) bestätigt, ist der Gruppe von J.-P. Wolf in Lyon gelungen [Courvoisier et al., 2003]. 7mJ-Pulse (120 fs) wurden leicht fokussiert ( $f=5\text{ m}$ ) und an Positionen zwischen 1 m und 3 m hinter dem Anfang des Filaments zentral auf einzelne 95  $\mu\text{m}$  große Tintentröpfchen (Transmission 5%) gelenkt. Das Filament bestand nach der Kollision mit dem Partikel weiter, wobei sich die Energie innerhalb des Filaments bei jeder Distanz nur um ca. 15% verringerte. Die gleiche Energieabnahme wurde auf nur etwa 0,5 m freiem Luftweg beobachtet. Das heißt, dass die Tröpfchen die Filamentlänge ( $\sim 4\text{ m}$ ) kaum verringerten. Gemessen wurde die Energie, z.B. 2,5 mJ bei 1 m, hinter einer Aluminiumfolie, durch die sich das Filament selbst ein Loch brannte.

Bei der weit überwiegenden Mehrheit der Experimente über die Filamentierung von Laserpulsen in Luft werden Titan-Saphir-Laser verwendet. Das heißt, man arbeitet mit Zentralwellenlängen im Bereich von 800 nm. Es sei aber darauf hingewiesen, dass das Phänomen auch im UV bei ca. 250 nm [Schwarz et al., 2000] und im Sichtbaren bei ca. 500 nm [Mikalauska et al., 2002] beobachtet und untersucht worden ist.

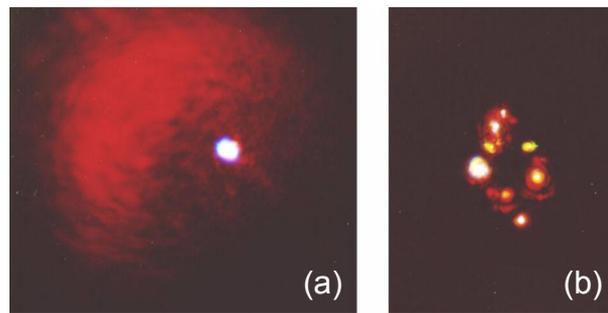
### **3.3 Filamentierung von Terawattpulsen in Luft – Eigenschaften und Steuerbarkeit**

Alle Schilderungen des vorigen Abschnitts beziehen sich auf Einzelfilamente. Experimentell lassen sich die beschriebenen Phänomene am besten mit Lasern untersuchen, die bei Pulslängen im Bereich von 100 fs etwa 5 mJ bis 10 mJ Pulsenergie liefern. Hat man zusätzlich ein relativ sauberes Strahlprofil, erhält man in der Regel ein einzelnes Filament durch radialsymmetrische Selbstfokussierung des gesamten Strahlquerschnitts. Die Ergebnisse lassen sich dann quantitativ mit den entsprechenden Simulationen vergleichen. In dieser Arbeit geht es jedoch um die Anwendung von Terawattpulsen, das heißt um Pulsenergien zwischen 100 mJ und 500 mJ. Bei solch hohen Leistungen kommt es praktisch immer zu Multifilamentierung (MF), der Ausbildung vieler über das Strahlprofil verteilter Filamente. Ein Ausnahmefall kann dann auftreten, wenn das Profil für einen Terawattlaser ungewöhnlich sauber ist und der Strahl durch eine präzise Optik vorfokussiert wird (Bild 3-8). Will man viel Energie in intensiven Filamenten transportieren, ist diese Variante aber nicht effektiv, da man große „Verluste“ im umgebenden Strahlkegel erhält.

### 3.3.1 Multifilamentierung

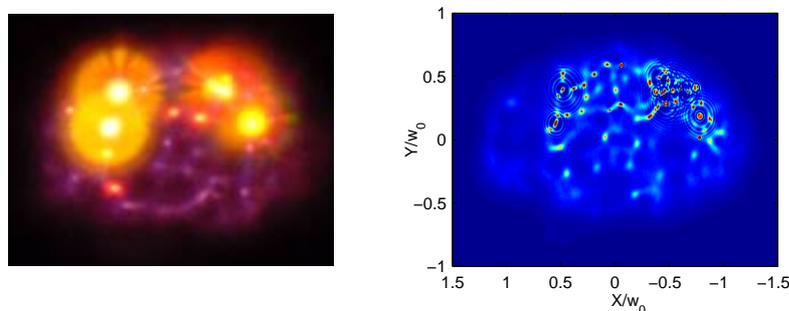
Es wird allgemein angenommen, dass ein einzelnes Filament nicht mehr als wenige Millijoule Energie tragen kann. Wie das Beispiel des fokussierten Strahls in Bild 3-8 zeigt, ist dies aber keine hinreichende Begründung für das Auftreten von MF. Die Aufspaltung in mehrere Filamente wurde seit Anfang der Erforschung der Filamentierung (in Flüssigkeiten) beobachtet. Schon Bespalov und Talanov [1966] schlugen vor, dass Diskrepanzen zwischen theoretischen Überlegungen und Experimenten hinsichtlich der Selbstfokussierlänge mit Aufspaltung in Multifilamentstrukturen zu erklären seien. Als Ursache nennen sie zufällige kleinskalige Modulationen des Strahlprofils und schätzen die Leistung eines einzelnen Filaments mit  $(\pi^2/4)P_{kr}$  ab. Tzortzakis et al. [2001] haben experimentell nachgewiesen, dass bei Pulsen von  $\sim 25P_{kr}$  der Strahl am Anfang der Filamentierung in zwei Filamente aufspalten kann und diese dann nach wenigen Metern zu einem Kanal von  $\sim 100 \mu\text{m}$  Durchmesser zusammenwachsen. Sie beobachteten dies bei fokussierten und unfokussierten Strahlen. Auch bei der Messung, die in Bild 3-8 (a) dargestellt ist, muss man davon ausgehen, dass streckenweise nicht wirklich ein einzelnes sondern zwei bis drei Filamente existierten. Nach 8 m Strecke ab der Linse wurde aber ein einziges radialsymmetrisches Maximum gemessen, das wegen der Divergenz nach dem Ende des Kanals einen Durchmesser von 1 mm aufwies. Skupin et al. [2002] sowie Fibich und Ilan [2001] haben ein solches Aufbrechen der Rotationssymmetrie numerisch simuliert. Erstere haben die Wirkung von zirkularen Instabilitäten untersucht, letztere haben gezeigt, dass theoretisch die lineare Polarisierung des Lichts ausreicht, um schon bei einer Leistung von  $5P_{kr}$  die Symmetrie zu brechen.

Die **komplexe Struktur der Multifilamentierung von Terawattpulsen** wurde in Kapitel 2, Abschnitt 2.4.2 gezeigt. Mlejnek et al. [1999] haben erstmals mit einer 3D+1-Simulation die vielfache Entstehung und Auflösung von Filamenten und deren Wechselwirkung mit dem Energiereservoir des Pulses beobachtet. Bei ihrer Untersuchung einer  $6 \text{ mm} \times 6 \text{ mm}$  großen Zelle auf einer 12 m langen Strecke zeigt sich eine Bündelstruktur vieler kurzer ( $< 1 \text{ m}$ ), räumlich und zeitlich über den Puls verteilter Plasma-Filamente, die im Ganzen über einige Meter stabil ist. Sie nennen dies einen optisch turbulenten Lichtleiter. Dabei wurde mit einer Leistung von  $35P_{kr}$  gerechnet. Um jedoch die reale Ausbreitung von Terawattpulsen (bis zu  $1000P_{kr}$ ) mit mehrere Zentimeter großen Querschnitten über bis zu hundert Meter in Luft (Abschnitt 2.4.2) in akzeptabler Zeit rechnen zu können, muss man wiederum Vereinfachungen bei der numerischen Lösung des NLSE-Systems einführen. Durch ein Verfahren der Mittelung über die Pulsdauer, wodurch das Problem um eine Dimension reduziert wird, gelang es mit guter Übereinstimmung die Teramobile-Messun-



**Bild 3-8.** „Einzelfilament“-Erzeugung mit dem TW-Laser des IOQ Jena (200 fs, 3m-Linse, 150 mJ nach der Linse). Digitalkamera-Aufnahmen von weißem Papier etwa 8 m hinter der Linse, Bildhöhe ca. 10 cm. (a) Linse in 90°-Stellung zum Strahl. Weißer Punkt: volle HWB ca. 1 mm, Energiegehalt ca. 3 mJ. (b) Linse in 70°-Stellung. Die Verkippung der Linse bewirkt das Aufbrechen in viele Filamente.

gen an der FU Berlin numerisch zu simulieren [Bergé et al., 2004]. Dabei wurde das gemessene Laserprofil am Ausgang des Kompressors (siehe Digitalisierung in Bild 2-36) als Anfangsbedingung verwendet. Bild 3-9 zeigt als Beispiel den Vergleich zwischen dem gemessenen Profil des unfokussierten Strahls nach 15 m Luftweg mit dem entsprechenden Ergebnis der Simulation. Diese Untersuchungen haben gezeigt, dass es einerseits stabile Kanäle mit Filamenten gibt, die an starken Inhomogenitäten (*hot spots*) des Strahlprofils entstehen und sich über viele Meter erhalten, andererseits Regionen mit relativ stabilen Strukturen aus vernetzten „Dämmen“ erhöhter Intensität. Auf diesen entstehen – etwa wie von Mlejnek et al. [1999] beschrieben – an wechselnden Positionen Filamente, die nach kurzer Strecke wieder verschwinden und dabei ihre Energie größtenteils an das Reservoir zurückgeben. Solche Netzstrukturen sind in Bild 3-9 bei der Messung und der Simulation zu erkennen, noch deutlicher aber in Bild 2-29 (b).



**Bild 3-9.** Simulation der Multifilamentierung von 2TW-Pulsen. Links: Teramobile-Messung, unfokussierter 150fs-Puls bei 15 m (wie in Bild 2-35). Rechts: Pulszeitgemittelte 3D-Simulation des Strahlprofils nach 15 m Luftweg, ausgehend vom digitalisierten Laserprofil (dargestellt in Bild 2-36) [Bergé et al., 2004].

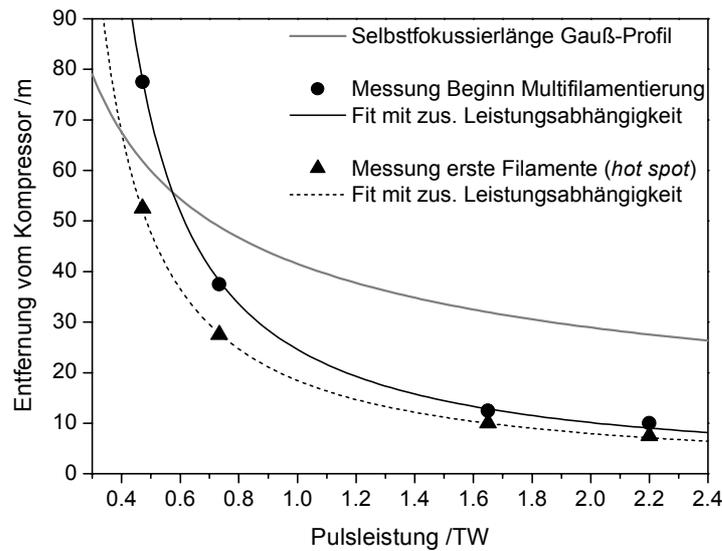
Trotz der erzielten Übereinstimmung zwischen Simulation und Experiment ist wegen der notwendigen numerischen Vereinfachungen ein quantitativer Vergleich, vor allem hinsichtlich der Ausbreitungslänge  $z$ , immer noch problematisch. Auch lassen sich weiterhin nicht beliebig lange Strecken rechnen. Ziel der theoretisch-numerischen Arbeiten ist es, die wesentlichen Mechanismen herauszufiltern, um dann die Berechnung zu vereinfachen. Bis zu welchem Punkt dies möglich sein wird ist noch ungewiss. Im gegenwärtigen Stadium liefern also noch eher die Messungen Informationen für die Simulationen, als dass die Rechnungen als Informationsquelle für die Experimente dienen könnten. Für die Langstreckenversuche in der Atmosphäre möchte man vor allem den Startpunkt, die Länge und die Abstrahlcharakteristik der Filamentkanäle vorhersagen und steuern können, indem man ihre Abhängigkeit von den Lasereigenschaften (z.B. Strahlprofil) und den einstellbaren Parametern kennt.

### 3.3.2 Startpunkt der Filamentierung

Von den genannten interessierenden Größen ist der Startpunkt der Filamentierung experimentell am einfachsten zu bestimmen, wie in Abschnitt 2.4.2 beschrieben, aber auch rechnerisch am ehesten zu erfassen. Denn er entspricht im Wesentlichen der Selbstfokussierlänge  $z_f$ . In Experimenten mit Einzelfilamenten wird die Gültigkeit der Gleichung 3-14 bestätigt. Im Fall der MF von Terawattpulsen ist die Gleichung, die  $z_f$  für ein ideales Gauß-Profil mit  $1/e^2$ -Radius  $w_0$  liefert, natürlich nicht ohne weiteres anwendbar. Bild 3-10 zeigt Messwerte des 90m-Experiments an der FU Berlin in Abhängigkeit der anfänglichen Pulsleistung (berechnet aus der Pulsenergie und den unterschiedlichen Pulslängen) im Vergleich mit  $z_f$  aus Gleichung 3-14 (graue Kurve). Die Lage der Kurve ist nicht ganz eindeutig aufgrund der etwas unklaren Definition von  $w_0$  im Experiment. In jedem Fall aber zeigt sie in der Form und den Werten bei höherer Leistung große Unterschiede gegenüber den Messpunkten. Die Fitkurven in Bild 3-10 basieren auf der Formel

$$z_{MF} = \frac{0,184k_0 w_0^2 / (\alpha P^{0,5})}{\sqrt{\frac{P/\beta}{P_{kr}} - 0,852}}, \quad (3-22)$$

einer Erweiterung der Gleichung 3-14. Zunächst wurden  $\alpha$ ,  $\beta$  und der Exponent von  $P$  im Zähler variiert. Bei der besten Anpassung ergeben sich aber bei beiden Punktmengen der Messung fast gleiche Werte für  $\alpha$  und den Exponenten (0,5). Da  $\alpha$  aber vermutlich von  $w_0$  abhängt, ist es sinnvoller den Koeffizienten in der Gleichung als unbestimmte Größe zu schreiben. Für die Fitkurven in Bild 3-10 wurde  $\alpha = 25 \text{ TW}^{-0,5}$  bei  $w_0^2 = 2 \text{ cm} \times 2,5 \text{ cm}$



**Bild 3-10.** Beginn der Filamentierung von 330mJ-Pulsen bei unterschiedlichen Pulsleistungen (bzw. -längen, Messpunkte sind aus denen in Bild 2-37 umgerechnet). Die graue Kurve zeigt die theoretische Selbstfokussierlänge  $z_f$  für ein Gauß-Profil mit dem Durchmesser aus der Messung. Die Messpunkte stehen für den Beginn der MF (●) und der *hot spot*-Filamente (▲). Die Formel der Fitkurven ist im Text erklärt.

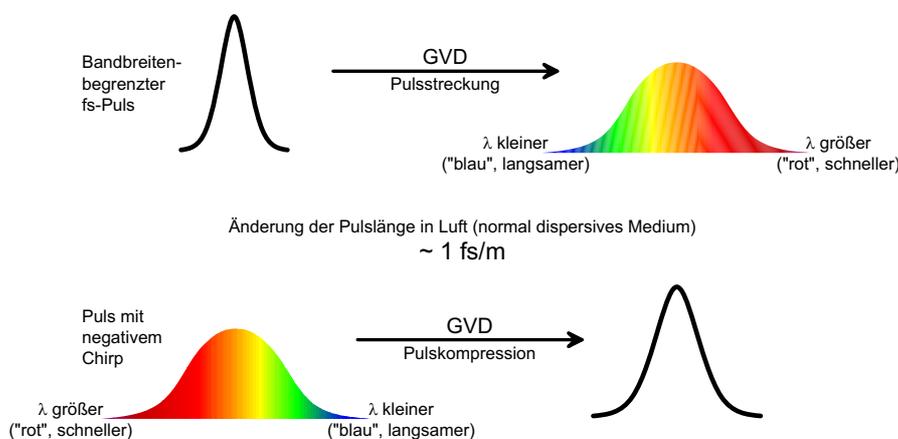
(ovales Strahlprofil) verwendet. Der eigentliche Fitparameter ist somit  $\beta$ . Für die Messung der Entfernungen, bei denen etwa über das gesamte Strahlprofil MF einsetzt (●), erhält man  $\beta = 81$ , für den Beginn der Filamentierung am Intensitätsmaximum (▲)  $\beta = 57$ .

Dieses Ergebnis und die Formel 3-22 insgesamt kann man folgendermaßen deuten. Die der Einzelfilamentierung äquivalente Fläche beträgt etwa  $1/25$  des gesamten Strahlprofils  $w_0^2$ . Dabei hängt der genaue Anteil aber von  $1/\sqrt{P}$  ab. Mit steigender Anfangsleistung reduziert sich also die äquivalente Fläche leicht. Der Grund hierfür ist möglicherweise eine stärkere Selbstfokussierung des Gesamtstrahls – im Verhältnis zur Verstärkung einer lokalen Inhomogenität – bei größerer Gesamtleistung des Pulses. Wenn also die äußeren Flanken der Strahlintensität einen entsprechend großen Brechungsindexgradienten erzeugen, setzt die lokale Selbstfokussierung effektiv bei einer etwas verkleinerten Querschnittsfläche ein. Die Größe  $1/\beta$  ist ein Maß für den Anteil an der Gesamtleistung, der einer Einzelfilamentierung entspricht, und damit für die Inhomogenität des Strahlprofils. Kleinere Werte von  $\beta$  stehen für stärker ausgeprägte Intensitätsmaxima. Bei den untersuchten Messungen ergeben sich Maximalwerte der Teilleistung  $P/\beta$  von  $39 \text{ GW} = 13 P_{\text{kr}}$  für den *hot spot* und  $27 \text{ GW} = 9 P_{\text{kr}}$  für die ausgedehnte MF. Die Größenordnung dieser Werte ist insofern sinnvoll, als nur bis zu solchen oder etwas größeren Leistungen aus einem unfokussierten Strahl ein einzelnes Filament erzeugt werden kann, und zwar sowohl in der Realität als auch in

der Simulation. Die allgemeine Anwendbarkeit der Formel 3-22 müsste durch weitere Experimente überprüft werden.

Wie gesehen lässt sich die Entfernung der Filamente durch Einstellung der Leistung bzw. der Pulslänge steuern. Eine Verlängerung des Pulses durch Verstellung des Kompressors, ausgehend vom kürzesten Wert, führt immer zu einem linearen Chirp (siehe Abschnitt 1.1.1). Die Ergebnisse aus Abschnitt 2.4.2 zeigen, dass die Richtung des Chirp bei Entfernungen von einigen zehn Metern keinen nennenswerten Einfluss auf den Startpunkt der Filamentierung hat. Bei großen Distanzen muss aber die GVD berücksichtigt werden. Sie kann für eine „**zeitliche Fokussierung**“ des Pulses genutzt werden. Bei  $\lambda = 800$  nm gilt in Luft  $k'' \approx 0,2 \text{ fs}^2/\text{cm}$  [Sprangle et al., 2002]. Bei einem bandbreitenbegrenzten Puls von 70 fs Länge, was einer spektralen Breite von  $\Delta\lambda \approx 0,5\lambda^2/(c\Delta t) = 15$  nm entspricht, verlängert sich der Puls in 1 km Luftweg auf etwa 1 ps. Bei einer minimalen Pulslänge von 100 fs verringert sich die Änderung auf ca. 300 fs/km. Durch einen anfänglichen negativen Chirp und die entsprechende Pulsverlängerung lässt sich dieser Vorgang prinzipiell umkehren (siehe Bild 3-11), um den kürzesten Puls, und damit die höchste Intensität, in der entsprechenden Entfernung zu erzeugen. Da auf langen Strecken auch höhere Terme der GVD ins Spiel kommen, ist die Umkehrung mittels eines rein linearen Chirps allerdings nicht perfekt, wie in der Grafik durch den etwas breiteren Puls angedeutet ist.

Wie schon gesehen verzögert die Verlängerung der Pulsdauer die Selbstfokussierung. Ab einer bestimmten Pulslänge ohne negativen Chirp wird die GVD die Filamentierung verhindern. Noch mehr gilt dies bei positivem Chirp. Der negative Chirp eröffnet dagegen die Möglichkeit, den Beginn der Filamentierung an einen entfernten Punkt zu verlagern



**Bild 3-11.** Wirkung der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) auf kurze Pulse in einem normal dispersiven Medium, z.B. Luft. Das Wellenlängenspektrum (blau-rot) ist stark überzeichnet dargestellt.

[Rairoux et al., 2000]. Sprangle et al. [2002] haben berechnet, dass ein 5 ps langer negativ gechirpter 50mJ-Puls in 20 km Höhe fokussiert werden kann, wenn er mit einem Durchmesser von 56 cm und leicht vorfokussiert gesendet wird. Wie realistisch dies ist, scheint zumindest fraglich. Die Möglichkeit, Filamente in großer Entfernung zu erzeugen, ist experimentell noch nicht ausreichend untersucht. Bei den Messungen an der Sternwarte in Tautenburg wurden Pulse mit negativem Chirp vertikal in die Atmosphäre gesendet (Abschnitt 2.1.3). Die Lage der Filamente konnte hierbei aber nicht direkt gemessen werden. Indirekt lassen sich aber Informationen über sie erhalten (siehe Abschnitt 3.3.3).

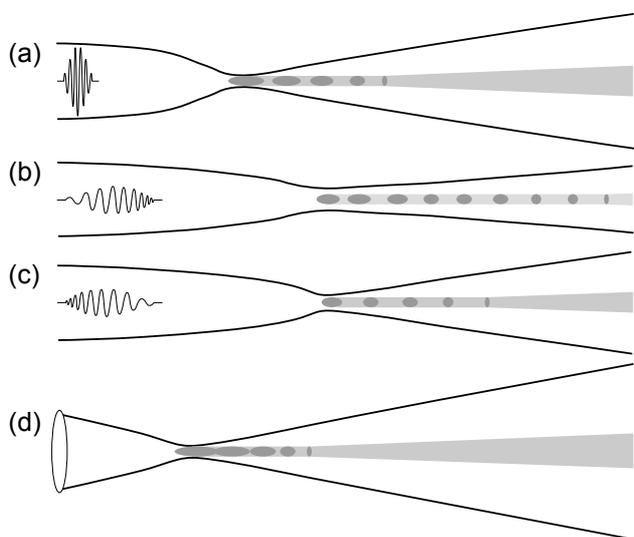
### 3.3.3 Länge der Filamente

Nach dem Startpunkt wird nun die Länge der Filamente und deren Steuerbarkeit behandelt. Wie in Abschnitt 2.4.2 beschrieben, ist die experimentelle Bestimmung des Endes der Filamente nicht einfach. Dabei ist noch nicht einmal eindeutig klar, wie das Ende definiert sein soll. Eine mögliche Definition ist der entfernteste Ort, an dem Ionisation auftritt. Methoden, die in den letzten Jahren zur Ortung der Filamente vorgeschlagen worden sind, basieren auf der Messung des Plasmas, direkt über die elektrischen Eigenschaften [Proulx et al., 2000] bzw. indirekt über die Emission von N<sub>2</sub>-Fluoreszenzlicht [Talepour et al., 1999], Terahertzstrahlung [Tzortzakis et al. 2002] oder Schallwellen [Yu et al., 2003]. Diese Verfahren sind zum Teil sehr aufwendig. In jedem Fall müssen sie am Objekt durchgeführt werden und sind daher für Langstreckenversuche, zumal bei vertikalem Senden, ungeeignet. In Verbindung mit dem Bild vom Photonenreservoir bei MF gibt es aber auch Anzeichen dafür, dass über den Plasmabereich hinaus – zumindest in längeren Abschnitten, in denen Ionisation nur noch sehr sporadisch lokale Selbstfokussierung stoppt – filamentartige Strukturen mit hohen Intensitätsspitzen auftreten. Solange Teile des Strahls selbstfokussieren, können andere nichtlineare Effekte, z.B. Änderungen des Spektrums, auftreten. Das Ende wäre dann dort, von wo an sich das Licht nur noch mit normaler Divergenz ausbreitet.

Bei der Beschreibung der Teramobile-Messungen in Abschnitt 2.4.2 war zu sehen, dass bei 330mJ-Pulsen mit steigender Pulslänge (d.h. bei verringerter Leistung) die Länge der Filamente stark zunimmt. Eine Erhöhung der Anfangsintensität verringert also die Filamentlänge. Einen ähnlichen Effekt beobachtet man bei Fokussierung des Strahls. Eine kürzere Brennweite führt zu kürzeren Filamenten (vergleiche Abschnitt 2.4.3). Ein typischer Erfahrungswert ist, dass die Filamentlänge etwa die Größenordnung der Brennweite hat, wenn der Strahldurchmesser im Bereich einiger Zentimeter liegt (der eigentliche Parameter ist die f-Zahl). Tatsächlich hängt die Länge natürlich noch von anderen Größen ab, z.B. der

Pulsenergie. Für die Verkürzung der Filamente gibt es zwei mögliche Erklärungen. Erstens: Aus der experimentellen Untersuchung des Weißlichtspektrums (Korrelation zwischen Ionisation und der Erzeugung von kurzwelligem Licht, siehe dazu Abschnitt 3.4.2) und aus Simulationen [Chiron et al., 1999] kann man schließen, dass die Fokussierung die Ionisation (am Beginn der Filamentierung) erhöht. Dadurch verliert der Strahl schneller an Energie. Zweitens: Die Filamentierung wird nur durch den Austausch mit dem umgebenden Photonenreservoir erhalten. Dieses divergiert aber durch die Fokussierung stärker (siehe Bild 3-8 a). Vermutlich spielen beide Aspekte eine Rolle, je nach Situation in unterschiedlichem Verhältnis zueinander. Der zweite Punkt lässt sich fast direkt auf den Fall reiner Selbstfokussierung übertragen. Bei höherer Leistung wird der Strahl als Ganzes stärker komprimiert (siehe Deutung der Formel 3-22). Dadurch erhält er eine größere Divergenz hinter dem Startpunkt der Filamentierung. Bei den Messungen auf der 90m-Strecke wurde aber auch beobachtet, dass bei positivem Chirp die Filamente deutlich kürzer sind, als bei vergleichbarer Pulslänge mit negativem Chirp. Aufgrund der Kürze der Strecke ( $<30$  m bei 400 fs, positiver Chirp) kann dies nicht mit der „zeitlichen Fokussierung“ durch GVD erklärt werden. Auch eine höhere Ionisation scheint bei positivem Chirp eher nicht vorzuliegen (spektrale Eigenschaften). Somit bleibt aus dem bisher diskutierten als Erklärung nur, dass der positiv gechirpte Puls stärker komprimiert, bevor die Selbstfokussierung gestoppt wird.

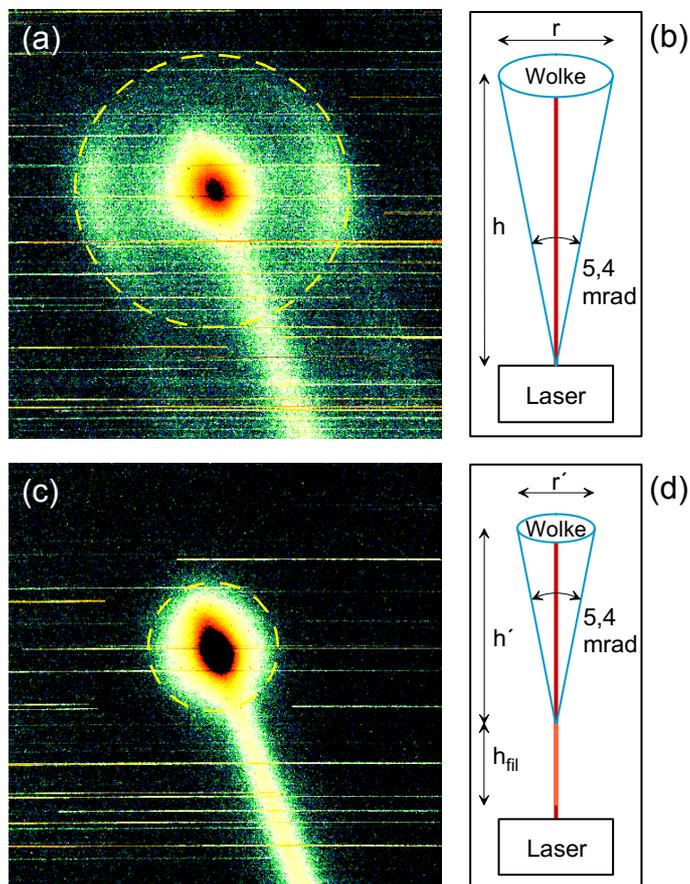
Bild 3-12 stellt den Versuch dar, die obigen Ausführungen grafisch zu veranschaulichen. Das Filament endet, wenn ein bestimmter Teil der Energie in die Ionisation geflossen ist und/oder die umgebende Strahlung einen bestimmten Durchmesser überschreitet. Bei



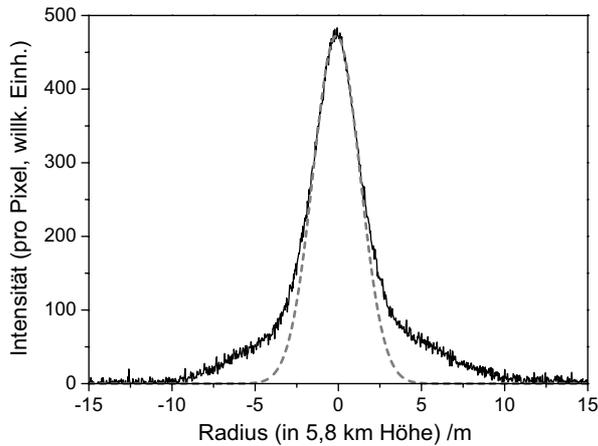
**Bild 3-12.** Abhängigkeit der Filamentlänge von Pulsdauer (Intensität), Chirp und Fokussierung (empirische Modellvorstellung). Schwarze Linien: äußerer Rand des Strahls bzw. Photonenreservoirs, dunkelgraue Bereiche: Plasma, hellgrau: im Filament gebündeltes, verändertes und von ihm emittiertes Licht. (a) Kurzer, intensiver Puls. (b) Verlängerter Puls mit negativem Chirp. (c) Verlängerter Puls mit positivem Chirp. (d) Fokussierter Strahl.

dieser Deutung der experimentellen Ergebnisse handelt es sich zum Teil noch um Hypothesen, vor allem hinsichtlich der Chirpabhängigkeit. Zukünftige Experimente und theoretische Untersuchungen werden vermutlich mehr Klarheit schaffen. Die vereinfachte Darstellung zeigt jeweils nur ein einzelnes Filament, die erwähnte Möglichkeit, dass Filamente auch ohne Ionisation weiter existieren, ist in der Darstellung nicht berücksichtigt.

Im Folgenden wird beschrieben, wie man von den Bildaufnahmen des Teramobile-Laserstrahls an der Thüringer Landessternwarte (TLS, Abschnitt 2.1.3) indirekt auf die Existenz von **Filamenten in Kilometerhöhe** schließen kann. Bei einer Pulsenergie von 280 mJ wurden Pulse mit 150 fs und 600 fs Länge unfokussiert vertikal ausgesendet. Nach der Formel 3-22 – d.h. auch im Vergleich mit dem 90m-Experiment – ergeben sich für die Startpunkte der Filamentierung ca. 10 m bei 150 fs und zwischen 50 m und 100 m bei 600 fs (wegen des kleineren Strahlprofils wird  $\alpha$  mit 10 bis 20  $\text{TW}^{-0.5}$  abgeschätzt, das Profil war eher etwas glatter als bei dem früheren Experiment, d.h.  $\beta \approx 90$ ). Im Fall des kurzen Pulses kann man davon ausgehen, dass der Filamentkanal nicht wesentlich mehr als 50 m lang war (vergleiche Bild 2-37).

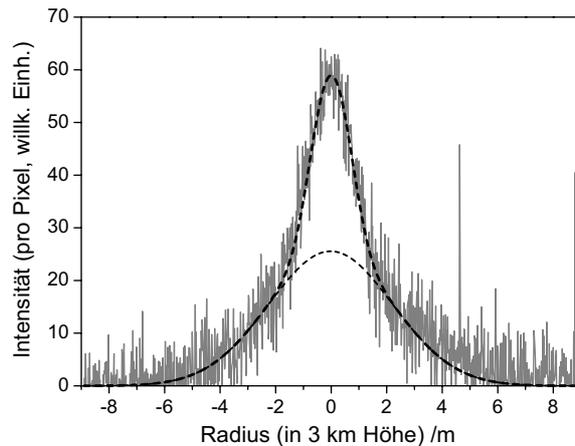


**Bild 3-13.** Unterschiedlicher Durchmesser der konischen Emission in der B-Filterbande (390 – 480 nm) bei 150 fs (a) und 600 fs, neg. Chirp (c). Die sonstigen Parameter des Lasers und der Detektion sowie die Farbskala sind gleich. (Abb. (a) ist identisch mit Bild 2-8.) Höhe der Streumaxima (Wolkenhöhe): (a) 6,0 km, (c) 5,8 km. Zeitlicher Abstand der Aufnahmen: 15 min. In (b) und (d) ist schematisch das Prinzip zur Bestimmung der Filamentlänge aus dem Vergleich der Aufnahmen dargestellt.



**Bild 3-14.** 600 fs, neg. Chirp. Horizontaler Schnitt (über 9 Pixelreihen gemittelt) durch die Wolkenstreuung (390 – 480 nm) in 5,8 km Höhe. Gestrichelt: Gauß-Fit des Zentralstrahls. Die Schultern zeigen v.a. die konische Emission, aber auch Anzeichen von Mehrfachstreuung.

Zusätzlich zum beugungsbegrenzten Zentralstrahl senden Filamente einen Teil des Lichts unter einem etwas größerem Winkel aus, der eine im Vergleich zur normalen Beugung umgekehrte Wellenlängenabhängigkeit aufweist (der Winkel ist größer für kleinere Wellenlängen). Man geht davon aus, dass diese Beziehung zwischen Winkel und Wellenlänge der so genannten konischen Emission für Filamente in einem bestimmten Medium immer gleich ist, das heißt nicht mit den Laserparametern variiert (eine ausführliche Behandlung dieses Phänomens findet sich in Abschnitt 3.5.1). Bei der Abbildung durch einen schmalbandigen Filter im blauen Spektralbereich (390 nm – 480 nm) sieht man die konische Emission in Form eines hohlen Kegels bzw. als Ring an einer Hochnebelschicht (Bild 3-13 a). Die Maximallinie des Rings hat in 6,0 km Höhe (zur Höhenbestimmung siehe Anhang A) einen Durchmesser von 32 m (siehe das Schnittprofil in Bild 3-31). Bei der praktisch vernachlässigbaren Filamenthöhe von ca. 50 m entspricht dies einem Emissionswinkel von 5,4 mrad bei  $\lambda \approx 450$  nm. Etwa 15 Minuten nach der Messung mit 150 fs Pulslänge (leichter negativer Chirp) wurde eine Aufnahme bei 600 fs mit negativem Chirp gemacht (Bild 3-13 c), bei ansonsten unveränderten Bedingungen. Hier ist der Ring nun mit dem Zentralstrahl verschmolzen. Die konische Emission ist im horizontalen Schnittprofil des Streubilds von der Wolke in 5,7 km Höhe nur noch als Schulter zu sehen (Bild 3-14). Ein Vergleich der äußeren Ränder unter Einbeziehung der Wolkenhöhen liefert nach dem in Bild 3-13 (b) und (d) dargestelltem Prinzip die Höhe, die die Filamente des längeren Pulses erreichen. Als Ergebnis erhält man  $h_{\text{fil}} = (2,0 \pm 0,5)$  km. Die Größe des Fehlers resultiert daher, dass wegen des kleinen Winkels des Konus bei 600 fs kein genauer Fit wie im Fall des Ringprofils bei 150 fs möglich ist. Die analoge Auswertung zweier Aufnahmen mit dem BG39-Filter (370 nm – 580 nm), bei dem wegen der größeren Bandbreite auch bei 150 fs aus dem Ring ein Plateau wird (Bild 2-8 links), liefert das gleiche Ergebnis.



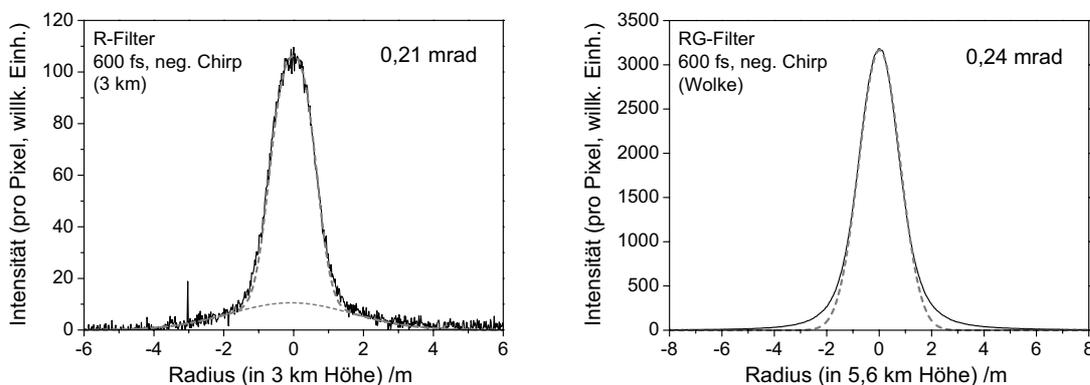
**Bild 3-15.** 600 fs, neg. Chirp. Senkrechter Schnitt (über 9 Pixelreihen gemittelt) durch den Strahl in Bild 3-13 (c) bei 3 km. Gestrichelt: Gauß-Fit des Zentralstrahls und der konischen Emission (als Untergrund, da über eine transversale Koordinate integriert).

Die Darstellung in Bild 3-13 (d) beinhaltet die Annahme, dass die konische Strahlung nur vom Endpunkt der Filamente emittiert wird. Dies entspricht nicht unbedingt den Beobachtungen bei Laborexperimenten, wo gleichmäßige konische Emission über wenige zehn Meter beobachtet wurde. Solche Experimente wurden aber bis heute nur mit leicht überkritischen Pulsleistungen durchgeführt. Bei Multifilamentierung scheint es durchaus plausibel, dass konische Emission, die in einzelnen Filamenten vor dem Ende des Kanals entsteht, zu einem großen Teil mit der umgebenden Strahlung interferiert oder nichtlinear wechselwirkt, so dass die farbigen Lichtkegel vor allem am Ende der Filamentierung in der bekannten Weise abstrahlen. Wäre die Emission über die gesamte Länge des Filamentkanals gleich, dann würde das obige Ergebnis wegen der Maximalabschätzung des Winkels für den Beginn der Filamente stehen. Dies würde aber den obigen Ausführungen bzw. der Erfahrung über die Lage des Startpunkts widersprechen.

Um das Ergebnis zu überprüfen, wurde eine weitere Auswertung auf der Grundlage der Divergenz des blauen Anteils (390 nm – 480 nm) des Zentralstrahls durchgeführt. Wieder werden die Bilder 3-13 (a) und (c) verwendet und die Überlegung ist ähnlich wie bei der konischen Emission. Man kann davon ausgehen, dass nur in den Filamenten Licht im Bereich  $\lambda \approx 400 \text{ nm} = \frac{1}{2}\lambda_0$  auftritt und es am Ende der Filamente divergent emittiert wird. Weiter wird angenommen, dass der Divergenzwinkel nicht von der Pulslänge abhängt. Die Breite des Zentralstrahls wurde an den Wolken, zur Kontrolle aber auch über die Rayleigh-Streuung der Luft in 3 km Höhe gemessen. Obwohl die gesuchte Größe der  $1/e^2$ -Radius ist, wurde bei den Fits der achsennahe Teil des Strahls angepasst (siehe Bilder 3-14 und 3-31). Denn der Randbereich überlappt mit der konischen Emission und ist außerdem auch durch Mehrfachstreuung verbreitert (Kapitel 4, Abschnitt 4.3.1). Die Winkel bezogen auf  $h = 0$  (Blickwinkel) sind  $(0,69 \pm 0,03) \text{ mrad}$  bei 150 fs und  $(0,47 \pm 0,02) \text{ mrad}$  bei 600 fs. Der

erstere Wert entspricht wegen der geringen Emissionshöhe ( $\sim 50$  m) annähernd der Divergenz. Damit erhält man für die Emissionshöhe bei 600 fs, negativer Chirp,  $(1,9 \pm 0,3)$  km. Dabei wurde vorausgesetzt, dass ab dieser Höhe das Licht die Divergenz 0,7 mrad hat. In 3 km Höhe müsste der Blickwinkel dann 0,26 mrad betragen, bzw. 0,28 mrad, wenn man berücksichtigt, dass der Strahl bis zur Höhe 1,9 km eine Divergenz von 0,17 mrad hatte (siehe Abschnitt 3.3.4). Die Auswertung des Schnitts durch das Rayleigh-Streubild aus 3 km Höhe (Bild 3-15) ist etwas problematischer als an der Wolke. Dies liegt zum Teil an der geringeren Intensität, aber auch daran, dass es sich hier um einen transversal integrierten Querschnitt handelt und die konische Emission daher einen nicht klar zu definierenden Untergrund erzeugt. Der Fit liefert  $(0,3 \pm 0,1)$  mrad. Dieser Wert ist zwar sehr ungenau, bestätigt aber eher die Erwartung von 0,28 mrad, als dass er dem Blickwinkel 0,47 mrad ähnelt. Dies spricht für die längeren Filamente und gegen eine kleinere Divergenz als Erklärung für den Blickwinkel 0,47 mrad, im Vergleich zu 0,7 mrad bei 150 fs Pulslänge. Somit stimmen die Ergebnisse aus den Auswertungen der konischen Emission und der Divergenz überein.

Auch wenn die Ursache für den Längenunterschied der Filamente bei positiv und negativ gechirpten Pulsen zunächst in der transversalen Komprimierung des Strahls liegt – d.h. am Anfang der Filamentierung –, ist das Auftreten solch langer Filamentkanäle sicher nur durch die **komprimierende Wirkung der GVD** zu erklären. Die Kompensation der GVD durch einen negativen Chirp ist also eine notwendige Voraussetzung. Die Möglichkeit kilometerlange Filamente zu erzeugen ist für die Anwendungen in der Atmosphäre von großer Bedeutung. Einerseits wirkt sich die Länge des intensiven Kanals auf die Effizienz der



**Bild 3-16.** Querschnittsprofile des Laserstrahls (600 fs, negativer Chirp), Bestimmung der Blickwinkel (Divergenz). Links: 570 – 720 nm, transversale Projektion, gemittelt über 9 Pixelreihen, schwache konische Emission als Untergrund, Bildunschärfe als leichte Deformation der Gauß-Kurve sichtbar (korrigiert). Rechts: 840 – 970 nm, Schnitt durch Wolkenbild, gemittelt über 3 Pixelreihen, verbreiterte Schultern aufgrund von Mehrfachstreuung (vgl. Bild 3-14: konische Emission und Mehrfachstreuung).

Weißlichterzeugung aus, andererseits ist es für bestimmte zukünftige Anwendungen (Messung von Aerosolen, Beeinflussung von Blitzen) wichtig, dass in einer bestimmten (großen) Entfernung eine hohe Intensität und damit nichtlineare Wechselwirkung vorliegt. Ein weiterer wichtiger Aspekt für die Lidar-Anwendungen ist die stark erhöhte Rückwärtsstreuung von Filamenten in Luft im Vergleich zur normalen Rayleigh-Mie-Streuung. Diese wurde in Laborexperimenten an einzelnen Filamenten nachgewiesen [Yu et al., 2001].

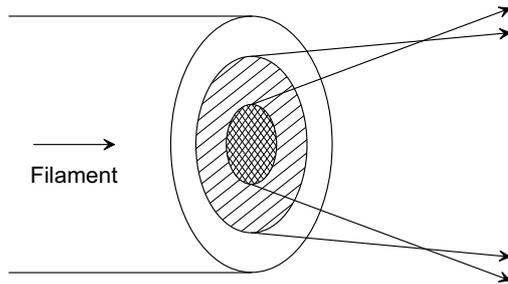
### 3.3.4 Divergenz nach der Filamentierung

In diesem Abschnitt wird behandelt, wie das Licht von den Filamenten in Vorwärtsrichtung emittiert wird. Dabei interessiert die Abhängigkeit von der Wellenlänge sowie von den Laserparametern Pulslänge/Chirp und Fokussierung. Im vorigen Abschnitt wurde bereits auf die Divergenz eingegangen und gezeigt, wie sie aus Schnitten durch die an der TLS aufgenommenen Strahlbilder bestimmt wird (siehe auch Anhang A). Zwei weitere Beispiele sind in Bild 3-16 dargestellt. Im Vergleich zur Intensität ist die Divergenz eine sichere Messgröße, da sie nicht mit atmosphärisch bedingten Fehlern (Schwankungen der Streu- und Absorptionsstruktur) behaftet ist. Tabelle 3-1 zeigt die Messwerte für die verschiedenen Farbfilter (zu den Filtern siehe Tabelle 2-1, S. 28) bei den drei Chirpeinstellungen.

**Tabelle 3-1.** Blickwinkel [in mrad] der  $1/e^2$ -Halbbreite des Laserstrahls (bei 150 fs etwa gleichbedeutend mit der Divergenz) in verschiedenen Filterbänden. Gemessen an der Wolkenschicht (Höhe variiert zwischen 5,6 km und 6,1 km), außer wenn anders vermerkt. Fehler:  $\sim \pm 0,2$  mrad, bei einstelligen Werten größer.

	<b>B</b> 390–480 nm	<b>BG</b> 370–580 nm	<b>R</b> 570–720 nm	<b>I</b> 770–950 nm	<b>RG</b> 840–970 nm
150 fs (Divergenz)	0,69	0,45	0,32	<b>0,19</b>	0,34
600 fs neg. Chirp Wolke 3 km	0,47	0,37	0,24	<b>0,17</b>	0,24
	0,3	0,28	0,21	"	0,22
600 fs pos. Chirp	-	0,44	0,25	<b>0,24</b>	0,28

Im Vergleich der Divergenzen in B- und BG-Bande zeigt sich eine **Wellenlängenabhängigkeit** bei der Emission aus den Filamenten. Vermutlich setzt sich diese bis zur Laserwellenlänge fort, obwohl wegen der Vermischung mit dem Restlicht aus den R- und I-Werten keine eindeutige Information zu ziehen ist. Die Beziehung zwischen Winkel und Wellenlänge verhält sich entgegengesetzt zur normalen Beugung bei einer Öffnung  $w_0$  ( $\theta \sim \lambda/w_0$ ). Brodeur et al. [1996] haben ein ähnliches Verhalten in Wasser beobachtet und



**Bild 3-17.** Abbildung nach [Brodeur et al., 1996]. Abhängigkeit der Divergenz vom jeweiligen Durchmesser der Strahlungsquelle innerhalb des Filaments.

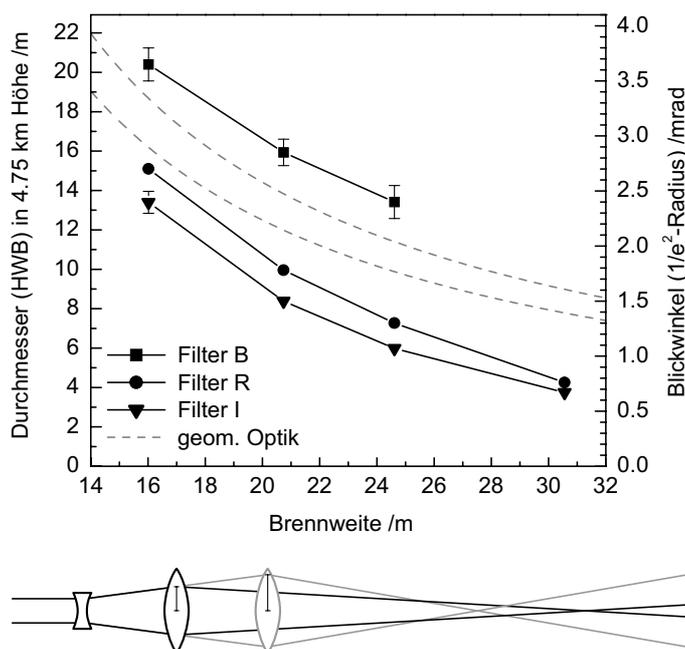
als Erklärung vorgeschlagen, dass eine Mindestintensität benötigt wird, um Licht mit einem Abstand  $\Delta\lambda$  zur anfänglichen Laserwellenlänge zu erzeugen. Diese herrscht nur bis zu einem bestimmten Abstand  $w_0$  von der Mittelachse des Filaments (Bild 3-17). Damit würde die Divergenz auch auf der langwelligen Seite von der Laserwellenlänge aus ansteigen. Ausgehend von dieser Erklärung lässt sich der Filamentdurchmesser bezogen auf einen Wellenlängenbereich berechnen. Man könnte sich das Ende der Filamente als Lochblende vorstellen, durch die das Licht unter Beugung austritt. Da das Intensitätsprofil sicherlich eher gaußförmig ist, scheint die übliche Berechnung der Divergenz eines Gauß-Strahls sinnvoller zu sein [Brewer et al., 1968], also

$$\theta(\lambda) = \frac{\lambda}{\pi w_0(\lambda)} . \quad (3-23)$$

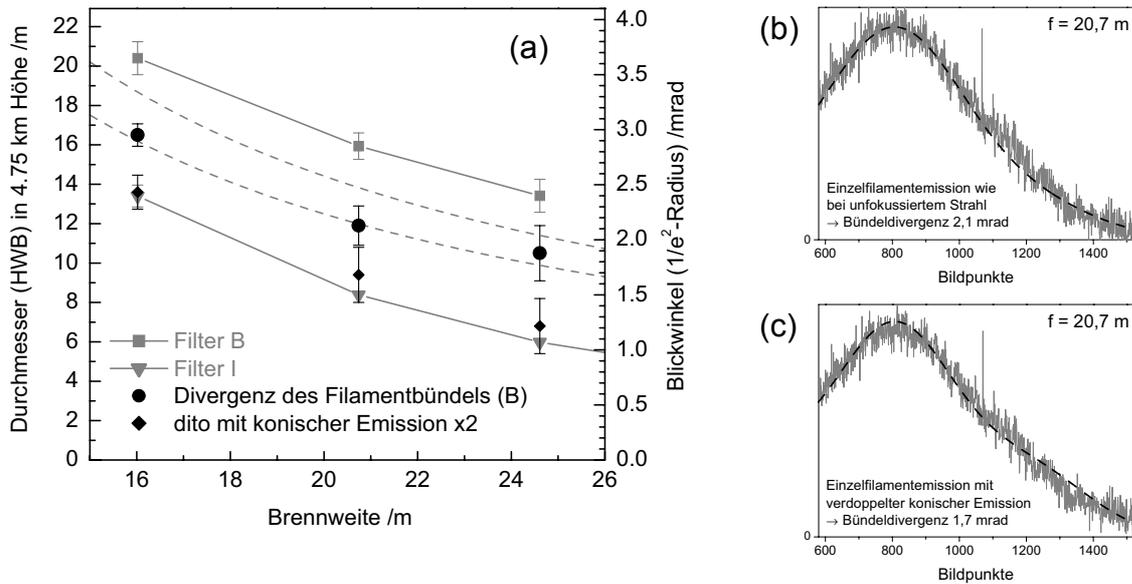
In jedem Fall liefert diese Gleichung eine Minimalabschätzung des Durchmessers, der etwa halb so groß ist wie die Blende bei gleichem Winkel. Die Auswertung macht nur bei reinem Weißlicht Sinn. Das heißt, von den Filtern, die bei den Messungen an der TLS benutzt wurden, kommen nur B und BG in Frage. Da der spektrale Schwerpunkt innerhalb einer Bande auf der 800nm-nahen Seite liegt, wird mit  $\lambda_B = 450$  nm und  $\lambda_{BG} = 550$  gerechnet. Man erhält als **Filamentdurchmesser** (HWB)  $d(\lambda_B) = 240$   $\mu\text{m}$  und  $d(\lambda_{BG}) = 390$   $\mu\text{m}$ . Diese Werte sind etwas größer als der üblicherweise vor allem in theoretischen, aber auch experimentellen Veröffentlichungen [Braun et al., 1995] genannte Wert  $\sim 100$   $\mu\text{m}$ . Es ist denkbar, dass ein „Rest“ an Kerr-Effekt am Ende eines Filaments die Divergenz verringert und so den Durchmesser größer erscheinen lässt. Andererseits stimmen die obigen Werte recht gut mit dem Durchmesser von 380  $\mu\text{m}$  (HWB) überein, den Lange et al. [1998] bei sorgfältiger Messung an einem einzelnen Filament in einer luftgefüllten Zelle bestimmt haben. Man kann in jedem Fall festhalten, dass aus der Abbildung von multifilamentierenden Terawattpulsen in mehreren Kilometern Höhe sinnvolle Werte für den Durchmesser einzelner Filamente bestimmt werden konnten.

Bei weiteren Messungen an der TLS wurde der Laserstrahl leicht fokussiert (Brennweiten zwischen 16 m und 31 m). Dabei wurde der Strahldurchmesser auf ca. 9 cm bis 11 cm aufgeweitet. Die Luft war bis zu einer Zirruswolke in 9,6 km klar. Zur Auswertung werden Schnitte durch die Abbildungen des Strahls in 4,75 km Höhe verwendet. Das heißt, die Rayleigh-Streuprofile sind nicht von der Wolkenstreuung überlagert. Die **Fokussierung** wirkte sich in allen Filterbanden deutlich verbreiternd auf den Strahldurchmesser aus. Da die Filamentierung spätestens am Brennpunkt der Sendeoptik beginnt und die Filamentkanäle nicht sehr lang gewesen sein dürften, kann der Blickwinkel mit der Divergenz gleichgesetzt werden. Bild 3-18 zeigt die Winkel bzw. die Strahldurchmesser in 4,75 km Höhe bei vier verschiedenen Brennweiten für die Filterbanden B, R und das fundamentale Laserlicht (Filter I,  $\sim 800$  nm). Die grauen Linien zeigen die Divergenz an, die bei linearer Ausbreitung, d.h. nach geometrischer Optik, zu erwarten wäre. Die zwei Linien markieren die Spanne, die sich aus der Ungenauigkeit des Strahldurchmessers nach dem Kompressor ergeben ( $\sim 2,5$  cm bis  $\sim 3$  cm). Der veränderliche Grad der Strahlaufweitung ist berücksichtigt (schematische Darstellung in Bild 3-18 unten, das reale Teleskop besteht allerdings aus Spiegeln). Die Intensität des blauen Teils des Weißlichts nimmt mit abnehmender Brennweite stark zu (näheres dazu in Abschnitt 3.4.2). Daher ist das Signal bei  $f \approx 31$  m trotz des geringeren Strahldurchmessers nicht auswertbar.

Die Divergenz des blauen Lichts ist größer als die lineare, die der fundamentalen Wellenlänge (I) dagegen kleiner. Der Abstand zwischen beiden Kurven ist etwa konstant, ebenso

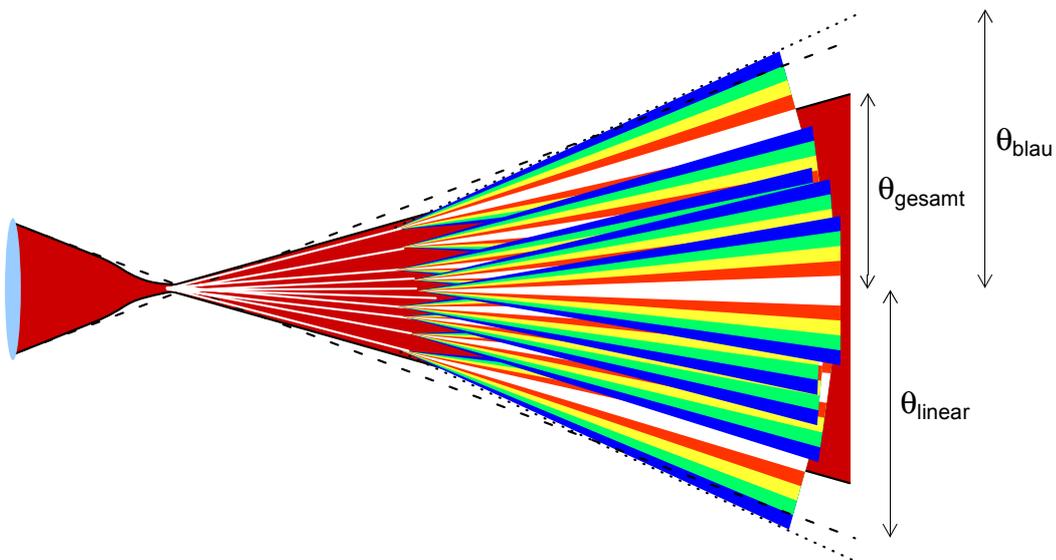


**Bild 3-18.** Divergenz in Abhängigkeit der Fokussierung für verschiedene Filterbanden: B (390–480 nm), R (570–720 nm), I (770–950 nm), gemessen in 4,75 km Höhe. Graue Kurven: geometrisch optische (lineare) Divergenz entsprechend dem Sendeteleskop (unten schematisch dargestellt, vergleiche Bild 1-5).



**Bild 3-19.** Abschätzung der Divergenz des Filamentbündels durch Faltung mit dem Querschnitt des Einzelfilaments (Bild 3-31, Schnitt durch die Abbildung des unfokussierter Strahls in Bild 3-13 a) (●) bzw. mit doppelter konischer Emission (◆). (b, c) Beispiele der Bestimmung der Bündeldivergenz (Gauß-Profil,  $1/e^2$ ) bei der mittleren Brennweite. Fit der Faltungskurve an die Messung zu ● (b) und zu ◆ (c).

wie zwischen jeder einzelnen und der linearen Divergenz. Im Vergleich zur linearen Ausbreitung wird der Gesamtstrahl, für den das I-Filtersignal ein Maß ist, also durch Selbstfokussierung leicht parallelisiert. Die Divergenz des reinen Weißlichts besitzt dagegen eine additive Komponente. Man kann daraus folgern, dass eine Überlagerung der Abstrahlcharakteristik einzelner Filamente mit der **Divergenz des Filamentbündels** vorliegt. Durch die Fokussierung werden die Filamente also nicht an der Strahlachse gebündelt – wie in dem Ausnahmefall in Bild 3-8 (a) –, sondern verteilen sich über einen Strahlkegel (vergleiche Bild 2-29 a), dessen Öffnungswinkel mit der Stärke der Fokussierung zunimmt. Das Fernfeldprofil des Weißlichts (B-Filter) aus den Messungen ohne Fokussierung kann als Referenz für die Emission einzelner Filamente dienen. Bild 3-19 (b, c) zeigt ein gemessenes Profil und zwei Beispiele der Faltung der Einzelfilamentemission mit einer Gauß-Verteilung. Die aus der Anpassung resultierende Breite dieser Gauß-Verteilung wird als Divergenz des Bündels der Filamente interpretiert. Bei Verwendung des Querschnitts aus Bild 3-13 (a) (siehe Bild 3-31) liegt die Bündeldivergenz genau im Bereich der linearen Divergenz (● in Bild 3-19 a). Es ist jedoch nicht plausibel, dass sie die Breite des Gesamtstrahls (Filter I) übersteigt. Andererseits ist es denkbar, dass die konische Emission im Verhältnis zum achsennahen Weißlicht bei Fokussierung mehr Energie enthält als beim parallelen Strahl. Eine Verdopplung der konischen Emission bei gleichbleibendem zentra-



**Bild 3-20.** Multifilamentierung eines fokussierten Strahls. Die Darstellung erklärt schematisch die verschiedenen Winkel, wie sie in Abhängigkeit der Fokussierung in 4,8 km Höhe gemessen wurden (Bild 3-18).  $\theta_{\text{gesamt}}$  entspricht etwa der Divergenz der I-Bande,  $\theta_{\text{blau}}$  sei der mit dem B-Filter gemessene Winkel.

len Maximum im Profil der Einzelfilamente führt bei dem Fit zu einer Divergenz des Bündels, die im Bereich der Breite des Gesamtstrahls liegt (♦ in Bild 3-19 a). Das scheinbar schlechtere Fitresultat am Maximum in Bild 3-19 (c) kann auf ein (gegenüber der Gauß-Form) abgeflachtes Profil zurückzuführen sein, das bei starker Fokussierung auch in den anderen Banden auftritt (Ursache für den Anpassungsfehler der Divergenz bei Filter I,  $f \approx 16$  m). Für eine erhöhte konische Emission bei Fokussierung spricht zudem, dass sie auch bei Erhöhung der Pulsleistung beobachtet wird (Abschnitt 3.5.1). Zusammenfassend ergibt sich das in Bild 3-20 dargestellte Modell der Filamentierung bei Fokussierung.

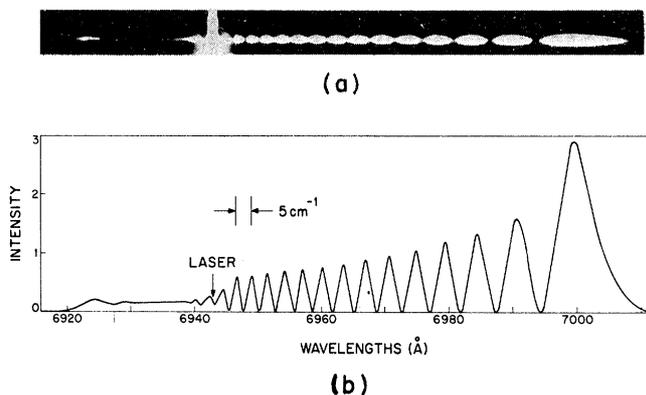
Da die Divergenz also eine Funktion der Wellenlänge ist, zeigen die Werte in Bild 3-18, die mit dem R-Filter gemessen wurden ( $>10\%$  der maximalen Transmission zwischen 560 nm und 800 nm), dass die spektrale Verbreiterung, d.h. die Intensität des Weißlichts, mit der Stärke der Fokussierung zunimmt. Bei  $f \approx 31$  m dominiert in der Filterbande das fundamentale Laserlicht ( $800 \text{ nm} \pm \Delta\lambda$ ), bei Verkürzung der Brennweite nimmt der Anteil an Weißlicht zu. In Abschnitt 3.4.2 werden die Ergebnisse dieser Messkampagne weiter hinsichtlich der Weißlichterzeugung untersucht.

Die Wellenlängenabhängigkeit der Divergenz, die sowohl bei parallel gesendeten als auch fokussierten Strahlen auftritt, ist für die Lidar-Anwendungen von großer Bedeutung. In welcher Weise dieses Wissen in der Durchführung und Auswertung von Lidar-Messungen berücksichtigt werden muss, wird in Kapitel 4, Abschnitt 4.2.2 behandelt.

### 3.4 Weißlichterzeugung (SCG)

Bei der Ausbreitung von intensiven Laserpulsen in nichtlinearen Medien ist die starke spektrale Veränderung des Lichts vielleicht das beeindruckendste Phänomen, vor allem wenn es als Umwandlung von monochromatischem Licht in deutlich sichtbare weiße oder vielfarbige Muster in Erscheinung tritt. Denn hier werden die Regeln der klassischen Optik am eindeutigsten außer Kraft gesetzt. Diese Veränderungen im Frequenzspektrum stehen in direkter Beziehung zu den selbstinduzierten räumlichen und zeitlichen Effekten, die in den Abschnitten 3.2 und 3.3 besprochen worden sind. Parallel zur Erforschung von Selbstfokussierung und Filamentierung begannen in der Frühphase der nichtlinearen Optik die Untersuchungen zur spektralen Verbreiterung und Modulation durch den Kerr-Effekt [Bloembergen und Lallemand, 1966; Sacchi et al., 1968]. Alfano und Shapiro [1970] entdeckten die starke Verbreiterung bis hin zu weißem Licht, d.h. die Erzeugung von Superkontinua (*Supercontinuum generation, SCG*) in Kristallen, Gläsern und Flüssigkeiten. Sie erklärten die Phänomene vor allem mit der Selbstphasenmodulation (SPM), aber auch mit Vierwellenmischung (FWM). Mit der Verfügbarkeit von Femtosekundenpulsen (CPA-Technik) wurde der Weg frei für SCG in Gasen [Corkum et al., 1986] und damit für die Verwendung von Kurzpulslasern als kohärente „weiße Laser“ in Luft [Chin et al., 1999].

Die selbstinduzierten spektralen Phänomene stehen in Vielfalt und Komplexität den räumlich-zeitlichen in nichts nach. Anfänglich konnten viele Erscheinungen bei Experimenten mit Pikosekundenpulsen in kondensierter Materie aber noch mit der „reinen“ SPM oder direkt darauf basierenden Theorien gut erklärt werden (siehe das Beispiel aus [Gustafson et al., 1969] in Bild 3-21). Im Folgenden wurde das Zusammenspiel mit anderen Effekten wie stimulierte Raman-Streuung und vor allem Ionisation untersucht. In vielfältigen Arbeiten wurde die Rolle von einzelnen Erscheinungen wie Pulsspaltung, Pulsverkürzung oder



**Bild 3-21.** Abbildung aus [Gustafson et al., 1969]. (a) Gemessenes Spektrum von 5ps-Pulsen in einer Mischflüssigkeit aus CS<sub>2</sub> und Benzol. (b) Simulation der SPM eines Gauß-Pulses bei einer Relaxationszeit des Kerr-Effekts von 9 ps.

die Entstehung steiler Pulsflanken (*self-steepening*) erforscht. Eine Übersicht findet sich in dem Buch *The Supercontinuum Laser Source* [Alfano, 1989].

Die extrem breiten, teilweise flachen Weißlichtspektren, die während der letzten etwa zehn Jahre in Luft (und Gasen allgemein) beobachtet worden sind, lassen sich jedoch durch vereinfachte Theorien nicht beschreiben, sondern nur mittels aufwendiger, möglichst dreidimensionaler numerischer Simulationen. Im Prinzip handelt es sich dabei um die Lösung derselben nichtlinearen Gleichungssysteme wie bei der Berechnung der Filamentierung (siehe Abschnitt 3.2.2), da die SCG von der räumlichen und zeitlichen Struktur der Parameter Intensität, Plasmadichte etc. abhängt. Trotzdem liegt die Erforschung der SCG im Vergleich zur Filamentierung zurück. In der letzten Zeit sind aber einige Veröffentlichungen erschienen, die sich ausführlich mit der numerischen Simulation von Femtosekunden-Weißlichtspektren befassen [Aközbek et al., 2001; Kolesik et al., 2003; Kandidov et al., 2003] (letztere beiden in der bereits erwähnten Sonderausgabe Applied Physics B 77 Nr. 2-3 zum Thema SCG).

Obwohl noch viele Fragen im Bereich SCG offen sind, findet Femtosekunden-Weißlicht bereits vielfache Anwendung, zum Beispiel für zeitaufgelöste Absorptions- und Fluoreszenzspektroskopie oder im nichtkollinearen optisch parametrischen Verstärker (NOPA) als Seed-Licht zur Erzeugung weit durchstimmbarer kurzer Pulse.

### 3.4.1 Selbstphasenmodulation

Auch wenn die Berechnung der SPM eines kurzen Pulses alleine bei weitem nicht zur Beschreibung des Weißlichts aus Filamenten ausreicht, so ist sie im Prinzip doch die hauptsächliche Grundlage der SCG. Da es sich um die **Wirkung des Kerr-Effekts auf die Phase** des Pulses handelt, ist die SPM wie die Selbstfokussierung ein  $\chi^{(3)}$ -Prozess und hängt von  $n_2$  ab.

Aus der Wellengleichung 3-20 lässt sich in der eindimensionalen Näherung einer ebenen Welle  $E(z, t) = E_0(z, t) \exp[i(kz - \omega_0 t)]$  und einer sich langsam ändernden Pulseinhüllenden  $E_0(z, t)$  (SVEA) die reduzierte Gleichung

$$\frac{\partial E_0}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial E_0}{\partial t} = i \frac{\omega_0 n_2}{c} |E_0|^2 E_0 \quad (3-24)$$

ableiten, wenn man die Ionisation nicht einbezieht und die GVD vernachlässigt [Wang et al., 1989]. Setzt man die Einhüllende aus der Amplitudenfunktion und einer Phase zusammen, d.h.  $E_0 = A \exp[i\phi]$ , vereinfacht sich Gleichung 3-24 zu

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial A}{\partial t} = 0 \quad \text{und} \quad \frac{\partial \phi}{\partial z} + \frac{1}{v_g} \frac{\partial \phi}{\partial t} = \frac{\omega_0 n_2}{c} A^2 . \quad (3-25)$$

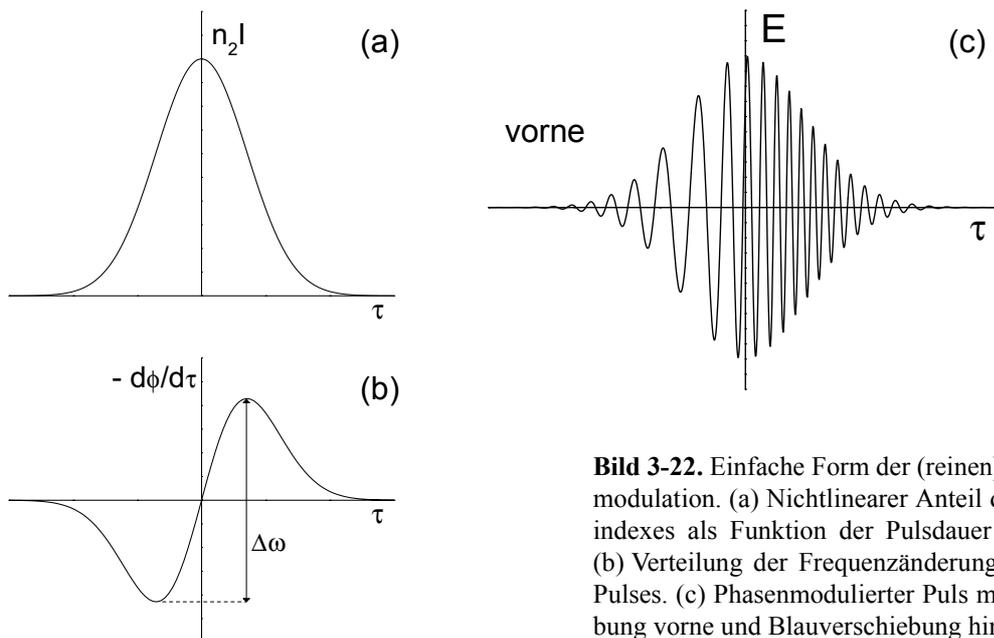
Als Lösungen erhält man für die Amplitude eine beliebige Funktion  $A(\tau)$  der retardierten Zeit  $\tau = t - z/v_g$  und die induzierte Phasenänderung

$$\phi(z, \tau) = \frac{\omega_0 n_2}{c} I(\tau) z , \quad (3-26)$$

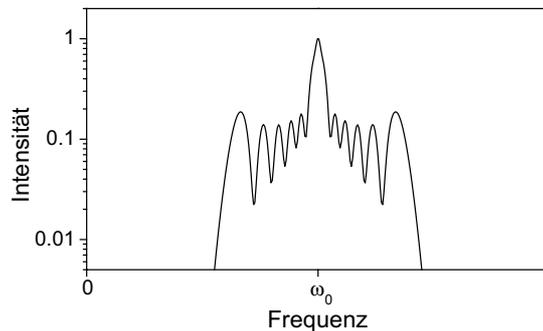
wobei  $n_2$  die Einheit  $\text{cm}^2/\text{W}$  trägt, so dass  $n_2 A^2$  hier in  $n_2 I$  übergeht. Diese vom nichtlinearen Anteil des Brechungsindex abhängige Phase beeinflusst die lokale Frequenz an einer Stelle  $\tau$  innerhalb des Pulses in der Form

$$\omega(z, \tau) = \omega_0 - \frac{\partial \phi}{\partial \tau} \Rightarrow \frac{\omega(z, \tau)}{\omega_0} = 1 - z \frac{n_2}{c} \frac{\partial}{\partial \tau} I(\tau, z) . \quad (3-27)$$

Die Stärke der Frequenzveränderung nach Durchlaufen der Strecke  $z$  hängt also vom Gradienten der Pulsintensität ab. Dabei erzeugt die steigende Flanke eine Rotverschiebung, die fallende eine Blauverschiebung (Bild 3-22). Die Fourier-Transformation des resultierenden Wellenpakets ergibt ein Spektrum ähnlich der rechten Seite in Bild 3-21 (b), jedoch spiegelsymmetrisch um  $\omega_0$ , das heißt mit einem gleichstarken Anteil auf der Anti-Stokes-Seite. Die maximale spektrale Verbreiterung steigt mit dem Verhältnis der Intensität  $I_{\max}$  zur Pulslänge  $\tau_p$ . Nach der Strecke  $z$  in einem Medium mit dem Koeffizienten  $n_2$  gilt



**Bild 3-22.** Einfache Form der (reinen) Selbstphasenmodulation. (a) Nichtlinearer Anteil des Brechungsindex als Funktion der Pulsdauer (Gauß-Profil). (b) Verteilung der Frequenzänderung innerhalb des Pulses. (c) Phasenmodulierter Puls mit Rotverschiebung vorne und Blauverschiebung hinten.



**Bild 3-23.** SPM-Spektrum eines Pulses mit der zeitlichen Einhüllenden  $A(\tau) = \exp[-(\tau/\tau_p)^4]$ . Der flache Teil des Intensitätsprofils erzeugt ein Maximum bei der Grundfrequenz.

$$\Delta\omega_{\max} \sim \frac{\omega_0 n_2 I_{\max}}{c\tau_p} z . \quad (3-28)$$

Dabei ist die Periode der Wellenstruktur  $\delta\omega \approx 4\pi/\tau_p$ .

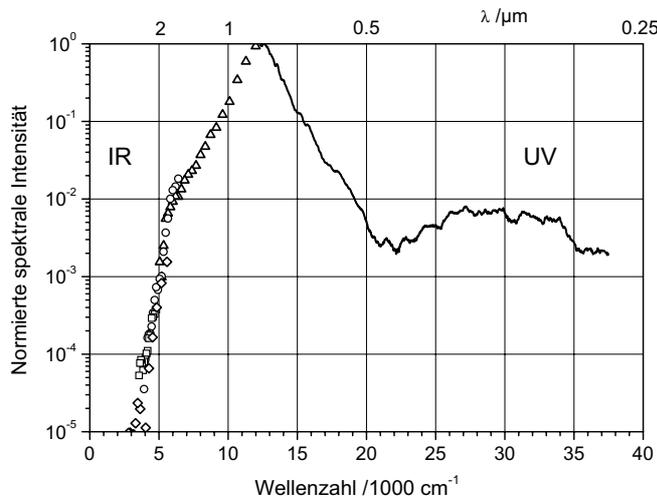
Je mehr die Anfangsbedingungen von diesem Spezialfall abweichen, desto stärker verändert sich die Form des Spektrums. In Bild 3-23 ist das SPM-Spektrum eines Pulses mit super-gaußförmiger Einhüllenden dargestellt. In der flachen Pulsmitte bleibt die Anfangsfrequenz erhalten. Bild 3-21 (b) zeigt eine Berechnung der SPM von Pikosekundenpulsen in einer Flüssigkeit, bei der die Nichtlinearität eine Abklingzeit in der Größenordnung der Pulslänge hat. Der Brechungsindex folgt damit nicht mehr genau der Intensität, wodurch die  $\Delta n$ -Kurve an der fallenden Pulsflanke abflacht und die Blauverschiebung fast verschwindet.

Im letzten Beispiel konnte durch eine einfache Abwandlung der reinen SPM das experimentelle Ergebnis erklärt werden. Dieses ist nur möglich, solange keine komplexen Veränderungen der Pulsform oder signifikante Beiträge zum Brechungsindex durch Plasma auftreten.

### 3.4.2 Form und Steuerbarkeit des Terawatt-Weißlichtspektrums

In diesem Abschnitt werden Ergebnisse aus den Terawatt-Experimenten zu den Eigenschaften des Weißlichtspektrums und dessen Abhängigkeit von den einstellbaren Parametern zusammengetragen. Soweit möglich werden dazu Erklärungen in der Theorie bzw. der Literatur gesucht.

Die Stärke der Nichtlinearität, d.h. speziell des Kerr-Effekts, ist in Luft deutlich geringer als in vielen festen oder flüssigen Medien. Dies wird aber dadurch kompensiert, dass wegen der dynamischen Filamentierung in Verbindung mit dem Photonenreservoir die Wechselwirkungslänge ( $z$  in Gleichungen 3-26 bis 3-28) sehr groß sein kann. Die Intensität, die in



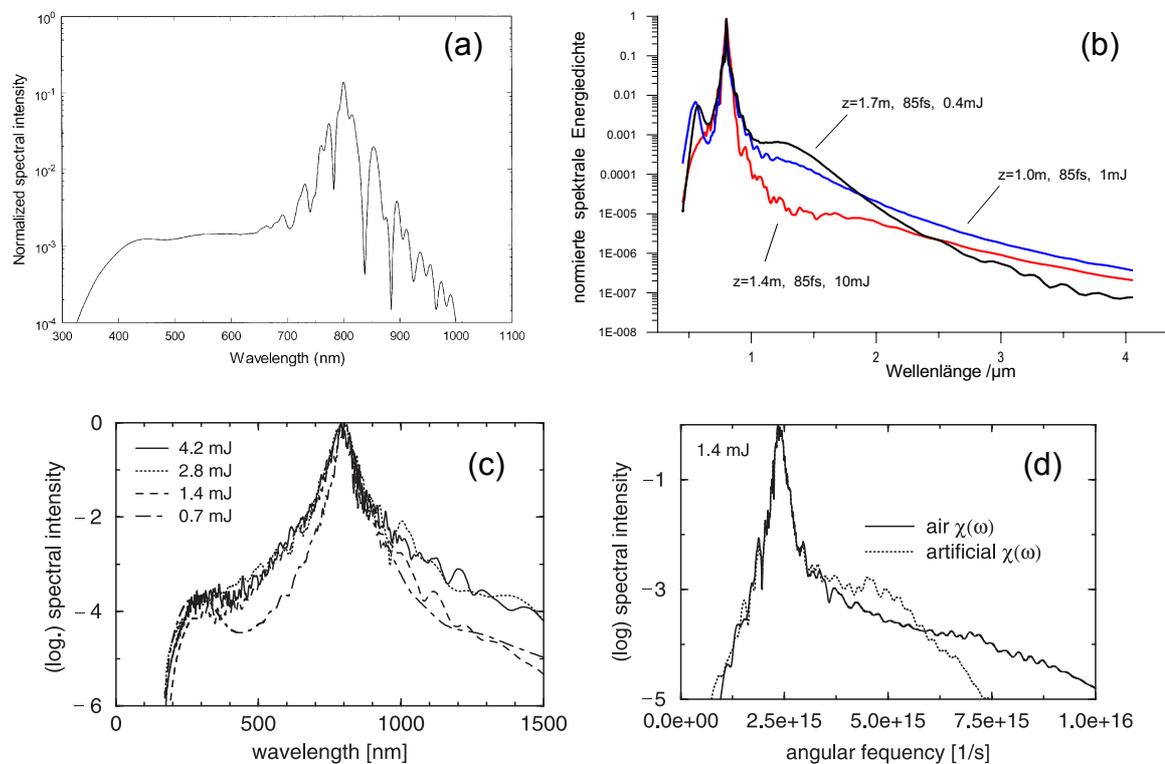
**Bild 3-24.** TW-Weißlicht 20 m hinter einer 10m-Linse (Spektrum aus Bild 2-31, aber aufgetragen über der Wellenzahl und weiter ins UV, dort stark geglättet zu Rauschfilterung,  $\nu_0 = 1/\lambda_0 = 12500 \text{ cm}^{-1}$ ).

Filamenten bei  $10^{13}$  bis  $10^{14} \text{ W/cm}^2$  festgehalten wird (*intensity clamping*), scheint ideale Bedingungen für eine effektive Weißlichterzeugung zu bieten, ohne dass dabei das Medium oder der Strahl zerstört werden. In kondensierter Materie ist die Steigerung der Ausbeute durch Erhöhung der Pulsleistung oder durch stärkere Fokussierung begrenzt, da es zu Schäden am Material kommt. Zusätzlich sind winkelabhängige Effekte und insgesamt die Divergenz wesentlich größer als bei Filamenten in Luft.

Bei den Spektren, die hier betrachtet werden, muss grundsätzlich berücksichtigt werden, dass sie sämtlich aus Messungen mit **Multifilamentierung** (MF) stammen. Das heißt, dass nicht nur die starke räumlich-zeitliche Veränderung eines Pulses während der Filamentierung zum Tragen kommt, sondern auch über viele Filamente gemittelt wird. Schließlich kommt auch noch die Mittelung über Puls-zu-Pulsschwankungen (z.B. der Laserparameter, aber auch durch atmosphärische Turbulenzen) hinzu. Bei der Untersuchung der SCG-Effizienz kann daher oft nicht unterschieden werden, ob die Variation eines Parameters die Eigenschaften der einzelnen Filamente ändert oder nur deren Anzahl.

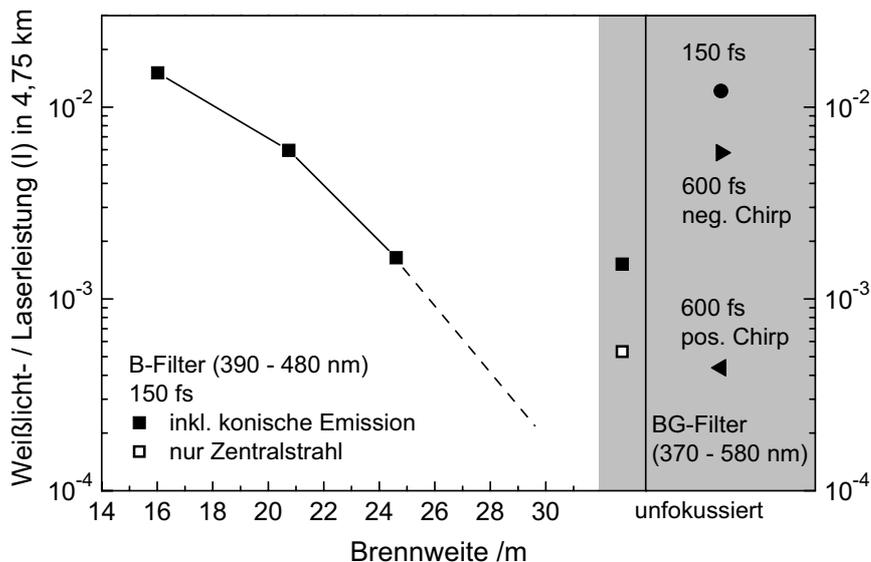
Skupin [2001] hat gezeigt, dass in der Simulation die gewellte Struktur der Spektren (vergleiche Bild 3-23) durch Einbeziehung der GVD stark reduziert wird. Im realen Experiment mit MF würde man nach obiger Argumentation eine solche Struktur kaum erwarten. Trotzdem beobachtet man bei hochaufgelösten Messungen immer unregelmäßig gewellte Intensitätskurven, die man auch als Teilergebnis bei der Auswertung von Absorptionsspektren erhält (Abschnitt 4.2.1 und Anhang B). Eine solche Struktur kann man aus einer Summe (z.B.  $i = 1, \dots, 100$ ) von Funktionen  $a_i |\sin(b_i x + c_i)|$  nachahmen, wenn  $a_i$ ,  $b_i$  und  $c_i$  innerhalb bestimmter Grenzen zufällig streuen.

Bild 3-24 zeigt das zusammengesetzte Spektrum aus den in Abschnitt 2.4.1 beschriebenen Labormessungen mit fokussierten ( $f=10\text{ m}$ ) 2TW-Pulsen. In der Frequenz- bzw. Wellenzahldarstellung ist das Spektrum im Bereich  $\omega_0 \pm \omega_0/2$  sehr symmetrisch. Dies entspricht der SPM-Vorstellung. Die Form des gesamten Spektrums ist typisch für die SCG allgemein. Es wurde in der Vergangenheit die Meinung vertreten, dass das Kontinuum weitgehend unabhängig von den Eigenschaften des Pulses und sogar vom nichtlinearen Medium ist [Strickland und Corkum 1994]. Tatsächlich aber treten zumindest in bestimmten Bereichen Unterschiede auf, die für die Anwendungen entscheidend sein können. Der Universalitätsgedanke ist relativ gut vereinbar mit dem Erklärungsmodell für die SCG von Ranka et al. [1996]. Dieses besagt, dass die Pulse in sehr kurze, solitonartige Subpulse aufspalten, die wegen der GVD spektral verschoben sind und eine ihrer zeitlichen Schärfe entsprechende Bandbreite haben. Das Weißlicht ist dann die Überlagerung der Einzelspektren. Ob solche Modelle ein Teil der Wahrheit sind oder nur bei bestimmten Experimenten, die sie zu bestätigen scheinen, zum Tragen kommen, ist bis heute schwer zu beurteilen.

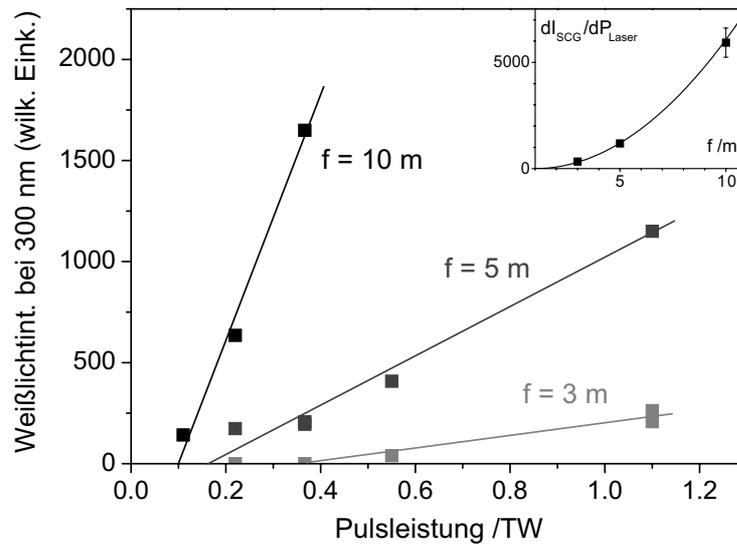


**Bild 3-25.** Simulierte SCG-Spektren für Luft. (a) Aus [Aközbeck et al., 2001]: 150 fs,  $6P_{\text{kr}}$ ,  $w_0 = 0,25\text{ mm}$ ,  $z = 1,1\text{ m}$ , mit Korrekturen höherer Ordnung der SVEA (v.a. *self-steepening*). (b) Aus [Skupin, 2001]: vgl. Bild 3-6,  $w_0 = 0,7\text{ mm}$ . (c, d) Aus [Kolesik et al., 2003]: 144 fs,  $w_0 = 1\text{ mm}$ ,  $f = 80\text{ cm}$ , (d) Darstellung über der Frequenz und Vergleich mit einem Medium erhöhter linearer Dispersion im blauen Spektralbereich.

In Bild 3-25 sind einige Beispiele für **Simulationen der SCG** in Luft zusammengefasst, die den Terawattmessungen relativ ähnlich sehen, obwohl sie für Einzelfilamente gerechnet sind. In den entsprechenden Textquellen wurden die Spektren (b) und (c,d) ausdrücklich – wenn auch nur grob – mit den Messungen aus Abschnitt 2.4.1 (Bilder 2-30, 2-31, 3-24) verglichen. Typischerweise ist in den Simulationen das Maximum schärfer und der Abfall in der Umgebung von  $\lambda_0$  stärker als bei den Messungen, wo die Spektren in der logarithmischen Darstellung flacher und fast gerade verlaufen (siehe auch das hochaufgelöste Lidar-Spektrum in Bild 2-12, trotz fehlender Kalibrierung). Die Weißlichtintensität der Messung ist, exemplarisch abgelesen bei 500 nm und 1,5  $\mu\text{m}$ , eine bis zwei Größenordnungen höher als bei den Simulationen, jeweils bezogen auf den Maximalwert bei der Laserwellenlänge. Durch „Abschneiden“ des spitzen Maximums in den berechneten Spektren könnte man also die Übereinstimmung erhöhen. Man kann nur spekulieren, worin der Grund der unterschiedlichen Konversionseffizienz – definiert als  $I(\lambda_{\text{SCG}})/I_{\text{max}}(\lambda_0)$  – liegt. Möglicherweise wird das Licht um  $\lambda_0$  bei realer MF im Photonenreservoir insgesamt stärker verbreitert, oder aber die Abflachung des Maximums geschieht durch einen oder mehrere Effekte, die in den Simulationen nicht berücksichtigt sind. Hier wäre die Vierwellenmischung zu nennen, die in der letzten Zeit kaum mehr in die Diskussion einbezogen wurde.



**Bild 3-26.** Effizienz der Umwandlung von Laserlicht (gemessen mit dem I-Filter) in blaues (B) bzw. grünes (BG) Licht. Linker Kasten: B-Filter, Vergleich für verschiedene Brennweiten und unfokussierten Strahl (grauer Hintergrund). Rechter Kasten: BG-Filter, Vergleich verschiedener Chirpeinstellungen. (Der Wert für  $f \approx 31$  m liegt unter der Nachweisgrenze von etwa  $2 \cdot 10^{-4}$ ).



**Bild 3-27.** Weißlichtintensität bei 300 nm mit verschiedenen Fokussierlinsen und Pulsleistungen (Pulsdauer zwischen 100 fs und 1 ps bei konstant 110 mJ Pulsenergie). Die Spektren sind in Bild 2-39 dargestellt. Der THG-Anteil wurde, wenn bei 300 nm vorhanden, durch Fitten der THG-Linien abgezogen. Das kleine Diagramm zeigt die Steigung der Ausgleichsgeraden  $I_{SCG}(P_{Laser})$  in Abhängigkeit von der Brennweite.

Im **Sichtbaren und UV** zeigen die gemessenen Spektren (Labormessungen in den Bildern 3-24 und 2-40, Lidar-Messungen in Bild 2-18) Plateaus bzw. breite Maxima, die in einem Bereich zwischen 300 nm und 500 nm liegen. Solche Formen treten auch bei den gerechneten Spektren auf, wo sie mit der Pulsenergie variieren, obwohl nur ein Filament simuliert wird.

Die Messungen zeigen eine starke Abhängigkeit von der **Fokussierung**. Bei den Abbildungen des Strahls in mehreren Kilometern Höhe (Abschnitt 2.1.3) wurde das Verhältnis der Leistungen (über die Strahlbreite integrierte Intensität) in der blauen Bande (390 nm – 480 nm) zu der in der Laserbande (770 nm – 950 nm) in Abhängigkeit der Brennweite bestimmt. Bild 3-26 zeigt, dass die Menge an blauem Licht um bis zu zwei Größenordnungen mit der Stärke der Fokussierung zunimmt. Für lange Brennweiten fällt der Wert unter den des unfokussierten Strahls. Dies ist mit der geringeren Anfangsintensität wegen der drei- bis vierfachen Aufweitung durch das fokussierende Sendeteleskop zu begründen. Bei den Labormessungen im Zusammenhang mit der THG (siehe Abschnitt 2.4.3 und weitere Auswertungen in Abschnitt 3.5.2) wurde die Weißlichtintensität bei 300 nm bestimmt. Hier zeigt sich im Gegensatz zum obigen Fall eine Zunahme der SCG bei Verlängerung der Brennweite (Bild 3-27). Allerdings nahm mit der 32m-Linse das Weißlicht gegenüber  $f = 10$  m auch wieder stark ab.

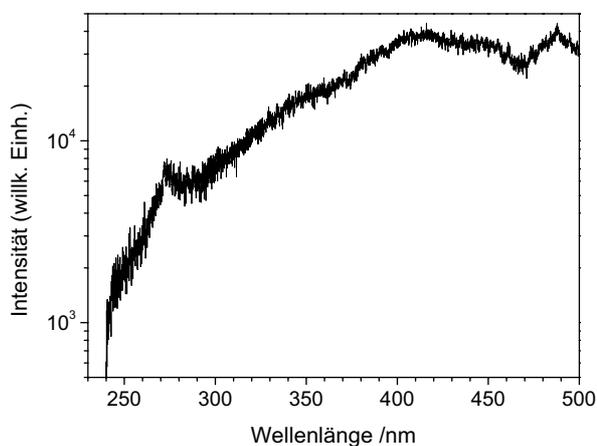
Es scheint also für die Erzeugung von Licht im nahen UV und dem angrenzenden sichtbaren Spektralbereich eine **optimale Fokussierung** zu geben. Die entsprechende Brennweite liegt für Strahlen mit Durchmessern von wenigen Zentimetern im Bereich von etwa 10 m bis 15 m. Bei stärkerer Fokussierung wirkt sich vermutlich die Verkürzung der Wirkungsstrecke  $z$  aus. Dass die Weißlichtintensität mit der Brennweite etwa quadratisch zunimmt (3-27 kleines Diagramm), deutet auf Filamentierung hin, da bei einem normalen Fokus die Rayleigh-Länge nach Gleichung 3-12 linear mit der Brennweite ansteigt. Bei sehr langen Brennweiten dagegen verringert sich die Wirkung der Fokussierung, die eine effiziente Erzeugung von blauem Licht begünstigt. Es wird angenommen, dass die Blauverschiebung mit der Ionisation korreliert ist. Wenn der hintere Teil eines Pulses das durch den vorderen Teil erzeugte **Plasma** passiert, bewirkt der abfallende Brechungsindex die entsprechende Phasenmodulation [Bloembergen, 1973]. Man kann annehmen, dass bei Fokussierung mehr bzw. dichteres Plasma entsteht. Aközbek et al. [2001] nennen dagegen **self-steepening** des Pulses als Ursache für das plateauartige Kontinuum im sichtbaren Spektralbereich (Bild 3-25 a). Die Wirkung der steiler fallenden Flanke ist ähnlich der des Plasmas. Vermutlich können beide Effekte je nach Zustand des Pulses eine Rolle spielen. Es sei auch noch einmal darauf hingewiesen, dass in den Experimenten die Parameter möglicherweise auch einen Einfluss auf die Anzahl der Filamente haben und so die Effizienz der spektralen Umwandlung beeinflussen. Die Verdichtung des Gesamtstrahls durch die Fokussierung könnte solch eine Wirkung haben, vor allem bei breiten, relativ inhomogenen Strahlprofilen, bei denen die Selbstfokussierung sich nicht sehr stark auf den Gesamtdurchmesser auswirkt.

Bei fester Pulsenergie haben auch die **Pulslänge** bzw. **Pulsleistung** und der **Chirp** Einfluss auf das kurzwellige Weißlicht. Bei dem Laborexperiment mit den verschiedenen Linsen stieg die UV-Intensität bei allen Brennweiten linear mit der Leistung. Die Steigerung der Intensität verstärkt die Wirkung der Fokussierung. Eine Verringerung der Filamentlänge durch Verkürzung der Pulsdauer tritt vermutlich nicht ein, da diese bei  $f \leq 10$  m vorwiegend durch die Fokussierung bestimmt wird (vergleiche Bild 3-12).

Aus den Abbildungen des Strahls in der Atmosphäre wurde die Effizienz der Weißlichterzeugung auch ohne Fokussierung bestimmt. Die in Bild 3-26 (grauer Hintergrund) dargestellten Werte stammen aus 3,4 km Höhe, ausreichend weit unterhalb einer störenden Wolkenschicht bei 5 km. Um sie mit den anderen Werten vergleichen zu können, wurden sie mit einem Faktor 0,8, der den Verlust durch die  $\lambda^{-4}$ -abhängige Rayleigh-Streuung simuliert, auf 4,8 km umgerechnet. Inklusiv der konischen Emission entspricht die relative Intensität des blauen Lichts (Filter B) etwa einer Fokussierung mit  $f = 25$  m, da wie schon

erwähnt der unfokussierte Strahl einen geringeren Durchmesser hat. Bei 600 fs langen Pulsen mit positivem Chirp wurde in der B-Bande kaum Licht empfangen. Die Chirpabhängigkeit wird daher in der breiteren BG-Bande (gelb bis blau) untersucht. Bei 600 fs langen Pulsen erhielt man mit positivem Chirp weniger als ein Zehntel der Weißlichtleistung, die mit negativem Chirp entstand. Der Vergleich der beiden Aufnahmen ist in Bild 2-7 zu sehen. Der Grund hierfür könnte einfach in der unterschiedlichen Filamentlänge liegen. Möglicherweise ist aber gerade die Ursache der geringen Filamentlänge bei positivem Chirp auch gleichzeitig der Grund für die niedrigere Intensität des kurzwelligen Weißlichts. Die stärkere transversale Komprimierung des positiv gechirpten Pulses, die in Abschnitt 3.3.3 als Begründung der kürzeren Filamente vorgeschlagen wurde, könnte ein Hinweis sein auf eine weniger effiziente Ionisation, die ja die Selbstfokussierung stoppt. Solche Überlegungen sind zur Zeit noch Spekulationen. Eine weitere konkrete Beobachtung ist aber, dass hinsichtlich der Erzeugung von sichtbarem Weißlicht (BG-Bande) die begünstigende Wirkung der höheren Anfangsleistung (150 fs) die der längeren Filamente (600 fs, negativer Chirp) um einen Faktor drei übertrifft (Bild 3-26 rechter Kasten, gemessen inklusive konischer Emission).

Beim kurzwelligen Teil der SCG ist schließlich noch die Frage der **Reichweite im UV** interessant. Man beobachtet im UV kein gleichmäßig exponentiell abfallendes Spektrum, sondern eine Art **Abbruchkante**. In Luft liegt diese typischerweise bei etwa 230 nm (Bild 3-28). Nishioka et al. [1995] haben bei Filamentierung in Edelgasen Weißlichtplateaus ähnlich der Simulation in Bild 3-25 (a) gemessen. Die Lichtleistung in den Plateaus ist für Argon, Krypton und Xenon ähnlich, aber die Abbruchkanten liegen bei ca. 150 nm, 230 nm bzw. 280 nm. Die Autoren stellen einen Zusammenhang zwischen diesen Grenzwellenlängen und den Ionisationspotentialen der Gase her. Kolesik et al. [2003] haben in ihrer nume-



**Bild 3-28.** Abbruchkante des Superkontinuums im UV. Spektrum wie in Bild 2-40 ( $f = 10$  m,  $\tau_p = 1$  ps, schwache THG-Linie) logarithmisch dargestellt.

rischen Simulation den Zusammenhang zwischen der Reichweite der SCG im UV und der linearen Dispersion des Mediums Luft untersucht. Sie haben den wellenlängenabhängigen Brechungsindex in die NLSE einbezogen und das Spektrum in einem Medium berechnet, dessen Brechungsindex (reelle Suszeptibilität  $\chi$ ) im UV stärker mit der Frequenz ansteigt als bei Luft. Bild 3-25 (d) zeigt die berechnete SCG für Luft und das künstliche Medium. Die Dispersionskurve von Luft, die man mittels der empirischen Formel

$$n(\lambda) - 1 = \left\{ 8342,13 + \frac{2406030}{130 - \lambda^{-2}} + \frac{15997}{38,9 - \lambda^{-2}} \right\} \cdot 10^{-8} \quad (\lambda \text{ in } \mu\text{m}) \quad (3-29)$$

berechnen kann [Edlén, 1966], weist eine Singularität bei etwa 160 nm auf. (Die Schumann-Runge-Banden des Sauerstoffs beginnen bei Wellenlänge größer 200 nm.) Die künstliche Dispersion des Vergleichsmediums entspricht einem zu höheren Wellenlängen verschobenem Anstieg des Brechungsindex vor dieser Resonanz.

Im Vergleich zum Sichtbaren und UV existieren in der Literatur sehr wenige Daten zum **IR-Anteil** des Weißlichts. Die Labormessungen des Teramobile-Projekts stellen eine der wenigen veröffentlichten Untersuchungen zu diesem Aspekt der SCG dar [Kasparian et al., 2000]. Vor allem wurde erstmals die Reichweite des Spektrums auf der kurzwelligen Seite bestimmt. Licht konnte im mittleren IR bis zu Wellenlängen um 4  $\mu\text{m}$  nachgewiesen werden (Bild 2-31). Qualitativ ähnliche Spektren mit einer Schulter im Bereich von 1,5  $\mu\text{m}$  bis 2  $\mu\text{m}$  und einem gleichmäßigen Abfall im mittleren IR (etwa exponentiell in der Frequenzdarstellung, langsamer über der Wellenlänge) erhält man aus Simulationen (Bild 3-25 b). Für die Anwendungen des Weißlichtstrahls in der Atmosphäre – v.a. Absorptionsspektroskopie von organischen Spurengasen – ist aber die Optimierung der spektralen Intensität in einem bestimmten Bereich entscheidend. Hier ist ein quantitativer Vergleich zwischen Experiment und Simulation schwierig, auch weil man nur relative Intensitäten normierter Spektren bestimmen kann.

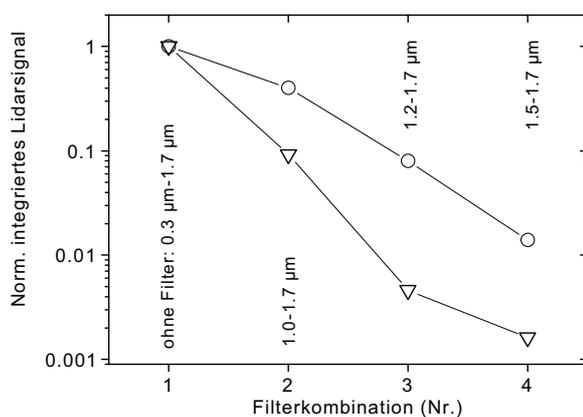
Das experimentelle Ergebnis aus Abschnitt 2.4.1 (Bild 2-31 bzw. 3-24), das mit einer 10m-Linse erzielt wurde, würde nach den Erkenntnissen zum kurzwelligen Spektralbereich hinsichtlich der Fokussierung im Bereich des Optimums liegen. Jedoch hängt das Spektrum auch stark von den übrigen Parametern ab. Die in Bild 2-30 dargestellte Messung ergab eine Zunahme der Intensität bei 1,5  $\mu\text{m}$  um fast eine Größenordnung – sowohl relativ zu  $I(\lambda_0)$  als auch absolut – bei Verdopplung der Pulsenergie. Dabei liegen beide relativen Intensitäten deutlich unter dem Ergebnis in Bild 2-31. Bei etwas kürzeren Pulsen und niedrigerer Energie im letzteren Fall waren die Pulsleistungen in beiden Messungen ähnlich. Der Grund für die fast doppelt so hohe Effektivität der SCG (bei  $\lambda = 1,5 \mu\text{m}$ ) könnte in der

etwas schwächeren Fokussierung liegen ( $f = 10$  m bei  $w_0 = 2,1$  cm statt  $f = 8$  m bei  $w_0 = 3,0$  cm). Man muss aber auch die Möglichkeit berücksichtigen, dass kleine Unterschiede der Pulseigenschaften der beiden Lasersysteme, z.B. Chirp oder schwer quantifizier- und steuerbare Parameter wie die Form des Strahlprofils, eine große Rolle spielen.

Die Übereinstimmung der Messung in Bild 2-30 mit der Simulation in Bild 3-25 (c) ist sowohl hinsichtlich der Energieabhängigkeit als auch in der relativen Intensität bei  $1,5 \mu\text{m}$  recht gut. Man muss auch hier wieder den Unterschied zwischen Einzel- und Multifilamentierung berücksichtigen. Trotzdem liefert die Rechnung (für ein einzelnes Filament) einen Hinweis darauf, dass die Zunahmen der SCG-Effektivität durch Erhöhung der Pulsenergie nicht nur auf eine erhöhte Anzahl der Filamente zurückzuführen ist.

Die Ergebnisse der **IR-Lidar-Messungen** an der Thüringer Landessternwarte (Abschnitt 2.1.5) legen nahe, dass die Einstellung der Laserparameter für eine optimale IR-Ausbeute nicht dieselbe ist wie beim UV. Nach einer groben Optimierung der Einstellungen von Kompressor und Sendeteleskop wurde  $f = 31$  m und  $\tau_p = 200$  fs mit negativem Chirp gewählt. Eine Fokussierung mit ca. 10 m Brennweite ist hier also nicht vorteilhaft (der aufgeweitete Strahl muss aber leicht fokussiert werden, mit dem direkten Strahl unter Umgehung des Sendeteleskops wurde die Messung nicht verglichen). Vermutlich ist beim IR die Länge der Filamente entscheidend. Dies passt zur theoretischen Vorstellung, dass das langwellige Licht durch die vordere Pulsflanke erzeugt wird, worauf die Ionisation keinen großen Einfluss hat – im Gegensatz zur Erzeugung von blauem Licht im hinteren Teil des Pulses.

Um die Effizienz der IR-Erzeugung beim Langstreckenexperiment in der Atmosphäre bewerten zu können, wurden die Messwerte des Lidar-Signals von der 4 km hohen Wolke mit den Labormessungen verglichen. Zu diesem Zweck wurden analoge Werte zu den vier



**Bild 3-29.** Vergleich der (○) IR-Lidar-Signale (vier Filterbanden) mit (▽) simulierten Werten auf Basis des Spektrums aus den Labormessungen (Bild 2-31), beide normiert auf den Wert der Bande Nr. 1 (gesamter Empfindlichkeitsbereich des Detektors). Für die Simulation wurden Standardwerte der Atmosphärentransmission und Wolkenrückstreuung verwendet.

Filterbanden unter der Annahme simuliert, dass das von den Filamenten emittierte Spektrum dem Laborspektrum in Bild 2-31 entspricht. Dabei wurde die Detektoreffizienz sowie die Wellenlängenabhängigkeit der Transmission durch die Atmosphäre und der Streuung durch typische Wolkentröpfchen berücksichtigt. Bild 3-29 zeigt die so berechneten Werte ( $\nabla$ ) und die Lidar-Messung ( $\circ$ ). Hinsichtlich der Unsicherheit bei der Größenverteilung der Wolkentröpfchen ist die Maximalabschätzung der simulierten Werte ( $\nabla$ ) dargestellt. Der Fehler aus der Transmission durch die Luft ist vernachlässigbar. Das Ergebnis dieser Auswertung ist, dass die relative Intensität  $I(\lambda = 1,5 \mu\text{m})/I_0$  bei dem Feldexperiment nochmals um mindestens eine Größenordnung gesteigert werden konnte.

### **Fazit**

Es hat sich also gezeigt, dass die Form des Weißlichtspektrums steuerbar ist. Obwohl die Abhängigkeit von den verschiedenen Laser- bzw. Pulsparametern sehr komplex zu sein scheint, kann man festhalten, dass die Fokussierung eine entscheidende Rolle spielt. Die Intensität in bestimmten Spektralbereichen, z.B. bei etwa halber oder doppelter Laserwellenlänge  $\lambda_0$ , kann durch Veränderung der Brennweite der Sendeoptik um bis zu zwei Größenordnungen variieren. Während für eine effektive Erzeugung von IR-Licht aus 800nm-Pulsen der Strahl nicht oder nur schwach fokussiert sein sollte, benötigt man für eine möglichst hohe Intensität im nahen UV Brennweiten im Bereich von 10 m bis 15 m. Bei noch stärkerer Fokussierung sinkt die SCG-Effizienz wieder, da die Länge der Filamente abnimmt.

## **3.5 Konische Emission und dritte Harmonische**

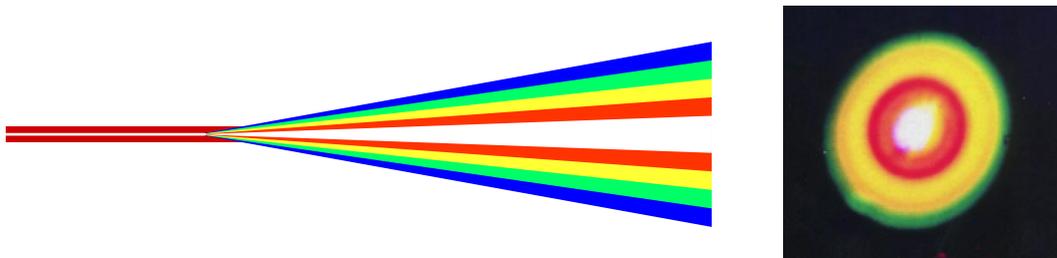
Im vorigen Abschnitt wurde die SCG ohne Berücksichtigung der Winkeleigenschaften des Weißlichts behandelt. In Abschnitt 3.3.4 wurde bereits eine winkelabhängige Divergenz des vom Ende der Filamente ausgehenden Weißlichtstrahls festgestellt. Auch die so genannte konische Emission wurde in Abschnitt 3.3.3 bereits eingeführt, wo sie zur Bestimmung der Filamentlänge im Langstreckenexperiment genutzt wurde. Darüber hinaus zeigen auch spezielle Komponenten des Spektrums, das aus Femtosekundenpulsen entsteht, besondere Winkeleigenschaften. In Luft ist dies bei der dritten Harmonischen der Laserfrequenz zu beobachten.

### 3.5.1 Konische Emission von Filamenten

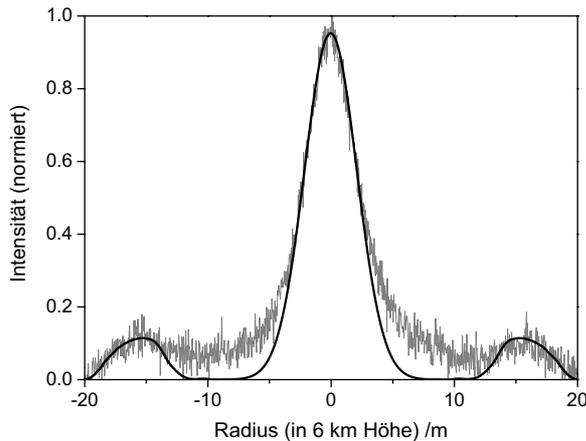
Das Phänomen der konischen Emission (CE), das heißt das Auftreten von farbigen Ringen um die Ausbreitungsachse kurzer Pulse in nichtlinearen Medien, wurde schon zu Beginn der Erforschung der nichtlinearen Optik mit Laserlicht beobachtet [Sacchi et al., 1968]. Man stellte fest, dass die CE nur Anti-Stokes-Frequenzen enthält, also sichtbares Licht im Fall von Ti:Sa-Lasern oder anderen Lasermedien mit ähnlichen Wellenlängen, während der Stokes-Anteil vollständig in den Filamenten „gefangen“ und damit achsennah bleibt. Dabei wächst der Winkel mit abnehmender Wellenlänge, entgegengesetzt dem Verhalten bei normaler Beugung.

Mehrfach wurde das Phänomen mit der Phasenanpassung bei der Vierwellenmischung (FWM) begründet [Alfano und Shapiro, 1977 (a); Luther et al., 1994]. Bei Filamenten in Luft beobachtet man, dass nur ein Teil des Anti-Stokes-Weißlichts in Form von CE auftritt. Der Rest breitet sich als zentraler weißer Strahl mit geringerer Divergenz aus (Bild 3-30). Diese Zweiteilung ist auch auf den Aufnahmen des Teramobile-Laserstrahls mit dem astronomischen Teleskop zu sehen, wo in einem bestimmten Ausschnitt des Anti-Stokes-Spektrums (Filterbande 390 nm – 480 nm) ein Lichtkegel bzw. eine ringförmige Struktur auf der Wolke um den entsprechenden spektralen Anteil des Zentralstrahls abgebildet wurde (Bild 3-13 a). Bild 3-31 zeigt das Intensitätsprofil des zentralen, horizontalen Schnitts durch das Streubild von der Wolkenschicht in 6 km Höhe. Die Anpassung einer Gauß-Kurve an das Profil des Zentralstrahls entspricht den Ausführungen in Abschnitt 3.3.4 und ergibt einen Halbwinkel der Divergenz von 0,7 mrad (vergleiche Tabelle 3-1).

Die Berechnung der Kurve in Bild 3-31 für  $|r| > 9$  m basiert auf der Transmissionskurve  $T(\lambda)$  des B-Filters und einer Funktion des Emissionswinkels  $\theta_{CE}(\lambda)$ , die durch Extrapolation der Messdaten aus [Nibbering et al., 1996] und [Kosareva et al., 1997] bestimmt wurde (siehe Bild 3-32). Dabei wurde eine konstante Weißlichtleistung  $P(\lambda)$  innerhalb der Filter-



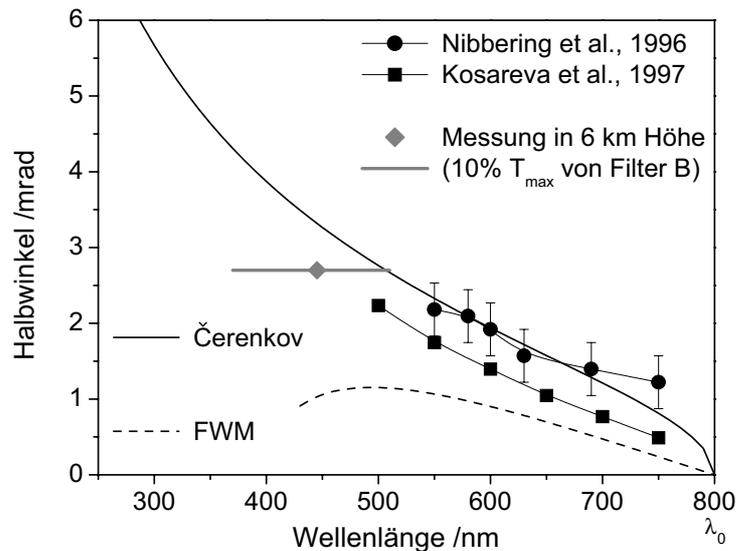
**Bild 3-30.** Zentraler Weißlichtstrahl und wellenlängenabhängige konische Emission eines einzelnen Filaments. Rechts: Fotografische Abbildung aus [Nibbering et al., 1996], aufgenommen 30 m hinter dem Beginn der Filamentierung eines 150fs-Pulses mit ca. 5 mJ Energie. Der Durchmesser beträgt etwa 10 cm.



**Bild 3-31.** Konischen Emission in der B-Filterbande (390 – 480 nm). Grau: Messung (horizontaler Querschnitt durch das Maximum von Bild 3-13 (a), d.h. 150fs-Puls, Filter B, Wolke in 6 km Höhe). Schwarz, außen: angepasste Simulation. Mitte: Gauß-Fit des Zentralstrahls (Divergenz 0,7 mrad).

bande angenommen, da diese in dem Bereich des Spektrums liegt, wo typischerweise ein Maximum oder Plateau auftritt (vergleiche Bild 3-24), und man nicht sicher von einem steigenden oder fallenden Verlauf ausgehen kann. Der so berechnete Strahlungskegel stimmt sehr gut mit der Messung überein, was beweist, dass wirklich die bekannte CE aus 6 km Höhe detektiert wurde. Die Lage des Intensitätsmaximums bei gemessenem und simuliertem Ring in der **B-Filterbande** entspricht einem **CE-Halbwinkel** von **2,7 mrad**. Die schlechtere Übereinstimmung der Kurven in den Bereichen zwischen dem CE-Ring und dem Zentralstrahl ist auf Mehrfachstreuung (Abweichung vom Gauß-Profil, vergleiche Bild 3-16 rechts) und die Bildunschärfe (Dicke und Transparenz der streuenden Wolken-schicht) zurückzuführen.

Durch Rotation des Querschnitts in Bild 3-31 um die Strahlachse ( $R = 0$ ) erhält man ein zweidimensionales Intensitätsprofil. Das Volumen unter dieser Fläche kann zwischen CE und Zentralstrahl aufgeteilt werden. Man erhält als Ergebnis, dass die **konische Emission** etwa **65% der gesamten Weißlichtleistung** in dem untersuchten, blauen Spektralbereich enthält. Nach dem Wissen des Teramobile-Teams ist dies die erste veröffentlichte quantitative Angabe zu den „Verlusten“ eines Femtosekunden-Weißlichtstrahls durch CE [Rodriguez et al., 2004]. Hier handelt es sich um einen Wert für multifilamentierende Terawattpulse (zur CE von Einzelfilamenten siehe weiter unten). Außerdem ist anzunehmen, dass der Wert bei Pulsen einer bestimmten Energie (z.B. 300 mJ) von den weiteren Laserparametern abhängt. In Abschnitt 3.3.4 sind indirekte Hinweise gefunden worden, dass durch Fokussierung des Strahls der CE-Anteil erhöht wird (z.B. auf bis zu 80%). Dagegen scheint sich der Anteil bei erhöhter Pulsdauer, d.h. kleinerer Anfangsleistung, zu verringern (siehe Bild 3-14 im Vergleich zu Bild 3-31).



**Bild 3-32.** Messung des Winkels der konischen Emission an der Thüringer Landessternwarte in 6 km Höhe (grau) im Vergleich mit Literaturdaten sowie berechneten Kurven für den Čerenkov-Effekt bzw. die Phasenanpassung bei Vierwellenmischung (zwei parallele 800nm-Pump photons), beide für lineare Dispersion in Luft. Der graue Balken zeigt die Bandbreite des B-Filters an (Grenzen für  $0,1T_{max}$ , ◆ markiert  $T_{max}$ ).

In Abschnitt 3.3.3 wurde davon ausgegangen, dass der CE-Winkel in einem bestimmten Medium von nichts anderem als der Wellenlänge abhängt. So wurde die Filamentlänge in Abhängigkeit von Pulsdauer und Chirp bestimmt. Die Ähnlichkeit der zwei in der Literatur vorhandenen Kurven  $\theta_{CE}(\lambda)$ , dargestellt in Bild 3-32, reicht nicht aus, um diese Annahme zu stützen. Kosareva et al. [1997] haben aber bei ausführlichen Messungen der CE an einzelnen Filamenten festgestellt, dass die Winkel sich über eine Strecke von 20 m nicht verändern. Dazu wurde mittels Blenden jeweils die Strahlung von einem 2 m langen Stück des Filaments untersucht. Da von einer starken dynamischen Veränderung der Puls- bzw. Filamenteigenschaften entlang einer solchen Strecke auszugehen ist, spricht diese Beobachtung sehr für die Universalität von  $\theta_{CE}(\lambda)$ . Die fast gleichmäßige Abweichung der Werte aus [Nibbering et al., 1996] könnte an einem systematischen Messfehler liegen. In der Nähe von  $\lambda_0 = 800$  nm könnte eine Überlagerung mit dem Zentralstrahl zu fehlerhaften Werten geführt haben. Die Unterscheidung beider Komponenten des Lichts ist für kleine Winkel in jedem Fall schwierig, besonders bei kurzen Versuchsstrecken.

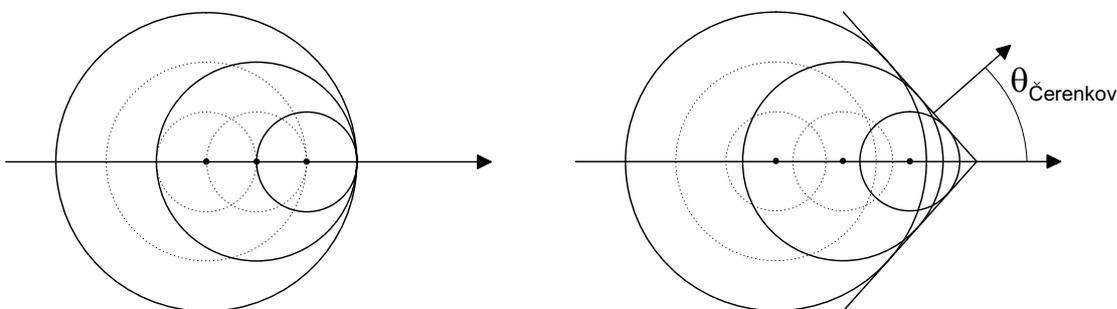
Eine klare **theoretische Deutung** der CE findet sich in der Literatur nicht. Häufig wird sie aber als eine Art **Čerenkov-Strahlung** bezeichnet. Bei diesem in Bild 3-33 schematisch dargestellten Effekt gilt  $\cos\theta = c/v$ , wobei  $v$  die Geschwindigkeit der Strahlungsquelle ist. Setzt man diese in unserem Fall mit der Phasengeschwindigkeit der Laserwellenlänge  $\lambda_0$  gleich, so ergibt sich die Beziehung

$$\cos \theta_{\text{Cerenkov}} = \frac{c(\lambda)}{c(\lambda_0)} = \frac{n(\lambda_0)}{n(\lambda)} . \quad (3-30)$$

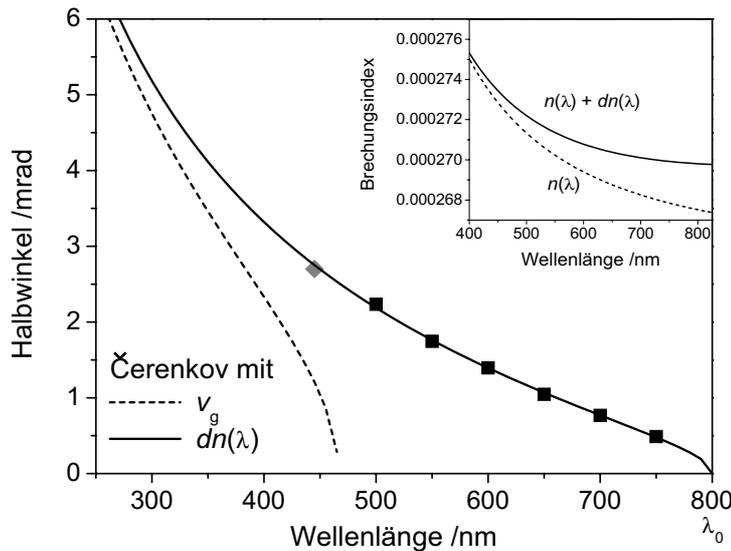
Den Brechungsindex  $n(\lambda)$  von Luft erhält man aus der empirischen Formel in Gleichung 3-29. In Bild 3-32 ist die nach Gleichung 3-30 berechnete Kurve  $\theta_{\text{Cerenkov}}(\lambda)$  dargestellt. Die Übereinstimmung mit [Nibbering et al., 1996] ist gut, während die Werte von [Kosareva et al., 1997] die Kurvenform genauer wiedergeben, aber etwas nach unten verschoben erscheinen. Die berechnete Kurve gilt für 23°C und 1013 hPa.  $n(\lambda)$  ist leicht temperatur- und druckabhängig. Für Gleichung 3-29, die für 15°C und 1013 hPa gilt, existiert eine entsprechende Korrekturformel. Allerdings ist der Effekt nicht sehr groß (bei der Messung an der Sternwarte heben sich außerdem die druck- und temperaturbedingten Abweichungen genau auf). Um die Kurve mit den Werten aus [Kosareva et al., 1997] etwa in Deckung zu bringen, müsste man zum Beispiel 150°C und 700 hPa annehmen.

Bei der Messung in 6 km Höhe liegt das Maximum des CE-Rings bei 2,7 mrad. Dies entspricht etwa 500 nm in der Cerenkov-Kurve. Um ein Maximum des Produkts aus Filtertransmission und spektraler Intensität bei 500 nm zu erhalten, müsste man einen exponentiellen Abfall des Spektrums zwischen 600 nm und 400 nm um mehr als vier Größenordnungen annehmen. Dies ist unwahrscheinlich, auch wenn bei dieser Messung ohne Fokussierung (vergleiche das Lidar-Spektrum in Bild 2-28) ein Plateau im blauen Spektralbereich nicht in der Form wie in Bild 3-24 vorhanden war.

Die Kurve  $\theta_{\text{FWM}}(\lambda)$  in Bild 3-32 steht für das entsprechende kurzwellige Photon, das bei **Vierwellenmischung** aus zwei zur Strahlachse parallelen 800nm-Photonen entsteht. Sein Emissionswinkel errechnet sich aus der Phasenanpassung unter Berücksichtigung der Dispersion von Luft ( $n(\lambda)$  aus Gleichung 3-29). Diese Kurve stimmt mit den Messwerten



**Bild 3-33.** Prinzip der Čerenkov-Strahlung. Links: normale Ausbreitung mit  $c = v$ . Rechts: die Geschwindigkeit der Strahlungsquelle  $v$  ist größer als die Phasengeschwindigkeit  $c$ . Die Beugung der Wellenfront verursacht einen Strahlungskegel (beim Schall Mach-Kegel genannt).



**Bild 3-34.** Čerenkov-Winkel berechnet mit der Gruppengeschwindigkeit (---) bzw. mit einer wellenlängenabhängigen Korrektur des Brechungsindex (—). Datenpunkte aus Bild 3-32.

weniger gut überein, vor allem weil sich ihre Steigung bei Annäherung an die verdoppelte Frequenz  $2\omega_0$  umkehrt. Auch bei SCG in Wasser [Smith et al., 1977] und bei nahresonant angeregter Emission in Natriumdampf [Golub et al., 1986] wurde festgestellt, dass ein FWM-Modell die CE-Winkel nicht quantitativ genau wiedergibt.

Die Deutung der CE als **Čerenkov-Effekt** verträgt sich gut mit der Annahme, dass die Funktion  $\theta_{CE}(\lambda)$  nicht von den Pulseigenschaften, sondern nur vom Medium abhängt. Da die Messung in 6 km Höhe die Kurve von Kosareva et al. [1997] bestätigt, scheint es sinnvoll zu sein, sich über die Abweichung dieser von der nach Gleichung 3-30 berechneten Funktion  $\theta_{Čerenkov}(\lambda)$  Gedanken zu machen. Es stellt sich die Frage, welche Modifikation auf der Basis welcher theoretischen Überlegung die Funktion den Messwerten annähert. Ein wellenlängenunabhängiger additiver Beitrag  $dn$  zum Brechungsindex  $n(\lambda)$ , z.B. der Kerr-Term  $n_2 I$ , ändert die Kurve praktisch nicht (erst ab unrealistisch großen Werten  $dn > 0,1$ ). In Gleichung 3-30 wurde  $c(\lambda_0) = c_{vak}/n(\lambda_0)$  als Geschwindigkeit der Strahlungsquelle eingesetzt. Möglicherweise müsste die **Gruppengeschwindigkeit** des Pulses

$$v_g = \left( \frac{dk}{d\omega} \Big|_{\omega_0} \right)^{-1} = \frac{c_{vak}}{n(\lambda_0)} \left( 1 + \frac{\lambda_0}{n(\lambda_0)} \frac{dn}{d\lambda} \Big|_{\lambda_0} \right) \quad (3-31)$$

stattdessen verwendet werden. Dies führt aber zu einer Verschlechterung der Übereinstimmung (Bild 3-34 gestrichelte Linie).

Eine erstaunlich gutes Ergebnis erhält man, wenn man in Gleichung 3-30 zum Brechungsindex  $n(\lambda)$  eine zu  $\lambda^x$  proportionale Komponente, mit  $1 > x > 0$ , hinzuaddiert. Dies

entspricht einer Abflachung der Dispersionskurve in dem betrachteten Spektralbereich. Eine gute Anpassung wird mit der Funktion  $dn = 2,4 \cdot 10^{-7} \lambda^{0,5} - 4,5 \cdot 10^{-6}$  erzielt (Bild 3-34 durchgezogene Linie). Der letzte Term ist eine willkürliche Normierung, denn weiterhin gilt, dass ein zusätzlicher konstanter Beitrag zu  $dn$  die Funktion  $\theta_{\text{Cerenkov}}(\lambda)$  nicht verändert. Man erhält eine ähnlich gute Anpassung auch bei gleichzeitiger Verwendung der Gruppengeschwindigkeit mit  $dn = 3,8 \cdot 10^{-12} \lambda^2$ . Dabei verschwindet die Ableitung der Dispersionskurve bei  $\lambda_0$  fast völlig, das heißt,  $v_g$  nähert sich  $c_{\text{vak}}/n(\lambda_0)$  an. Allerdings bekommt man einen Emissionswinkel  $\theta \approx 0,5$  mrad bei  $\lambda \rightarrow \lambda_0$ , was nur dann den Messungen nicht widerspricht, wenn dort die Intensität der CE gegenüber der des weniger divergenten Zentralstrahls vernachlässigbar ist.

Trotz einer gewissen Willkürlichkeit dieser Auswertungen kann man über mögliche Erklärungen für eine entsprechende Abweichung von der normalen Dispersion nachdenken. Da der Faktor vor  $\lambda^x$  positiv ist, scheidet das Plasma als Ursache aus (siehe Gleichung 3-19). Golub et al. [1986] nehmen an, dass die CE ihren Ursprung in der Oberfläche der Filamente hat. Dort verschwindet die Plasmadichte. Dies passt auch zu der Tatsache, dass nur ein Teil des Anti-Stokes-Weißlichts konisch abstrahlt. Somit bleibt als mögliche Erklärung, dass die Wirkung des Kerr-Effekts, der auch im Strahlungsreservoir um das Filament auftritt, von der Wellenlänge des Lichts abhängt. Die Abhängigkeit von  $n_2$  von der Laserwellenlänge ist untersucht worden [Hellwarth et al., 1990]. Inwieweit sich daraus eine Veränderung der Dispersion, die das Weißlicht erfährt, ableiten lässt, wäre zu klären.

Auch bei der konischen Emission besteht noch Forschungsbedarf, um zu einem genauen Verständnis des Phänomens zu gelangen. Trotzdem sind auch hier wichtige Erfahrungen für die Anwendungen gesammelt worden. Wird zum Beispiel bei Lidar-Messungen der Strahl zum Zweck einer hohen UV-Ausbeute fokussiert, so muss die Überlagerung der CE der Einzelfilamente mit der Divergenz des Gesamtstrahls beachtet werden, wie schon in Abschnitt 3.3.4 beschrieben worden ist.

### 3.5.2 Erzeugung der dritten Harmonischen (THG) in Luft

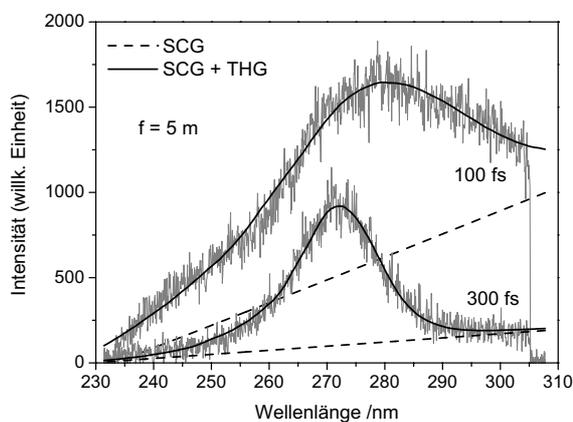
Konische Emission wurde zuerst bei Strahlung bestimmter Wellenlängen  $\lambda_0 \pm d\lambda$  beobachtet, zum Beispiel bei Raman-Streuung in Kristallen [Chiao und Stoicheff, 1964] oder bei nahresonanter Emission in atomaren Gasen. In solchen Fällen können die Emissionswinkel möglicherweise oft über die Phasenanpassung erklärt werden. Die einzige spezielle spektrale Komponente, die bei der Weißlichterzeugung in Luft beobachtet wird, ist die dritte Harmonische der Laserwellenlänge (genau genommen muss es „einzige kohärent erzeugte

Komponente“ heißen, denn das Plasma der Filamente emittiert beispielsweise auch Fluoreszenzlinien von Stickstoff in alle Richtungen [Talepour et al., 1999]). Die zweite Harmonische ist in dem isotropen Medium Luft prinzipiell nicht zu erwarten (Abschnitt 3.1.3).

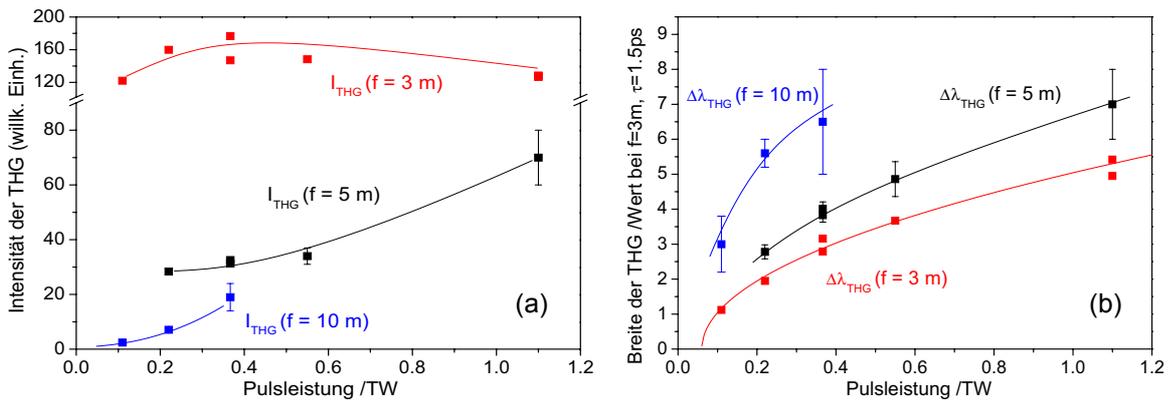
Bei den UV-Lidar-Messungen in Lyon wurde die Linie um etwa 270 nm besonders deutlich in den Spektren aus niedriger Höhe detektiert (Abschnitt 2.2.2, Bild 2-17), wodurch auf eine hohe Divergenz der dritten Harmonischen geschlossen werden konnte. Um genauere Informationen über dieses Phänomen zu erhalten, wurden die in Abschnitt 2.4.3 beschriebenen Laborexperimente durchgeführt. Hier sollen nun die Gemeinsamkeiten bzw. Unterschiede der THG im Vergleich zur Weißlichterzeugung (SCG) untersucht werden, vor allem in Hinsicht auf den Emissionswinkel und den Entstehungsort.

Um die Abhängigkeiten der THG und SCG von der Brennweite der Linse sowie den Laserparametern getrennt bestimmen zu können, wurden beide Komponenten der Spektren durch einen Fit getrennt. Dabei wurde für das Weißlicht zwischen 235 nm und 305 nm eine Gerade angenommen. Für die THG lieferten Gauß- oder Lorentz-Fits keine befriedigenden Ergebnisse, da die Linie asymmetrisch ist (siehe Bild 2-41, gilt auch in der Frequenzdarstellung). Daher wurde eine gemessene Linienkurve aus einem Spektrum ohne SCG (starke Fokussierung, langer Puls) verwendet und ihre Amplitude, Breite ( $\Delta\lambda_{\text{THG}}$ ) und auch Lage ( $\lambda_{\text{THG}}$ ) jeweils angepasst. Die guten Fitergebnisse – Beispiele sind in Bild 3-35 dargestellt – zeigen, dass die Annahmen sinnvoll sind. Die Daten der THG-Linien können nun ausgewertet werden. Die Ergebnisse der SCG-Intensität, für die als Maß der Wert der Geraden bei 300 nm verwendet wird, wurden schon in Abschnitt 3.4.2 besprochen (siehe Bild 3-27).

In völligem Kontrast zur Weißlichtintensität (Bild 3-27) steht die **Intensität** der THG (Integral über die gesamte Linie) hinsichtlich ihrer **Abhängigkeit von der Fokussierung** (Bild 3-36 a). Dies ist ein erster deutlicher Hinweis darauf, dass THG und SCG weitgehend unab-



**Bild 3-35.** Trennung von THG und SCG durch Fit einer Geraden (SCG) und einer angepassten gemessenen Kurve reiner THG. Beispiele zweier Pulslängen bei Fokussierung mit 5m-Linse (aus Bild 2-39). Die Ränder dienen zum Nullabgleich des Detektoruntergrunds (Bereich der CCD ohne Bildverstärker).



**Bild 3-36.** (a) Intensität (Fläche) und (b) Breite der THG-Linie für verschiedene Brennweiten der Fokussierlinse und Pulsleistungen (Pulsdauer zwischen 100 fs und 1 ps bei konstant 110 mJ Pulsenergie). Analyse der Spektren aus Bild 2-39.

hängig auftreten. Vergleicht man in Bild 3-36 (a) die Werte der drei Kurven bei der Pulsleistung  $P = 0,37$  TW, so zeigt sich ungefähr eine Proportionalität der Intensität zu  $(1/f)^3$ . Auch haben die unteren beiden Kurven, vor allem im Fall von  $f = 10$  m, näherungsweise einen kubischen Verlauf über der **Pulsleistung**. Dies stimmt mit der Theorie zu Gleichung 3-10 überein, d.h.  $I_{\text{THG}} \sim I(\lambda_0)^3$ , wenn man davon ausgeht, dass die lokale Intensität der Pulse sich proportional zur Pulsleistung und reziprok zur Brennweite verhält. Eine Ausnahme stellt die stärkste Fokussierung ( $f = 3$  m) dar, bei der intensive THG-Linien neben sehr schwacher SCG gemessen wurden. Hier steigt  $I_{\text{THG}}(P)$  auch anfangs mit der Pulsleistung an, fällt dann aber leicht ab. Unter Berücksichtigung der Streuung ist die Intensität fast konstant. Möglicherweise tritt hier eine gewisse Sättigung ein und die Reduzierung der Pulsdauer wirkt sich wie eine Verkürzung der Wechselwirkungslänge in Gleichung 3-10 aus. Variiert man bei langen Pulsen ( $\tau_p = 1,5$  ps) und  $f = 3$  m die **Pulsenergie** (vier von neun Spektren sind in Bild 2-41 dargestellt), so erhält man wiederum eine kubische Beziehung  $I_{\text{THG}} \sim E_p^3$ . Die Kurve einer analogen Messreihe bei  $\tau_p = 100$  fs steigt eher linear an, liegt bei kleinen Energiewerten über der kubischen Kurve und kreuzt sie bei hohen Werten. Auch hier zeigt sich also eine Art Sättigungseffekt, der den Effekt der höheren Pulsleistung kompensiert.

Eine gewisse Korrelation mit der Weißlichtintensität (siehe wiederum Bild 3-27) zeigt die **Breite der THG-Linie** (Bild 3-36 b), die allerdings nicht linear ansteigt, sondern etwa mit der Wurzel der Pulsleistung. Unter der Annahme, dass eine „Selbstverbreiterung“ der THG-Linie vernachlässigbar ist, scheint diese Beobachtung zunächst völlig plausibel. Denn die SCG geht mit der Verbreiterung der Laserlinie (durch SPM) einher, die sich in



Annahme, dass  $\theta_{\text{THG}}$  nicht viel größere Werte als 5 mrad annahm, lag das Ende der THG-Zone bei etwa 12 m, in jedem Fall aber vor 12,5 m. Dies ist ein weiterer Beweis dafür, dass die THG entkoppelt von der SCG bzw. der Filamentierung auftritt. Denn bis mindestens 14,5 m traten Filamente auf, die Löcher durch Papier brannten. Auch mit Papier II im Strahl war dies bis mindestens 13,5 m der Fall (größere Distanzen wurden hierbei nicht getestet).

Wie im experimentellen Teil erwähnt, lag der reale Fokus anscheinend nicht genau bei 10 m sondern bei etwa 11,5 m bis 12 m hinter der Linse. Filamente traten vor allem hinter diesem Bereich auf und daher wohl auch ein Großteil der SCG. (In Bild 3-37 sind die Filamente angedeutet, die sich noch bei 14,5 m ihren Weg durch das Papier brennen. Weitere Filamente und ein Großteil des bereits divergent abgestrahlten Weißlichts wurden durch Papier III abgeblockt.) Die Halbierung der Weißlichtintensität durch das Papier I (siehe Bild 2-44 a) ist nicht auf eine bedeutende SCG vor 11,5 m zurückzuführen, sondern auf die um das Loch herum abgeblockte Pulsenergie im äußeren Bereich des Strahls.

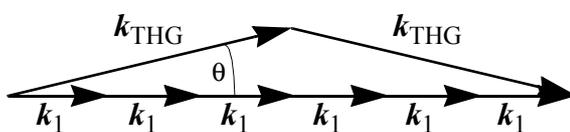
Etwas vereinfachend könnte man also sagen, dass bei der Ausbreitung der fokussierten Pulse **erst THG** und **dann Filamentierung** mit SCG stattfindet. Dies scheint den obigen Ausführungen zur Breite der THG-Linie zu widersprechen. Man weiß aber aus Erfahrung, dass Selbstphasenmodulation in Luft schon bei Intensitäten unter der, bei der Filamentierung einsetzt, stattfindet. Je sanfter man fokussiert und je höher die Pulsleistung ist, desto mehr beginnt die Verbreiterung der Laserlinie durch SPM vor der THG, die ja von  $I^3$  abhängt. Sicherlich ist aber – in Übereinstimmung mit Kapitel 3 – auch die Erzeugung von UV-Weißlicht in der Region der Fokustaille besonders effizient. Daher erreicht ein bedeutender Teil des UV-Lichts entsprechend der spezifischen Divergenz und konischen Emission den Schirm bei 16 m schon mit einem Abstand zur Achse von mehr als 2 cm (Radius des Lochs, siehe Spektren der Rückstreuung mit und ohne Loch in Bild 2-45).

Unter den genannten experimentellen Bedingungen fand THG also nur in der Region des Brennpunkts statt, vermutlich sogar nur in deren vorderem Teil, und strahlte rein konisch ab. Diese Ergebnisse, die in Bild 3-37 zusammenfassend veranschaulicht sind, stehen in starkem Kontrast zur Interpretation und theoretischen Deutung ähnlicher Experimente durch Aközbek et al. [2002]. Sie sprechen von *nonlinear phase-locking* zwischen der THG- und dem 800nm-Puls und von der Erzeugung eines zweifarbigen Filaments. Bei ihrer Simulation des Experiments bleibt etwas unklar, ob das Filament die Intensität der an einer bestimmten Stelle erzeugten dritten Harmonischen nur konserviert oder ob es eine gleichmäßige Konvertierung entlang des Filaments gibt. Betrachtet man aber ihre experimentellen Parameter und Ergebnisse alleine, so stehen diese nicht wirklich im Widerspruch zu der hier präsentierten Deutung der ungekoppelten THG in der Fokusregion. Sie haben Pulse

mit 0,5 mJ, 45 fs und  $w_0 = 0,49$  cm mittels einer 1m-Linse fokussiert und ein 10 cm langes Filament (von  $z = 94$  cm bis 104 cm) gemessen. Die Intensitäten bei der Laserwellenlänge und der dritten Harmonischen wurden entlang der Strecke jeweils durch ein  $400\mu\text{m}$ -Loch detektiert. Die THG-Intensität steigt zwischen  $z = 93$  cm und 98 cm an, klingt dann langsam ab und fällt an einer Kante bei 104,5 cm auf Null. Ist also die THG entsprechend dem Modell in Bild 3-37 auf die vorderen fünf Zentimeter beschränkt, so ergeben diese Werte  $\theta_{\text{THG},\text{min}} = 3$  mrad. Eine Erklärung, warum der Wert hier kleiner als 5 mrad ist, folgt weiter unten. Obendrein ist es problematisch, bei der Messung durch die  $400\mu\text{m}$ -Blende von einem 10cm-Filament zu sprechen. Zwar hat einen Gauß-Puls mit den genannten Parametern und  $f = 1$  m eine Rayleigh-Länge von nur 1,1 cm ( $w_{\text{Taille}} = 52 \mu\text{m}$ ), aber auf einer Strecke von 10 cm (Fokus  $\pm 5$  cm) beträgt die volle HWB des Strahls weniger als  $300 \mu\text{m}$ . Im Folgenden wird die Größe der beobachteten Emissionswinkel diskutiert. Berücksichtigt man nur die longitudinale **Phasenanpassung**, folgt aus ihr die Formel

$$\cos\theta = \frac{3k(\lambda_0)}{k(\lambda_{\text{THG}})} = \frac{n(\lambda_0)}{n(\lambda_{\text{THG}})} \quad (3-32)$$

für den Emissionswinkel der THG. Unter Verwendung von Gleichung 3-29 erhält man für Luft  $\theta = 6,6$  mrad. Diesem Winkel entspricht der Kegel **a** in Bild 3-37. Moll et al., [2002] haben zur Erklärung der von ihnen gemessenen rein konischen THG in Saphir die Theorie vorgeschlagen, dass die Phasenanpassung durch die gleichzeitige Erzeugung zweier Photonen erfüllt wird (Bild 3-38). Das heißt, die Ursache der THG wäre die Nichtlinearität siebter Ordnung. Es ist schwer abzuschätzen, ob ein  $\chi^{(7)}$ -Prozess in unserem Fall quantitativ die entscheidende Rolle spielen kann. Möglicherweise existiert ein weiterer Effekt, der zur Phasenanpassung führt. In jedem Fall passt der mit Gleichung 3-32 berechnete Winkel 6,6 mrad zu den Ergebnissen des Experiments. Dabei ist zu beachten, dass eine stärkere Fokussierung eine größere Winkelverteilung der 800nm-Photonen zur Folge hat. Damit verbreitert sich auch die Winkelverteilung der THG und  $\theta_{\text{THG},\text{min}}$  wird kleiner, zum Beispiel bis zu 3 mrad im Experiment von Aközbek et al., wo der Konvergenzwinkel des fokussierten Strahls 4,9 mrad betrug. Im hier beschriebenen Experiment lag er bei ca. 3 mrad und  $\theta_{\text{THG},\text{min}}$  ist mit  $\geq 5$  mrad abgeschätzt worden.



**Bild 3-38.** THG als  $\chi^{(7)}$ -Prozess. Phasenanpassung durch Kompensation der transversalen Komponenten zweier Photonen. Das Ergebnis ist eine konische Emission der dritten Harmonischen. (Nach [Moll et al., 2002].)

Offen ist noch die Frage, warum aus den Filamenten hinter dem Brennpunkt keine THG gemessen wurde (das Ergebnis mit Papier II und vollem Reflektorschirm ist hier eindeutig). Denn aus den Überlegungen im vorigen Absatz folgt nicht die Notwendigkeit eines konvergenten Strahls. Möglicherweise verliert die THG in den Filamenten mit ihrem kleinen Volumen und ihrer selbstbegrenzten Intensität (*intensity clamping*) gegenüber anderen Prozessen stark an Effizienz – im Gegensatz zur Wechselwirkung von fs-Pulsen mit Mikrotropfen, die den Strahl in sich selbst fokussieren [Kasparian et al., 1997; Zimmer, 2001]. Oder die korrektere Begründung ist, dass die Grenze zwischen THG und SCG in den Filamenten mit schon stark verbreitertem Spektrum schlagartig verwischt. Die in Form von deutlichen, wenn auch breiten Linien messbare THG (siehe die UV-Lidar-Spektren in Bild 2-18) würde dann aus Bereichen nahe dem Fokus stammen, wo eine hohe Intensität vorherrscht, aber (noch) kein Filament durch Selbstfokussierung und Ionisation entstanden ist. Filamente entstehen an lokalen Inhomogenitäten des Strahlprofils. Je stärker fokussiert wird, um so höhere Intensität müssten die Bereiche dazwischen erreichen, was die Abhängigkeit der THG von der Brennweite (Bild 3-36 a) erklärt.

Ein interessanter Punkt ist noch, dass die Gleichung 3-32 im Prinzip identisch ist mit Gleichung 3-30, also der Berechnung der wellenlängenabhängigen konischen Emission als Cerenkov-Effekt. Ein experimenteller Wert für  $\theta_{\text{THG}}$  zwischen 5 mrad und 6 mrad stimmt genau mit der Extrapolation der gemessenen CE-Winkel überein (siehe Bild 3-34). An der Richtung ist die THG also nicht von konisch emittiertem Weißlicht zu unterscheiden. Im Vergleich zur resultierenden spektralen Divergenz aus dem Filamentbündel eines fokussierten Strahls (siehe Bild 3-20) würde ihr aber der Anteil des Zentralstrahls fehlen.