

INAUGURAL-DISSERTATION
zur
Erlangung der Doktorwürde
der
Naturwissenschaftlich-Mathematischen
Gesamtfakultät
der Ruprecht-Karls-Universität
Heidelberg

vorgelegt von
Dipl.-Ing. Sebastian Dewald
aus Freiburg i.B.

Tag der mündlichen Prüfung: 28. Juni 2006

Erzeugung intensiver Lichtfelder mit einem Laseroszillator und deren Wechselwirkung mit Atomen

Gutachter: Prof. Dr. Uwe Morgner
Prof. Dr. Joachim Ullrich

für Cordula

Zusammenfassung:

In dieser Arbeit wird die Erzeugung ultrakurzer Laserpulse mit einem Titan-Saphir Laser beschrieben. Der Laseroszillator wird in einem Regime positiver Gesamtdispersion betrieben und ist durch eine sogenannte Herriott-Zelle verlängert, wodurch Laserpulse mit einer Energie im Micro-Joule-Bereich erzeugt werden. Diese Pulse werden mit einem Prismenkompressor komprimiert und erreichen dadurch eine Leistung in der Pulsspitze von nahezu 10 Megawatt bei einer Pulsdauer von 50 Femtosekunden und einer Pulswiederholrate von sechs Megahertz. In einem Reaktionsmikroskop, das speziell für die Anwendung dieser Laserpulse konzipiert ist, lässt sich die Wechselwirkung von Atomen und Molekülen in intensiven Laserfeldern in einem bislang für vollständig differenzielle Messungen unzugänglichen Intensitätsbereich untersuchen. Dabei übersteigt die Intensität innerhalb des Reaktionsmikroskops 10^{14} W/cm^2 . Aufgrund der im Vergleich zu bisherigen Lichtquellen hohen Wiederholrate der Pulse des Laseroszillators sind Messungen bei einer geringen Ereigniswahrscheinlichkeit möglich.

Abstract:

In this thesis the generation of ultrashort laser pulses with a Titanium-Sapphire laser is described. The laser oscillator, operated with a net positive dispersion, is extended by a so-called Herriott-cell, which allows the generation of laser pulses in the micro-joule regime. These pulses are compressed in a prism compressor and thus reach a peak power of almost 10 megawatt at a pulse duration of 50 femtoseconds and a pulse repetition rate of six megahertz. In a reaction microscope, specially designed to apply these pulses, the interaction of atoms and molecules in intense laser fields can be studied in an intensity region so far unreachable for fully differential measurements. Thereby the intensity inside the reaction microscope exceeds 10^{14} W/cm^2 . As a result of the high pulse repetition rate of the laser oscillator in comparison with previously used light sources measurements at low event rates are made possible.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Aspekte des Lasers	9
2.1	Resonator	9
2.2	Ratengleichungen	10
2.2.1	Stationärer Laserbetrieb	12
2.3	Ultrakurze Laserpulse	13
2.3.1	Dispersion	13
2.3.2	Mastergleichung	14
2.3.3	Moden-Kopplung	15
2.3.4	Moden-Kopplung in einem Laser mit langem Resonator	16
3	Aufbau des Lasers	17
3.1	Laseraufbau	17
3.1.1	Interne Dispersion	18
3.2	Pumplaser	20
3.3	Kristallkühlung	21
3.3.1	Einfluss der Pumpwellenlänge	21
3.3.2	Nichtstrahlende Übergänge	22
3.3.3	Kristallhalterung	25
3.4	Herriot-Zelle	26
3.4.1	Vakuumkammer der Herriot-Zelle	30
3.5	Externe Dispersionskompensation	30
4	Erzeugte Laserpulse	33
4.1	Doppelpulsdetektion	33
4.1.1	Schnelle Photodiode	33
4.1.2	Intensitätsautokorrelator	35
4.2	Ausgangsleistung	36
4.3	Charakterisierung der Pulsdauer	36
4.3.1	Interferometrische Autokorrelation	36

Inhaltsverzeichnis

4.3.2	SPIDER	38
4.4	Erzeugung von Weisslicht	39
4.5	Strahlqualität	40
5	Fokussierung der Laserpulse	43
5.0.1	Asphärische Linse	44
5.1	Fokussierung durch einen Spiegel	44
5.2	Erzeugbare Intensität	48
6	Ionisation in starken Laserfeldern	49
6.1	Einfachionisation	49
6.1.1	Tunnelionisation	50
6.1.2	Multiphotonionisation	52
6.2	Doppelionisation	54
6.2.1	Rekollisionsmechanismus	56
6.3	Schwelle der Doppelionisation durch Rekollision	59
6.3.1	Ionisation nach Anregung	62
7	Aufbau des Reaktionsmikroskops	65
7.1	Funktionsweise eines Reaktionsmikroskops	65
7.2	Gasjet	66
7.3	Fokussierung innerhalb des Reaktionsmikroskops	68
7.4	Aufbau des Spektrometers	71
7.4.1	Segmentierung des Goldspiegels	72
7.4.2	Numerische Berechnung des elektrischen Abzugfeldes	73
7.4.3	Magnetfeld des Spektrometers	80
8	Erste Ergebnisse mit dem Reaktionsmikroskop	83
8.1	Nachweis von Ionen	83
8.2	Koinzidenzmessung	86
8.3	Vergleich mit bisherigen Messaufbauten	88
9	Zusammenfassung und Ausblick	91
	Literaturverzeichnis	95
	Danksagung	99

Kapitel 1

Einleitung

Dieses erste Kapitel soll einen Einblick in die vorliegende Arbeit und die darin behandelten Aspekte der Laser- und Atomphysik geben. Dabei unterteilt sich dieses Kapitel wie die gesamte Arbeit thematisch in diese beiden Teilgebiete der Physik. Am Ende des Kapitels wird ein Gesamtüberblick über den entstandenen experimentellen Aufbau gegeben und anhand dessen die Struktur dieser Arbeit erklärt.

Intensive Laserpulse aus einem Laseroszillator

Mit dem Aufkommen des Lasers vor 50 Jahren wurden nichtlineare Wechselwirkungen zwischen Licht und Materie zum ersten Mal experimentell zugänglich, da für diese sehr hohe Lichtintensitäten, die von "natürlichen" (z.B. thermischen Lichtquellen) nicht erreicht werden, nötig sind. Die Hauptmerkmale von nichtlinearen optischen Effekten sind die Verletzung des Superpositionsprinzips sowie die Generation von neuen Frequenzkomponenten: Werden zwei Lichtstrahlen überlagert, so kann Licht in einer weiteren Richtung entstehen oder es kann sich Licht einer anderen Wellenlänge ausbilden. Mit dem Aufkommen von modengekoppelten Lasern gewann die nichtlineare Optik weiter an Bedeutung. Diese Laser emittieren Lichtpulse mit sehr kurzer Zeitdauer (Pulsdauer) und erzeugen so in der Pulsspitze eine hohe, momentane Leistung (Pulsspitzenleistung) bei einer im Vergleich zu dieser sehr geringen mittleren Leistung. Fokussiert man diese Lichtpulse, so erhält man auf einfachem Weg sehr hohe Intensitäten während eines Pulses.

Die Eigenschaft der Nichtlinearität findet ihren Ausdruck in der Effizienz, mit der ein nichtlinearer Prozess stattfindet, sie skaliert mit der n -ten Potenz der Intensität I (I^n , $n > 1$). Dabei wird n mit der Anzahl der am nichtlinearen Prozess beteiligten Photonen assoziiert. Durch dieses Verhalten sind nichtlineare Prozesse erst ab einer gewissen Intensität messbar und treten in

der alltäglichen Umgebung des Menschen nicht auf.

Die Intensität, die sich mit "normalen" modengekoppelten Laseroszillatoren erzeugen lässt, ist für die Anregung nichtlinearer Prozesse höherer Ordnung nicht ausreichend. Für solche Anwendungen separiert man eine kleine Anzahl der Pulse des Laseroszillators und verstärkt diese mit einem Verstärker, wobei die Energie eines Laserpulses (Pulsenergie) und damit auch seine Pulsspitzenleistung um viele Größenordnungen angehoben werden kann.

Liegt die Pulswiederholrate eines Laseroszillators bei einigen zehn Millionen Laserpulsen pro Sekunde, so verringert sich diese dabei auf einige Tausend Laserpulse pro Sekunde. Dabei ist die Wiederholrate der verstärkten Laserpulse entweder durch die maximal zur Verfügung stehende Leistung des Verstärkers, falls eine sehr hohe Pulsenergie gewünscht wird, oder durch die Geschwindigkeit des optischen Schalters, der die Pulse vor dem Verstärker separiert, begrenzt. Durch diese technische Beschränkung entsteht eine Lücke zwischen der Pulswiederholrate und der Pulsenergie von Laseroszillatoren (> 20 MHz, < 100 nJ) auf der einen Seite und den Verstärkersystemen (< 20 kHz, > 1 mJ) auf der anderen Seite.

Ein Konzept das diese Lücke schliesst wird durch einen Laser mit langem Resonator verkörpert. In einem solchen linear aufgebauten Laser läuft, wie in jedem "normalen" modengekoppelten Laser, ein Puls innerhalb des Resonators hin und her und wird in zeitlichen Abständen einer Resonatorumlaufdauer an einem Resonatorende teilweise ausgekoppelt. Die Funktionsweise dieses "Kompromisses" zwischen einem "normalen" Laseroszillator und einem Verstärkersystem beruht, wie der Name schon andeutet, auf der Verlängerung des Laserresonators, die eine Vergrößerung der Resonatorumlaufdauer zur Folge hat.

Bleibt bei dieser Verlängerung die mittlere Ausgangsleistung, die über viele Laserpulse gemittelt wird, konstant, so erhöht sich die Pulsenergie sowie die Pulsspitzenleistung der emittierten Pulse um jenen Faktor, um den der Resonator verlängert wurde. Dieser Zusammenhang ist in Abb. 1.1 illustriert. Die blaue Kurve stellt die momentane Ausgangsleistung eines "normalen" modengekoppelten Lasers dar. Im Vergleich zu diesem emittiert ein Laser mit einem zehn mal so langen Resonator eine zehn mal höhere Pulsenergie, die in rot dargestellt ist. Seine Pulswiederholdauer T_R ist dabei zehn mal länger als die des "normalen" Lasers.

Der in dieser Arbeit im Detail beschriebene Laser mit langem Resonator erreicht eine Pulsspitzenleistung von 10 MW und hat dabei eine Pulswiederholrate von 6 MHz.

Bestimmte Anwendungen ultrakurzer Laserpulse profitieren von derartigen Lichtquellen. Einige Beispiele dieser Klasse von Anwendungen sind:

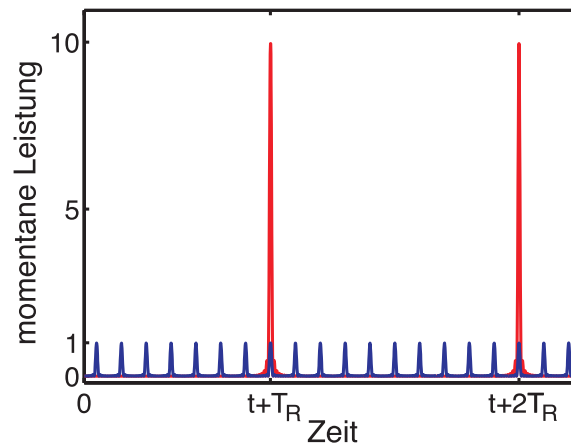


Abbildung 1.1: Ausgangsleistung eines "normalen" modengekoppelten Lasers (blau) sowie eines Lasers mit langem Resonator (rot) bei gleicher mittlerer Ausgangsleistung.

- Nichtlineare Mikroskopie
- Mikrostrukturierung
- Atomphysik in starken Laserfeldern

Alle oben genannten Anwendungen haben die Eigenschaft, dass jeder Laserpuls ein Ereignis oder ein Messergebnis zur Folge hat und nicht über mehrere Pulse eine Mittelwertbildung erfolgt.

In der nichtlinearen Mikroskopie entsteht ein Bildpunkt durch einen Laserpuls. Eine Erhöhung der Pulswiederholrate ermöglicht dabei die Erhöhung der gesamten Bildwiederholrate.

Bei der Mikrostrukturierung wird durch jeden Laserpuls das Werkstück ein kleines Stückchen weiterbearbeitet. Ein aktuelles Beispiel hierfür ist das Schreiben eines Wellenleiters in einem Glassubstrat. Dabei wird die Glasmatrix innerhalb des Fokus, der in dem Glassubstrat geführt wird, durch einen nichtlinearen Prozess verändert. Diese Änderung, die eine höher Pulsenergie als die "normaler" Laseroszillatoren voraussetzt, führt zu einem modifizierten Brechungsindex. Eine höhere Pulswiederholrate als die eines Verstärkers ist für die Qualität des Wellenleiters hingegen entscheidend. Ein Forschungsprojekt der EU initiierte die ersten Arbeiten an dem im Folgenden beschriebenen Laser.

Die Atomphysik in starken Laserfeldern ist schließlich ein Beispiel aus der Grundlagenforschung, das Thema im folgenden Teil dieser Einleitung. Dabei

wird mit einer bestimmten, meist sehr kleinen Wahrscheinlichkeit ein Atom oder Molekül im Fokus eines Laserpulses ionisiert.

Atome in intensiven Laserfeldern

Ein in den letzten Jahren intensiv diskutiertes Phänomen in der Atomphysik, ist die sogenannte nicht-sequenzielle Doppelionisation von Atomen oder auch Molekülen. Bei der Ionisation durch intensives Laserlicht im sichtbaren oder infraroten Spektralbereich handelt es sich um einen hochgradig nichtlinearen Prozess, da für den Übergang eines Elektrons von einem gebundenen Zustand in das Kontinuum mehrere Photonen "gleichzeitig" absorbiert werden müssen.

In Abb. 1.2 ist die Ionisationausbeute für einfach und doppelt ionisiertes Helium aus [Wal94] in einem doppellogarithmischen Maßstab über der Intensität aufgetragen. Dabei liegt die Kurve der Einfachionisation aufgrund der höheren Wahrscheinlichkeit stets oberhalb derer der Doppelionisation. Geht man bei der Doppelionisation von einem sequenziellen Prozess aus, d.h. beide Elektronen werden nacheinander und unabhängig voneinander aus dem Atom entfernt, so ergibt sich theoretisch die durchgezogene schwarze Kurve in Abb. 1.2. Die experimentell gemessene Rate (Punkte und Kreuze) weicht von dieser Kurve stark ab und übertrifft diese in gewissen Intensitätsbereichen um mehrere Größenordnungen. Der genaue Mechanismus dieser erhöhten Rate war lange Zeit unklar, die als Ursache der Überhöhung vermutete Wechselwirkung zwischen den beiden freigesetzten Elektronen führte zu dem Begriff der nicht-sequenziellen Doppelionisation. Mit Hilfe neuer experimenteller Messverfahren, den sogenannten Reaktionsmikroskopen, mit denen es möglich war differenzielle Wirkungsquerschnitte zu messen, gelang es unterschiedliche Mechanismen auszuschließen und den sogenannten Rekollisionsmechanismus, für die Entstehung der erhöhten Rate zu verifizieren.

Das Modell des Rekollisionsmechanismus beschreibt dabei folgendes Szenario: Zuerst wird ein Elektron durch das intensive Laserfeld freigesetzt und in der Folge durch das alternierende elektrische Feld der Laserstrahlung beschleunigt. Das Elektron führt eine Oszillationsbewegung aus und kann mit dem entstandenen Ion wieder zusammenstoßen. Bei dieser Kollision ist es möglich, dass das zweite Elektron durch Stoßionisation freigesetzt wird.

Die maximal erreichbare kinetische Energie des ersten Elektrons vor der Kollision mit dem Ion ist proportional zur Intensität des Laserfeldes. Reicht diese Energie nicht aus, um einem zweiten Elektron das Überwinden des Ionisationspotenzials zu ermöglichen, und es so aus dem Ion zu lösen, sollte ein zweifach geladenes Ion durch einen inelastischen Elektronenstoß nicht mehr entstehen können. Dieser Umstand sollte eine geringere Ausbeute an

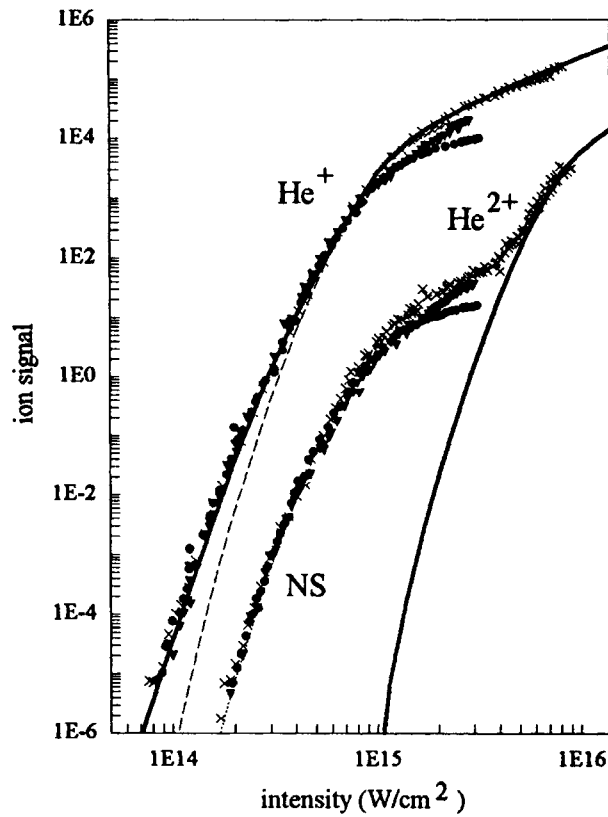


Abbildung 1.2: Ionisationsausbeute von Helium [Wal94] als Funktion der Intensität.

doppeltionisierten Ionen zur Folge haben.

Dieses einfache Modell der Rekollision sagt also eine Schwelle für die erhöhte Rate der nicht-sequenziellen Doppelionisation voraus. Der Versuch diese Schwelle experimentell mit einem Reaktionsmikroskop nachzuweisen, wurde lediglich einmal unternommen [Ere03]. Die kinetische Energie des ersten Elektrons war für die nicht-sequenzielle Doppelionisation jedoch ausreichend, falls es zu einem bestimmten Zeitpunkt während des Laserpulses, das zu einer Reduktion des Ionisationspotenzials führt, zur Rekollision kam.

Die experimentelle Schwierigkeit einer solchen Messung besteht in der geringen Ereignisrate bei den für diese Experimente kleinen Intensitäten. Wie die Daten in Abb. 1.2 zeigen, sinkt die Rate der Doppelionisation um mehr als eine Größenordnung, wenn man die Intensität halbiert. Dabei ergibt sich diese Rate aus der Wahrscheinlichkeit der Doppelionisation pro Laserpuls mal der Wiederholrate der Laserpulse.

Es gibt daher nur eine Möglichkeit die Schwelle der nicht-sequenziellen Doppelionisation innerhalb einer technisch möglichen Messdauer experimentell zu untersuchen und gegebenenfalls nachzuweisen: *Die Erhöhung der Wiederholrate der Laserpulse*. Der zuvor erwähnte Laser ist für solche Experimente eine im besonderen Maße geeignete Lichtquelle.

Für eine vollständige Untersuchung dieser vermuteten Schwelle der nicht-sequenziellen Doppelionisation ist im Rahmen dieser Arbeit ein speziell für die Anwendung des zuvor erwähnten Lasers konzipiertes Reaktionsmikroskop konstruiert und aufgebaut worden. Erste Messungen ergaben eine Intensität der Laserpulse innerhalb des Reaktionsmikroskops von über 10^{14} W/cm^2 , welche oberhalb der vermuteten Intensitätsschwelle der nicht-sequenziellen Doppelionisation für alle möglichen Atome und Moleküle (mit Ausnahme von Lithium) liegt. Gleichzeitig stellt sie die zur Zeit höchste direkt mit einem Laseroszillator ohne weitere Verstärkung oder Überhöhung erzeugte Intensität dar.

Neben dem Interesse der Grundlagenforschung am Verständnis von fundamentalen Zusammenhängen in der Atomphysik besitzt der Mechanismus der Rekollision auch noch andere, zum Teil anwendungsbezogene, Aspekte.

Der Stoß zwischen Elektron und Ion kann auch elastisch stattfinden. Dabei gewinnt das Elektron zusätzliche kinetische Energie, die in Elektronenspektren als Plateau bekannt ist und als Prozess zur Beschleunigung von Elektronen diskutiert wurde.

In der Plasmaphysik wird der oben beschriebene inelastische Stoß, der zur Stoßionisation führt, als Initialprozess eines Plasmas angesehen. Von einem genaueren Verständnis der nicht-sequenziellen Doppelionisation erhofft man sich weitere Einblicke in das Anfangsstadium einer Plasmabildung.

Rekombiniert das Elektron während des Stoßprozesses strahlend mit dem Mutterion, so entsteht ein Photon. Dieses weist im Vergleich zum Laserlicht eine kürzere Wellenlänge auf, die sogar sehr viel kürzer sein und bis in den keV Bereich reichen kann. Dieser Prozess wird als Erzeugung hoher harmonischer Strahlung (engl. high harmonic generation, HHG) bezeichnet. Findet er in vielen Atomen gleichzeitig und durch das Laserlicht kohärent angetrieben statt, ist er Ausgangspunkt von Lichtpulsen mit einer Zeitdauer im Attosekundenbereich. Diese Lichtpulse sind die kürzesten Signale, die man heutzutage erzeugen kann. Ihre Zeitdauer von bisher nachgewiesenen $200 \cdot 10^{-18} \text{ s}$ ist in der Größenordnung der Umlaufdauer äußerer Hüllenelektronen um den Atomkern, und lässt somit die Messung von elektronischen, atomaren und molekularen Vorgängen in "Echtzeit" möglich erscheinen. Diese Lichtpulse begründen das neu entstandene Feld der Attosekundenphysik.

Struktur der Arbeit

Eine Skizze des kompletten experimentellen Aufbaus, der sowohl den Laser mit langem Resonator wie auch das spezielle konzipierte Reaktionsmikroskop beinhaltet, ist in Abb. 1.3 dargestellt. Auf Details dieser Skizze wird in den jeweiligen Kapiteln eingegangen. Die Struktur dieser Arbeit gliedert sich an-

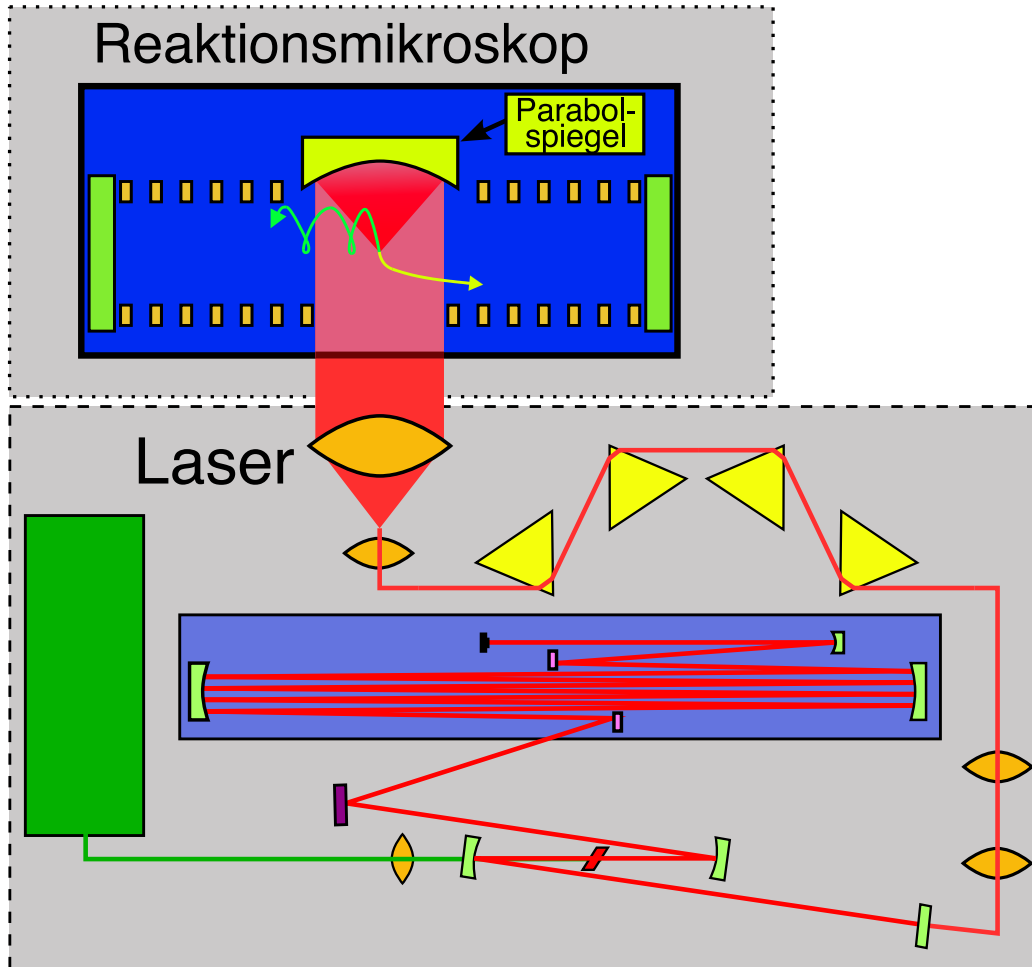


Abbildung 1.3: Skizze des gesamten experimentellen Aufbaus.

hand dieses Aufbaus und folgt dabei dem Laserlicht von seiner Entstehung bis zur Ionisation von Atomen.

So beschäftigt sich der erste Teil dieser Arbeit, der die Kapitel zwei bis vier beinhaltet, mit dem erwähnten Laser mit langem Resonator. Nach theoretischen Aspekten im zweiten Kapitel folgt im dritten eine detaillierte Beschreibung des Laseraufbaus. Die damit erzielten Resultate sind in Kapitel

vier zusammengefasst.

Der zweite Teil dieser Arbeit befasst sich mit Atomen in intensiven Laserfeldern. Nach einer Abschätzung der Schwellintensität für die nicht-sequenzielle Doppelionisation anhand eines klassischen Modells im sechsten Kapitel, wird auf Einzelheiten des entstandenen Reaktionsmikroskops im siebten Kapitel eingegangen. Erste Ergebnisse dieses Reaktionsmikroskops werden in Kapitel acht behandelt.

Das Herzstück des gesamten Aufbaus, der Parabolspiegel innerhalb des Reaktionsmikroskops, verbindet beide Teile dieser Arbeit. Dabei ermöglicht er die starke Fokussierung der Laserpulse, dies wird in Kapitel fünf erläutert, und erzeugt so die für die Ionisation nötige Intensität. Gleichzeitig ist er Teil des Spektrometers innerhalb des Reaktionsmikroskops und findet dort in Abschnitt 7.4.1 besondere Beachtung.

Kapitel 2

Theoretische Aspekte des Lasers

In diesem Kapitel wird auf die theoretischen Grundlagen eines Laser, die zum Verständnis der Arbeit notwendig sind, eingegangen.

Der Begriff *LASER* steht für die englische Abkürzung *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation*. Eine passende deutsche Übersetzung wäre: Lichtverstärkung durch stimulierte Strahlungs-Emission, die den Schlüsselbegriff der stimulierten Lichtemission beinhaltet. Heutzutage versteht man unter einem Laser einen optischen Resonator, in dem sich, durch das Prinzip der stimulierten Lichtverstärkung, ein resonant überhöhtes Lichtfeld ausbildet.

2.1 Resonator

Ein stabiler Laserresonator besteht aus mehreren Spiegeln, deren Eigenschaften und Anordnung sich so ergänzen, dass sich der sogenannte Grundmode des Laserlichts ausbilden kann. Der Begriff Mode bezieht sich dabei auf die wellenoptische Ausbreitung des Laserlichtes. Als longitudinale Moden werden Moden mit unterschiedlicher Frequenz bezeichnet. Transversale Moden geben die transversale Ausbreitung des Lichtfeldes an. Als Grundmode wird eine gaußförmige Verteilung der Intensität in transversaler Richtung bezeichnet.

Eine einfache Beschreibung eines stabilen Resonators bietet der ABCD-Matrizen-Formalismus, wobei jedes optische Element eines Resonators als Matrix dargestellt werden kann. Ein einfallender Lichtstrahl mit dem Abstand x und Winkel Φ im Bezug auf die optische Achse wird durch das

Element in einen Strahl mit dem Abstand x' und Winkel Φ' transformiert:

$$\begin{pmatrix} x' \\ \tan \Phi' \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix} \begin{pmatrix} x \\ \tan \Phi \end{pmatrix} \quad (2.1)$$

Durch einfache Multiplikation der Matrizen der einzelnen Resonatorelemente erhält man die Gesamtmatrix eines Umlaufs, deren Betrag der Determinante kleiner eins sein muss, um einen stabilen Resonator zu erhalten [Sal91]:

$$\left| \det \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}_{ges} \right| \leq 1 \quad (2.2)$$

Dieser Formalismus wird später für die Herleitung der sogenannten Herriott-Zelle benötigt.

2.2 Ratengleichungen

Für die stimulierte Verstärkung im Resonator kommen im Allgemeinen Gase, Flüssigkeiten oder Festkörper mit jeweils spezifischen Eigenschaften zum Einsatz. Für die Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen erweist sich der mit Titan dotierte Saphir-Kristall (Ti:Saphir) als hervorragendes Verstärkungsmedium und wird auch in diesem Laser eingesetzt. Ti:Saphir ist ein homogen verbreitetes Vier-Niveau Lasermedium, dessen Energieschema in Abb. 2.1 skizziert ist. Das Niveau E_1 ist das Grundniveau; E_2 , E_3 und E_4 sind an-

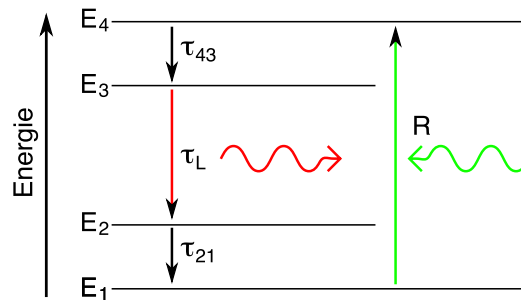


Abbildung 2.1: Energie-Schema eines 4-Niveau-Lasermediums. R bezeichnet die Pumprate; τ_{43} , τ_L und τ_{21} sind die jeweilige Lebensdauern der Energieniveaus E_4, E_3 und E_2 ; E_1 bezeichnet den Grundzustand.

geregte Niveaus. Durch Pumplichtanregung werden Elektronen vom Grundzustand in das Niveau E_4 mit der Rate R angehoben. Sie relaxieren ohne Aussendung von Strahlung über Stöße am Kristallgitter in das Niveau E_3 .

2.2 Ratengleichungen

Der Übergang von E_3 nach E_2 ist der eigentliche Laserübergang. Hier gibt das Elektron seine Energie in Form eines Photons mit der Frequenz ν entweder stimuliert oder spontan ab. Die Frequenz ergibt sich aus der Energiedifferenz zu: $h\nu = E_3 - E_2$, wobei h das planck'sche Wirkungsquantum ist. Der Übergang zwischen E_2 und E_1 ist wieder nichtstrahlend.

Bei der für den Laser essentiellen stimulierten Verstärkung tritt ein in das Niveau E_3 angeregtes Elektron mit einem schon vorhandenen Photon der Frequenz ν in Wechselwirkung. Dabei entsteht ein weiteres, "geklontes" Photon, welches die gleiche Frequenz ν , Phase und Ausbreitungsrichtung wie das erste Photon besitzt. Beide Photonen werden als räumlich und zeitlich kohärent bezeichnet. Die Energie $h\nu$ des zweiten Photons stammt aus der Relaxation des Elektrons in das Niveau E_2 . Ein Nettogewinn der stimulierten Verstärkung, die Voraussetzung für eine Laser-Aktivität ist, setzt eine Inversion der Niveaus E_2 und E_3 voraus; d.h. es müssen sich mehr Elektronen im Zustand E_3 als im Zustand E_2 befinden. Diese Inversion erfordert eine längere Verweildauer der Elektronen im Niveau E_3 als im Niveaus E_2 und ist in einem idealen Vier-Niveau-System ($\tau_{43}, \tau_{21} \rightarrow 0$) inhärent gegeben. In realen Laser-Materialien sind die Lebenszeiten der einzelnen Niveaus temperaturabhängig; im Allgemeinen kann aber die Inversion durch eine stärkere Pumprate erhöht werden.

Das dynamische Verhalten zwischen der Inversion und der Leistung eines Lasers wird durch die Ratengleichungen beschrieben. An dieser Stelle wird eine auf die realen Ausgangsgrößen eines Lasers angepasste, normierte Form angegeben:

$$\frac{dg}{dT} = \frac{g_0 - g}{\tau_L} - \frac{gP}{\tau_L P_{sat}} \quad (2.3)$$

$$\frac{dP}{dT} = 2(g - l) \frac{P}{T_R} \quad (2.4)$$

Die erste Gleichung (2.3) beschreibt die zeitliche Änderung des mit g bezeichneten Gewinns pro Umlauf, der den Grad der Inversion widerspiegelt. g_0 ist der Kleinsignalgewinn, er ist direkt proportional zur Pumprate R . Die zweite Gleichung (2.4) gibt die zeitliche Änderung der Laserleistung P wieder; l steht für die Verluste des Lasers, wobei der größte Teil durch einen teildurchlässigen Auskoppelspiegel gewollt entsteht. Die Umlaufdauer der Lichtwelle im Laser wird mit T_R bezeichnet; τ_L ist die Lebensdauer des Laser-Niveaus E_3 und P_{sat} die Sättigungsleistung. Diese Darstellung ist weit vereinfacht und beschränkt sich auf die wichtigsten Prozesse im Laser; trotzdem ist das Gleichungssystem wegen seiner Nichtlinearität nicht analytisch lösbar.

2.2.1 Stationärer Laserbetrieb

Um einen Einblick zu bekommen, betrachtet man die stationäre Situation ($\frac{d}{dT} = 0$). In diesem Fall besagt Gl. (2.4), dass entweder keine Leistung vorhanden ist ($P = 0$) oder der Gewinn gerade dem Verlust entspricht ($g_s = l$). Löst man für den stationären Fall Gl. (2.3) nach der Leistung auf so ergibt sich:

$$P = P_{sat} \left(\frac{g_0}{g_s} - 1 \right) = P_{sat}(r - 1) \quad (2.5)$$

Die Laser-Leistung steigt also linear mit dem Kleinsignalgewinn g_0 und damit mit der Pumprate R an. Ist $g_0 < g_s$, ergibt sich eine negative Leistung. Diese unphysikalische Lösung wird durch die Lösung $P = 0$ aus Gl. (2.4) ersetzt. Für $g_0 = g_s$ ist die Laserschwelle erreicht, für alle $g_0 > g_s$ emittiert der Laser Lichtstrahlung der Leistung P . Dies motiviert die Einführung des Pumpparameters $r = g_0/g_s = 1 + P/P_{sat}$; er gibt an wie oft der Laser über der Schwelle gepumpt ist. Mit Hilfe des Pumpparameters lässt sich Gl. (2.3) folgendermaßen umstellen:

$$\frac{dg}{dT} = -\frac{1}{\tau_L}(gr - g_0) \quad (2.6)$$

Schaltet man nun schlagartig den Kleinsignalgewinn aus ($g_0 = 0$, für $T > 0$), so ergibt sich unter der Näherung, dass für eine kleine Zeitdauer (die klein gegenüber der Lebensdauer τ_L ist; $T \ll \tau_L$), r konstant ist, folgende einfach zu integrierende Gleichung:

$$\frac{dg}{g} = -\frac{r}{\tau_L}dT \quad \rightarrow \quad g = g_s e^{\left(-\frac{T}{\tau_L/r}\right)}, \quad (2.7)$$

wobei g_s der stationäre Gewinn vor dem Ausschalten von g_0 ist. Der Gewinn zerfällt also mit einer Zeitkonstanten von:

$$\tau_{stim} = \frac{\tau_L}{r} \quad (2.8)$$

Diese Zeitkonstante wird stimulierte Lebensdauer genannt und bestimmt die Zerfallsrate der Inversion. Sie beinhaltet auch den Zerfall durch spontane Emission, dies erkennt man leicht, betrachtet man die stimulierte Lebensdauer für den Fall einer nicht vorhandenen Leistung P , wobei sich dann r zu eins ergibt. Neben der stimulierten und spontanen Emission gibt es noch einen weiteren für diese Arbeit wichtigen Zerfallsprozess aus dem Energieniveau E_3 ; die nichtstrahlende Rekombination über Stöße am Kristallgitter mit der Zeitkonstanten τ_{ns} .

2.3 Ultrakurze Laserpulse

Für die Gesamtlebensdauer τ_{32} des Energieniveaus E_3 ergibt sich nun:

$$\frac{1}{\tau_{32}} = \frac{r}{\tau_L} + \frac{1}{\tau_{ns}} \quad (2.9)$$

Wie man aus dieser Beziehung leicht erkennt spielt die nichtstrahlende Rekombination eine größere Rolle, je kleiner der Pumpparameter r ist. Auf diese Erkenntnisse wird in einem späteren Abschnitt 3.3.2 zurückgegriffen.

2.3 Ultrakurze Laserpulse

Bisher wurde der Laserübergang $E_3 - E_2$ als monoenergetisch angenommen, d.h. die Laserstrahlung besitzt eine feste, monochromatische Frequenz ν . Betrachtet man nun ultrakurze Lichtpulse, so kommt die Heisenberg'sche Unschärferelation ($\Delta t \Delta E > \hbar$) zum Tragen, die Laserstrahlung wird polychromatisch. Daraus ergibt sich eine Relation zwischen der Zeitdauer Δt und der Frequenzbandbreite $\Delta \nu$, das sogenannte Zeitdauer-Bandbreite-Produkt:

$$\Delta t \cdot \Delta \nu > 2\pi \quad \text{oder} \quad \Delta t \cdot \Delta \omega > 1,$$

wobei $\omega = 2\pi\nu$ die Kreisfrequenz ist. Zudem benötigt man ein Lasermedium, was eine gewisse Gewinnbandbreite aufweist. Ti:Saphir mit einer Gewinnbandbreite von $\Delta \omega = 100$ THz ist das Lasermaterial mit der größten Gewinnbandbreite, das man heutzutage kennt.

2.3.1 Dispersion

Propagiert ein ultrakurzer Laserpuls durch ein Medium der Strecke z (Luft, Glas usw.) so verringert sich seine Ausbreitungsgeschwindigkeit auf:

$$c = \frac{c_0}{n(\omega)},$$

wobei c_0 die Vakuumlichtgeschwindigkeit und $n(\omega)$ der Brechungsindex des Mediums ist. Dieser besitzt eine Abhängigkeit von der Frequenz des Lichts. Somit erfährt ein ultrakurzer Laserpuls eine zeitliche Verbreiterung, da Lichtwellen des Laserpulses mit unterschiedlichen Frequenzen eine immer größer werdende Zeitdifferenz aufweisen.

Für die formale Beschreibung dieser dispersiven Verbreiterung führt man eine normierte, komplexwertige Amplitude A ein, deren Betragsquadrat gerade der Leistung entspricht ($P = |A|^2$). Dividiert man A durch die Quadratwurzel des Wellenwiderstands, so erhält man die Einhüllende des elektrischen

Feldes. Die durch Dispersion hervorgerufene Phasenverschiebung der einzelnen Frequenzkomponenten lässt sich wie folgt formal ausdrücken:

$$A(z, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}(0, \omega) e^{i((\omega - \omega_0)t - \Phi(z, \omega))} d\omega, \quad (2.10)$$

hierbei ist i die imaginäre Einheit und $\tilde{A}(0, \omega)$ die spektrale Amplitude. Sie ergibt sich aus der Fourier-Transformation von $A(0, t)$, wobei hier nur das Basisband betrachtet wird. $\Phi(z, \omega)$ wird als spektrale Phase bezeichnet, die man um die Zentralfrequenz ω_0 entwickelt:

$$\begin{aligned} \Phi(z, \omega) &= \Phi_0 + n(\omega) k_0 z \\ &= \Phi_0 + \left. \frac{\partial \Phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \Phi}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 \\ &\quad + \frac{1}{6} \left. \frac{\partial^3 \Phi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^3 + \frac{1}{24} \left. \frac{\partial^4 \Phi}{\partial \omega^4} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^4 + \dots \end{aligned} \quad (2.11)$$

Der konstante Anteil Φ_0 bewirkt eine Phase zwischen dem mit $e^{i\omega t}$ oszillierenden elektrischen Feld und der Einhüllenden $A(z, t)$; er hat also keinen Einfluss auf die spektrale Verbreiterung durch Dispersion, erlangt aber bei sehr kurzen Pulsen, die eine Pulsdauer im Bereich der Periodendauer des elektrischen Feldes aufweisen, eine entscheidende Rolle und wird dann als Träger-Einhüllende-Phase bezeichnet (Φ_{CEO} Carrier-Envelope-Offset-Phase). k_0 ist die Wellenzahl im Vakuum. Der lineare Anteil der Entwicklung $\left. \frac{\partial \Phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0}$ bewirkt nach dem Verschiebungssatz der Fourier-Transformation lediglich eine Verzögerung von $A(z, t)$ und trägt somit auch nicht zur Verbreiterung bei. Dieser lineare Anteil wird im folgenden als GD (engl.: Group Delay) bezeichnet. Der quadratische Anteil der Entwicklung wird GDD (engl.: Group Delay Dispersion) genannt und bewirkt, wie auch alle weiteren Terme, eine dispersive Verbreiterung des Pulses. Für diese Arbeit ist noch der kubische und quartische Term von Bedeutung. Sie werden als TOD (engl.: Third Order Dispersion) und FOD (engl.: Forth Order Dispersion) bezeichnet.

2.3.2 Mastergleichung

Für die Beschreibung eines Lasers, der ultrakurze Pulse emittiert, ist die Ratengleichung (2.4) nicht geeignet, da sie eine Leistung beschreibt, deren kürzeste Zeitkonstante die des Lasermediums ist. Mit Hilfe der oben eingeführten Amplitude A lässt sich Gl. (2.4) unter Berücksichtigung nichtlinea-

2.3 Ultrakurze Laserpulse

rer, optischer Effekte in der sogenannten Mastergleichung niederschreiben:

$$\frac{\partial A(T, t)}{\partial T} = \left(g - l + \frac{q_0}{1 + \frac{|A|^2}{P_{Asat}}} + \left[\frac{g}{\Omega_g^2} + \imath \text{GDD} \right] \frac{\partial^2}{\partial t^2} - \imath \frac{2\pi n_2^I}{\lambda_0 A_{eff}} T_R |A|^2 \right) \frac{A(T, t)}{T_R} \quad (2.12)$$

Hierbei beschreibt der Term $q_0/(1 + |A|^2/P_{Asat})$ einen schnellen, sättigbaren Absorber, der für die Erzeugung ultrakurzer Pulse unabdingbar ist. q_0 wird als Absorberhub bezeichnet, P_{Asat} ist die Sättigungsleistung des Absorbers. Die begrenzte Gewinnbandbreite des Lasermediums wird durch Ω_g beschrieben; GDD ist die oben beschriebene Dispersion zweiter Ordnung. Durch den Term $\imath \frac{2\pi n_2^I}{\lambda_0 A_{eff}} T_R |A|^2$ wird dem nichtlinearen Prozess der Selbstphasenmodulation (SPM) Rechnung getragen, wobei λ_0 die Zentralwellenlänge des Lichtpulses ist; n_2^I stellt den intensitätsabhängigen Teil des Brechungsindex und A_{eff} die effektive Modenfläche im nichtlinearen Medium dar. Die partielle Ableitung $\frac{\partial}{\partial T}$ bezieht sich nur auf Zeitkonstanten die größer als die Umlaufdauer T_R sind und entspricht der Ableitung $\frac{d}{dT}$ in Gl. (2.4). Hingegen bezieht sich die partielle Ableitung $\frac{\partial}{\partial t}$ auf zeitliche Veränderungen die wesentlich kleiner als die Umlaufdauer sind. Da diese Gleichung die komplexe Amplitude A beschreibt fehlt der Faktor 2 vor dem Gewinn g und Verlust l im Vergleich zu Gl. (2.4), die die Leistung P beschreibt.

Mit der Mastergleichung (2.12) wird also die zeitliche Entwicklung eines Laserpulses in zwei Zeitgrößen aufgeteilt. Zum einen werden Zeiten, die von der Größe der Umlaufdauer T_R sind mit Hilfe der Variablen T beschrieben, zum anderen wird die zeitliche Änderung der momentanen Leistung, die von der Größe der Pulsdauer ist, mit der Variablen t beschrieben.

2.3.3 Moden-Kopplung

Der Begriff der Moden-Kopplung entstammt einer Beschreibung im Frequenzbereich. Es werden sehr viele longitudinale Moden eines Lasers miteinander verkoppelt, d.h. sie besitzen eine feste Phasenbeziehung untereinander. Durch Superposition all dieser Moden entsteht ein ultrakurzer Laserpuls. Die Moden-Kopplung wird in der Mastergleichung im Zeitbereich beschrieben. Für eine weiterführende Übersicht sei auf [Ipp94] verwiesen.

Vernachlässigt man Sättigungseffekte des Gewinns während eines Pulses, so ergibt sich für eine konstante Pumprate wieder ein stationärer Zustand. Für den Fall einer Ausgangsleistung, die ungleich Null ist, ergab die Ratengl. (2.4) einen Gewinn, der genau dem Verlust entspricht ($g_s - l = 0$). Für diese Situation macht die Mastergleichung (2.12) weitere Aussagen über die Entwicklung ultrakurzer Pulse. Hier müssen sich der Gewinn g , der Verlust l ,

der Einfluss des Absorbers und die Bandpassfilterung des Gewinnmediums, sowie die dispersive Verbreiterung und die SPM gegenseitig kompensieren.

Mit Hilfe einer Entwicklung des Absorbereinflusses ($q(t) \approx q_0 - |A|^2/P_{Asat}$, für $P \ll P_{Asat}$) kann man eine analytische Lösung der Mastergleichung angeben [Hau91], die zur einem sogenannten solitären Laserpuls

$$A(t) = A_0 \operatorname{sech}(t/\tau), \quad (2.13)$$

mit der Pulsdauer τ und der Pulsspitzenleistung $|A_0|^2$ führt. Wobei in der Mastergleichung keine diskrete optische Elemente im Laserresonator, sondern deren homogene Verteilung, angenommen wird. Abgesehen von dieser Näherung können weitere Effekte im Allgemeinen nicht mehr analytisch beschrieben werden. Für diesen Fall muss die Mastergleichung mit numerischen Verfahren gelöst werden, hierfür wird meist die Split-Step-Fourier Methode eingesetzt [Mor01, Che99].

2.3.4 Moden-Kopplung in einem Laser mit langem Resonator

Die größte Limitation bei der Moden-Kopplung eines Lasers mit langem Resonator ist die, mit zunehmender Pulsspitzenleistung größer werdende Nichtlinearität der SPM. Sie kann ab einem bestimmten Betrag nicht mehr durch negative Dispersion ausgeglichen werden. Daraus ergeben sich Instabilitäten, die zu einem Aufbrechen des Pulses führen. Es entstehen Mehrfachpulse, die nur noch ein Bruchteil der gewünschten Pulsspitzenleistung aufweisen.

Um diese Limitation zu umgehen, betreibt man den Laser mit einer positiven Gesamtdispersion. Der Laserpuls weist im Resonator eine erhebliche dispersive Verbreiterung auf, die die Pulsspitzenleistung und damit die erzeugte SPM erheblich reduziert. Experimentell erzielte Ergebnisse weisen keine solitäre Pulsform auf, obwohl dies durch die analytische Lösung der Gl. (2.13) möglich sein sollte.

Für die Beschreibung der Moden-Kopplung im Fall der positiven Gesamtdispersion muss die Mastergleichung durch Terme höherer Ordnung, sowohl der Dispersion also auch der SPM erweitert werden. Eine analytische Beschreibung ist hier nicht mehr möglich. Ergebnisse einer numerischen Simulation finden sich in [Kal05] wieder.

In [Fer04] würde das Konzept der positiven Gesamtdispersion für ein solches Laserkonzept eingeführt.

Kapitel 3

Aufbau des Lasers

In diesem Kapitel soll eine Übersicht über den Laseraufbau gegeben werden, wobei auf eine chronologische Beschreibung verzichtet und nur der aktuelle Stand des Aufbaus wiedergegeben wird. Weitere Details hierzu sind auch in [Dew03] und [Sie05] zu finden.

3.1 Laseraufbau

In Abbildung 3.1 ist eine schematische Darstellung des Laseraufbaus gezeigt. Auf den Pumplaser, die Herriot-Zelle sowie die Kristall Kühlung wird in getrennten Abschnitten eingegangen. Der grüne Laserstrahl des Pumplasers mit einer Wellenlänge von 515 nm und einer Leistung von 15 W wird mit einer achromatischen Linse durch einen Faltungsspiegel hindurch in den Laserkristall fokussiert. Um den 2,3 mm dicken und auf -45°C gekühlten Ti:Saphir Kristall baut sich der Laserresonator auf. Die beiden Faltungsspiegel mit einem Krümmungsradius (*ROC* engl. *Radius Of Curvature*) von 100 mm fokussieren die Lasermode ebenfalls in den Kristall. Die Anordnung der Faltungsspiegel, des Kristalls und der Fokussierlinse wurde für die Kerrlinsen-Modenkopplung optimiert [Mor01]. Im unteren Teil des linearen Resonators befindet sich eine 0,75 mm dicke Glasplatte zur Dispersionskompensation und ein Auskoppelspiegel (AK) als Endspiegel. Er koppelt 30% der Leistung, die sich im Resonator befindet, aus. Die gesamte Verlängerung des Resonators befindet sich im oberen Teil. Ein Planspiegel lenkt den Laserstrahl durch ein 1 mm dickes Brewster-Fenster in eine Vakuumkammer. In dieser befindet sich die Herriot-Zelle, die den Strahl mehrere Male zwischen zwei 2 Zoll großen Spiegeln mit $ROC=5$ m und $ROC=4$ m hin und her reflektiert. Da ihr Abstand von 2,7 m nicht in die Vakuumkammer passt, wird die ganze Anordnung mit einem Planspiegel nochmals gefaltet (gestrichelter Planspie-

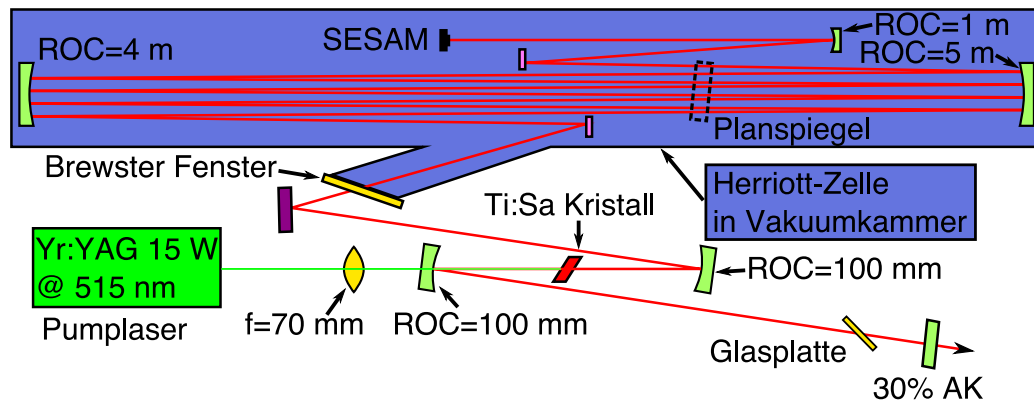


Abbildung 3.1: Aufbauskeizze des Lasers. Der grüne Pumplaserstrahl wird mit einer Linse in den Ti:Saphir Kristall fokussiert. Die grünen Resonatorspiegel sind HR-Spiegel, die violetten DCMs. Der jeweilige Krümmungsradius (ROC) ist neben den Spiegeln angegeben. Der Auskoppelspiegel (AK) befindet sich rechts unten. Am anderen Ende des Resonators befindet sich ein SESAM. Die evakuierte Herriot-Zelle ist durch ein Brewster-Fenster vom übrigen Resonator getrennt.

gel). Die Ein- und Auskopplung in die Herriot-Zelle, welche in Abschnitt 3.4 detailliert beschrieben wird, erfolgt über zwei 1/4 Zoll große Planspiegel. Am Ende der Herriot-Zelle fokussiert ein Spiegel mit ROC=1 m die Lasermode auf einen *SESAM* (Semiconductor Saturable Absorber Mirror). Dieser dient, neben der Kerrlinse, als zusätzlicher Absorber und ermöglicht einen stabilen modengekoppelten Betrieb und einen einfachen Start der Modenkopplung. Die hellgrünen Resonatorspiegel sind *HR*-Spiegel (engl. *High Reflector*) mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm und einer Bandbreite von 120 nm. Im Gegensatz dazu sind die violetten Resonatorspiegel *DCMs* (engl. *Dispersion Chirped Mirror*), die einen Betrag an negativer Dispersion pro Reflektion verursachen. Die hellvioletten DCMs sind vom Typ "Herriot", der dunkelvioletten vor dem Brewster-Fenster vom Typ "MIT".

3.1.1 Interne Dispersion

Wie bereits im Abschnitt 2.3.4 erläutert wurde, wird der Resonator mit einer leicht positiven Gesamtdispersion betrieben. Um die Anzahl der Reflektionen auf DCMs gering zu halten, wird der Strahlengang in der Herriot-Zelle mit einer Vakuumkammer versehen. Die technische Realisierung wird in Abschnitt 3.4.1 erläutert. Betreibt man die Herriot-Zelle unter Atmosphären-

3.1 Laseraufbau

druck, so summiert sich deren Dispersion auf Grund von Umgebungsluft zu 1600 fs^2 . Durch das Evakuieren der Zelle auf einen Druck von 1 mbar reduziert sich der Wert auf ca. 2 fs^2 und kann somit vernachlässigt werden. Die verbleibende Dispersion des Kristalls und der Glasplatten übersteigen jedoch den Betrag an benötigter positiver Dispersion. Dies macht den Einsatz der DCMs mit negativer Dispersion nötig, deren GDD in Abb. 3.2 dargestellt ist. Neben den Designdaten sind auch jeweils zwei Messungen dargestellt,

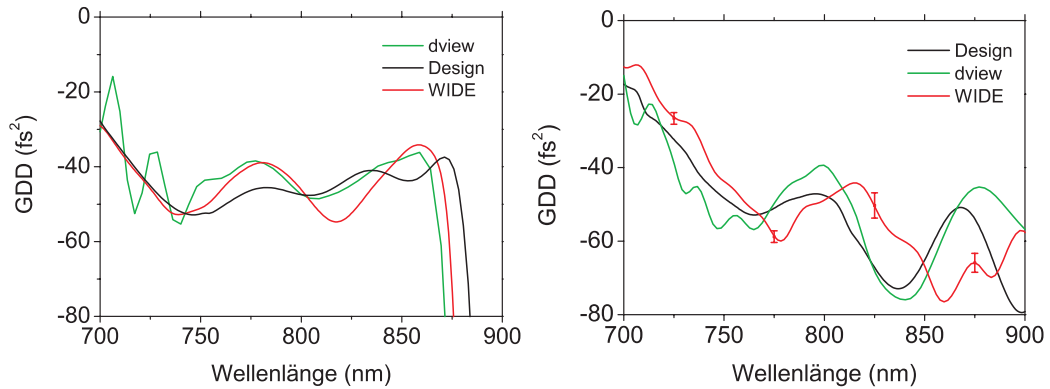


Abbildung 3.2: GDD der DCMs. Linkes Bild "Herriot" DCM, rechtes Bild "MIT" DCM. Design Daten (schwarz), WIDE Messung [Dra04] (rot), diview Messung ([Dew03] für "Herriot") (grün).

wobei im folgenden die Messdaten der WIDE Messung herangezogen werden [Dra04].

In der Abb. 3.3 ist die Dispersion zweiter Ordnung eines Resonatorumlaufs dargestellt. Der linke Graph zeigt die GDD der Resonatorelemente mit signifikantem Anteil (vier "Herriot" DCM- und zwei "MIT" DCM-Reflektionen, sowie 5,3 mm Saphir, 4,35 mm Quarzglas und 2 m Luft)¹. Im rechten Graph ist die Gesamtdispersion pro Umlauf dargestellt. Der Einfluss der HR Spiegel kann dabei vernachlässigt werden. Die GDD ist durch die dicke der Glasplatte vor dem Auskoppelspiegel für ein maximal breites optisches Spektrum optimiert. Bei dem Gesamtverlauf der GDD in Abb. 3.3 fällt die positive Dispersion dritter Ordnung (TOD) auf, die sich aus der negativen Steigung der Kurve ergibt. Die Folge dieser suboptimalen Dispersionsverteilung ist ein asymmetrisches, optisches Spektrum der ultrakurzen Laserpulse (siehe Abb. 4.3) [Kal05]. Durch den Einsatz des "MIT" DCMs wurde ein stabiler Pulsbetrieb bei einem breiten Spektrum erzielt. Dies kann

¹Die Dispersion der verschiedenen Materialien ist hier wie im Folgenden aus den Sellmeier-Koeffizienten der Hersteller berechnet.

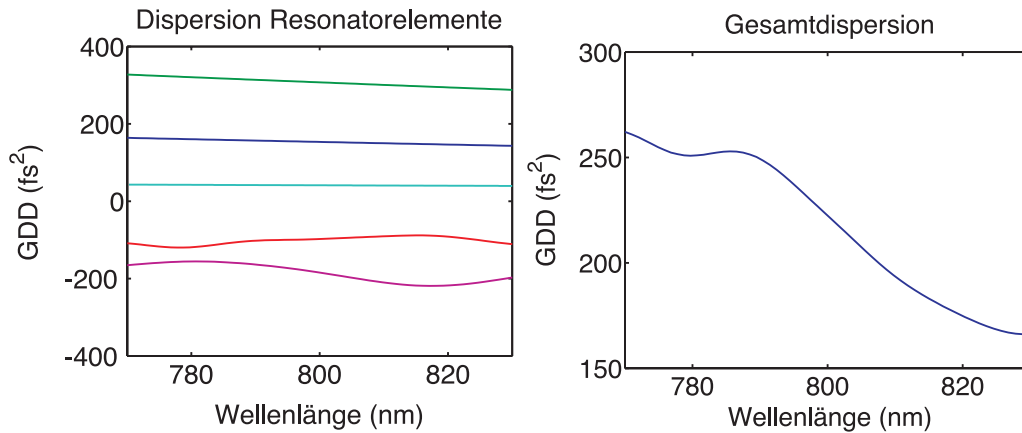


Abbildung 3.3: Resonator interne GDD pro Umlauf. Linkes Bild: Resonatorelemente mit signifikantem Anteil: 5,4 mm Ti:Saphir (grün), 4,25 mm Quarzglas (blau), 2 m Luft (hellblau), 2 Reflexionen "MIT" DMC (rot), 4 Reflexionen "Herriot DMC" (violett). Rechtes Bild: Gesamtdispersion des Resonators.

auf eine besser angepasste Dispersion vierter Ordnung (FOD) zurückgeführt werden [Kal05].

3.2 Pumplaser

Als Pumplichtquelle kommt ein kommerzieller Yb:YAG Laser der Firma ELS zum Einsatz. Dabei ist das Lasermedium, dessen Emissionsmaximum bei 1030 nm liegt, als dünne Scheibe auf einen wärmeleitenden Spiegel aufgebracht. Dieses neue Laserkonzept überwindet bisherige Leistungslimitationen. Der Laser ist als Ringresonator aufgebaut, dessen resonatorinterne Leistung durch einen nichtlinearen LBO Kristall frequenzverdoppelt und dadurch ausgekoppelt wird. Bei hinreichend guter Justage besitzt der ausgekoppelte Strahl von 515 nm eine gute Strahlqualität von $M^2 < 1,1$. Das breitbandige Lasermaterial Yb:YAG macht weitere resonatorinterne Filter zur Frequenzstabilisierung nötig. Für diesen Zweck werden zwei Filter eingesetzt, ein breitbandiges Lyot-Filter und ein schmalbandiges Etalon, dessen Filtermaxima sich periodisch in den Etalonmoden wiederholen. Für einen Betrieb mit Nennleistung müssen beide Filter aufeinander abgestimmt werden. Bedauerlicherweise wird durch unzureichende Temperaturstabilität, vor allem des Etalons, die Justage hin und wieder zerstört. Für einen unidirektionalen Betrieb des Ringlasers war anfänglich eine optische Diode vorgesehen, deren

thermische Linse aber eine hinreichend gute Strahlqualität zunichte machte. Die vorübergehende Lösung, eine Richtung durch Rückkopplung zu unterdrücken, erhöhte das Rauschen der Ausgangsleistung. Der Laser wird nun im bidirektionalen Betrieb betrieben, und es stehen somit zwei Ausgänge mit jeweils 15 W Ausgangsleistung zur Verfügung.

Ein stabiler Betrieb des Lasers über mehrere Tage ist nur selten gewährleistet, womit eine Nachjustage nötig ist. Hinsichtlich der Stabilität ist diese Pumplichtquelle noch nicht mit anderen kommerziellen Lasern vergleichbar.

3.3 Kristallkühlung

Eine besondere Herausforderung während des Laseraufbaus stellte die Kühlung des Ti:Saphir Kristalls dar. Die physikalischen Gründe für die Notwendigkeit einer verbesserten Kühlung werden im Folgenden aufgezeigt, danach wird die technische Realisierung beschrieben.

Wie in jedem laseraktiven Material wird in Ti:Saphir während des Pumpvorgangs Wärme deponiert. Dies geschieht z.B. durch die in Abschnitt 2.2 erläuterten phononischen Übergänge zwischen den Energieniveaus E_4 und E_3 sowie E_2 und E_1 (siehe Abb. 2.1). Diese Wärme wird durch äußere Kühlung abtransportiert; es stellt sich ein thermisches Gleichgewicht ein. Eine besondere Eigenschaft des Saphir-Kristalls ist seine Wärmeleitfähigkeit, welche mit abnehmender Temperatur stark zunimmt; sie ist in Abb. 3.4 dargestellt. Wird die äußere Kühltemperatur abgesenkt, bewirkt diese Eigenschaft ein überproportionales Absinken der Temperatur im Kristall.

Für Ti:Saphir Oszillatoren, die mit maximal 10 W bei einer Wellenlänge von 532 nm gepumpt werden, ist eine Wasserkühlung mit einer Kühltemperatur von ca. 14°C für einen stabilen und effektiven Laserbetrieb ausreichend. Für den hier beschriebenen Laser zeigte sich jedoch, dass der Laserkristall durch eine solche Kühlung viel zu heiss wurde, dessen Folge ein instabiler Laserbetrieb war. Diese Instabilität kann jedoch mit einem absenken der äusseren Kühltemperatur entgegen gewirkt werden.

3.3.1 Einfluss der Pumpwellenlänge

Der oben beschriebene Pumplaser hat im Vergleich zu gewöhnlich eingesetzten Pumplichtquellen eine etwas kürzere Wellenlänge von 514 nm. Wie man an dem Absorptionsspektrum in Abb. 3.5 sieht, bewirkt diese eine größere Absorption und damit eine Erhöhung des zur Verfügung stehenden Gewinns.

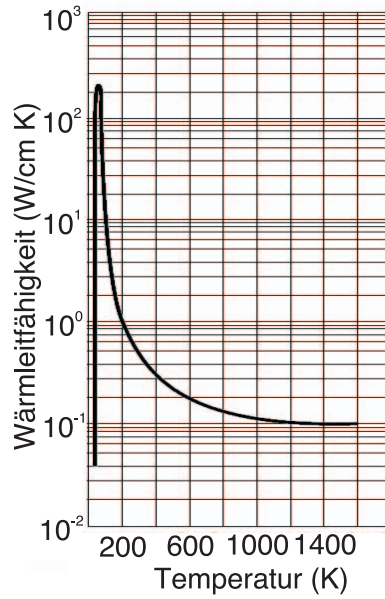


Abbildung 3.4: Wärmeleitfähigkeit von Ti:Saphir als Funktion der Temperatur [SG04].

Das Emissionsspektrum des vorliegenden Kristalls ist im Vergleich zu Abb. 3.5 zu längeren Wellenlängen verschoben. Die Zentralwellenlänge des erzeugten Spektrums befindet sich bei $\lambda_L = 804$ nm. Der Quantendefekt, er berechnet sich aus der Photonenenergie der emittierten Laserstrahlung und des absorbierten Pumplichts, ist in diesem Fall:

$$\eta = \frac{h\nu_L}{h\nu_{pump}} = \frac{\lambda_{pump}}{\lambda_L} = 0,64 \quad (3.1)$$

Es werden also maximal 64% der absorbierten Pumpleistung in Laserstrahlung umgewandelt, die verbleibenden 36% werden als Wärmeleistung im Kristall deponiert. Die eingesetzte Pumpwellenlänge von 515 nm erhöht den Wärmeeintrag dabei um 9% im Vergleich zu einer Pumpwellenlänge von 532 nm.

3.3.2 Nichtstrahlende Übergänge

Wie bereits in Abschnitt 2.2 beschrieben, gibt es neben den Übergängen der Niveaus E_4 nach E_3 und E_2 nach E_1 noch einen weiteren phononischen Übergang. Die nichtstrahlende Rekombination aus dem Laserniveau

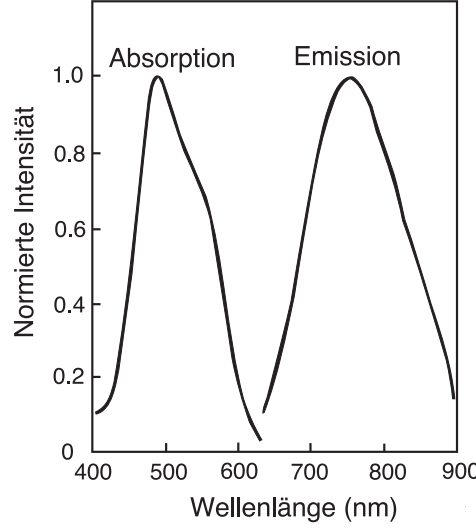


Abbildung 3.5: Absorptions- und Emissionsspektrum von Ti:Saphir aus [Sve98]

E_3 mit der Lebensdauer τ_{ns} . Diese Lebensdauer zeigt eine starke Temperaturabhängigkeit und tritt bei zunehmender Temperatur mit dem strahlenden Übergang in Konkurrenz. Die daraus resultierende Temperaturabhängigkeit der Lebensdauer des Laserübergangs τ_L ist in Abb. 3.6 gezeigt.

Einen Einblick in das Verhältnis von strahlender zu nichtstrahlender Rekombination gewinnt man mit einer einfachen Ratenbilanz. Dabei ist die Rate der strahlenden bzw. nichtstrahlenden Rekombination (R_L , bzw. R_{ns}) umgekehrt proportional zu deren Lebensdauer. Unter Verwendung von Gl. (2.8) ($\tau_{stim} = \tau_L/r$) ergibt sich somit:

$$\frac{R_L}{R_{ns}} = \frac{\tau_{ns}}{\tau_{stim}} = r \frac{\tau_{ns}}{\tau_L} \quad (3.2)$$

Um dieses Verhältnis mit messbaren Größen zu quantifizieren, ersetzt man die Rate der nichtstrahlenden Übergängen R_{ns} durch die Differenz zwischen der Pumprate R und der emittierten Photonenrate R_L . Jede dieser Raten lässt sich wiederum als Quotient der mit ihr assoziierten Leistung durch die jeweilige Quantenenergie darstellen.

$$\frac{R_L}{R_{ns}} = \frac{R_L}{R - R_L} = \frac{\frac{\alpha P_L}{h\nu_L}}{\frac{P_{abs}}{h\nu_{pump}} - \frac{\alpha P_L}{h\nu_L}} = \frac{\lambda_L \alpha P_L}{\lambda_{pump} P_{abs} - \lambda_L \alpha P_L} \quad (3.3)$$

Dabei ist P_{abs} die absorbierte Pumpleistung und P_L die emittierte Laserleistung. Mit dem Faktor $\alpha = 1,05$ werden zusätzliche interne Verluste, wie

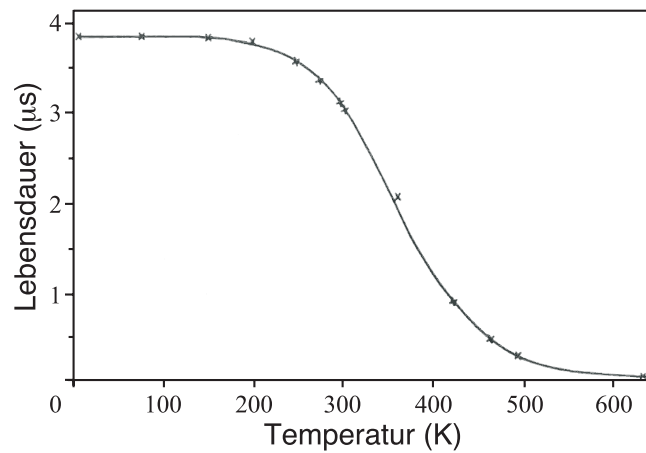


Abbildung 3.6: Temperaturabhängigkeit der Lebensdauer τ_L des Laserniveaus [Alb86].

z.B. Verluste an Spiegeln, Brewster Flächen und im besonderen Maße der Absorberverlust des SESAMs, abgeschätzt.

Für einen optimalen Laserbetrieb ergibt sich dieses Verhältnis zu eins. Auf jedes emittierte Photon während des Laserbetriebs ereignet sich also ein nichtstrahlender Übergang. Dieses Verhältnis könnte durch eine kürzere stimulierte Lebensdauer, die einer Erhöhung des Pumpparameter r entspricht, unter Verwendung einer geringeren Auskoppelrate, zu Gunsten der strahlenden Rekombination wesentlich verbessert werden (siehe Gl. (3.2)). Die dadurch erhöhte resonatorinterne Leistung führt jedoch zu einem instabilen Laserbetrieb oder zu Pulsen mit geringerer Pulsspitzenleistung.

Mit Hilfe einer ähnlichen Abschätzung und unter zur Hilfenahme der Messergebnisse aus Abb. 3.6 kann man eine Temperatur von 130°C im Fokus des Kristalls angeben [Sie05].

Zusammenfassend führen drei Hauptgründe zu einer starken Erwärmung des Ti:Saphir Kristalls:

- Die verringerte Quanteneffizienz durch die Pumpwellenlänge von 515 nm.
- Die hohe Pumpleistung von 15 W.
- Der geringe Pumpparameter des Lasers.

Aus diesen Überlegungen erkennt man die Wichtigkeit einer effektiven Kristallkühlung, deren technische Realisierung nun beschrieben wird.

3.3.3 Kristallhalterung

Ausgangspunkt der Kühlung ist ein Durchflusskühler, dessen Kühlflüssigkeit (ein spezielles Silizium-Öl) eine Temperatur von -30°C hat. Diese Kühlflüssigkeit besitzt auch bei tiefen Temperaturen eine geringe Viskosität und wird durch eine Basisplatte, die als Wärmetauscher fungiert, gespült. Eine schematische Zeichnung der Kristallhalterung ist in Abb. 3.7 gezeigt. Der ge-

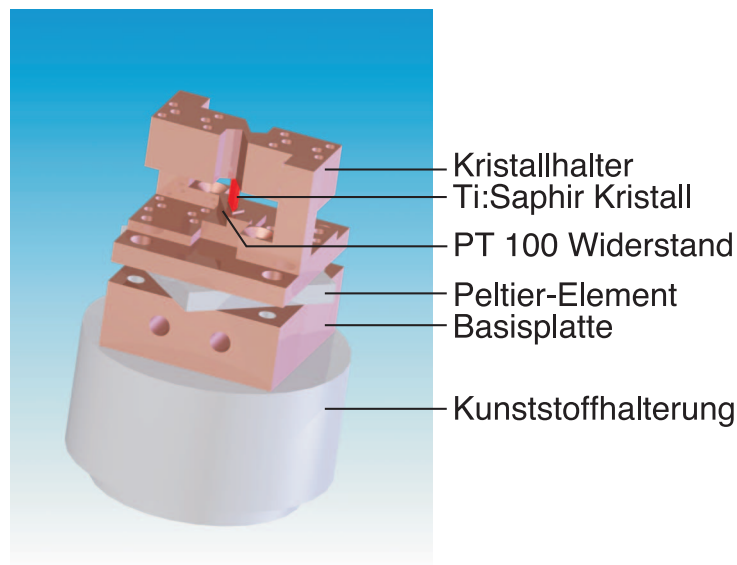


Abbildung 3.7: Skizze der Kristallhalterung.

samte Kristallhalter ist auf einer Kunststoffhalterung angebracht, die einen möglichst kleinen thermischen Kontakt zur Umgebung hat. Die Isolierung des Halters und der Kühlmittelschläuche verhindert einen zusätzlichen Wärmeeintrag. Zwischen der eigentlichen Kristallhalterung und der Basisplatte befindet sich ein Peltier-Element zur aktiven Kühlung. Direkt unter dem Kristall ist ein PT-100-Widerstand zur Temperaturmessung angebracht, mit dessen Hilfe die Kühlleistung des Peltier-Elements geregelt wird. Um eine gute Wärmeleitfähigkeit herzustellen, befindet sich zwischen dem Kristall und dem Kristallhalter eine Indiumfolie; die Oberflächen des Peltier-Elements sind mit einem speziellen Kontaktfett behandelt. Sowohl die Basisplatte also auch der Kristallhalter sind für eine gute Wärmeleitfähigkeit aus Kupfer gefertigt.

Im Laserbetrieb reicht die vom Hersteller angegebene Kühlleistung des Durchflusskühlers von 60 W gerade aus um, mit Hilfe des Peltier-Elements eine Temperatur von -45°C am Kristallhalter zu erzeugen. Um bei dieser Temperatur Eisbildung zu verhindern, ist der Kristallhalter mit einer Abde-

ckung umgeben, die mit Trockenluft durchspühlt wird. Zusätzlich befindet sich der Laser in einem Gehäuse in dem eine Trockenatmosphäre herrscht.

3.4 Herriot-Zelle

Die Herriot-Zelle bildet den Großteil des langen Resonators und ist schematisch in Abb. 3.8 dargestellt. Sie besteht aus zwei kleinen Ein- (ES) und Auskoppelspiegeln (AS) sowie zwei 2 Zoll großen, konkaven Herriot-Spiegeln M1 und M2 mit den Krümmungsradien R_1 und R_2 . Die Haupteigenschaft der

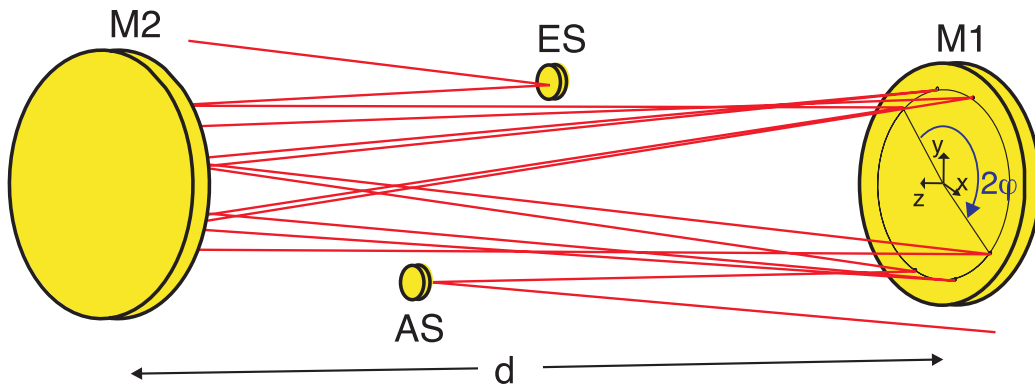


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung der Spiegelanordnung der Herriot-Zelle. Herriot Spiegel M1 und M2 mit den Krümmungsradien R_1 und R_2 ; Einkoppel- (ES) und Auskoppelspiegel (AS).

Herriot-Zelle besteht in der identischen Abbildung des Eingangstrahls in den Ausgangstrahl. D.h. die Strahleigenschaften des Ein- und Ausgangstrahls, der Strahldurchmesser und die Krümmung der Wellenfront sind identisch [Her64]. Dies ermöglicht die Verlängerung des Resonators ohne die Veränderung des transversalen Lasermodes. Die Herriot-Zelle kann somit für die Lasergeometrie als Planspiegel verstanden werden, der mit einer Totzeit, die von der Gesamtlänge der Herriot-Zelle abhängt, den Laserstrahl reflektiert. Diese Eigenschaft der Einheitstransformation ergibt sich für spezielle Abstände d , die von den Krümmungsradien R_1 und R_2 abhängig sind.

Zur Berechnung von d beschreibt man einen Durchgang durch die Herriot-

3.4 Herriot-Zelle

Zelle als ABCD Matrix (siehe Abschnitt 2.1):

$$\begin{aligned}
 M &= \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{2}{R_1} & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Spiegel M1}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Abstand } d} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{2}{R_2} & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Spiegel M2}} \cdot \underbrace{\begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix}}_{\text{Abstand } d} \\
 &= \begin{pmatrix} 1 - \frac{2d}{R_2} & d + d(1 - \frac{2d}{R_2}) \\ -\frac{2}{R_1} - \frac{2}{R_2}(1 - \frac{2d}{R_1}) & -\frac{2d}{R_1} + (1 - \frac{2d}{R_1})(1 - \frac{2d}{R_2}) \end{pmatrix} \quad (3.4)
 \end{aligned}$$

Die Eigenwerte von M berechnen sich anhand des charakteristischen Polynoms:

$$|M - \lambda I| = \lambda^2 - 2m\lambda + 1 = 0 \quad (3.5)$$

Wobei für m gilt:

$$m = 1 - 2d \left(\frac{1}{R_1} + \frac{1}{R_2} \right) + 2 \frac{d^2}{R_1 R_2} \quad (3.6)$$

Definiert man nun:

$$m = \cos 2\varphi, \quad (3.7)$$

so ergeben sich die Eigenwerte aus Gl. (3.5) zu:

$$\lambda_{1,2} = \cos 2\varphi \pm \sqrt{\cos^2 2\varphi - 1} = \cos 2\varphi \pm i \sin 2\varphi = e^{\pm i 2\varphi} \quad (3.8)$$

Ein Durchgang durch die Herriot-Zelle bewirkt somit eine Drehung des Strahls um den Winkel 2φ in der komplexen $x+iy$ Ebene (siehe Abb. 3.8). Da der Betrag der Eigenwerte gleich eins ist, ändert sich der Abstand zur Spiegelachse nicht; der Strahl läuft auf einem Kreis um.

Mit Hilfe der Gl. (3.6) und der Definition (3.7) erhält man in Abhängigkeit von R_1 und R_2 für den Abstand d :

$$d(R_1, R_2) = \frac{R_1 + R_2}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{R_1^2 + R_2^2 + 2R_1 R_2 \cos 2\varphi} \quad (3.9)$$

Ergibt sich nach ν Durchgängen durch die Herriot-Zelle die negative Einheitsmatrix ($M^\nu = -I$), so kann der Strahl, wie in Abb. 3.8 skizziert, gegenüber der Einkoppelstelle wieder ausgekoppelt werden, und die Herriot-Zelle besitzt die oben beschriebene Eigenschaft der Einheitstransformation. Um diese Forderung zu erfüllen, muss die Summe der Drehungen um den Winkel 2φ nach ν Durchgängen genau π betragen. Dabei besteht auch die Möglichkeit, dass sich der Strahl mehrere Male um die Spiegelachse dreht. Es gilt also:

$$2\varphi\nu = \mu\pi \quad (3.10)$$

Wobei die ganze Zahl μ die Anzahl der Umdrehungen um die Spiegelachse wiedergibt und ungerade sein muss. Damit der Strahl nicht mehrere Male auf demselben Weg in der Herriot-Zelle umläuft, was experimentell nicht möglich ist, ist an μ eine Bedingung geknüpft:

- μ darf keinen gemeinsamen Primfaktor mit ν haben.

Für alle Zahlen ν und μ , die diese Bedingung erfüllen gibt es zwei Abstände d der Herriot Spiegel, bei denen die Herriot-Zelle die oben beschriebene Einheitstransformation bewirkt.

$$d(R_1, R_2) = \frac{R_1 + R_2}{2} \pm \frac{1}{2} \sqrt{R_1^2 + R_2^2 + 2R_1 R_2 \cos \frac{\mu}{\nu} \pi} \quad (3.11)$$

Für den Spezialfall gleicher Krümmungsradien ($R_1 = R_2 = R$) ergibt sich der Abstand d unter Zuhilfenahme der Identität $\cos 2\alpha = \cos^2 \alpha - \sin^2 \alpha$ und $\cos^2 \alpha + \sin^2 \alpha = 1$ zu:

$$d(R) = R(1 - \cos \frac{\mu}{\nu} \frac{\pi}{2}) \quad (3.12)$$

In diesem Fall halbiert sich die Anzahl der möglichen Spiegelkonfigurationen. Der Einsatz von Spiegeln mit unterschiedlichen Krümmungsradien hat somit den Vorteil einer größeren Auswahl an Resonatorlängen und somit einer größeren Auswahl an Pulswiederholraten.

Der Abstand der Herriot-Spiegel aus Gl. (3.11) kann auch geometrisch darstellen werden. Der Ausdruck $\frac{1}{2} \sqrt{R_1^2 + R_2^2 + 2R_1 R_2 \cos 2\varphi}$ lässt sich als Seitenhalbierende eines Dreiecks, mit den Seiten R_1 und R_2 die den Winkel 2φ einschliessen, interpretieren. Dieses Dreieck ist in Abb. 3.9 gezeigt; der Abstand d ergibt sich somit zu:

$$d = \bar{R} \pm s \quad (3.13)$$

Dabei ist $\bar{R}$ der Mittelwert der Radien R_1 und R_2 ; mit s wird die Seitenhalbierende bezeichnet.

In der Tabelle 3.1 sind alle möglichen Konfigurationen der Herriot-Zelle für $\nu = 1, 2, \dots, 10$ aufgeführt. Dabei sind die im Laser verwendeten Krümmungsradien der Herriot-Spiegel von $R_1 = 5$ m und $R_2 = 4$ m zugrunde gelegt. d_- ist der Abstand, welcher sich aus dem negativen Vorzeichen der Wurzel in Gl. (3.11) ergibt, analoges gilt für d_+ . Aus der Gesamtlänge der Herriot-Zelle ($2 \cdot 2 \cdot \nu \cdot d$) kann die Pulswiederholrate einer Konfiguration abgeschätzt werden, wobei die tatsächliche Wiederholrate aufgrund zusätzlicher Resonatorstecke ein wenig kleiner ausfällt. Diese Abschätzung der Pulswiederholrate ist in Spalte fünf für d_- und in Spalte sechs für d_+ wiedergegeben.

3.4 Herriot-Zelle

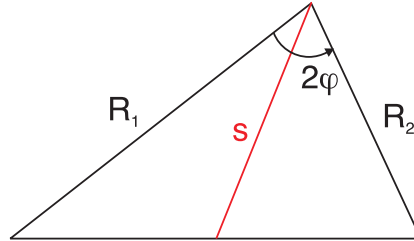


Abbildung 3.9: Grafische Darstellung der Gl. (3.11). s bezeichnet die Seitenhalbierende.

ν	μ	d_- (m)	d_+ (m)	f_{rep,d_-} (MHz)	f_{rep,d_+} (MHz)	Anzahl Refl.
2	1	1.2984	7.7016	28.881	4.869	16
3	1	0.5949	8.4051	42.026	2.974	24
4	1	0.3381	8.6619	55.450	2.165	32
4	3	2.7170	6.2830	6.901	2.984	32
5	1	0.2175	8.7825	68.979	1.708	40
5	3	1.8242	7.1758	8.223	2.090	40
6	1	0.1514	8.8486	82.558	1.413	48
6	5	3.2391	5.7609	3.859	2.170	48
7	1	0.1114	8.8886	96.167	1.205	56
7	3	0.9680	8.0320	11.069	1.334	56
7	5	2.4962	6.5038	4.292	1.647	56
8	1	0.0854	8.9146	109.792	1.052	64
8	3	0.7481	8.2519	12.532	1.136	64
8	5	1.9656	7.0344	4.770	1.333	64
8	7	3.4944	5.5056	2.683	1.703	64
9	1	0.0675	8.9325	123.430	0.933	72
9	5	1.5822	7.4178	5.267	1.123	72
9	7	2.8908	6.1092	2.883	1.364	72
10	1	0.0547	8.9453	137.076	0.838	80
10	3	0.4841	8.5159	15.494	0.881	80
10	7	2.4090	6.5910	3.113	1.138	80
10	9	3.6401	5.3599	2.060	1.399	80

Tabelle 3.1: Verschiedene Konfigurationen der Herriot-Zelle für $R_1 = 5$ m und $R_2 = 4$ m.

Für den Laseroszillator wurde eine Konfiguration von $\nu = 4$ und $\mu = 3$ ausgewählt; wobei sich im Experiment eine Pulswiederholrate von 6,2 MHz ergibt. Die letzte Spalte in Tabelle 3.1 gibt die Gesamtanzahl der Spiegelreflektionen in der Herriot-Zelle wieder, wobei der Faltungsspiegel (Abb. 3.1 gestrichelt) mit berücksichtigt ist. Um Laser-interne Verluste und Strahldeformationen so weit wie möglich zu vermeiden, ist man an einer möglichst geringen Gesamtanzahl an Spiegelreflektionen interessiert. Sowohl die beiden Herriot-Spiegel M1 und M2 als auch der Faltungsspiegel sind HR-Spiegel von der Firma Layertec. Sie weisen eine sehr hohe Reflektivität ($> 99,9\%$) und eine sehr gute Oberflächenqualität auf. Die durch die Spiegel entstehenden Verluste sind klein im Vergleich zu den Auskoppel- und Absorberverlusten des SESAMs und sind somit zu vernachlässigen.

3.4.1 Vakuumkammer der Herriot-Zelle

Wie bereits erwähnt befindet sich die Herriot-Zelle in einer Vakuumkammer. Ein Bild der Einkopplung in die Kammer ist in Abb. 3.10 zu sehen. Das

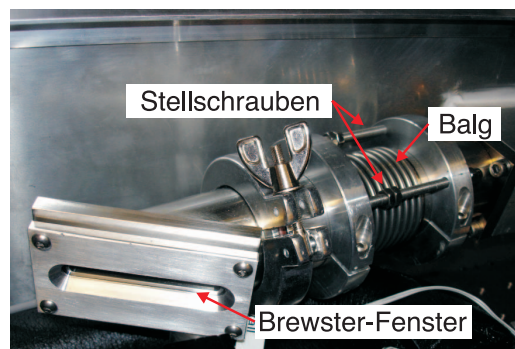


Abbildung 3.10: Brewster-Fenster der Herriot-Zelle.

abgedichtete Brewster Fenster ist auf einen KF-Flansch aufgebracht. Dieser kann mittels eines Balgs und dreier Stellschrauben ausgerichtet werden, was die Justage des Brewster Winkels erlaubt.

Die Vakuumkammer selbst ist nach oben und unten offen und wird mit einem O-Ring gegenüber dem Tisch und einem Plexiglasdeckel abgedichtet. Dies ermöglicht das Anbringen von Optiken auf dem Tisch, sowie die Sicht durch den Deckel auf die Herriot-Zelle.

3.5 Externe Dispersionskompensation

3.5 Externe Dispersionskompensation

Die mit dem Laser erzeugten Pulse, weisen eine zeitliche, dispersive Verbreiterung, einen sogenannten chirp, auf. Für eine maximale Pulsspitzenleistung muss dieser chirp nach dem Laseroszillator beseitigt werden. Diese Kompensation wird durch einen Prismenkompressor bewerkstelligt. Er besteht aus zwei gleichen Brewster-Prismen, deren Scheitelwinkel für 800 nm optimiert ist.

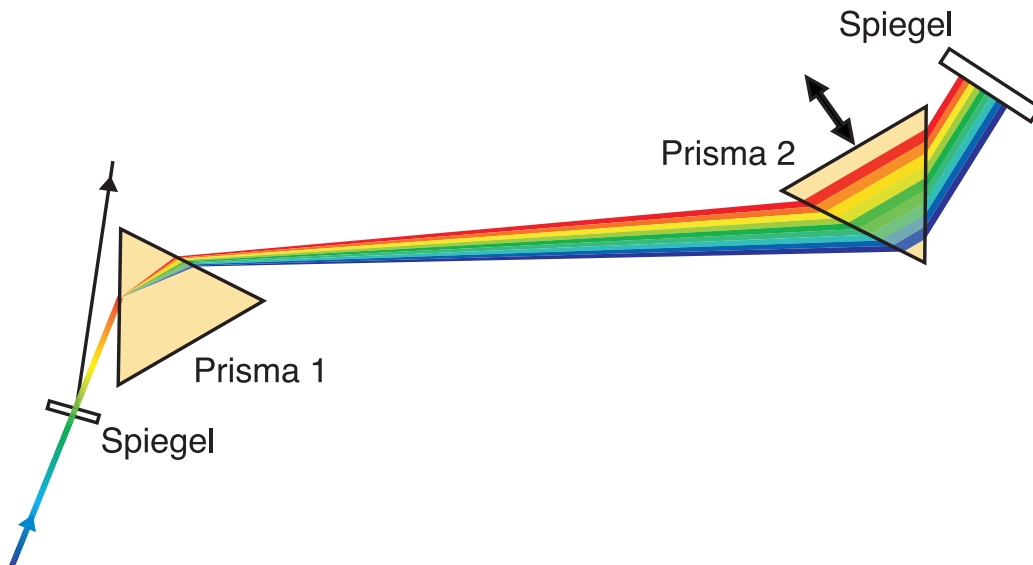


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung des Prismenkompressors.

Eine schematische Darstellung des Kompressors ist in Abb. 3.11 zu sehen. Das Prisma 1 spaltet den von links unten kommenden dispersiv verbreiterten Laserstrahl räumlich nach seinen Spektralanteilen auf. Der Strahl besitzt nun eine Winkeldispersion, die durch das Prisma 2 ausgeglichen wird. Nach dem zweiten Prisma hat der Laserstrahl eine räumliche Dispersion, er wird durch einen Spiegel mit einem horizontalen Versatz in sich zurückreflektiert. Nach dem Durchlaufen beider Prismen hat der Laserstrahl keine räumliche Dispersion mehr und wird mit einem Spiegel ausgekoppelt. Durch den unterschiedlichen optischen Weg der verschiedenen Spektralanteile, erhält der Laserstrahl eine im Allgemeinen negative Dispersion zweiter Ordnung (GDD). Der Betrag der Dispersion kann durch den Abstand der Prismen beeinflusst werden. Zur Feinabstimmung der GDD wird die Eindringtiefe des Prisma 2 verändert. Neben der Dispersion zweiter Ordnung bewirkt ein Prismenkompressor auch Dispersion höherer Ordnung, welche unter anderem von der Glassorte der Prismen abhängt. Zur Pulskompression kamen Prismen aus SF10 und LAK8 zum Einsatz, deren GDD in Abb. 3.11 aufgezeigt ist. Der LAK8 Prismen-

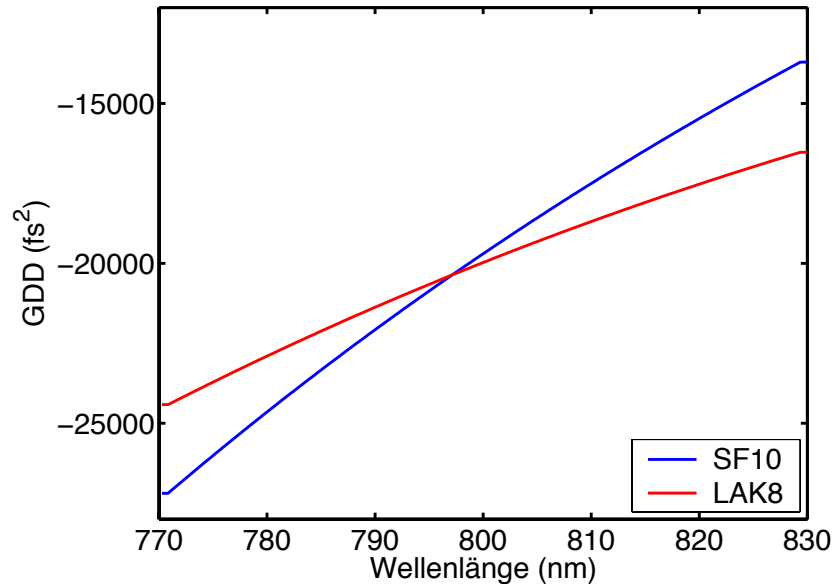


Abbildung 3.12: GDD des Prismenkompressors für SF10 und LAK8 Prismen.

kompressor wird dreimal Durchlaufen, wobei der Abstand der LAK8 Prismen 1,7 m beträgt und die Eindringtiefe beider Prismen 27 mm groß ist. Für den SF10 Prismenkompressor sind zwei Durchgänge, bei einem Prismenabstand von 1 m und einer Eindringtiefe 10,5 mm ausreichend. Die unterschiedliche Eindringtiefe ergibt sich aus der Aufweitung des Laserstrahls während er im Kompressor propagiert. Mit Hilfe eines Teleskops vor dem Prismenkompressor wurde diese Aufweitung so klein wie möglich gehalten.

Der LAK8 Prismenkompressor weist im Vergleich zu dem aus SF10 eine wesentlich kleinere Dispersion dritter Ordnung (TOD) auf, die eine bessere Kompression und damit eine kürzere Pulsdauer erwarten lässt. Die Messung der Pulsdauer nach dem LAK8 Prismenkompressor konnte jedoch aus Zeitgründen bisher noch nicht durchgeführt werden. Somit ist nicht eindeutig sichergestellt welcher Kompressor der geeignetere ist, da die genaue Dispersion des Laserpulses nach dem Oszillator nicht bekannt ist. Ein Großteil der mit dem Laser erzielten Resultate sind mit dem SF10 Kompressor entstanden.

Kapitel 4

Erzeugte Laserpulse

In diesem Kapitel werden die Resultate des Lasers vorgestellt. Bevor auf die einzelnen Ergebnisse eingegangen wird, wird die Detektion von Doppelpulsen diskutiert. Am Ende des Kapitels befinden sich Ergebnisse aus der Erzeugung von Weisslicht in Saphir, welche die Leistungsfähigkeit des Lasers eindrucksvoll demonstrieren.

4.1 Doppelpulsdetektion

Übersteigt die resonatorinterne Leistung einen kritischen Wert, so bewirkt eine übermäßige Selbstphasenmodulation ein Aufbrechen des Laserpulses. Es entstehen Doppel- oder Mehrfachpulse, deren Pulsenergie und Pulsspitzenleistung nur noch ein Bruchteil dessen eines Einfachpulses ist. Diese Betriebszustände sind also unerwünscht und müssen von dem gewollten Zustand eines einzelnen Pulses im Laserresonator unterschieden werden. Hierzu kommen zwei Methoden, die sich in ihrer Zeitauflösung ergänzen, zum Einsatz.

4.1.1 Schnelle Photodiode

Mit Hilfe einer schnellen Photodiode mit der Grenzfrequenz f_G und einem Radiofrequenz-Spektrum-Analysator können Doppelpulse, die mindestens einen zeitlichen Abstand von T_{RF} aufweisen, erkannt werden. Zur Berechnung von T_{RF} betrachtet man einen Doppelpuls, dessen Pulse einen zeitlichen Abstand von T_{DP} aufweisen, als Summe von Deltafunktionen. Für die Fourier-Transformation des Ausgangssignals des Lasers gibt dann:

$$\mathfrak{F} \left\{ \sum_{n=0}^{\infty} \delta(t - nT_R) + \delta(t - T_{DP} - nT_R) \right\} \propto \cos(\pi f T_{DP}) \cdot \sum_{n=0}^{\infty} \delta(f - n f_R) \quad (4.1)$$

Dabei ist die Pulswiederholrate f_R umgekehrt proportional zur Resonatorumlaufdauer T_R . Mit dem Skript $\mathfrak{F}$ wird die Fourier-Transformation bezeichnet. Das Signal im Frequenzbereich wird auf dem Radiofrequenz-Spektrum-Analysator dargestellt und enthält neben den Resonatormoden im Basisband $\sum_{n=0}^{\infty} \delta(f - n f_R)$ eine Einhüllende $\cos(\pi f T_{DP})$. Ist das Argument des Kosinus gleich $\pi/2$, weist das Signal im Frequenzbereich eine Nullstelle bei der Frequenz $f_{DP} = \frac{1}{2T_{DP}}$ auf. Für den minimal, auflösbaren Zeitabstand T_{RF} ergibt sich daraus mit der Grenzfrequenz f_G :

$$T_{RF} = \frac{1}{2f_G} \quad (4.2)$$

wobei sich die Grenzfrequenz aus dem gesamten Detektionssystem ergibt. Für die Detektion stand eine fasergekoppelte Photodiode mit einer Bandbreite von 20 GHz, ein SMA-Kabel mit einer Bandbreite von 30 GHz und ein Radiofrequenz-Spektrum-Analysator mit einer Bandbreite von 25 GHz zur Verfügung. Mit der Grenzfrequenz von $f_G = 20$ GHz ergibt sich eine minimale Zeitauflösung von 25 ps. Zur Veranschaulichung ist in Abb. 4.1 das Signal der schnellen Photodiode bis zu einer Frequenz von 0,5 GHz im Einzelpulsbetrieb dargestellt. Von der Darstellung eines größeren Frequenzbereiches wird abgesehen, da man aufgrund der vielen Resonatormoden die einzelnen Moden dann nicht mehr erkennt.

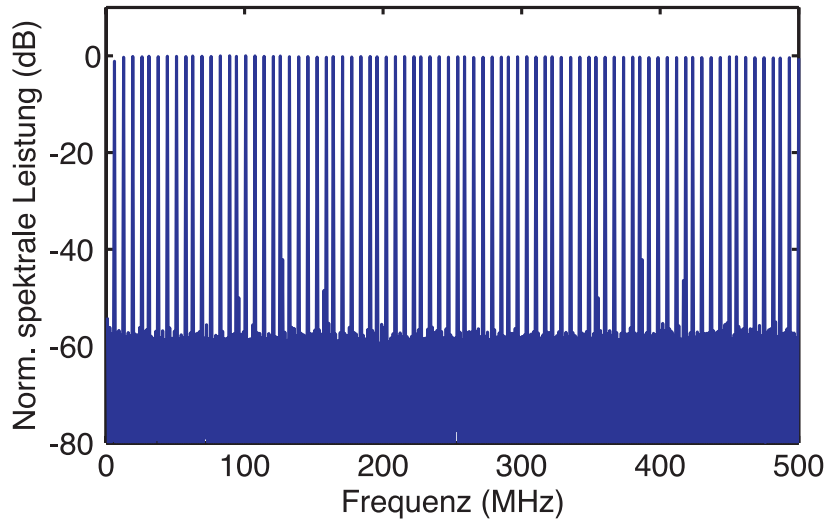


Abbildung 4.1: Signal des Radiofrequenz-Spektrum-Analysators.

Diese Überlegung kann analog auch für Mehrfachpulse durchgeführt werden. Weist das Radiofrequenz-Spektrum wie in Abb. 4.1 keinerlei Modulation

4.1 Doppelpulsdetektion

auf, so können ausschliesslich Doppelpulse mit einem zeitlichen Abstand der kleiner ist als $T_{RF} = 25$ ps oder der erwünschte Einfachpulsbetrieb vorliegen. Um Doppelpulse, die einen geringeren zeitlichen Abstand aufweisen, zu erkennen, kommt ein Intensitätsautokorrelator mit großer Zeitspanne zum Einsatz.

4.1.2 Intensitätsautokorrelator

Bei einem Intensitätsautokorrelator handelt es sich um einen Standardaufbau zur Pulscharakterisierung. Der hier verwendete Autokorrelator ist in [Sie05] auf Seite 53 näher beschrieben. Die Situation eines Doppelpulsbetriebs, bei dem die Pulse einen kleinen zeitlichen Abstand (5 ps) haben, ist in Abb. 4.2 dargestellt.

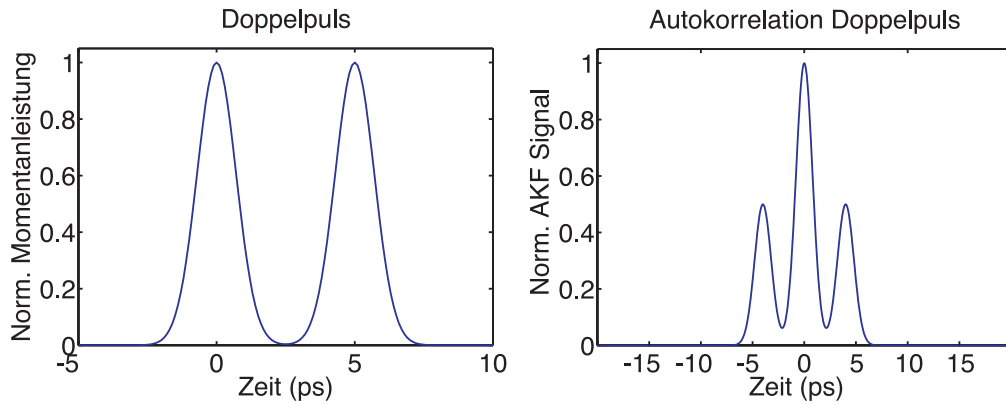


Abbildung 4.2: Links: Momentanleistung eines Doppelpulses. Rechts: Die dazugehörige Autokorrelationsfunktion.

Im linken Bild ist die Momentanleistung des Doppelpulses gezeigt, das rechte Bild zeigt die sich daraus ergebende Autokorrelationsfunktion. Entscheidend ist die Form der Autokorrelationsfunktion; sie besitzt zwei Seitenmaxima, die sich nur in Doppelpulsbetrieb einstellen.

Ein Interferometerarm des Autokorrelator weist einen Hub von $\Delta s = 1,5$ cm auf. Den maximalen Pulsabstand T_{AK} der Doppelpulse, die er somit erkennt, ergibt sich aus:

$$T_{AK} = \frac{2\Delta s}{c} = 100 \text{ ps} \quad (4.3)$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit bezeichnet.

Beide Charakterisierungsmethoden weisen also einen erheblichen zeitlichen Überlapp auf. Mit ihrer Hilfe kann somit eindeutig der gewünschte Einzelpulsbetrieb sichergestellt werden. Dieser ist für die folgenden Resultate immer gewährleistet.

4.2 Ausgangsleistung

Die wichtigste Richtgröße für die Laserleistung ist die mittlere Ausgangsleistung $\overline{P}$, die mit einem thermischen Messkopf gemessen wird. Sie beträgt bei optimaler Justage 3,5 W und ergibt zusammen mit der Pulswiederholrate von $f_R = 6,23$ MHz eine Pulsenergie von:

$$E_P = \frac{\overline{P}}{f_R} = 560 \text{ nJ} \quad (4.4)$$

Diese Pulsenergie übersteigt dabei die bisher publizierte von 505 nJ eines solchen Laseraufbaus um 10 % [Nau05]. Dabei ist die Pulswiederholrate von 2 MHz und damit auch die mittlere Ausgangsleistung aus [Nau05] um einen Faktor 3 geringer.

In Abb. 4.3 ist das optische Spektrum der emittierten Laserpulse auf einer logarithmischen Skala dargestellt. Es besitzt ein Fourier-Limit von 44 fs und erstreckt sich von 785 nm bis 830 nm. Dabei besitzt es charakteristische, steil abfallende Kanten, die sich aus der Modenkopplung im positiven Dispersionsregime ergeben. Der Schwerpunkt des optischen Spektrums liegt bei 804 nm. Sein zu höheren Wellenlängen abfallendes Plateau kann auf die Dispersion dritter Ordnung zurückgeführt werden [Kal05] (siehe auch Abb. 3.3).

Nach dem Laserresonator beträgt die Pulsdauer aufgrund der dispersiven Verbreiterung ungefähr 2 ps, sie lässt sich mit Hilfe des Intensitätsautokorrektors messen.

4.3 Charakterisierung der Pulsdauer

4.3.1 Interferometrische Autokorrelation

Für komprimierte Pulse ist ein Intensitätsautokorrektor zur Messung der Pulsdauer ungeeignet. An seine Stelle tritt ein interferometrischer Autokorrektor, dessen Autokorrelation unter Verwendung des SF10 Prismenkompressors in Abb. 4.4 gezeigt ist.

Die Autokorrelation gibt sehr genau das geforderte Verhältnis von eins zu acht wieder; das Maximum befindet sich bei acht, das Minimum bei null

4.3 Charakterisierung der Pulsdauer

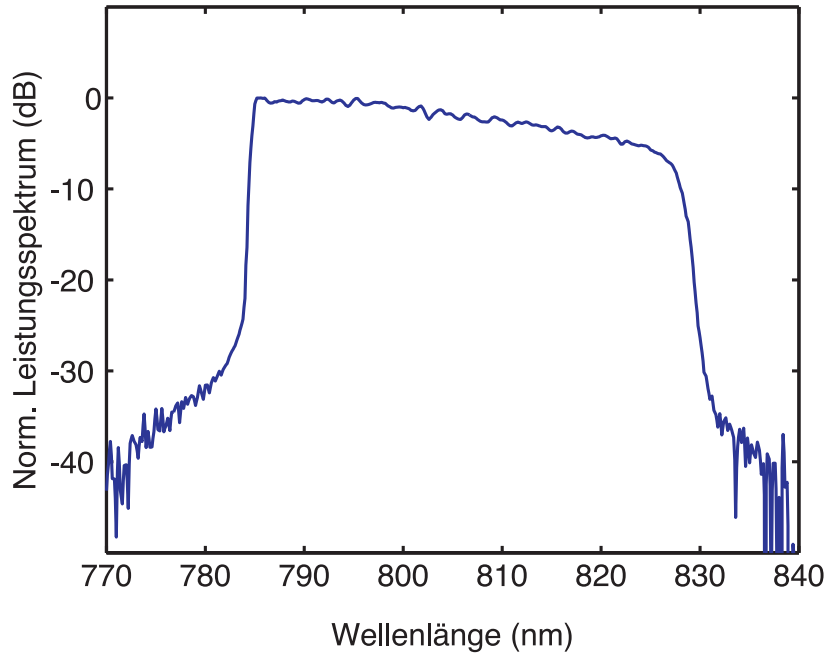


Abbildung 4.3: Optisches Spektrum der emittierten Laserpulse.

und der Wert für große Zeiten, die Basislinie ($t \rightarrow \infty$), liegt bei eins. Die geforderte Symmetrie um den Zeitpunkt $t = 0$ ist im Hauptteil ($-75 \text{ fs} < t < 75 \text{ fs}$) gut erfüllt, in den Ausläufern jedoch nicht gut wiedergegeben. In den Ausläufern besitzt die Autokorrelation markante Seitenmaxima, die sich durch die Form des optischen Spektrums und bei Vorhandensein von Dispersion höherer Ordnung ausbilden. Desweiteren krümmt sich die Basislinie zum Hauptteil hin, welches ein weiteres Zeichen für nicht kompensierte Dispersion ist.

Die Pulsdauer, sie wird als volle Halbwertsbreite (*FWHM*, engl. *Full Width Half Maximum*) angegeben, ergibt sich aus der Breite der Autokorrelation, welche 89,6 fs beträgt. Das Verhältnis zwischen der vollen Halbwertsbreite der Autokorrelation und der Pulsdauer ist für verschiedene Pulsformen analytisch berechenbar. Für Pulse, die im positiven Dispersionsregime erzeugt wurden, existiert ein solches Verhältnis jedoch nicht. Es lässt sich jedoch aus folgender Rechnung gewinnen: Berechnet man aus dem optischen Spektrum (Abb. 4.3) einen Fourier-limitierten Puls und sein elektrisches Feld, so lässt sich numerisch eine interferometrische Autokorrelation berechnen. Das Verhältnis zwischen voller Halbwertsbreite des Pulses und der Autokorrelation beträgt 1,66. Damit ergibt sich eine Pulsdauer von $\tau_{\text{FWHM}} = 54 \text{ fs}$.

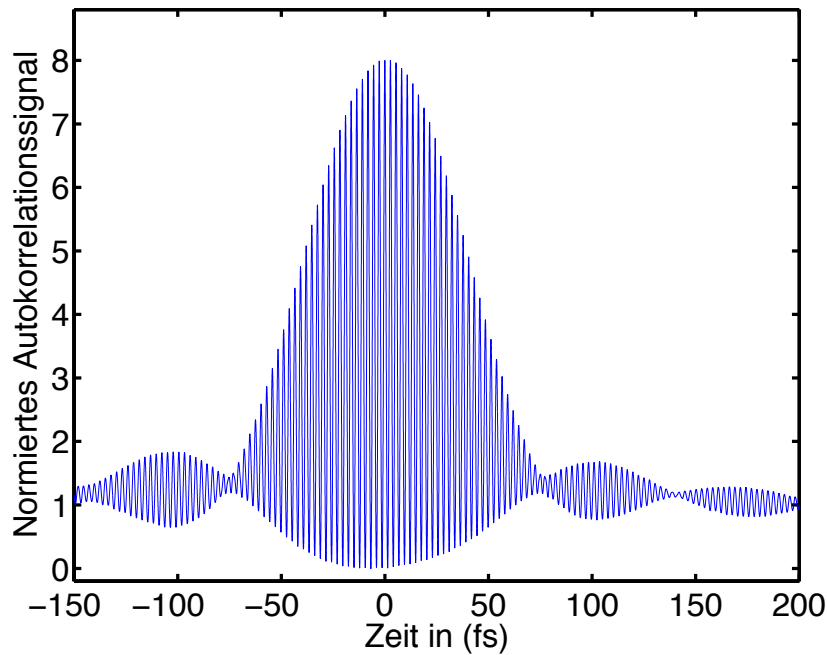


Abbildung 4.4: Interferometrische Autokorrelation

4.3.2 SPIDER

Für eine vollständige Pulscharakterisierung benötigt man neben dem optischen Spektrum den spektralen Phasengang. Durch numerische Optimierung lässt sich ein anfänglich willkürlich gewählter Phasengang mit der gemessenen interferometrischen Autokorrelation in Übereinstimmung bringen. Diese so bestimmte spektrale Phase ist aber nicht eindeutig bestimmt und konnte für die Autokorrelation in Abb. 4.4 nicht ermittelt werden. Ein Messaufbau zur direkten Bestimmung der spektralen Phase ist der sogenannte SPIDER, dessen Name eine Abkürzung des englischen *Spectral Phase Interferometry for Direct Electric field Reconstruction* ist. Für eine detaillierte Beschreibung des Aufbaus sein auf [Ell03] und [Gal99] verwiesen.

Die von SPIDER gemessene Gruppenverzögerung (GD) ist in Abb. 4.5 auf der linken Seite gezeigt. Sie weist eine sehr große Dispersion vierter Ordnung auf (FOD), welche auch mit Hilfe von Simulationen vorhergesagt wurde [Kal05]. Eine berechnete Autokorrelation unter Verwendung der gemessenen, spektralen Phasen ist in Abb. 4.5 auf der rechten Seite in rot dargestellt. Zum Vergleich ist die gemessene Autokorrelation in blau mit abgebildet. Die mit Hilfe des SPIDERS gewonnene blaue Kurve besitzt zwar Seitenmaxima in den Ausläufern, weicht jedoch stark von der gemessenen Kurve ab. Der Grund

4.4 Erzeugung von Weisslicht

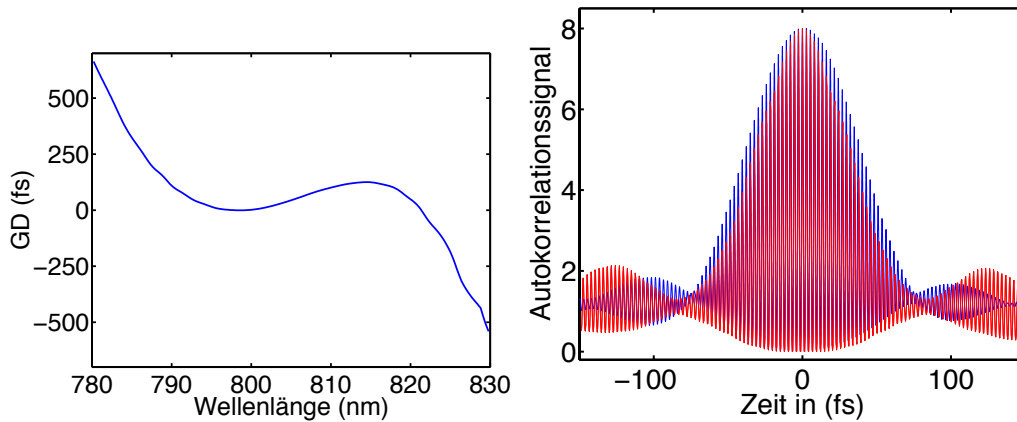


Abbildung 4.5: Pulscharakterisierung durch SPIDER. Links: gemessene Gruppenverzögerung (GD). Rechts: aus GD berechnete Autokorrelation (blau) und gemessene Autokorrelation (rot).

dafür ist die große Änderung der spektralen Phase innerhalb des optischen Spektrums, die den Messbereich der SPIDER-Methode übersteigt. SPIDER erweist sich somit nicht als geeignete Charakterisierungsmethode für die aus dem Laserresonator gewonnenen Laserpulse.

4.4 Erzeugung von Weisslicht

Die Erzeugung von Weisslicht in Saphir ist ein nichtlinearer optischer Prozess, der einen scharfen Schwellwert aufweist. Um dieses zu erzeugen wird der Laserstrahl mit Hilfe einer Plan-Konvex-Linse in eine 3 mm dicke Saphir-Platte fokussiert. Verschiebt man die Saphir-Platte in den Fokus, entsteht ein greller weisser Strahl, dessen Foto als Einsatz in Abb. 4.6 links oben zu sehen ist. Für eine möglichst effiziente Erzeugung wird die Dispersion, durch die Eindringtiefe des zweiten Prismas des Prismenkompressors, optimiert.

Die Erzeugung von Weisslicht mit einer Linse mit kurzer Brennweite ist sehr einfach einzustellen. Dies wird zur Optimierung der Dispersion, als Alternative zur Benutzung eines interferometrischen Autokorrelators, eingesetzt. Die längste Brennweite, mit der Weisslicht erzeugt werden kann, beträgt $f = 200$ mm und verursacht einen $24 \mu\text{m}$ großen Fokus im Kristall. Dieses Ergebnis ist vergleichbar mit der Erzeugung von Weisslicht aus kommerziellen Laserquellen und beweist den Einzelpulsbetrieb und eine gute Kompression des Pulses. In Abb. 4.6 ist das optische Spektrum des erzeugten Weisslichts in einer logarithmischen Skala dargestellt.

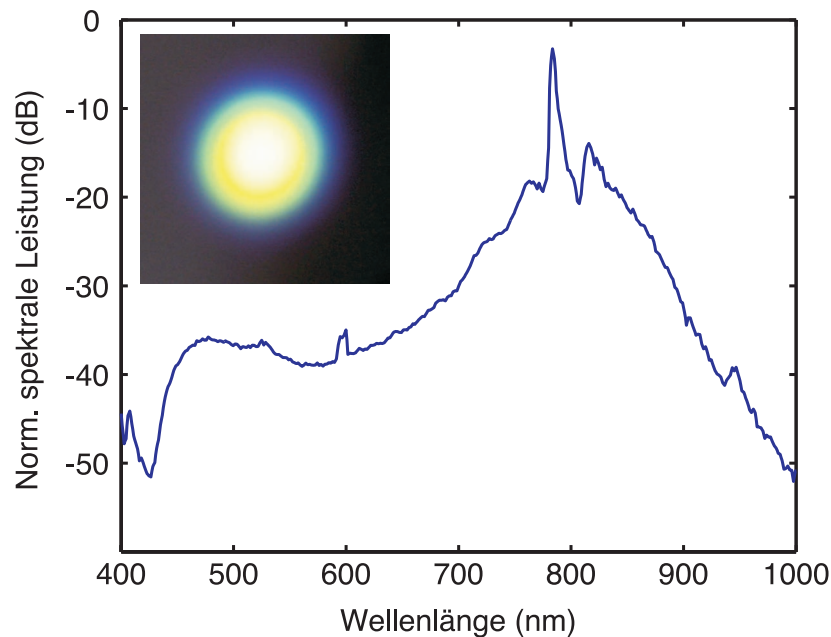


Abbildung 4.6: Optisches Spektrum von in Saphir erzeugtem Weisslicht. Ein-satz links oben: Foto von Weisslicht.

Durch den nichtlinearen optischen Prozess entstehen, analog zur Selbstphasenmodulation, neue Frequenzkomponenten, wobei hier auch Prozesse höherer Ordnung eine entscheidende Rolle spielen. Das optische Spektrum erstreckt sich über den gesamten sichtbaren Bereich, wodurch sich der Begriff Weisslicht rechtfertigt. Die Unstetigkeit des Spektrums bei 600 nm und 940 nm ist auf den optischen Spektrumanalysator zurückzuführen. Erkennbar ist die typische asymmetrische Form und ein Podest, das von 450 nm bis 650 nm erstreckt.

Weiterhin sind zwei dominante Spektralanteile, bei 785 nm und 825 nm zu erkennen. Sie gehören zu den Rändern des Fundamentalspektrums und werden schlecht oder nur teilweise in Weisslicht konvertiert. Dies ist ein weiterer Hinweis auf eine nicht kompensierte Dispersion höherer Ordnung.

4.5 Strahlqualität

Soll der Laserstrahl stark fokussiert werden, ist die Strahlqualität des Strahls von entscheidender Bedeutung. Um seine Qualität zu quantifizieren, wird der sogenannte M^2 -Wert eingeführt. Er ergibt sich aus dem Divergenzwinkel θ

4.5 Strahlqualität

und dem Strahlradius im Fokus w_0 des Laserstrahls:

$$M^2 = \frac{\pi}{\lambda} \theta w_0 \quad (4.5)$$

Für einen perfekten Strahl ergibt sich M^2 zu eins. Mit zunehmend schlechter Strahlqualität steigt der M^2 -Wert an. Ein Strahl mit guter Qualität erreicht, im Vergleich zu einem Strahl schlechter Qualität, bei gleichem Divergenzwinkel, d.h. gleicher Fokussierung, einen kleineren Fokus w_0 .

In Abb. 4.7 ist eine M^2 -Wert-Messung, die wurde mit einem kommerziellen Messaufbau der Firma Spircon durchgeführt, des emittierten Laserstrahl dargestellt. Für die Messung wird ein leichter Fokus mit Hilfe einer Linse

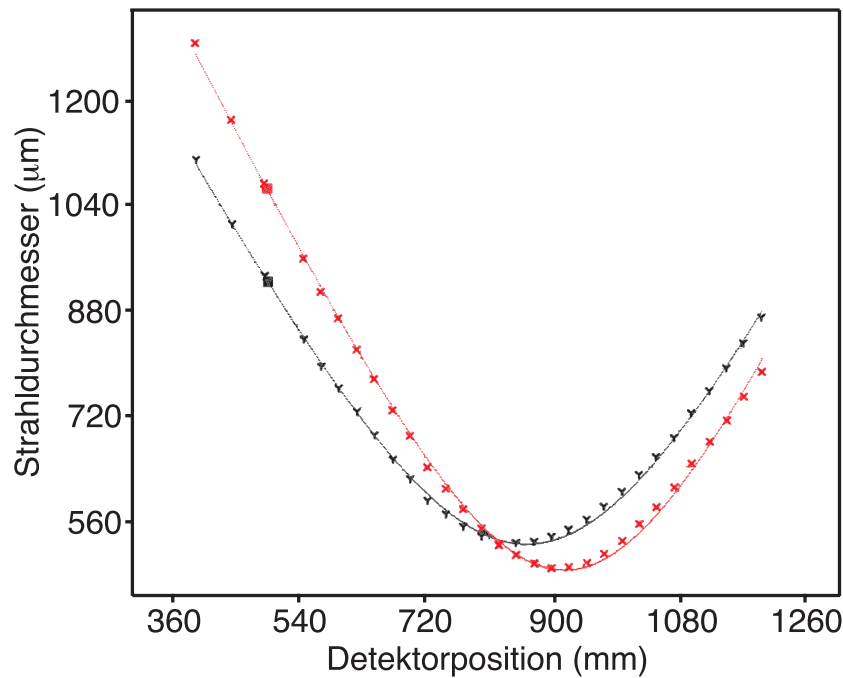


Abbildung 4.7: M^2 -Messung in sagittaler (rot) und transversaler (schwarz) Richtung. Die Messung ergibt einen M^2 -Wert von 1,1 in beiden Ebenen.

erzeugt. Der Strahlradius wird an mehreren Stellen um den Fokus gemessen, und dessen Verlauf mit geeignetem M^2 -Wert angefitet. In Abb. 4.7 sind die Messwerte der sagittale Richtung mit schwarzen y und der transversale Richtung mit roten x eingetragen. Der Fit ergibt in beiden Strahlachsen einen Wert von:

$$M^2 = 1, 1.$$

Dies kann als ein optimaler Wert für einen Laserstrahl angesehen werden, da die absolute Genauigkeit solcher Messungen bei 10% liegt.

Auffallend ist die unterschiedliche Position der Foki in Abb. 4.7, dessen Ursache ein Astigmatismus des Laserstrahls ist. Dieser Astigmatismus wird durch ein Teleskop, das sich zwischen Laser und Prismenkompressor befindet, ausgeglichen.

Kapitel 5

Fokussierung der Laserpulse

Dieses Kapitel geht auf die Fokussierung der Laserpulse und dadurch erzeugbare Intensitäten ein.

Für eine möglichst hohe Intensität muss der Laserstrahl auf einen möglichst kleinen Strahlquerschnitt fokussiert werden. Die Spitzenleistung $\hat{P}$ ergibt sich aus dem Integral über die Intensität in der Fokusebene, wobei der Laserstrahl als gaußförmig angenommen und auf einen Fokus mit dem Strahlradius w_0 fokussiert ist.

$$\hat{P} = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \hat{I} \exp\left(-2\frac{x^2 + y^2}{w_0^2}\right) dx dy = \frac{1}{2}\pi w_0^2 \hat{I} \quad (5.1)$$

Für die Spitzenintensität erhält man somit:

$$\hat{I} = 2\frac{\hat{P}}{\pi w_0^2} \quad (5.2)$$

Aus theoretischen Gründen kann der Strahlradius nicht kleiner als die halbe Wellenlänge des Lichts werden. Die Laserpulse können also im besten Fall auf einen Fokus von $w_0 = 0,4 \mu\text{m}$ fokussiert werden.

Der Strahlradius ändert sich entlang der Ausbreitungsrichtung nach folgender Gesetzmäßigkeit:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{z}{z_0}\right)^2}, \quad z_0 = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (5.3)$$

Ist die Rayleigh-Länge $z_0 \ll z$ so kann man die eins in der Quadratwurzel vernachlässigen, und es ergibt sich für den Strahlradius folgende einfache Form:

$$w_0 \approx \frac{\lambda}{\pi} \frac{z}{w(z)} \quad (5.4)$$

5.0.1 Asphärische Linse

Eine oft angewandte Möglichkeit einen kleinen Fokus zu erzeugen, ist die Verwendung einer asphärischen Linse. Diese hat jedoch den Nachteil der chromatischen Dispersion, die den Fokus eines Laserpulses im Vergleich zu einem monochromatischen Strahl stark vergrößert. Dabei werden die einzelnen Frequenzen des polychromatischen Laserpulses an unterschiedlichen Positionen in Ausbreitungsrichtung fokussiert. In Abb. 5.1 ist dieser Effekt beispielhaft für zwei Linsen (Thorlabs 350140 (rot) und 350230 (blau)) mit einer numerischen Apertur von 0,55 dargestellt. Die Fokusposition ist relativ zum Fokus bei 800 nm angegeben.

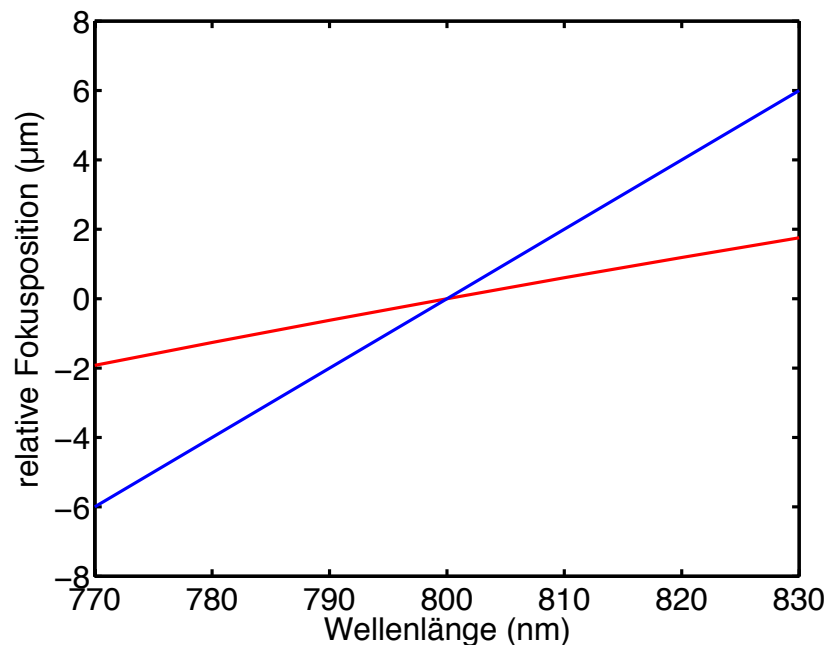


Abbildung 5.1: Chromatische Dispersion asphärischer Linsen. Rot: Thorlabs 530140; blau: Thorlabs 350230. Die Fokusposition ist relativ zum Fokus bei 800 nm angegeben.

Zusätzlich darf für die spätere Anwendung in einem Reaktionsmikroskop kein Gegenstand in der näheren Umgebung des Fokus vorhanden sein. Eine asphärische Linse kann allein aus diesem Grund nicht eingesetzt werden.

5.1 Fokussierung durch einen Spiegel

5.1 Fokussierung durch einen Spiegel

Für den Einsatz in einem Reaktionsmikroskop kommt also nur die Verwendung eines Fokussierspiegels in Frage. Für die Oberflächenform des Spiegels gibt es zwei Möglichkeiten:

- Sphärische Oberflächenform
- Parabolische Oberflächenform

Sphärische Spiegel sind in allen Größen in der Optik weit verbreitet und können mit einer sehr großen Präzision hergestellt werden. Parabolspiegel sind dagegen eher exotisch und werden nur mit großem Durchmesser und großer Brennweite häufig in der Astronomie eingesetzt.

Andererseits treten bei sphärischen Spiegeln mit großer numerischer Apertur, die eine starke Fokussierung erlaubt, sphärische Abbildungsfehler auf. Die paraxiale Näherung ist für Strahlen, die einen großen Abstand zur optischen Achse haben, nicht mehr erfüllt. Eine einfache Abschätzung dieses Abbildungsfehlers ist nicht möglich. Man kann jedoch die Wellengleichung numerisch lösen, um so einen Aussage über die Fokussierung zu erlangen.

In Abb. 5.2 ist die Spiegeloberfläche als Schnitt in der x-z-Ebene in einem kartesischen Koordinatensystem dargestellt. Die Rotationssymmetrie des Spiegels ist entlang der z-Achse gegeben. Mit Hilfe des Huygens-Fresnel-Prinzip kann die Amplitude $a(x, y, z)$ am Ort $P(x, y, z)$ als Superposition von Ausgangswellen, die am Ort $P'(x', y', z = d)$ eine Amplitude $\tilde{a}(x', y', z = d)$ aufweisen, verstanden werden. Dies lässt sich mit Hilfe des Fresnel-Integrals folgendermassen ausdrücken [Gra98]:

$$a(x, y, z) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} \tilde{a}(x', y', z = d) \frac{\cos \varepsilon}{l} e^{-i \frac{2\pi}{\lambda} (l-d)} dx' dy' \quad (5.5)$$

Die Amplitude $a(x, y, z)$ der optischen Welle am Ort $P(x, y, z)$ ist durch die Integration aller Amplituden $\tilde{a}(x', y', z = d)$, die Ausgangswellen auf der Spiegeloberfläche am Ort $P'(x', y', z = d)$ beschreiben, gegeben. Dabei werden die Punkt P' und P durch die Strecke l verbunden, die mit der z-Achse den Winkel ε einschliesst. Die Spiegeloberfläche wird über den Abstand d , den sie zur x-y-Ebene aufweist, definiert, wodurch $\cos \varepsilon$ durch $(z-d)/l$ ersetzt werden kann.

Bei der numerischen Lösung von Gl. (5.5) wird eine begrenzte Anzahl von Ausgangswellen aufsummiert:

$$a(x, y, z) = \sum_{i=0}^n \sum_{j=0}^n \tilde{a}(x_i, y_j, z = d) \frac{z-d}{l^2} e^{-i \frac{2\pi}{\lambda} (l-d)} \quad (5.6)$$

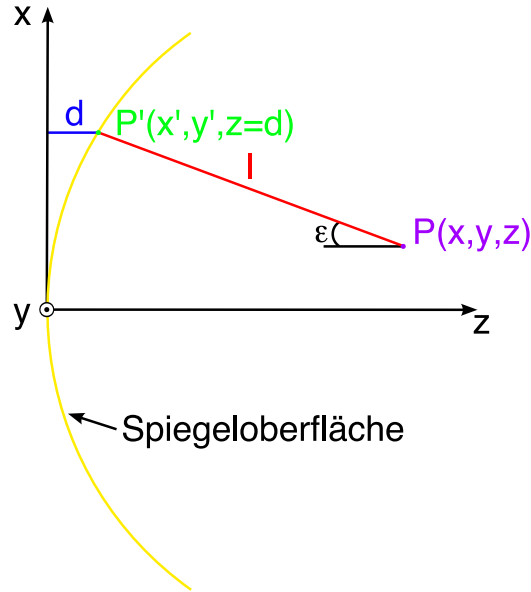


Abbildung 5.2: Skizze der Spiegeloberfläche zur Berechnung des Fresnel-Integrals.

Der Abstand l der Punkte P' und P ergibt sich aus deren Koordinaten:

$$l = \sqrt{(z - d(x_i, y_j))^2 + (x - x_i)^2 + (y - y_j)^2}$$

Die Form der Spiegeloberfläche ist für einen sphärischen Spiegel eine Kugelfunktion:

$$d(x_i, y_j)_{\text{sphär}} = R - R\sqrt{1 - \frac{x_i^2 + y_j^2}{R^2}} \quad (5.7)$$

Dabei bezeichnet R den Krümmungsradius des Spiegels. Ist der Abstand $\sqrt{x_i^2 + y_j^2}$ zur Spiegelachse klein gegenüber R , so lässt sich die Wurzel entwickeln.

$$\begin{aligned} d(x_i, y_j)_{\text{sphär}} &= R - R \left[1 - \frac{1}{2} \frac{x_i^2 + y_j^2}{R^2} - \frac{1}{8} \left(\frac{x_i^2 + y_j^2}{R^2} \right)^2 - \dots \right] \\ &= \frac{x_i^2 + y_j^2}{2R} + \frac{1}{8} \frac{(x_i^2 + y_j^2)^2}{R^3} + \dots \end{aligned} \quad (5.8)$$

In der paraxialen Näherung, bei der $x_i^2 + y_j^2 \ll R^2$ gilt, können alle Terme höherer Ordnung vernachlässigt werden. Merkliche sphärische Abbildungsfehler treten genau dann auf, wenn der zweite Term $\frac{1}{8}(x_i^2 + y_j^2)^2 / R^3$ die Größe einer halben Wellenlänge erlangt.

5.1 Fokussierung durch einen Spiegel

Für einen parabolischen Spiegel ergibt sich d folglich aus dem ersten Term von Gl. (5.8):

$$d_{\text{paraol}}(x_i, y_j) = \frac{x_i^2 + y_j^2}{2R}$$

Das Ergebnis der numerischen Rechnung ist in Abb. 5.3 gezeigt. Der Spiegeldurchmesser beträgt dabei $D = 50$ mm und hat die Größe des im Reaktionsmikroskop eingesetzten Spiegels. Die Brennweite beträgt ebenfalls 50 mm, das einen Krümmungsradius von $R = 100$ mm zur Folge hat. Für die Intensitätsverteilung der Ausgangswellen wurde eine Gaußverteilung mit einem Strahlradius von 20 mm angenommen. Dies entspricht dem transversalen Grundmode des Lasers, welcher durch die sehr gute Strahlqualität gegeben ist.

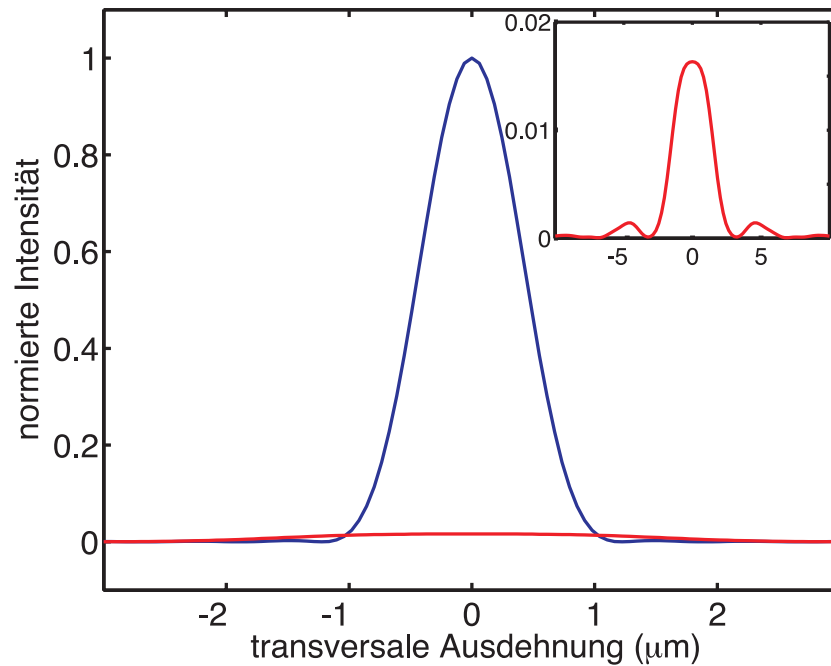


Abbildung 5.3: Vergleich der Intensität eines Parabolspiegels (blau) und eines sphärischen Spiegels (rot). Krümmungsradius und Brennweite der Spiegel sind jeweils 50 mm. Oben rechts: Intensität des sphärischen Spiegels.

Die Intensität im Fokus eines Parabolspiegels ist in Abb. 5.3 in blau dargestellt. Sie besitzt wie erwartet eine Gaußverteilung und ist auf eins normiert. In rot ist der Fokus des sphärischen Spiegels dargestellt. Er besitzt eine um den Faktor 61 kleinere Intensität. Der Verlauf der Intensität des sphärischen Spiegels ist als Einsatz oben rechts in Abb. 5.3 nochmals in

einem passenden Ausschnitt dargestellt. Man erkennt mehrere Seitenmaxima, die eine Folge der sphärischen Abbildungsfehler sind und zur dramatischen Absenkung der Intensität führen. Der Ort maximaler Intensität befindet sich für den Fall des sphärischen Spiegels um $77,7 \mu\text{m}$ näher am Spiegel, dies ist ebenfalls eine Folge der sphärischen Abbildungsfehler.

Aus der numerischen Berechnung ergibt sich ein Wert für den Strahlradius des parabolischen Spiegels von:

$$w_0 = 0,74 \mu\text{m}$$

Zusätzlich lässt sich der Strahlradius mit Gl. (5.4) abschätzen. Dabei ersetzt man z durch die Brennweite f und $w(z)$ durch den Strahlradius ρ vor dem Spiegel:

$$w_0 \approx \frac{\lambda f}{\pi \rho} = \frac{\lambda 50 \text{ mm}}{\pi 20 \text{ mm}} = 0,64 \mu\text{m}$$

Dieser Wert stellt trotz der großen numerischen Apertur des Spiegels eine gute Näherung dar.

Nachteil eines Parabolspiegels sind seine höheren Anschaffungskosten und seine geringere Oberflächenqualität im Vergleich zu einem sphärischen Spiegel. Die aufgrund der Oberflächenqualität entstehenden Streuverluste sind dabei nur schwer zu beziffern.

5.2 Erzeugbare Intensität

Für die spätere Anwendung der Laserpulse in einem Reaktionsmikroskop ist die maximale Intensität (Spitzenintensität $\hat{I}$) innerhalb des Fokus entscheidend. Geht man von der Spitzenleistung $\hat{P} = 10 \text{ MW}$ und einem Strahlradius von $w_0 = 0,74 \mu\text{m}$ aus, so erhält man unter Berücksichtigung von Verlusten, die sich zwischen dem Laser und dem Spiegel ergeben, eine Spitzenintensität von $\hat{I} = 6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Die Ergebnisse aus Abschnitt 8.1 lassen auf eine Spitzenintensität von $\hat{I} = 1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ schliessen. Trotz der zusätzlichen Verluste ist dieser Wert ausreichend für Experimente im Zusammenhang mit der nicht-sequenziellen Doppelionisation und noch nie direkt mit einem Laseroszillator erzeugt worden [Dew06].

Kapitel 6

Ionisation in starken Laserfeldern

Im ersten Teil dieser Arbeit wurde eine gepulste Laserlichtquelle beschrieben, die eine hohe Intensität bei gleichzeitig hoher Pulswiederholrate erzeugt. In dem nun folgenden Teil wird die Anwendung dieser Laserpulse in der Atomphysik dargelegt.

In diesem Kapitel wird ein kleiner Einblick in die Wechselwirkung von Atomen mit intensiven Laserfeldern, und deren theoretische Beschreibung gegeben. Besondere Aufmerksamkeit wird dabei dem Rekollisionsmechanismus gewidmet, der für Phänomene wie die Erzeugung hochenergetischer Elektronen, die Erzeugung harmonischer Strahlung, sowie die nicht-sequenzielle Doppelionisation verantwortlich ist. Am Ende des Abschnitts wird eine semiklassische Abschätzung für die Schwellintensität der nicht-sequenziellen Doppelionisation angegeben.

Die Ionisation von Atomen in intensiven Laserfeldern ist im Allgemeinen von der Polarisation des Lichts abhängig. Diese Arbeit beschränkt sich dabei auf die Betrachtung linearer Polarisation bei einer Wellenlänge von 800 nm.

Alle Ausdrücke werden im Folgenden in dem Maßsystem der atomaren Einheit angegeben (a.u.). Die Ladung eines Elektrons e , dessen Masse m_e und das Planck'sche Wirkungsquantum $\hbar$ werden dabei mit eins gleichgesetzt ($e = m_e = \hbar = 1$ a.u.).

6.1 Einfachionisation

Im Gegensatz zum äusseren photoelektrischen Effekt, bei dem ein Elektron durch Absorption eines Photons genügend Energie erhält um das Ionisationspotenzial I_P zu überwinden, ist bei der Wechselwirkung von Atomen und

Molekülen mit intensiven Laserfeldern die Photonenenergie sehr viel kleiner als I_P . In diesem Fall unterscheidet man grob zwei Regime, in denen das Atom oder Molekül ionisiert werden kann. Im Bereich schwacher, schnell oszillierender elektrischer Felder arbeitet man im Photonenbild und spricht von Multiphotonionisation. Im Bereich starker, langsam alternierender Felder benutzt man ein semiklassisches Konzept, in diesem Fall spricht man von Feldionisation.

Diese beiden Regime werden durch den Keldysh-Parameter γ , auch Adiabasie-Parameter genannt, unterschieden [Kel65, Pop04].

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_{tunnel}} = \frac{\tau_{tunnel}}{T_{Laser}} \quad (6.1)$$

Dabei ist τ_{tunnel} die "Tunnelzeit" und ω die Kreisfrequenz des Laserlichtes mit der Periodendauer T_{Laser} . ω_{tunnel} ist die zur Tunnelzeit äquivalente Frequenz¹.

Ist die Tunnelzeit τ_{tunnel} sehr viel größer als die Periodendauer des Lichtes ($\gamma \gg 1$), so befindet man sich im Regime der *Multiphotonionisation*.

Ist dagegen die Tunnelzeit τ_{tunnel} sehr viel kleiner als die Periodendauer T_{Laser} ($\gamma \ll 1$), so hat das Elektron genügend Zeit, um durch die ihm gestellte Barriere zu tunneln. Das langsam oszillierende elektrische Feld wird hier als quasistatisch angenommen, und das Atom oder Molekül wird in diesem Fall durch die *Tunnelionisation* ionisiert. Bei sehr hohen Intensitäten kann das Elektron direkt über die Barriere entkommen, was einen weiteren Mechanismus der *Feldionisation* darstellt.

6.1.1 Tunnelionisation

Befindet sich ein Atom in einem intensiven Laserfeld, so wird das atomare Potenzial verzerrt. Das resultierende Potential ergibt sich aus der Superposition des über atomare Dimensionen räumlich konstanten, aber zeitlich oszillierenden Laserfeldes und dem Coulomb-Potenzial. In Abb. 6.1 ist das, beim Nulldurchgang des elektrischen Feldes, ungestörte Potenzial des Atoms als schwarz gepunktete Linie dargestellt. Eine viertel Periodendauer später ist das Atompotenzial maximal verzerrt (blaue Potenzialkurve). Dem Elektron, das sich in dem Zustand der rot markierten Linie befindet, stellt sich eine Tunnelbarriere, durch welche es mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit tunneln (rot gepunktete Linie). Ist die Periodendauer des Lasers groß gegenüber der Tunnelzeit, so wird das oszillierende elektrische Feld als quasistatisch angenommen; die Ionisation findet im Tunnelregime statt.

¹Eine Definition der Tunnelfrequenz findet sich in [Kel65] wieder.

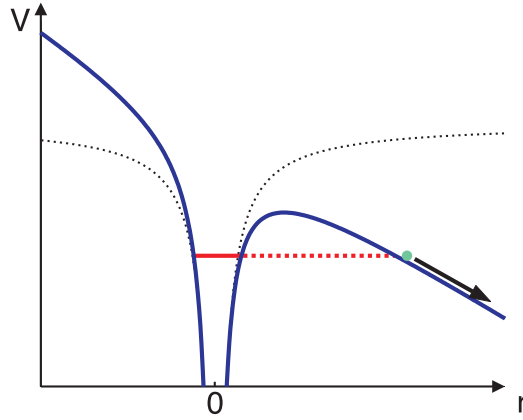


Abbildung 6.1: Veranschaulichung der Tunnelionisation. Potenzial des Atoms über dem Abstand r . Schwarz gepunktete Linie: ungestörtes Potenzial des Atoms. Blaue Linie: durch das äussere Feld gekrümmtes Potential. Rote Linie: Grundzustand des Elektrons, das durch die Barriere tunnelt (rot gepunktet). Grüner Punkt: freies Elektron, das nach dem Tunneln in dem Laserfeld beschleunigt wird.

In Abb. 6.1 ist das freie Elektron nach dem Tunnelprozess durch einen grünen Punkt dargestellt. Durch das vorhandene Laserfeld erfährt das Elektron eine beschleunigende Kraft. Es führt, angetrieben von dem alternierenden elektrischen Feld, eine Oszillationsbewegung aus.

Die Wahrscheinlichkeit $w(t)$, mit der das Atom ionisiert wird, ist von der Höhe und Breite der Potenzialbarriere, die sich dem Elektron stellt, abhängig. Sie wird durch den Momentanwert der elektrischen Feldstärke $E(t) = E_0 \sin \omega t$ bestimmt und durch die sogenannte ADK Theorie (Ammosov, Delone und Krainov) [Amm86], in guter Übereinstimmung mit experimentellen Daten, beschrieben. $w(t)$ ist in [Del91] folgendermaßen angegeben:

$$w(t) = K \frac{I_P^2}{E(t)} \exp \left(-\frac{2}{3} \frac{\sqrt{2I_P^3}}{E(t)} \right) \quad (6.2)$$

Hierbei ist K eine Konstante, welche die jeweilige atomare Struktur beinhaltet, und $E(t)$ das elektrische Feld in atomaren Einheiten. Durch Mittelwertbildung über eine optische Periode erhält man die Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron mit dem Ionisationspotenzial I_P bei der Intensität $I = E_0^2$ in das Kontinuum gelangt.

Bei genügend großer Intensität kann die Barriere aus Abb. 6.1 so weit abgesenkt werden, dass der Zustand des Elektrons quasi frei ist. Das Elektron

ist für eine gewisse Zeit nicht mehr an das Atom gebunden und kann sich aus dem Atompotenzial heraus bewegen. In diesem Fall wird der Ionisationsmechanismus mit dem englischen Begriff *Over the Barrier ionization*, OtB, bezeichnet.

Der Begriff *Feldionisation* beinhaltet beide Mechanismen, also sowohl die Tunnel- als auch die OtB-Ionisation, die beide auf der quasistatischen Näherung beruhen.

Sieht sich das Elektron einer großen Barriere gegenüber, so dass die Tunnelzeit sehr viel größer als die Periodendauer des Laserlichtes ist, wird die Ionisation im Photonenbild erklärt.

6.1.2 Multiphotonionisation

Wie das Wort Multiphotonionisation schon besagt, werden mehrere Photonen (Anzahl n) "gleichzeitig" von einem Elektron im Grundzustand absorbiert. Dabei übersteigt die absorbierte Photonenenergie $n \cdot \hbar\omega$ das Ionisationspotenzial I_P des Atoms. Dieser Vorgang ist in Abb. 6.2 illustriert.

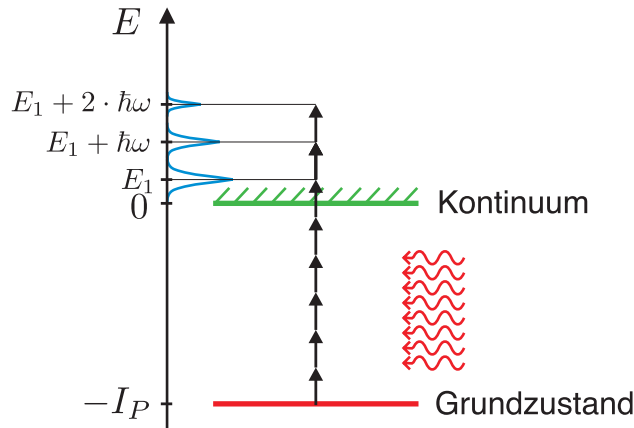


Abbildung 6.2: Veranschaulichung der Multiphotonionisation. Das Elektron im Grundzustand absorbiert n Photonen um das Ionisationspotenzial I_P zu überwinden. Dabei können auch mehr Photonen, als zur Ionisation nötig, absorbiert werden (ATI).

Die Wahrscheinlichkeit, ein Atom in einem n -Photonenprozess zu ionisieren, ist durch folgende Proportionalität gegeben:

$$w(I) \propto I^n \quad (6.3)$$

Diese Abhängigkeit von der Intensität I stellt den bekannten Zusammenhang eines nichtlinearen optischen Prozesses dar.

Bei der Multiphotonionisation können auch mehr als die nötigen n Photonen absorbiert werden. Dies wird mit dem englischen Begriff "Above Threshold Ionisation" (ATI) bezeichnet. Dabei erhält das Elektron die überschüssige Energie als kinetische Energie ($E_{kin} = n\hbar\omega - I_P$). Diese zusätzliche Energie ist im Energiespektrum der Elektronen als Abfolge äquidistanter Linien, wie in Abb. 6.2 angedeutet, sichtbar.

Nachdem ein Elektron durch einen Multiphotonprozess ionisiert wurde, führt es, wie im Fall der Tunnelionisation, eine Oszillationsbewegung aus. Die zeitlich gemittelte Energie dieser Oszillationsbewegung ist proportional zur Intensität und wird als ponderomotives Potenzial U_P bezeichnet.

$$U_P = \frac{I}{4\omega^2} \quad (6.4)$$

Wie bei der Tunnelionisation muss diese Energie zusätzlich aus dem Photonenfeld aufgebracht werden, so dass sich das Ionisationspotenzial während eines Laserpulses erhöht ($I_P^* = I_P + U_P$) [Mul83].

Dies kann auch als AC-Stark Verschiebung des Kontinuums als Funktion der Intensität, wie in Abb. 6.3 dargestellt, angesehen werden. Demzufolge haben die ATI-Maxima eine kompliziertere Struktur, sowohl was ihre spektrale Form als auch die relative Höhe zueinander angeht, wie es in Abb. 6.2 angedeutet ist. Das erste Maximum mit der Energie E_1 ist so häufig stark unterdrückt, da die Anzahl n der absorbierten Photonen im Verlauf eines Pulses ab einer Intensität von I_{E_1} nicht mehr für die Ionisation ausreichen (siehe Abb. 6.3).

Die Verteilung der ATI-Maxima gewinnt durch resonante Ionisationsprozesse zusätzlich an Komplexität. Neben dem Ionisationspotenzial erfahren auch hoch angeregte Zustände (Rydberg-Zustände) eine AC-Stark Verschiebung, welche einem komplizierteren Zusammenhang folgen, im Allgemeinen jedoch mit wachsender Bindungsenergie abnimmt.

Da sich die Intensität während eines Laserpulses räumlich und zeitlich kontinuierlich ändert, tritt jeder Wert zwischen null und der Maximalintensität auf. Nun verschiebt sich auch die Energie E_A^* eines hochangeregten Zustandes, so dass dieser Zustand bei einer gewissen Intensität (I_{res}) resonant bevölkert werden kann. Dabei ist die Energie E_A^* gerade ein ganzzahliges Vielfache der Photonenenergie $\hbar\omega$. Tritt Resonanz auf, so ist die Anregung zunächst wesentlich wahrscheinlicher als die Ionisation, unter anderem auch deswegen, weil weniger Photonen benötigt werden. Der resonant angeregte Zustand kann nun durch Absorption eines oder mehrerer Photonen mit hoher Wahrscheinlichkeit ionisiert werden, was zu dem in Abb. 6.3 veranschaulichten Verhalten führt: Das entsprechende ATI-Maximum wird überhöht. Je nach atomarer Struktur und zeitlichen Pulsverlauf ergeben sich so im All-

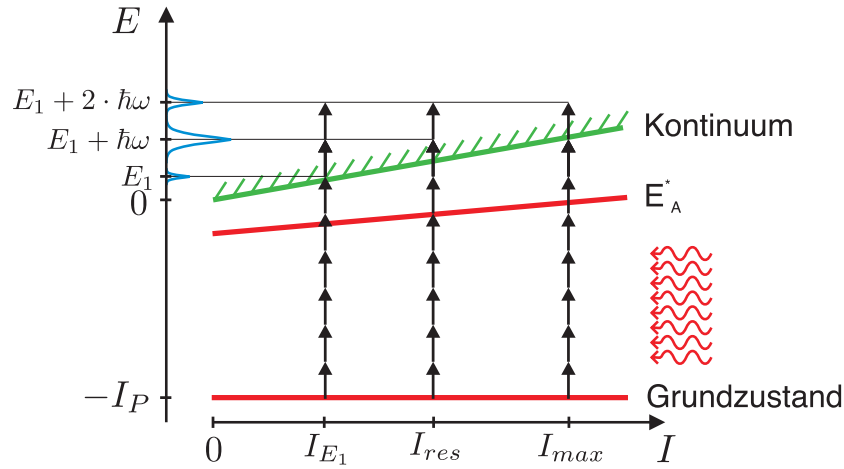


Abbildung 6.3: Veranschaulichung der AC-Stark-Verschiebung. Eine Ionisation die zur Energie E_1 führt, findet ab einer Intensität I_{E_1} nicht mehr statt. Das ATI-Maximum $E_1 + \hbar \omega$ entsteht bei I_{res} durch einen resonanten Prozess und ist somit stärker ausgeprägt als das ATI-Maximum $E_1 + 2\hbar \omega$ bei I_{max} .

gemeinen sehr komplexe Spektren für die Einfachionisation, die insbesondere auch im Übergangsbereich zwischen Tunnel- und Multiphotonionisation bis heute Gegenstand intensiver Forschung sind. Überraschenderweise weisen in jüngster Zeit mit einem Reaktionsmikroskop erhaltene, hochpräzise, vollständig differenzielle Daten selbst im Tunnelbereich Strukturen auf, die bis heute nicht vollständig verstanden sind [Rud04].

6.2 Doppelionisation

Wie bei der Einfachionisation gibt es auch bei der Doppelionisation zwei unterschiedliche Intensitätsbereiche, in denen sich die jeweiligen dominanten Mechanismen, die zur Ionisation führen, grundlegend voneinander unterscheiden.

Die *sequenzielle* Doppelionisation findet bei hohen Intensitäten statt. Dabei werden die Elektronen in zwei voneinander unabhängigen Prozessen "nacheinander" aus dem Atom entfernt. Die Ionisationsrate in diesem Bereich ist, wie bei der einfachen Tunnelionisation Gl.(6.2), sehr gut durch die ADK-Theorie (durchgezogene Linie in Abb. 1.2) beschrieben. Dieses Regime der sequenziellen Doppelionisation wird für Helium ab einer Intensität von etwa $3 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ erreicht. Wie bei der Einfachionisation kommt es bei höheren Intensitäten zur OtB-Ionisation.

Der sequenziellen Doppelionisation schliesst sich zu kleineren Intensitäten hin der Bereich der *nicht-sequenziellen* Doppelionisation an ($I < 3 \cdot 10^{15}$ W/cm² in Abb. 1.2). Diese zeichnet sich durch eine Art von Plateau der Ionisationsrate vor dem Übergang zur sequenziellen Doppelionisation aus ($1 \cdot 10^{15}$ W/cm² $< I < 3 \cdot 10^{15}$ W/cm² in Abb. 1.2), welches Ausdruck einer stark erhöhten Ionisationsrate ist, die so zunächst nicht erwartet und mehr als 10 Jahre intensiv und kontrovers diskutiert wurde. Der Begriff "nicht-sequenziell" rührt aus den ersten Erklärungsversuchen dieser erhöhten Rate her, die ein korreliertes Verhalten der Elektronen annahmen und damit ein gleichzeitiges Verlassen der beiden Elektronen aus dem Atom vorhersagt.

Aus der Vielzahl der Rechnungen und Mechanismen im Sinne einer Vielteilchen-Störungstheorie, welche zur korrelierten Emission von zwei oder mehreren Elektronen führen können, sollen im Folgenden kurz diejenigen skizziert werden, welche sich einfach darstellen, die man als dominant erwartete und somit in der Literatur auch vornehmlich diskutiert wurden.

Kollektives Tunneln

Bei dem Modell des kollektiven Tunnelns wird davon ausgegangen, dass zwei gebundene Elektronen gleichzeitig durch die ihnen gestellte Barriere aus Abb. 6.1 tunneln. Die Wahrscheinlichkeit dieses Prozesses wird mit einer modifizierten ADK-Theorie beschrieben. Dieses Modell ist in der Lage, die Form der Überhöhung für eine Vielzahl von verschiedenen Atomen korrekt wiederzugeben [Eic00].

"Abschütteln" des zweiten Elektrons (shake off)

Als weiterer Erklärungsversuch wurde das Abschütteln (engl. shake off) des zweiten Elektrons ausführlich diskutiert. Wird das erste Elektron aus dem Atompotenzial "sehr schnell" entfernt (sudden approximation), so ist die Wellenfunktion des verbleibenden Elektrons nicht "auf die neue Situation angepasst". Mathematisch ist sie keine Eigenfunktion des entstandenen Ions und besitzt so einen Überlapp mit dem Kontinuum, welcher die Wahrscheinlichkeit dafür beschreibt, dass beide Elektronen praktisch zeitgleich ionisiert werden.

Die Voraussetzung für die Gültigkeit der hier gemachten Näherung und damit für einen signifikanten Beitrag dieses Prozesses, ist das schnelle Entfernen des ersten Elektrons aus dem Atom. Idealerweise wird dies bei der Ionisation durch einzelne Photonen von mehr als 500 eV erreicht und wurde dort anhand seiner kinematische Signatur eindeutig identifiziert. Rechnungen zeigen, dass solche Verhältnisse bei der Ionisation in Laserfeldern im Allge-

meinen nicht gegeben sind, so dass das Abschütteln des zweiten Elektrons als Ursache für die erhöhte Ionisationsrate der nicht-sequenziellen Doppelionisation als unwahrscheinlich erscheint [Bec02].

Rekollision

Die heutzutage gängige Erklärung für die erhöhte nicht-sequenzielle Doppelionisation ist der, schon zuvor angeklungene, Prozess der Rekollision. Dabei werden die beiden Elektronen nicht gleichzeitig aus dem Atom gelöst, womit dieser Mechanismus streng genommen als "sequenziell" zu bezeichnen wäre. Allerdings spielt, wie auch schon bei den zuvor genannten Mechanismen und im Gegensatz zur sequenziellen Doppelionisation, die Wechselwirkung zwischen beiden Elektronen die entscheidende Rolle. Dieser Umstand motiviert die weitere Verwendung des Begriffs der nicht-sequenziellen Doppelionisation, im Sinne eines Prozesses, in dem die Elektronenkorrelation grundlegend ist.

6.2.1 Rekollisionsmechanismus

Ausgangspunkt einer Doppelionisation durch den Rekollisionsmechanismus ist eine Tunnelionisation des Atoms zum Zeitpunkt t_0 . Nach dem Tunnelvorgang sind die Ionisationsfragmente der elektrischen Kraft, die durch das elektrische Feld der Laserstrahlung verursacht wird, ausgesetzt (bei den hier diskutierten Feldstärken wird die magnetische Komponente des Feldes in sehr guter Näherung vernachlässigt). Elektron und Ion werden in Richtung der Laserpolarisation alternierend hin und her beschleunigt, wobei sie eine Periodendauer nach dem Ionisationszeitpunkt t_0 wieder in Ruhe sind. Die Ortsänderung sowie die kinetische Energie des Ions sind auf Grund seiner um mehrere Größenordnungen größeren Masse im Vergleich zum Elektron zu vernachlässigen. Deshalb wird im Folgenden nur das Elektron betrachtet.

Die Trajektorie des Elektrons nach der Tunnelionisation hängt dabei vom Zeitpunkt des Tunnelvorgangs t_0 ab. Betrachtet man ein Elektron in einem Laserfeld, dessen Einhüllende quasistatisch ist ($E(t) = E_0 \sin \omega t$), so ergibt sich für dessen Beschleunigung in atomaren Einheiten:

$$\frac{d^2 z}{dt^2} = -E_0 \sin \omega t \quad (6.5)$$

Das Elektron bewegt sich aus klassischer Sicht und bei vernachlässigbar kleinem Anfangsimpuls nach dem Tunneln nur entlang der Polarisationsrichtung z . Quantenmechanisch dehnt sich das Wellenpaket auch in x - und y -Richtung

6.2 Doppelionisation

aus. Diese Dispersion des Wellenpaketes ist für die Berechnung der Wahrscheinlichkeit des Rekollisionsprozesses von Bedeutung, wird hier jedoch nicht weiter betrachtet. Die quasistatische Behandlung der Einhüllenden des elektrischen Feldes ist dabei nur gerechtfertigt, wenn die Pulsdauer der Laserpulse sehr viel größer als die Periodendauer des elektrischen Feldes ist.

Durch zweimalige Integration von Gl. (6.5) erhält man für den Ort des Elektrons in Abhängigkeit von t :

$$z(t) = \frac{E_0}{\omega} \left(\frac{1}{\omega} \sin \omega t - t \cos \omega t_0 - \frac{1}{\omega} \sin \omega t_0 + t_0 \cos \omega t_0 \right) \quad (6.6)$$

Der erste Term aus Gl. (6.6) beschreibt die Oszillationsbewegung des Elektrons im Laserfeld, der zweite eine Driftbewegung, die von dem Zeitpunkt t_0 abhängt.

In Abb. 6.4 sind die Elektronentrajektorien für fünf verschiedene Zeitpunkte t_0 der Tunnelionisation dargestellt. Hier werden nur Zeitpunkte innerhalb des ersten Halbzyklus des elektrischen Feldes betrachtet ($0 < \omega t < \pi$); dieses ist in Abb. 6.4 als schwarze Kurve dargestellt. Nach diesem Zeitintervall ist das elektrische Feld gestrichelt dargestellt. Im zweiten Halbzyklus ändert sich lediglich das Vorzeichen, die Trajektorien sind dann an der t -Achse gespiegelt.

Wird das Elektron im Grenzfall (die Tunnelwahrscheinlichkeit ist hier gleich null) beim Nulldurchgang des elektrischen Feldes ionisiert, so erhält es einen maximalen Driftimpuls (blaue und violette Kurve). Dabei ergibt sich die Richtung des Driftimpulses aus dem Vorzeichen der Ableitung des elektrischen Feldes zum Ionisationszeitpunkt t_0 .

Findet die Ionisation hingegen zum Zeitpunkt maximaler Feldstärke statt ($t_0 = \pi/2\omega$), so erlangt das Elektron keinen Driftimpuls (rote Trajektorie). Es kehrt jedoch wiederholt an den Ort der Ionisation, und damit zu seinem ionisierten Ursprungsatom (Mutterion), zurück.

Die hellblaue und grüne Kurve in Abb. 6.4 beschreiben Trajektorien von Elektronen, die kurz vor und nach dem Erreichen der maximalen elektrischen Feldstärke ionisiert werden. Im Gegensatz zur hellblauen Trajektorie kehrt das Elektron auf der grünen wie auch auf der roten Trajektorie zum Ort der Ionisation zurück. Der Zeitpunkt t_r dieser Rückkehr ergibt sich mit der Bedingung $z(t_r) = 0$, $t_r > t_0$ aus Gl. (6.6). Er lässt sich nur im Fall der roten Trajektorie ($t_0 = \pi/2\omega$) analytisch angeben ($t_r = t_0 + n \cdot 2\pi/\omega$, $n = 1, 2, 3, \dots$).

Alle möglichen Trajektorien zwischen der roten und violetten kehren mindestens einmal zum Ursprung zurück, wobei die Steigung der jeweiligen Kurve bei $z = 0$ gerade die Geschwindigkeit zum Rückkehrzeitpunkt ergibt. Diese

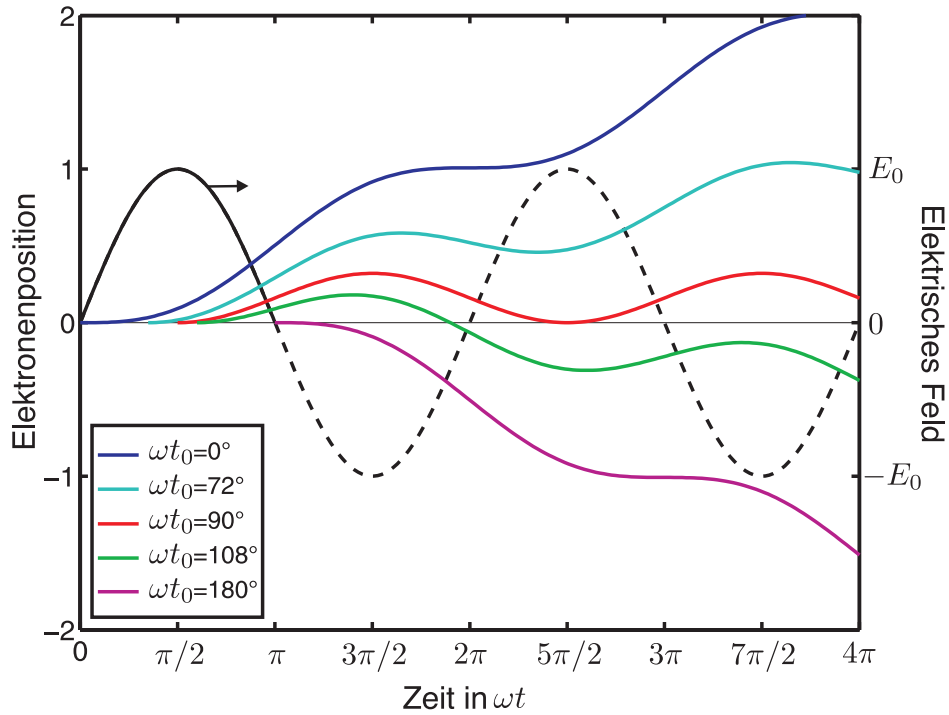


Abbildung 6.4: Schwarz: elektrisches Feld. Farbige Kurven: Trajektorien von Elektronen, die durch Tunnelionisation zum Zeitpunkt t_0 entstehen.

besitzt ein Maximum für den Zeitpunkt der Tunnelionisation von $t_0 = 108^\circ/\omega$ (grüne Trajektorie). Da sich das Elektron und das Mutterion zu diesem Zeitpunkt am selben Ort befinden und eine entgegengesetzte Geschwindigkeit aufweisen, kann es unter anderem zur Stoßionisation kommen. Das Atom wird dann durch den Rekollisionsmechanismus doppelionisiert.

Zu diesem Zeitpunkt weist das elektrische Feld einen im Vergleich zum Maximalwert E_0 kleinen, negativen Wert auf (siehe Abb. 6.4). Dieser sorgt nun dafür, dass der Driftimpuls des nun zweifach geladenen Ions sehr groß wird. Findet die initiiierende Einfachionisation bei negativem Vorzeichen des elektrischen Feldes eine halbe Periodendauer später statt, so hat das elektrische Feld zum Zeitpunkt der Rekollision eine negative Steigung. Das Ion erhält den gleichen, großen Driftimpuls wie zuvor, nun jedoch in die entgegengesetzte Richtung.

Dieser Umstand lässt bei Dominanz des Rekollisionsprozesses zur Erzeugung doppelt geladener Ionen eine "Doppelhöcker-Struktur" der Impulsverteilung der zweifach geladenen Ionen in Polarisationsrichtung vermuten. Die beiden Maxima der Driftimpulsverteilung entstehen dabei durch Stoßionisa-

tion, die zu den entsprechenden Rekollisionszeitpunkten t_r mit großer Wahrscheinlichkeit stattfindet. Diese Doppelhöcker-Struktur wurde in vielen Experimenten bestätigt, wodurch der Rekollisionsmechanismus als Ursache für die nicht-sequenzielle Doppelionisation im entsprechenden Intensitätsbereich etabliert ist [Ull03]. Alle anderen, zuvor diskutierten Mechanismen, einschliesslich der sequenziellen Doppelionisation führen zu einer Impulsverteilung der Ionen in z-Richtung mit nur einem zentralen Maximum bei $p_z = 0$. Dies entsprechend der Tatsache, dass in diesen Prozessen sowohl die Einfach- als auch die Doppelionisation mit großer Wahrscheinlichkeit zu einem Zeitpunkt stattfinden zu dem das elektrische Feld maximal ist.

6.3 Schwelle der Doppelionisation durch Rekollision

Findet die Tunnelionisation, die zur Einfachionisation führt, im Zeitintervall $\pi/2\omega \leq t_0 < \pi/\omega$ statt, treffen sich wie schon gesagt das Elektron und das Mutterion zu einem späteren Zeitpunkt mindestens einmal wieder. Im Folgenden wird vereinfacht nur der Rekollisionszeitpunkt t_r des ersten Zusammentreffens betrachtet. Eine Wechselwirkung zwischen Elektron und Ion zu einem späteren Zeitpunkt ist nicht ausgeschlossen, wegen der Dispersion der Wellenfunktion des Elektrons, jedoch zumindest signifikant unwahrscheinlicher.

Die Geschwindigkeit in Abhängigkeit von der Zeit eines zum Zeitpunkt t_0 ionisierten Elektrons erhält man durch Integration von Gl. (6.5). Daraus ergibt sich die kinetische Energie zu:

$$E_{kin}(t) = \frac{1}{2} \left(\frac{E_0}{\omega} (\cos \omega t - \cos \omega t_0) \right)^2 \quad (6.7)$$

Das Mittel über eine Periodendauer dieser kinetischen Energie ist die mittlere Energie der Oszillationsbewegung eines Elektrons im Laserfeld. Sie entspricht dem, in Gl. (6.4) eingeführten, ponderomotiven Potenzial.

Die kinetische Energie des Elektrons zum Rekollisionszeitpunkt ist somit in dieser klassischen Näherung eindeutig festgelegt:

$$E_{kin}(t_r) = E_{kin,r} = 2U_P(\cos \omega t_r - \cos \omega t_0)^2 \quad (6.8)$$

Sie ist proportional zur Laserintensität I .

Somit ergibt sich nun eine untere Grenze für die Intensität, bei der Doppelionisation durch Rekollision mit den hier gemachten Näherungen nicht mehr stattfinden kann. Sie ergibt sich aus der Forderung, dass die kinetische

Energie zum Zeitpunkt der Rekollision $E_{min,r}$ größer als das Ionisationspotenzial I_P des Ions sein muss. Zu berücksichtigen ist dabei jedoch, dass das elektrische Feld zum Rekollisionszeitpunkt t_r einen Wert ungleich null aufweisen kann. Dieser Umstand senkt das Ionisationspotenzial des Ions auf den Wert I_P^* ab [Har00].

Betrachtet man das durch das elektrische Feld $E(t_r)$ verzerrte Coulombpotenzial ($V(r) = -Z/|r| - E(t_r) \cdot r$) aus Abb. 6.1, so erhält man den Sattelpunkt (die Höhe der Tunnelbarriere) nach einfacher Rechnung:

$$V_s = -2\sqrt{Z|E(t_r)|} = -2\sqrt{ZE_0|\sin \omega t_r|} \quad (6.9)$$

Dabei ist Z der Ladungszustand des Ionenrumpfes, welcher das Elektron, das durch Rekollision freigesetzt wird, bindet. Durch die Einführung eines effektiven Z können Abschirmungseffekte benachbarter Elektronen näherungsweise berücksichtigt werden, sind jedoch hier vernachlässigt. Im Folgenden wird Z somit immer gleich zwei gesetzt.

Das reduzierte Ionisationspotenzial I_P^* ist somit wie die kinetische Energie des Elektrons $E_{kin,r}$ abhängig vom Rekollisionszeitpunkt.

$$I_P^* = I_P + V_s = I_P - 2\sqrt{2E_0|\sin \omega t_r|} \quad (6.10)$$

Ist das elektrische Feld zum Rekollisionszeitpunkt gleich null ($t_r = 2\pi/\omega$), so ist das effektive Ionisationspotenzial I_P^* gleich dem ungestörten Ionisationspotenzial I_P .

In Abb. 6.5 ist die kinetische Energie des Elektrons zum Rekollisionszeitpunkt $E_{kin,r}$ aus Gl. (6.8) für eine Intensität von $2,7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ in blau dargestellt. Dabei ist $E_{kin,r}$ zu allen Rekollisionszeiten t_r kleiner als das Ionisationspotenzial von Helium (54,4 eV). Das effektive Ionisierungspotenzial I_P^* , in rot dargestellt, unterschreitet hingegen für ein gewisses Zeitintervall $E_{kin,r}$. In diesem Zeitintervall ist die direkte Stoßionisation möglich.

Betrachtet man die Situation bei einer geringeren Intensität, so verringert sich $E_{kin,r}$ proportional zur Intensität. I_P^* steigt hingegen für alle Zeitpunkte, an denen das elektrische Feld ungleich null ist, an.

Aus dem effektiven Ionisationspotenzial und der kinetischen Energie zum Rekollisionszeitpunkt lässt sich somit eine Intensitätsschwelle für die nicht-sequenzielle Doppelionisation durch Rekollision definieren. Dabei ist $E_{kin,r}$ für einen gewissen Rekollisionszeitpunkt gerade gleich I_P^* . Für alle anderen Rekollisionszeitpunkte ist $E_{kin,r}$ kleiner als I_P^* und die Stoßionisation somit durch einen reinen Elektronen-Stoßionisationsprozess nicht möglich. In Tabelle 6.1 sind diese Intensitätsschwellen $I_{Schwelle}$ für verschiedene Edelgase zusammengefasst.

6.3 Schwelle der Doppelionisation durch Rekollision

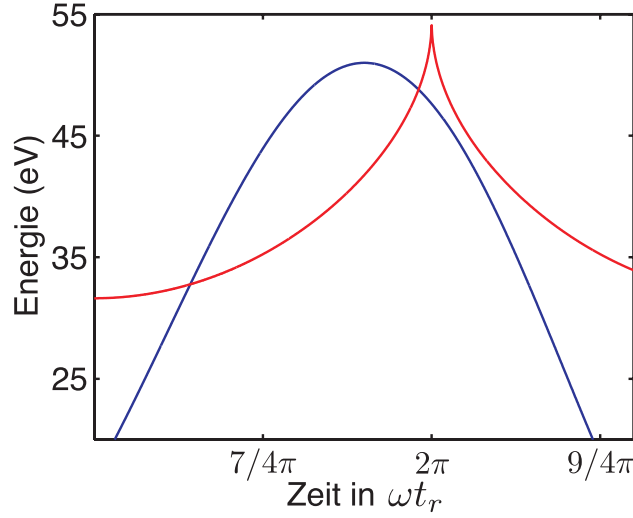


Abbildung 6.5: Blau: kinetische Energie des Elektrons bei der Rekollision bei einer Intensität von $2,7 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Rot: effektives Ionisationspotential I_P^* für Helium ($I_P = 54,4 \text{ eV}$).

Eine Einschränkung dieses Modells ist unter anderem im Hinblick auf die Anwendbarkeit der Tunnelionisation für die initiale Einfachionisation gegeben. In Tabelle 6.1 ist aus diesem Grund der Keldysh-Parameter γ aus Gl. (6.1) für die jeweilige Schwellintensität mit angegeben. Er berechnen sich mit dem ponderomotiven Potenzial aus Gl. (6.4) an der Schwelle $U_P(I_{\text{Schwelle}})$ folgendermassen [Pop04]:

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}} \quad (6.11)$$

Der Keldysh-Parameter an der hier definierten nicht-sequenziellen Doppelionisationsschwelle hat für alle Edelgase einen Wert nahe eins. Er nimmt mit größer werdender atomaren Masse zu. Die initiale Einfachionisation findet also zwischen den beiden Regimen der Tunnel- und Multiphotonionisation statt. Die berechneten Schwellintensitäten sollten daher lediglich als Abschätzung für eine spätere Messung verstanden werden.

Ein Blick auf Abb. 1.2 zeigt obwohl nur wenige Datenpunkte im relevanten Bereich gemessen wurde, dass keinerlei Schwellverhalten in der Doppelionisationsrate bei der hier abgeschätzten Intensität zu beobachten ist. Auch in allen anderen Messungen, die bisher durchgeführt wurden, war eine solche Schwelle nicht zu finden.

Edelgas	I_P in eV	$I_{Schwelle}$ in TW/cm ²	γ
Helium	54,42	213,7	0,98
Neon	40,96	146,8	1,11
Argon	27,63	82,1	1,27
Krypton	24,36	66,7	1,33
Xenon	20,98	51,0	1,41

Tabelle 6.1: Theoretische Schwellenwerte der nicht-sequenzielle Doppelionisation für direkte Doppelionisation bei Rekollision. I_P aus [NIS06] entnommen.

6.3.1 Ionisation nach Anregung

Die Betrachtungen zur Intensitätsschwelle der nicht-sequenziellen Doppelionisation durch Rekollision, lassen sich durch Einbeziehung einer Stoßanregung des Mutterions erweitern. Dabei führt der Stoß des Elektrons nicht zur direkten Ionisation, sondern nur zu einer Anregung des Ions. Der angeregte Zustand wird bei allen untersuchten Edelgasen zu einem späteren Zeitpunkt, während sich das elektrische Feld in der Nähe des Maximums befindet, durch OtB-Ionisation entvölkert. Die Lebensdauer des angeregten Zustandes wird dabei größer als die Periodendauer des Laserlichtes angenommen.

Zur Vereinfachung soll hier nur der erste angeregte Zustand des jeweiligen Atoms betrachtet werden. Dieser wird im Allgemeinen durch die AC-Stark-Verschiebung zu etwas höheren Anregungsenergien angehoben, wobei der Effekt klein ist, da das elektrische Feld selbst zum Rekollisionszeitpunkt klein ist. Die AC-Stark-Verschiebung wird deshalb im Folgenden in sehr guter Näherung vernachlässigt. Die sich daraus ergebende Schwellintensität kann als untere Abschätzung verstanden werden.

Das jeweilige Anregungspotenzial A_P ist in der zweiten Spalte in Tabelle 6.2 zu finden. Die daraus berechnete nicht-sequenzielle Doppelionisationsschwelle und der dazugehörige Keldysh-Parameter befinden sich in den folgenden Spalten.

Überraschenderweise sind also bis auf das Edelgas Neon die so berechneten Schwellintensitäten größer als die durch direkte Stoßionisation hervorgerufenen. Der Prozess der Anregung und späteren Feldemission sollte also keinen dominanten Einfluss auf die Schwelle der nicht-sequenziellen durch Rekollision hervorgerufenen Doppelionisation haben.

Sollte die Anregung entgegen der hier gemachten Abschätzung doch eine signifikante Rolle bei Experimenten nahe der nicht-sequenziellen Doppelionisationsschwelle spielen, so sollte sie in der Impulsverteilung der Ionen eindeutig zu erkennen sein. Die Doppelionisation eines angeregten Zustandes

6.3 Schwelle der Doppelionisation durch Rekollision

Edelgas	A_P in eV	$I_{Schwelle,a}$ in TW/cm ²	γ
Helium	40,81 (1s $\rightarrow$ 2s)	216,1	0,98
Neon	27,17 (2p $\rightarrow$ 3s)	143,9	1,12
Argon	16,41 (3p $\rightarrow$ 3d)	86,9	1,23
Krypton	13,99 (4p $\rightarrow$ 5s)	74,1	1,26
Xenon	11,54 (5p $\rightarrow$ 6s)	61,1	1,29

Tabelle 6.2: Theoretische Schwellenwerte der Doppelionisation durch Stoßanregung und darauf folgende Feldemission. A_P aus [NIS06] entnommen.

durch OtB-Ionisation ist nur bei einem elektrischen Feld nahe dem Maximum möglich. Als Konsequenz erhält das doppeltgeladene Ion keinen oder nur einen sehr kleinen Driftimpuls. Die prominente Doppelhöcker-Struktur in der Impulsverteilung entlang der Polarisationsrichtung verschwindet. An ihre Stelle tritt eine symmetrische Verteilung mit einem zentralen Maximum.

Kapitel 7

Aufbau des Reaktionsmikroskops

In diesem Abschnitt wird das Reaktionsmikroskop beschrieben, das speziell für atomphysikalische Experimente unter Anwendung des im ersten Kapitel beschriebenen Lasers aufgebaut wurde. Dabei muss die kleine Spitzenleistung des hier verwendeten Lasers, durch eine stärkere Fokussierung ausgeglichen werden. Die dafür nötigen Veränderungen im Vergleich zu einem "herkömmlichen" Reaktionsmikroskop werden im Folgenden eingehend beschrieben; für eine generelle, ausführliche Beschreibung eines Reaktionsmikroskops sei auf andere Literatur verwiesen [Fis03, Jes04].

7.1 Funktionsweise eines Reaktionsmikroskops

Ausgangspunkt der Untersuchungen in diesem Reaktionsmikroskop ist die Wechselwirkung der Laserstrahlung mit einem einzelnen Atom oder Molekül, welche zu dessen Ionisation führt. Das Reaktionsmikroskop misst dabei die Impulse aller Ionisationsfragmente (Elektronen und Ionen), was eine vollständige Bestimmung der Kinematik des Prozesses gestattet. Um die Ionisationsprodukte nachzuweisen, werden diese durch ein schwaches, statisches elektrisches Feld (Abzugsfeld) auf Detektoren gelenkt. Diese Detektoren messen sowohl die Position als auch die Zeitdauer zwischen der Ionisation und dem Auftreffen auf den Detektor (Flugzeit). Aus diesen Messgrößen ergeben sich die Anfangsimpulse, die die Elektronen und Ionen durch den Ionisationsprozess erhalten haben, sowie der Ladungszustand des Ions.

Da die Elektronen im Vergleich zu den Ionen eine sehr viel höhere Anfangsgeschwindigkeit besitzen, wird dem elektrischen Abzugsfeld parallel zu dessen Richtung ein statisches Magnetfeld überlagert. Alle Elektronen, die

eine Geschwindigkeitskomponente senkrecht zu diesem Magnetfeld besitzen, werden auf eine Spiralbahn gezwungen, welche so den effizienten Nachweis der Elektronen mit großem Raumwinkel erlaubt.

Die kinetische Energie, welche die Ionen durch den Ionisationsprozess erhalten, ist sehr viel kleiner als die thermische Energie eines Atoms oder Moleküls bei Zimmertemperatur. Aus diesem Grund muss das Ausgangsatom oder -molekül (Target-Gas) in einem möglichst "kalten" Zustand präpariert werden.

Die Messgenauigkeit des Reaktionsmikroskops ist neben dem Zeit- und Ortsauflösungsvermögen der Detektoren auch durch die Homogenität des elektrischen Abzugsfeldes und des Magnetfeldes bestimmt. Ausserdem ist die Größe des Reaktionsvolumens, in dem die Ionisation stattfindet, sowie die oben erwähnte thermische Anfangsenergie des Target-Gases für die Messgenauigkeit entscheidend.

Die Messung findet im Ultrahoch-Vakuum statt ($< 10^{-9}$ mbar), womit sichergestellt ist, dass weder die Elektronen noch die Ionen auf ihrem Weg zu den Detektoren durch Stöße mit anderen Atomen oder Molekülen beeinflusst werden. Vor allem aber ist ein geringer Druck wünschenswert, da auch Atome und Moleküle aus dem Restgas ionisiert werden, wodurch ein unzulässig hoher Untergrundbeitrag entsteht.

Bei Ionisationsexperimenten in intensiven Laserfeldern werden ultrakurze Laserpulse in einem Reaktionsmikroskop mit Hilfe eines Spiegels fokussiert. Der Fokus befindet sich innerhalb eines kalten Überschall-Gasjets, der senkrecht zum Laserstrahl verläuft. Abb. 7.1 zeigt eine schematische Skizze eines solchen Aufbaus. Dabei wird das Magnetfeld, das die Elektronen auf eine Spiralbahn zwingt, durch zwei Helmholtzspulen erzeugt. Die Elektroden des Spektrometers, die das elektrische Abzugsfeld erzeugen, sind aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt. Das elektrische Abzugsfeld, der Laserstrahl und der Gasjet weisen jeweils in eine der drei orthogonalen Raumrichtungen.

7.2 Gasjet

In Abb. 7.2 ist die Realisierung des Überschall-Gasjets für das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaute Reaktionsmikroskop dargestellt. Das Target-Gas strömt durch eine sehr kleine Expansionsdüse (Durchmesser $30\text{ }\mu\text{m}$) in die evakuierte Expansionskammer. Die Druckdifferenz vor und nach der Expansionsdüse (1 bar vor der Düse, 10^{-3} mbar nachher) sorgt für eine adiabatische Expansion des Target-Gases, wobei die thermische Energie der Atome in gerichtete kinetische Energie umgewandelt wird. Die Vakuumbedingungen in

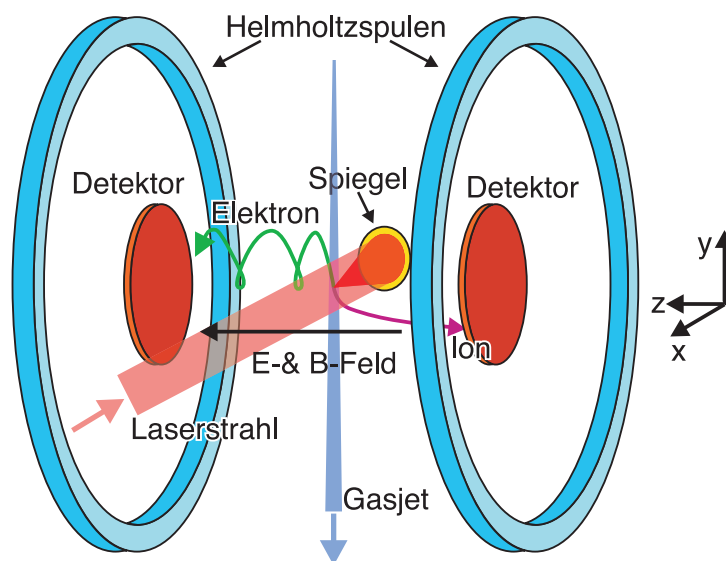


Abbildung 7.1: Skizze eines Reaktionsmikroskops für Ionisationsexperimente in intensiven Laserfeldern.

der Expansionskammer bewirken die Ausbildung einer sogenannten "zone of silence" vor der Expansionsdüse, in der keine Stöße zwischen den Target-Atomen oder Molekülen stattfinden. Aus diesem Bereich wird mit Hilfe des oberen Skimmers, ein Hohlkegel mit einem $200\text{ }\mu\text{m}$ großen Loch in der Spitze, ein kleiner Teil des Gas-Strahls herausgeschnitten, der dann in die differenzielle Pumpkammer geleitet wird. Durch einen weiteren Skimmer mit einer $400\text{ }\mu\text{m}$ großen Öffnung gelangt der Gas-Strahl ungestört in die Hauptkammer. Die differenzielle Pumpkammer verringert den Eintrag von "warmen" Atomen aus der Expansionskammer in die Hauptkammer. Die so präparierten Target Atome und Moleküle sind in einem ausreichend kalten Zustand. Für weitere Details sei auf [Mil88] verwiesen.

Der Gasjet wird am Ende der Hauptkammer in eine separate Kammer, den sogenannten Sumpf, geführt, in dem er in einer extra angebrachten Turbopumpe vernichtet wird.

In diesem Reaktionsmikroskop wird ein im Vergleich zu anderen Experimenten ein sehr kleiner Laserfokus von c.a. $1\text{ }\mu\text{m}$ erzeugt (siehe Abschnitt 5). Damit sich eine ausreichend hohe Ionisationsrate pro Laserpuls bei einem wesentlich kleineren Reaktionsvolumen einstellt, muss die Targetdichte erhöht werden. Dies kann im Wesentlichen nur durch eine Verringerung des Abstandes zwischen Expansionsdüse und Reaktionsvolumen erreicht werden. Der Abstand beträgt ca. 113 mm und ist unter Berücksichtigung des noch zu

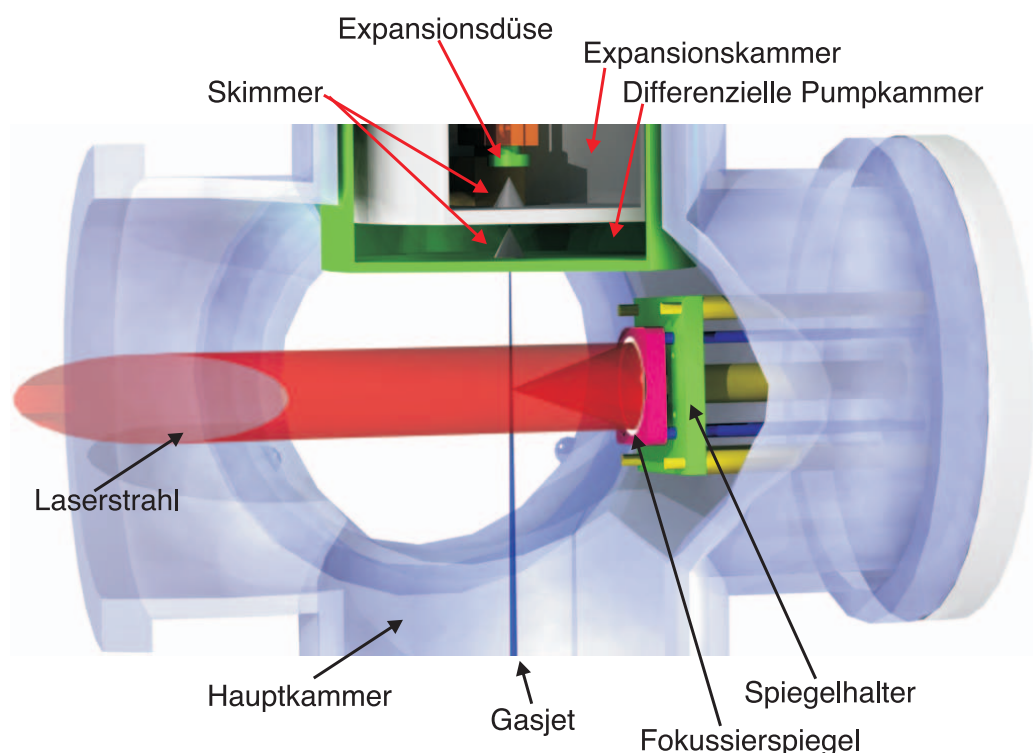


Abbildung 7.2: Skizze des Gasjets, in den der Laserstrahl fokussiert wird.

beschreibenden Spektrometers so gering wie möglich gewählt.

Neben diesen Anforderungen die ein kleines Reaktionsvolumens an die Dichte des Gasjets stellt, resultiert andererseits auch einen Vorteil. Die Wahrscheinlichkeit ein Restgasatom zu ionisieren sinkt mit kleiner werdendem Reaktionsvolumen. Die Anforderungen an das Vakuum in der Hauptkammer sind folglich geringer als in anderen Experimenten mit intensiven Lasern.

7.3 Fokussierung innerhalb des Reaktionsmikroskops

Zur Fokussierung der Laserstrahlung kommt der in Abschnitt 5 beschriebene Parabolspiegel zum Einsatz. Eine dielektrische Beschichtung des Spiegels garantiert zwar eine hohe Reflektivität, sie kann sich jedoch z.B. durch Elektronenbeschuss statisch aufladen und würde so zu starken Verzerrungen des elektrischen Abzugfeldes führen. Aus diesem Grund kommt nur eine elektrisch leitende, metallische Spiegelbeschichtung ohne dielektrische Schutz-

7.3 Fokussierung innerhalb des Reaktionsmikroskops

schicht in Frage. Die Goldbeschichtung des Spiegels besitzt bei einer Laserlichtwellenlänge von 800 nm eine hohe Reflektivität. Zudem ist Gold weitgehend chemisch inaktiv und oxidiert nicht an der Umgebungsluft.

Eine metallische Spiegeloberfläche stellt eine elektrische Äquipotentialfläche dar, d.h. das elektrische Feld parallel zur Spiegeloberfläche ist nahe der Spiegeloberfläche gleich null. Um das elektrische Abzugsfeld nicht zu stören ist ein möglichst großer Abstand zwischen der Spiegeloberfläche und dem Reaktionsvolumen einzuhalten. Auf der anderen Seite erzeugt eine kurze Brennweite des Spiegels einen kleineren Fokus (siehe Abschnitt 5). Die Brennweite des eingesetzten Parabolspiegels beträgt 50 mm und reicht somit sehr nahe an das Reaktionsvolumen heran.

Um dennoch ein homogenes elektrisches Abzugsfeld zu gewährleisten ist die Goldoberfläche des Spiegels segmentiert. Die drei elektrisch voneinander getrennten Segmente des Spiegels dienen somit als zusätzliche Elektroden des Spektrometers, dessen Design im folgenden Abschnitt 7.4 behandelt wird.

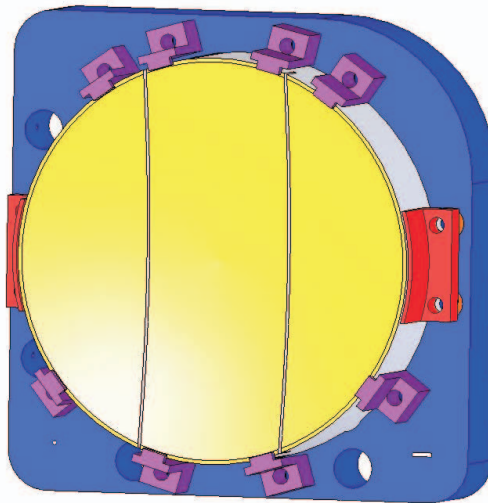


Abbildung 7.3: Skizze der Spiegelhalterung des Fokussierspiegels

In Abb. 7.3 ist die mechanische Halterung des Spiegels skizziert. Die segmentierte Goldoberfläche des Spiegels ist als gelbe Fläche dargestellt. Der Spiegel ist in eine Trägerplatte, sie ist blau dargestellt, eingelassen. Die Trägerplatte besitzt alle nötigen Bohrungen und Vertiefungsformen, um die

Position des Spiegels samt Trägerplatte von aussen mittels dreier Stempel justieren zu können.

Der Spiegel wird durch acht, in Abb. 7.3 violett dargestellte, Klammern in die Vertiefung der Trägerplatte gedrückt. Die Klammern liegen mit einem kleinen Steg an der seitlichen Fasse des Spiegel auf. Die metallischen Klammern dienen gleichzeitig der elektrischen Kontaktierung der Spiegeloberfläche. Jedes Segment des Spiegels ist dabei mit mindestens zwei Klammern befestigt. Diese Redundanz soll die elektrische Kontaktierung sicherstellen, die später von aussen nicht überprüfbar ist.

Zusätzlich zu den drei Spiegelsegmenten sind zwei Elektroden links und rechts des Spiegels (in Abb. 7.3 rot eingezeichnet) auf der Trägerplatte angebracht. Sie dienen wie die Spiegelsegmente zur Optimierung des elektrischen Abzugfeldes.

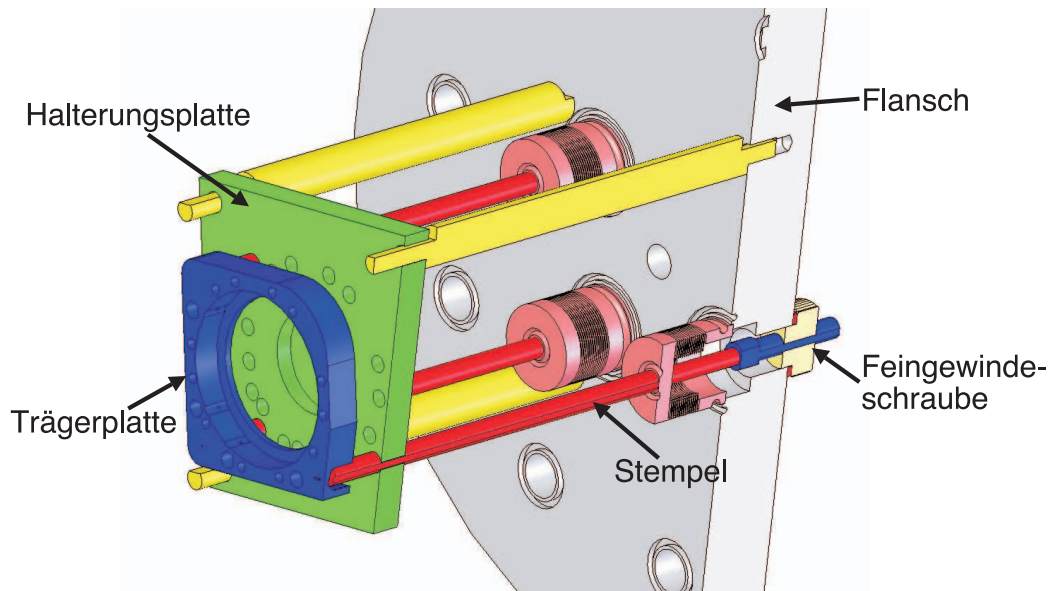


Abbildung 7.4: Schnittansichtsskizze der gesamten Spiegelhalterung.

In Abb. 7.4 ist die gesamte Aufhängung der Trägerplatte ohne Spiegel in einer Schnittansicht skizziert. In den grau dargestellten Flansch sind drei Lineardurchführungen eingelassen, deren Länge jeweils mit einer Feingewindeschraube eingestellt werden kann. An den daran befestigten rot dargestellten Stempeln ist die Trägerplatte aufgehängt. Die Stempel werden durch Löcher in der grünen Halterungsplatte geführt. Mit Hilfe der gelb dargestellten Stangen ist die Halterungsplatte ihrerseits am Flansch befestigt. Zwischen der Träger- und Halterungsplatte befinden sich vier Kupfer-Beryllium-Federn

(nicht sichtbar), die die Trägerplatte an die Stempel drücken.

7.4 Aufbau des Spektrometers

Im Spektrometer wird mit Hilfe von ringförmigen Elektroden ein möglichst homogenes elektrisches Abzugsfeld erzeugt, in dessen Mitte sich das Reaktionsvolumen des Laserfokus befindet.

Auf der linken Seite in Abb. 7.5 ist eine Schnittansicht des Spektrometers dargestellt. Es besteht aus 36 einzelnen Elektroden, die in einem Abstand von

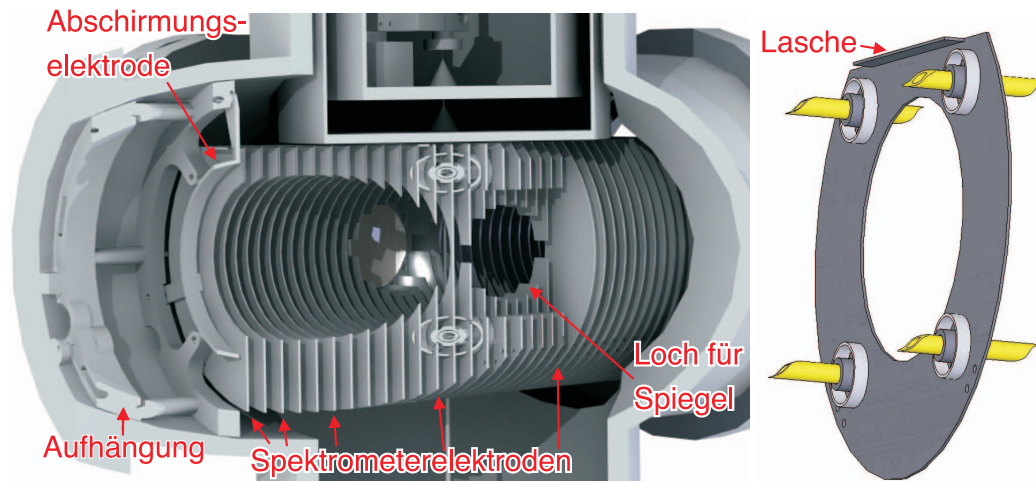


Abbildung 7.5: Links: Schnittansicht des Spektrometers in der Hauptkammer. Rechts: Skizze einer Spektrometerelektrode.

8 mm parallel nebeneinander angeordnet sind. Eine einzelne Spektrometerelektrode ist in Abb. 7.5 auf der rechten Seite dargestellt. Der Durchmesser des Spektrometervolumens von 80 mm ist durch den effektiven Durchmesser der beiden Detektoren vorgegeben, er ist damit etwas kleiner als das 90 mm große Loch in jeder Elektrode. Das Spektrometervolumen wird auf beiden Seiten durch einen Detektor (in Abb. 7.5 nicht dargestellt) begrenzt; seine Gesamtlänge beträgt dadurch 306,4 mm. Unabhängig von den Detektoren ist das Spektrometer an dessen Ende durch eine zylindrische Aufhängung an der Hauptkammer befestigt. Der störende Einfluss der Aufhängung auf das Abzugsfeld wird durch eine Abschirmungselektrode verhindert.

Jede Elektrode besitzt eine senkrecht abgebogene Lasche, die das störende Erdpotenzial der differentiellen Pumpkammer abschirmt. Die Elektroden werden durch vier Keramikrohre fixiert, in denen jeweils eine Gewindestange

geführt wird (siehe Abb. 7.5 rechts). Die Gewindestange dient zur Befestigung an der Aufhängung des Spektrometers.

Der Abstand zwischen den Elektroden wird durch zwei Abstandsröhrchen gewährleistet, von denen eines aus Keramik ist, um die elektrische Isolation zwischen den Elektroden zu gewährleisten. Eine Skizze dieser Anordnung ist in Abb. 7.6 zu sehen. Das Keramikröhrchen wird seinerseits durch ein Alu-

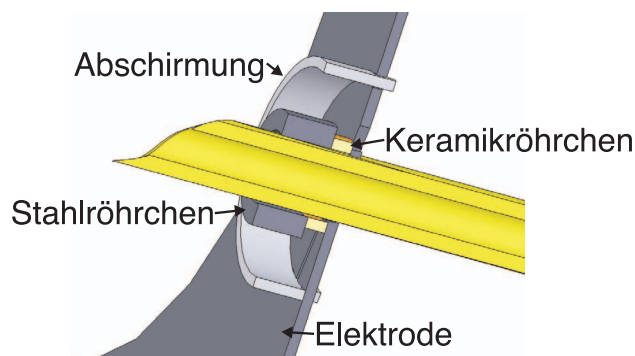


Abbildung 7.6: Schnittansicht der Anordnung der Abstandsröhrchen zwischen den Elektroden.

miniumröhrchen mit größerem Durchmesser vor statischer Aufladung durch geladene Teilchen aus dem Spektrometervolumen geschützt.

Jede Elektrode ist durch einen elektrischen Widerstand von $21\text{ k}\Omega$ mit seiner benachbarten Elektrode verbunden. Wird an den Enden des Spektrometers eine Spannung angelegt, so ergibt sich auf den Elektroden ein linearer Potenzialverlauf.

In der Mitte des Spektrometers ist senkrecht zum elektrischen Abzugsfeld auf beiden Seiten ein Loch angebracht, in das auf der einen Seite der Goldspiegel platziert wird. Auf der anderen Spektrometerseite tritt der Laserstrahl durch dieses Loch, dessen Felddurchgriff durch verlängerte Elektroden minimiert wird. Weitere Aussparungen um das Loch schaffen den Platz für die zuvor beschriebene Spiegelhalterung.

7.4.1 Segmentierung des Goldspiegels

Die Segmentierung des Spiegels wird mit einer Maske realisiert, die während der Goldbeschichtung auf dem Spiegelsubstrat aufliegt. Zwei Stege mit einer Breite von $0,5\text{ mm}$ und 1 mm Höhe unterteilen den Spiegel in drei Segmente. Jeder Steg hat einen Abstand von $0,1\text{--}0,2\text{ mm}$ von der Spiegeloberfläche; seine Form verläuft entlang der Spiegeloberfläche. Eine Skizze der Maske mit ihren Abschattungsstegen ist in Abb. 7.7 zu sehen.

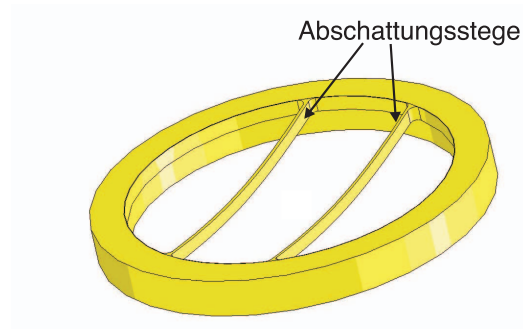


Abbildung 7.7: Skizze der Spiegelmaske, die zur Segmentierung während der Beschichtung auf dem Spiegelsubstrat aufliegt.

Die elektrische Separation der einzelnen Segmente gelang mit dieser Beschichtungstechnik nur unzureichend. Die Segmente wiesen untereinander einen sehr geringen elektrischen Widerstand auf. Dieser wurde mit Hilfe einer scharfen Metallspitze durch Abkratzen der Segmentspalte mechanisch erhöht. Er weist nun einen hinreichenden Wert von ca. $50\ \Omega$ auf. Dieser Umstand hat neben den Vorteil, dass sich die Glasoberfläche des Spiegels zwischen den Goldsegmenten nicht statisch aufladen kann.

7.4.2 Numerische Berechnung des elektrischen Abzugfeldes

Mitentscheidend für die Qualität des Spektrometers ist die Homogenität des elektrischen Abzugfeldes innerhalb des Spektrometervolumens. Besitzt das Spektrometer kleine Öffnungen für den Laserstrahl und sind Äquipotenzialflächen (metallische Gegenstände) weit von diesen Öffnungen entfernt, so kann das Spektrometer als zylindersymmetrischer Körper angenommen werden. Die Berechnung des elektrischen Feldes lässt sich auf ein zweidimensionales Problem reduzieren.

Das oben beschriebene Spektrometer erfüllt diese Voraussetzung jedoch nicht. Um einen kleinen Fokus zu erzeugen, ist der Goldspiegel am Rand des Spektrometervolumens platziert. Die Äquipotenzialfläche der Goldoberfläche bricht die Zylindersymmetrie des Spektrometers. Der Feldverlauf im Spektrometervolumen muss somit dreidimensional berechnet werden.

Der Potenzialverlauf $\varphi(\vec{r})$ im Spektrometer wird durch die Laplace-Gleichung beschrieben.

$$\Delta\varphi(\vec{r}) = 0 \quad (7.1)$$

Dabei ist Δ der Laplace-Operator und $\vec{r}$ der Ortsvektor.

Kennt man zwei Lösungen der Laplace-Gleichung φ_1 und φ_2 für zwei unterschiedliche Randbedingungen, so erhält man den Potenzialverlauf φ_g für eine beliebige Linearkombination der beiden Lösungen als einfacher Superposition der skalierten Einzellösungen [Leh96].

$$\Delta\varphi_g = \Delta(a_1\varphi_1 + a_2\varphi_2) = a_1\Delta\varphi_1 + a_2\Delta\varphi_1 = 0 \quad (7.2)$$

Die Randbedingung für den resultierenden Potenzialverlauf φ_g wird dabei durch dieselbe Linearkombination beschrieben. Dieser Umstand lässt eine einfache und schnelle Berechnung des Gesamtpotenzials φ_g mit geänderten Randbedingungen zu.

Das elektrische Feld $\vec{E}$ ist durch den Gradienten von φ definiert:

$$\vec{E} = -\text{grad}\varphi \quad (7.3)$$

Die Berechnung des Potenzialverlaufs für komplizierte, dreidimensionale Formen lässt sich im Allgemeinen nur numerisch durchführen. Zu diesem Zweck wurde die Geometrie des Spektrometers in das Programm SimIon eingegeben. Das Programm berechnet mit Hilfe einer Finite-Elemente Methode den Potenzialverlauf für jede Elektrode des Spektrometers. Eine Gesamtlösung erhält man später durch die oben beschriebene Linearkombination.

In einem ersten Schritt wurde die Form der Elektroden so optimiert, dass Felddurchgriffe von der Hauptkammerwand und der Wand der differenziellen Pumpkammer, die sich auf Erdpotenzial befinden, vernachlässigbar klein sind.

Für die folgenden Berechnungen wurde an die Elektroden ein linearer Potenzialverlauf angelegt, der am Spektrometer durch einen Spannungsteiler erzeugt wird. Um den Einfluss der Spiegeloberfläche auf das Abzugsfeld möglichst geringen zu halten, ist eine große Anzahl an unterteilten Spiegelsegmenten wünschenswert. Da sich aber die technische Realisierung der Segmentierung des Spiegels schwierig gestaltete, und der nicht vergoldete Streifen zwischen den Segmenten einen zusätzlichen Verlust an Laserlicht bedeutet, wurde die Anzahl der Segmente auf drei beschränkt. Für die Ausgestaltung der Goldoberfläche des Spiegels, ergeben sich zwei Fragestellungen:

- Welche Abmessungen sollen die Spiegelsegmente haben?
- Welche Spannung muss an das jeweilige Spiegelsegment angelegt werden?

Um nicht für jede mögliche Unterteilung der Spiegeloberfläche in die drei Spiegelelektroden SE_1 , SE_2 und SE_3 eine neue Berechnung durchführen zu

7.4 Aufbau des Spektrometers

müssen, wird der Spiegel in mehr als drei Spiegelelektroden unterteilt. Hierfür fügt man zwischen den jeweiligen Spiegelelektroden mehrere kleine Elektroden ein. Dies ist in Abb. 7.8 veranschaulicht, wo zwischen der Spiegelelektrode SE_1 und SE_2 die Elektroden El_1 bis El_4 eingefügt sind. Das gleiche geschieht auf der linken Spiegelseite, dort sind die Elektroden El_5 bis El_8 zwischen der Spiegelelektrode SE_1 und SE_3 platziert.

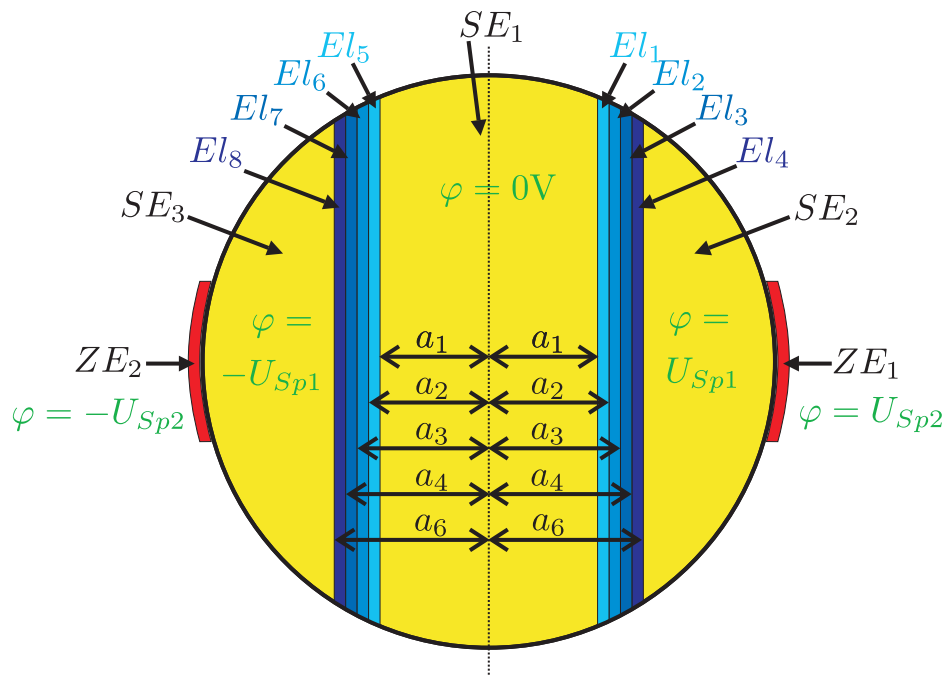


Abbildung 7.8: Skizze der Spiegelelektroden. Für die Bestimmung des optimalen Abstands zwischen den Spiegelelektroden SE_1 , SE_2 und SE_3 werden zusätzliche Elektroden El_1 bis El_8 eingefügt. Links und rechts des Spiegels befinden sich zwei Zusatzelektroden ZE_1 und ZE_2 .

Die Mitte des Spektrometers, und somit auch die mittlere Spiegelelektrode SE_1 , wird auf das Bezugspotenzial $\varphi = 0\text{ V}$ festgelegt. Weist man nun den Elektroden El_1 bis El_4 das Potenzial der Spiegelelektrode SE_2 U_{Sp1} zu, so beträgt der Abstand zwischen der Mitte des Spiegels und der Grenze zwischen dem mittleren und rechten Spiegelsegment a_1 . Da der Spiegel symmetrisch zu einer Achse durch die Spiegelmitte (in Abb. 7.8 als schwarz gepunktete Linie dargestellt) aufgebaut ist, wird den Elektroden El_5 bis El_8 in diesem Fall das Potenzial der Spiegelelektrode SE_3 $-U_{Sp1}$ zugewiesen.

Will man den Abstand zwischen Spiegelmitte und den Spiegelelektroden SE_1 und SE_2 auf a_2 erhöhen, weist man den Elektroden El_1 und El_5 das

Potenzial der Spiegelmitte 0 V zu. Das Potenzial der anderen Elektroden (El_2 bis El_4 und El_6 bis El_8) verbleibt auf dem vorigen Potenzial U_{Sp1} bzw. $-U_{Sp1}$.

Auf diese Weise lassen sich sechs unterschiedliche Abstände a_1 bis a_6 zwischen der Mitte des Spiegels und den äusseren Spiegelelektroden ohne eine erneute numerische Berechnung bei gleicher Konfiguration der Elektroden verwirklichen.

Die Zusatzelektroden ZE_1 und ZE_2 links und rechts des Spiegels sind in der obigen Abb. 7.8 rot dargestellt (siehe auch Abb. 7.3). Ihnen wird ein Potenzial von U_{Sp2} bzw. $-U_{Sp2}$ zugewiesen.

Für die folgenden Berechnungen wird ein kartesisches Koordinatensystem eingeführt, dessen Ursprung sich in der Mitte des Reaktionsvolumens bzw. des Spektrometers befindet. Das Koordinatensystem ist zusammen mit dem Spiegel und einem Teil der Spektrometerelektroden in einer Schnittansicht in Abb. 7.9 dargestellt.

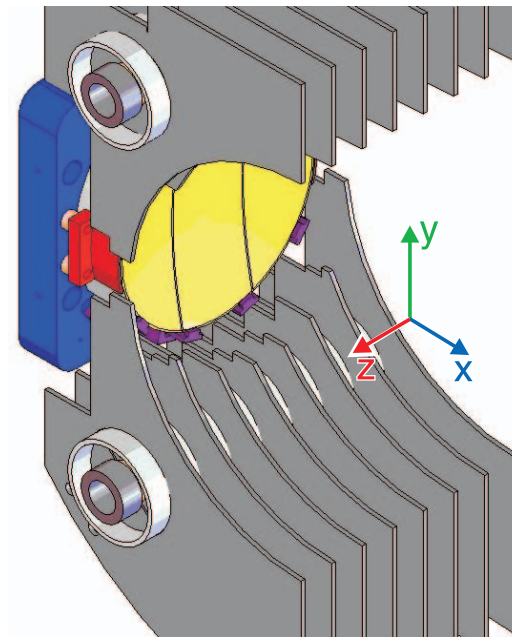


Abbildung 7.9: Kartesisches Koordinatensystem zur Berechnung des elektrischen Abzugsfeldes im Spektrometer.

Das gewünschte homogene elektrische Abzugsfeld $\vec{E}_{soll}$ innerhalb des Spektrometervolumens besitzt nur eine z-Komponente. Es ergibt sich aus dem linearen Spannungsverlauf auf den Spektrometerelektroden.

7.4 Aufbau des Spektrometers

Das tatsächliche elektrische Feld $\vec{E}_{ist}$ wird aus drei numerischen Lösungen φ_{Spek} , φ_{SE} und φ_{ZE} als Linearkombination berechnet:

$$\vec{E}_{ist} = \text{grad} (\varphi_{Spek} + U_{Sp1} \cdot \varphi_{SE} + U_{Sp2} \cdot \varphi_{ZE}) \quad (7.4)$$

Der relative Fehler F_{rel} zwischen dem gewünschten und dem tatsächlichen elektrischen Feld berechnet sich folgendermaßen:

$$F_{rel} = \frac{|\vec{E}_{ist} - \vec{E}_{soll}|}{|\vec{E}_{soll}|} \quad (7.5)$$

Um einen möglichst kleinen relativen Fehler zu erhalten wurden die Lösungen φ_{Spek} , φ_{SE} und φ_{ZE} aus SimIon exportiert und in das Mathematikprogramm Matlab importiert. Der berechnete Raum (90x80x80 mm³) umfasste dabei nicht das gesamte Spektrometervolumen, sondern nur den kritischen Bereich vor dem Spiegel. Die Auflösung der Berechnung betrug 0,5 mm. Mit Hilfe eines Optimierungsalgorithmus, der von Matlab zur Verfügung gestellt wird, wurde das Maximum der Verteilung des relativen Fehlers innerhalb des Spektrometervolumens durch Variation von U_{Sp1} und U_{Sp2} minimiert.

Das Ergebnis dieser Berechnung ist in Abb. 7.10 in Konturdiagrammen, in denen der relative Fehler aus Gl. 7.5 mit unterschiedlichen Farben wiedergegeben wird, dargestellt. Das obere Diagramm zeigt den relativen Fehler in der xz-Ebene, in der die Abweichungen zum gewünschten elektrischen Abzugsfeld am größten sind. Das zweiten Diagramm stellt F_{rel} in der xy-Ebene dar. Der Rand des Spektrometervolumens ist jeweils mit einer unterbrochenen roten Kurve markiert. Der störende Einfluss des Spiegels ist auf der linken Seite durch die dunkelrote Farbe, die einen relativen Fehler von über einem Prozent bedeutet, deutlich zu erkennen. Innerhalb des Spektrometervolumens ist der Fehler jedoch vertretbar klein. Ein störender Einfluss durch die Öffnung für den Laserstrahl auf der gegenüberliegenden Seite ist nicht zu erkennen.

Der maximale relative Fehler innerhalb des Spektrometervolumens bei optimierten Spannungen U_{Sp1} und U_{Sp2} der Spiegelelektroden beträgt 0,33 %. Verändert man U_{Sp1} und U_{Sp2} um 1 %, so steigt F_{rel} auf 0,34 %. Weichen die Spannungen an den Spiegelelektroden um 10 % vom Optimalwert ab, ist der relative Fehler mit 1,4 % immer noch tolerabel.

Zum Vergleich ist der relative Fehler in der xy-Ebene eines nicht segmentierten Spiegels in Abb. 7.11 gezeigt. Der Maximalwert von F_{rel} innerhalb des Spektrometervolumens beträgt hier 104 %.

In Abb. 7.12 wurde die Spannung an der Spiegelelektrode U_{Sp1} und an der Zusatzelektrode U_{Sp2} für unterschiedlich große elektrische Abzugsfelder

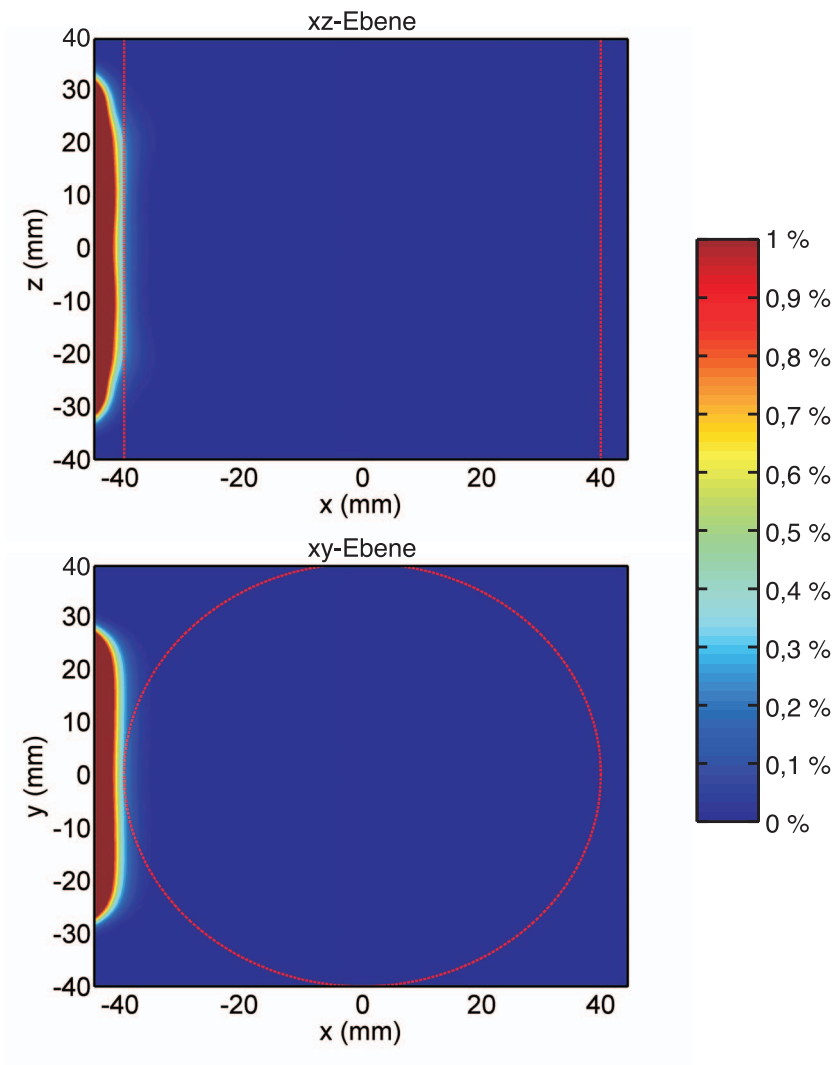


Abbildung 7.10: Konturdiagramme des relativen Fehlers des elektrischen Abzugsfeldes in der xz-Ebene (oben) und der xy-Ebene (unten). Die Grenzen des Spektrometervolumens sind mit roten Kurven markiert.

berechnet. Der jeweilige lineare Fit bestätigt den erwarteten linearen Zusammenhang.

Mit Hilfe der Steigung der roten und blauen Geraden kann ein Zusammenhang zwischen der Spannung U_{Spek} , die am Spektrometer anliegt, und den Spannungen der Spiegelelektroden und der Zusatzelektroden angegeben

7.4 Aufbau des Spektrometers

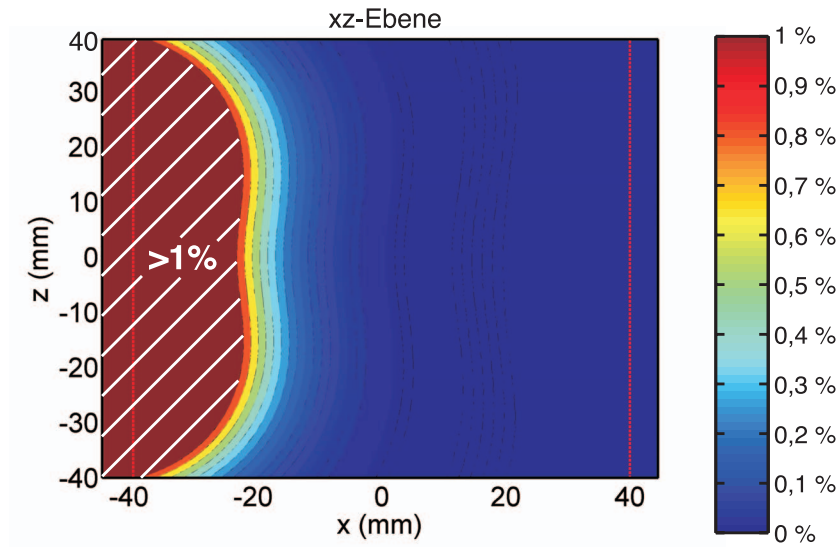


Abbildung 7.11: Konturdiagramm des relativen Fehlers des elektrischen Abzugsfeldes in der xz-Ebene für einen Spiegel ohne Segmente.

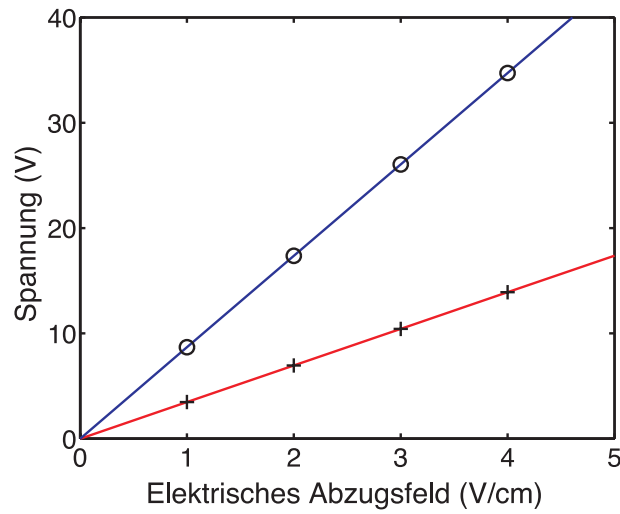


Abbildung 7.12: U_{Sp1} (+) und U_{Sp2} (o) als Funktion des elektrischen Abzugsfeldes. Die rote und blaue Gerade ist jeweils ein linearer Fit.

werden.

$$U_{Sp1} = 0,227 \cdot U_{Spek} \quad (7.6)$$

$$U_{Sp2} = 0,567 \cdot U_{Spek} \quad (7.7)$$

Die Spannung U_{Spek} bzw. $-U_{Spek}$ wird an die erste Detektorelektrode, sie besteht aus einem feinmaschigen Kupfergewebe und begrenzt das Spektrometervolumen, angelegt.

Beide Detektoren sind sogenannte "delay-line" Detektoren mit einem Durchmesser von 80 mm. Details zum Aufbau solcher Detektoren finden sich in [Mos03].

7.4.3 Magnetfeld des Spektrometers

Das Magnetfeld innerhalb des Spektrometervolumens wird durch zwei Helmholtzspulen mit einem Durchmesser von 710 mm erzeugt (siehe Abb. 7.1). Ihr Abstand ist entgegen der eigentlichen Helmholtzkonfiguration, die einen Abstand des halben Spulendurchmessers vorschreibt, um 10 % vergrößert. Die sich daraus ergebende z-Komponente des Magnetfeldes ist in Abb. 7.13 relativ zum Maximalwert B_{max} dargestellt.

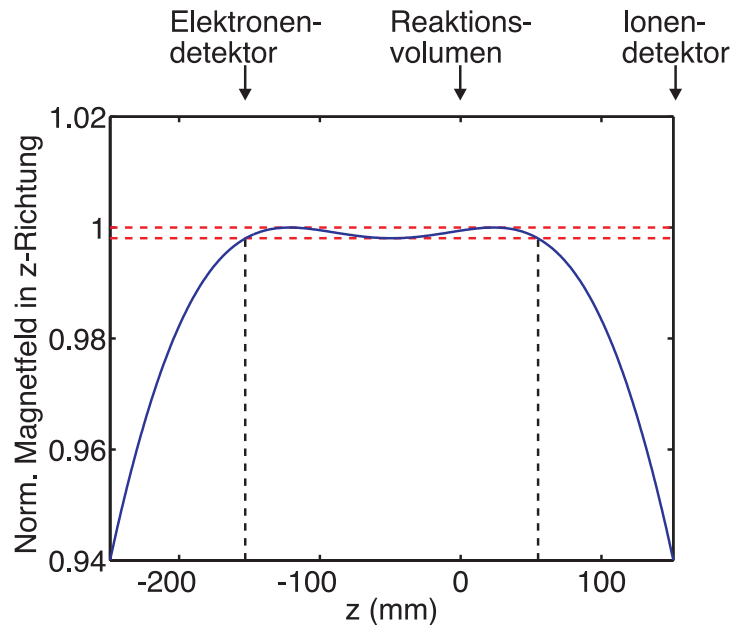


Abbildung 7.13: z-Komponente des normierten Magnetfeldes innerhalb des Spektrometervolumens.

Der Bereich, in dem das Magnetfeld um bis zu 0,2 % von der maximalen Stärke abweicht, ist mit zwei unterbrochenen roten Geraden gekennzeichnet. Dieses nahezu homogene Regime wird in vertikaler Richtung durch zwei senkrechte, schwarze Linien markiert; seine Ausdehnung beträgt 208 mm.

7.4 Aufbau des Spektrometers

Die Helmholtzspulen sind gegenüber der Spektrometermitte, bzw. dem Reaktionsvolumen, zum Elektronendetektor hin verschoben, um sicherzustellen, dass sich die Elektronen auf ihrem Weg vom Reaktionsvolumen zum Detektor in einem weitestgehend homogenen Magnetfeld bewegen.

Jede der beiden Spulen besitzt 200 Windungen eines Kupferkabels mit einer Leiterfläche von $0,5 \text{ mm}^2$. Fließt ein Strom von 2 A durch jede Spule, wird ein Magnetfeld von 1 mT erzeugt, welches 10 mal größer ist als das Erdmagnetfeld. Die Orientierung des Spulenpaares kann geringfügig geändert werden, so dass störende Einflüsse von Aussen, wie z.B. durch das Erdmagnetfeld, kompensiert werden können.

Kapitel 8

Erste Ergebnisse mit dem Reaktionsmikroskop

In diesem Kapitel werden die bisher mit dem Reaktionsmikroskop erzielten Resultate dargelegt. Ausgiebige Messungen zur Fragestellung der nicht-sequenziellen Doppelionisation sind bisher aus Zeitgründen nicht möglich gewesen. Erste Ergebnisse verdeutlichen jedoch die Eignung des gesamten experimentellen Aufbaus für vollständig differenzielle Messungen in einem experimentell bisher nur schwer zugänglichen Intensitätsbereich.

Bislang konnten zwei Messungen mit dem zuvor beschriebenen Reaktionsmikroskop und dem Laser mit langem Resonator durchgeführt werden. Bei der ersten Messung war das Reaktionsmikroskop mit nur einem Detektor zum Nachweis von Ionen ausgestattet. Nachdem das Reaktionsmikroskop mit einem weiteren Detektor ausgerüstet wurde, konnten in einer zweiten Messung Ionen und Elektronen in Koinzidenz nachgewiesen werden. Beide Messungen beschränkten sich jedoch auf die Bestimmung der jeweiligen Flugzeit; die Auslese der Ortsinformation aus den Detektoren konnte bisher aus Zeitgründen nicht implementiert werden.

8.1 Nachweis von Ionen

Bei den Messungen mit dem Ionendetektor wurde Helium und Argon als Target-Gas eingesetzt und deren Ionisationsrate ermittelt. Sie betrug für Argon maximal 10 kHz und für Helium maximal 1 kHz.

Die Flugzeit der einfach geladenen Ar^+ -Ionen beträgt bei einem elektrischen Abzugsfeld von 2,8 V/cm etwa 21 μs und ist somit wesentlich länger als die Zeitdauer zwischen zwei Laserpulsen von $T_R = 160$ ns. Ermittelt man ein Flugzeitspektrum, das aus dem Detektorsignal als Startsignal und dem dar-

auf folgenden Laserpuls als Stoppsignal generiert wurde, wird das komplette Flugzeitspektrum in ein Zeitintervall von 160 ns, das der Pulswiederholrate entspricht, gefaltet. Dieses gefaltete Flugzeitspektrum ist in Abb. 8.1 dargestellt. Da die Einfachionisation sehr viel wahrscheinlicher ist als die Doppel-

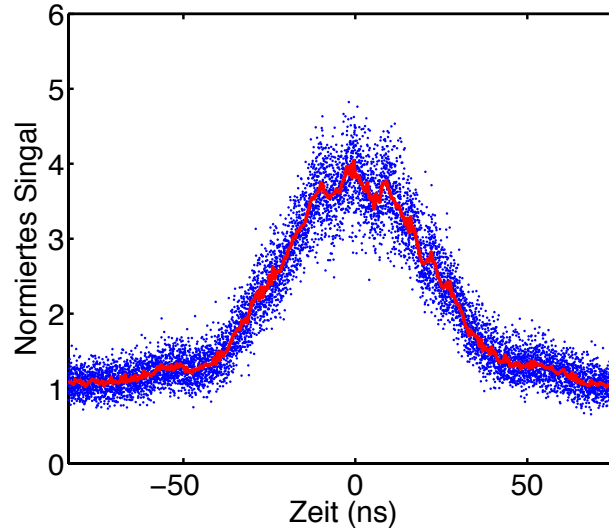


Abbildung 8.1: Gefaltetes Flugzeitspektrum von Ar^+ .

ionisation, handelt es sich bei dem breiten Maximum um einfach geladene Argonionen. Doppelt ionisiertes Argon und Ionen aus dem Restgas werden zwar auch in das Zeitintervall T_R gefaltet, deren Signatur geht jedoch im Rauschen von Abb. 8.1 unter.

Die Aufnahme des gezeigten Flugzeitspektrums erfolgte mit einem digitalen Oszilloskop, das mit dem Ionensignal des Detektors getriggert wurde. Das Eingangssignal des Oszilloskops war das Signal einer schnellen Photodiode, mit der der Laserpuls detektiert wurde. Die in Abb. 8.1 blau dargestellten Datenpunkte entstanden durch Mittelung mehrerer Tausend Oszilloskopaufnahmen. Dabei ist das Signal umso größer, je häufiger zu diesem Zeitpunkt ein Laserpuls durch die Photodiode detektiert wurde. Die rote Kurve geht durch Glättung aus den Originaldaten hervor.

Die rote Kurve aus Abb. 8.1 ist in der folgenden Abb. 8.2 über dem Impuls der Ionen $p_{||}$ entlang der Laserpolarisation nochmals in rot dargestellt. Dabei fallen zwei markante Unterstrukturen der Impulsverteilung auf: Erstens gibt es zwei scharfe Seitenmaxima neben einem Zentralmaximum, das ebenfalls scharf ausgeprägt ist. Diese Maxima wiederholen sich, weniger ausgeprägt aber immer noch gut sichtbar, bei höheren Impulsen. Zweitens ist ein kleines

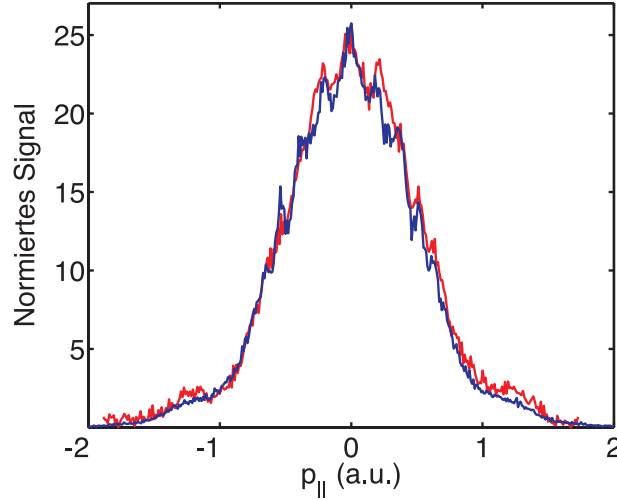


Abbildung 8.2: Ar^+ als Funktion des Impulses parallel zur Laserpolarisation. Rot: Daten aus Abb. 8.1. Blau: Messung aus [Rud04].

Plateau, das sich ab ca. $p_{||} = 0,9$ a.u. zu höheren Impulsen hin erstreckt, zu erkennen.

In Abb. 8.2 sind neben dieser Messung zusätzlich Daten aus [Rud04] (in blau) dargestellt. Einzelheiten zu dem dabei verwendeten experimentellen Aufbau finden sich in [Jes04] wieder. Bemerkenswerterweise ist eine sehr gute Übereinstimmung der beiden Datensätze zu erkennen.

Aufgrund der Impulserhaltung zwischen dem Ar^+ -Ion und dem freigesetzten Elektron, unter Vernachlässigung des sehr viel kleineren Photonenimpulses, ist die Impulsverteilung in Abb. 8.2 ein Spiegelbild der Elektronenimpulsverteilung. Die scharfen Seitenmaxima auf dieser Impulsverteilung spiegeln ATI-ähnliche Strukturen wieder, die stark von der atomaren Struktur abhängen [Rud04]. So besitzt die Ar^+ -Impulsverteilung ein zentrales Maximum, wohingegen Helium und Neon jeweils ein Minimum an dieser Stelle aufweisen. Die genaue Ursache dieser Strukturen ist bis heute Gegenstand der Forschung und noch nicht im Detail verstanden.

Das oben beschriebene Plateau entsteht durch einen elastischen Stoß bei der Rekollision des freigesetzten Elektrons mit seinem Mutterion, wodurch sowohl das Elektron als auch das Ion zusätzliche kinetische Energie erhalten. Der Impuls, bei dem das Plateau in die zentrale Hauptverteilung übergeht, liegt bei etwa $2\sqrt{U_P}$. Dies lässt nach Gl. (6.4) einen Schluss auf die Spitzenintensität im Fokus zu. In Übereinstimmung mit den in Abb. 8.2 blau dargestellten Daten ergibt sich eine Spitzenintensität von $1,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$

innerhalb des Fokus. Damit stellt dieser Wert die zur Zeit höchste, direkt mit einem Laseroszillator (ohne Verstärkung oder Überhöhung) erzeugte Intensität dar.

8.2 Koinzidenzmessung

Mit dem Einbau des zweiten Detektors wurde gleichzeitig ein neuer Spiegel mit einer vermeintlich besser polierten Oberfläche für eine bessere Fokussierung eingebaut. Im Nachhinein stellte sich jedoch heraus, dass die Qualität des zweiten Spiegels schlechter war als die des ersten. Dies bestätigten auch die Raten der ionisierten Atome, die nicht mehr die vorigen Werte erreichten. Die folgende Messung wurde aus diesem Grund mit einer geringeren Spitzenintensität aufgenommen.

Die zusätzliche Erfassung der Elektronenflugzeit lässt eine Koinzidenzmessung von Ionen und Elektronen zu. Das mit dieser Koinzidenz gemessene Ionenflugzeitspektrum ist in Abb. 8.3 dargestellt, wobei die Ionenanzahl in einem logarithmischen Maßstab aufgetragen ist.

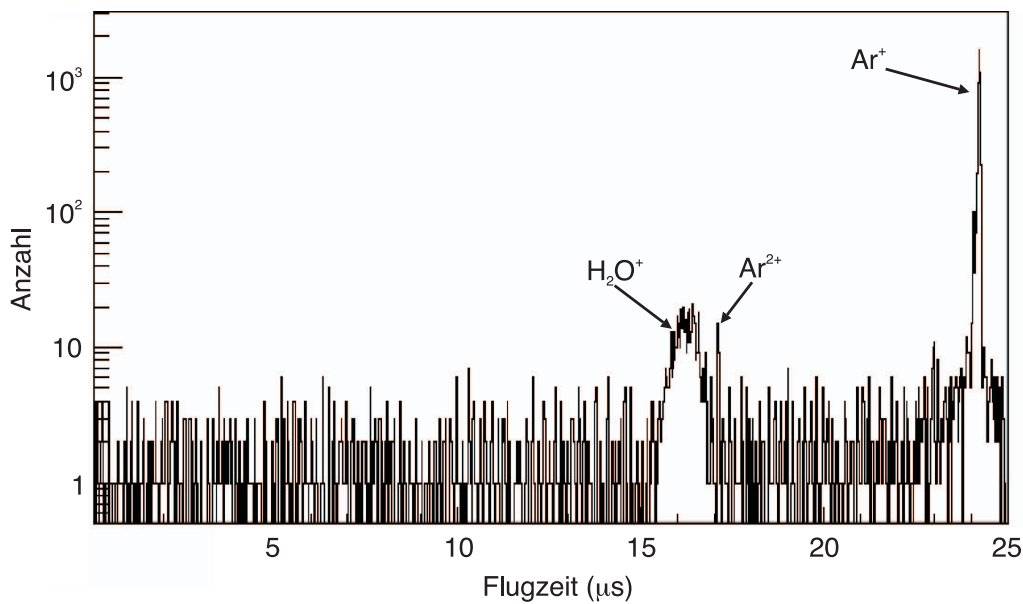


Abbildung 8.3: Flugzeitspektrum von Argon

Für die Aufzeichnung des Flugzeitspektrums kam eine neue Elektronik, ein sogenannter Digitizer der Firma Acqiris, zum Einsatz. Dabei handelt es

8.2 Koinzidenzmessung

sich, wie zuvor bei dem Oszilloskop, um eine schnelle Abtastung des Photodiodensignals sowie der Detektorsignale. Nachdem die Daten in einen Computer übertragen wurden, ermittelte eine Software den Zeitpunkt eines jeden Signalpulses.

Die Messung eines Ereignisses wurde mit dem Signal des Elektronendetektors gestartet und nach einer festgesetzten Zeit, in dem Fall von Abb. 8.3 $25 \mu\text{s}$, beendet. Der Zeitpunkt der Ionisation $t = 0 \mu\text{s}$ wurde mit Hilfe eines detektierten Laserpulses, der nach dem Startsignal des Elektrons gemessen wurde, im Nachhinein bestimmt.

Das elektrische Abzugsfeld des Spektrometers wurde so angepasst, dass die Flugzeit von Ar^+ mit $24,2 \mu\text{s}$ (scharfes Maximum am rechten Rand des Flugzeitspektrums in Abb. 8.3) noch gut abgebildet wird. Ein weiteres, ausgeprägtes und breites Maximum befindet sich bei einer Flugzeit von $16 \mu\text{s}$, welches einer atomaren Masse von 18 entspricht. Es handelt sich hierbei um H_2O^+ Ionen, ein leicht zu ionisierendes Restgasmolekül. Die Breite des Maximums resultiert aus der thermischen Anfangsenergie der Wassermoleküle. Rechts neben diesem Maximum ist bei einer Flugzeit von $17,2 \mu\text{s}$ ein weiteres, schmales Maximum zu erkennen. Es handelt sich hierbei um doppelt ionisiertes Argon (Ar^{2+}).

Neben diesen Maxima, die man einem bestimmten Atom oder Molekül zuordnen kann, gibt es viele Ereignisse, die einen breiten Untergrund über das gesamte Flugzeitspektrum bilden. Dieser Untergrund entsteht nicht nur durch weitere Restgasatome oder Moleküle, sondern auch durch eine Überlagerung mehrerer Ereignisse. Wird das Elektron nach einer Ionisation nicht detektiert, so ist das dazugehörige Ion ohne korrekten Start der Aufnahmeelektronik entstanden. Wird die Aufnahme nun innerhalb der Flugzeit des Ions durch einen darauf folgenden Laserpuls gestartet, wird es zu einem zufälligen Zeitpunkt detektiert.

Verringert man die Intensität, wird diese Art des Untergrunds, der auch durch Target-Gas entsteht, im Verhältnis zur Wahrscheinlichkeit einer korrekt detektierten Ionisation kleiner. Er sollte daher bei Messungen bei kleineren Intensitäten, die sich in der Nähe der vermuteten nicht-sequenziellen Doppelionisationsschwelle befinden, nicht stören.

Entsteht der Untergrund hingegen direkt oder durch den oben beschriebenen Mechanismus durch Restgas, ist eine Verschlechterung des Verhältnisses zwischen Signal und Untergrund zu erwarten. In der Zwischenzeit könnte jedoch der Restgasdruck durch Ausheizen der Hauptkammer um eine Größenordnung gesenkt werden ($3 \cdot 10^{-10} \text{ mbar}$).

Desweiteren kann der durch Restgas verursachte Untergrund durch die Messung des Ortes der Ionen auf dem Detektor reduziert werden, da Restgasatome eine thermische Anfangsenergie besitzen, Atome aus dem Target-

Gas hingegen nur in bestimmten Bereichen auf den Detektor auftreffen.

In Abb. 8.4 ist das zu Abb. 8.3 gehörige Elektronenflugzeitspektrum dargestellt. Dieses ist, wie die Messung der Ionenflugzeiten mit nur einem Detek-

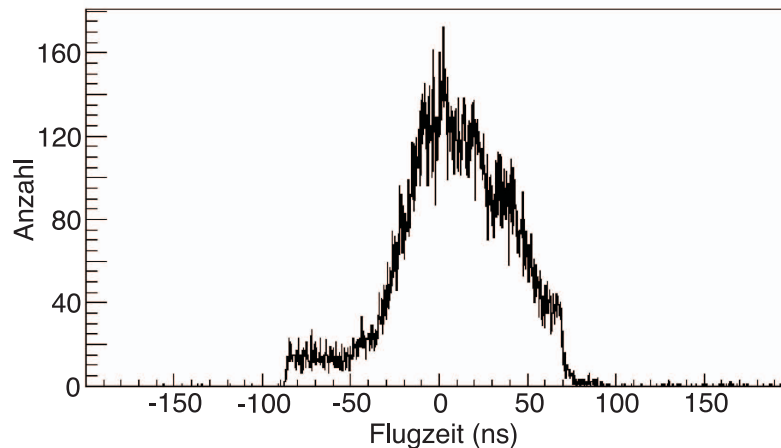


Abbildung 8.4: Elektronenflugzeitspektrum von Argon

tor, in ein Zeitfenster von 160 ns gefaltet. In dem Fall der Elektronen stellt dies allerdings keine Einschränkung dar, da die Flugzeit der Elektronen meist kleiner ist als die Wiederholrate der Laserpulse von 160 ns.

Manche der Elektronen in Abb. 8.4 sind allerdings einem falschen Startzeitpunkt zugeordnet. Dieser lässt sich jedoch in zukünftigen Messungen mit einer zusätzlichen Ortsauflösung der Detektoren, die eine vollständige Information über den Ionisationsprozess liefert, im Nachhinein ermitteln.

8.3 Vergleich mit bisherigen Messaufbauten

Abschliessend sei hier erwähnt, dass durch den vorgestellten experimentellen Aufbau eine wesentliche Verkürzung der Messzeiten im Vergleich zu bestehenden Experimenten erreicht werden kann. So benötigte die Aufnahme der Daten aus [Rud04], in Abb. 8.2 blau dargestellt, mehrere Tage; das ebenfalls in Abb. 8.2 gezeigte rote Spektrum hingegen nur 10 Minuten.

Dies verdeutlicht die Ionisationsrate, die im Fall von Argon während der ersten Messung 10 kHz betrug. Sie hat somit etwa die gleiche Größenordnung wie die Pulswiederholrate eines Verstärkersystems; die Wahrscheinlichkeit ein Argonatom zu ionisieren, liegt jedoch im Prozentbereich. Dies veranschaulicht auf eindrucksvolle Weise das Potenzial des gesamten experimentellen Aufbaus.

8.3 Vergleich mit bisherigen Messaufbauten

Die erzeugte Intensität innerhalb des Reaktionsmikroskops ist zwar 100-mal schwächer im Vergleich zu bisherigen Aufbauten, sie wird jedoch in einem Zeitintervall 1000-mal öfter erreicht.

Neben der nicht-sequenziellen Doppelionisation gibt es im Übergangsbereich zwischen dem Multiphoton- und Tunnelregime weitere interessante Fragestellungen und nicht vollständig verstandene Meßergebnisse, wie z.B. die ATI-Strukturen auf den Ionenimpulsspektren in Abb. 8.2, die mit diesem Aufbau sehr viel effizienter untersucht werden können.

Kapitel 9

Zusammenfassung und Ausblick

In diesem Kapitel wird diese Arbeit kurz zusammengefasst und ein Ausblick über mögliche zukünftige Entwicklungen der behandelten laser- und atomphysikalischen Aspekte gegeben.

Intensive Laserpulse aus einem Laser mit langem Resonator

Der ersten Teil der Arbeit behandelt einen Titan-Saphir Laser, dessen Resonator durch eine sogenannte Herriot-Zelle verlängert ist. Der Laser wird im positiven Dispersionsregime betrieben und von einem neuartigen frequenzverdoppelten Yb:YAG-Scheibenlaser mit einer Leistung von 15 W gepumpt. Für einen stabilen Laserbetrieb muss der Laserkristall weit unter 0° C gekühlt werden. Ein unerwünschter Betriebszustand, bei dem mehrere Pulse im Laseroszillator umlaufen, konnte ausgeschlossen werden.

Der Laser emittiert Pulse mit einer Energie von $0,56\text{ }\mu\text{J}$ bei einer Puls-wiederholrate von 6 MHz. Nach der Kompression der dispersiven Laserpulse durch einen Prismenkompressor besitzen die Pulse eine Pulsdauer von 54 fs und eine Pulsspitzenleistung von nahezu 10 MW. Die hervorragende Stahlqualität des Laser ist mit einem M^2 -Wert, der kleiner als 1,1 ist, durch eine Messung bestätigt.

Diese Laserparameter stellen den Maßstab des heutzutage möglichen dar und werden vor allem dem Bedarf einer hohen Pulswiederholrate bei gleichzeitig genügend hoher Pulsenergie und Fokussierbarkeit gerecht.

Eine weitergehende Reduktion der Pulsdauer wäre für viele Anwendungen wünschenswert. Dies sollte, neben einem verbesserten Dispersionsverlauf innerhalb des Laserresonators, vor allem durch die Verwendung von SESAMs mit einer größeren Bandbreite möglich sein. Darüber hinaus ist eine externe Pulskompression durch einen kaskadierten nichtlinearen Effekt für diesen Bereich von Laserparametern sehr vielversprechend, mit dem eine zusätzliche

Steigerung der Pulsspitzenleistung möglich erscheint.

Für manche Einsatzbereiche ist eine weitere Steigerung der Pulsenergie erforderlich. Hierbei sollte eine Steigerung um bis zu einer Größenordnung durch eine zusätzliche Verlängerung des Resonators, durch die Verwendung eines längeren Laserkristalls und durch eine effizientere Kühlung des Laserkristalls realisierbar sein.

Darüber hinaus ist auch eine externe Verstärkung der Laserpulse denkbar, zumal der eingesetzte Pumplaser einen weiteren Ausgangsstrahl mit einer Leistung von weiteren 15 W besitzt. Durch den bisher ungenutzten Stahl könnte ein Mehrwegeverstärker gepumpt werden, der die erzeugten Laserpulse ohne aufwendige Änderungen am Resonator verstärkt.

Neben der Titan-Saphir-Technologie gibt es das sich schnell entwickelnde Feld der direkt mit Laserdioden gepumpten Festkörperlaser, die wegen ihrer geringen Kosten auch vermehrt ein kommerzielles Interesse wecken. Ein Beispiel für ein solches System ist ein Laser mit "Cavity-Dumping". Die Laserpulse im Resonator werden dabei erst nach mehreren Umläufen durch einen optischen Schalter ausgekoppelt.

Mit einem solchen System sind Pulse mit einer Wiederholrate von 1 MHz bei einer Pulsenergie von $1,3 \mu\text{J}$ und Pulsspitzenleistung von 3 MW erzielt worden. Ein Nachteil solcher Systeme ist die durch das Lasermaterial limitierte längere Pulsdauer, die jedoch mit einem optisch-parametrischen Verstärker (OPA) unter Erhaltung der Pulswiederholrate auf unter 20 fs verkürzt werden kann [Kil05].

Eine weitere moderne Methode zur Erzeugung ultrakurzer Laserpulse stellt ein sogenannter OPCPA (*Optical Parametric Chirped Pulse Amplifier*) dar. Dabei findet der Verstärkungsprozess über virtuelle Niveaus statt, was die thermische Begrenzung konventioneller Verstärker beseitigt. In diesem Zusammenhang ist auch eine höhere Pulswiederholrate aus Verstärkern denkbar, deren Pulsenergie nur noch durch die zur Verfügung stehende Pumpleistung beschränkt sein sollte.

Ionisation von Helium durch Pulse aus einem Laseroszillator

Die mit dem Titan-Saphir Laser erzeugten Laserpulse werden mit einem Parabolspiegel innerhalb des Reaktionsmikroskops fokussiert. Die Form sowie die metallische Oberfläche des Spiegels ist sowohl für einen möglichst kleinen Fokus als auch für ein homogenes elektrisches Abzugsfeld innerhalb des Reaktionsmikroskops optimiert worden. Dieser Spiegel ermöglicht zum ersten mal Experimente mit einem Laseroszillator an einem Reaktionsmikroskop, wobei eine Intensität von über 10^{14} W/cm^2 nachgewiesen werden konnte.

Erste Ergebnisse lassen das Potenzial dieses experimentellen Aufbaus er-

kennen, so wurde z.B. Helium mit einer Rate von bis zu 1 kHz ionisiert. Dadurch sind vollständig differenzielle Messungen in einer sehr viel kürzeren Messzeit im Bereich der Multiphoton- und Tunnelionisation bei einer kleinen Ereigniswahrscheinlichkeit möglich.

Insbesondere die nicht-sequenzielle Doppelionisation, deren Intensitätsschwelle durch ein klassisches Modell für verschiedenen Edelgase abgeschätzt wurde, kann durch diesen Aufbau in einem bisher unzugänglichen Intensitätsbereich untersucht werden.

Die durch das oben erwähnte Modell vorhergesagte Schwelle der nicht-sequenziellen Doppelionisation befindet sich zwischen dem Regime der Multiphoton- und der Tunnelionisation. Für eine Verschieben dieser Schwelle in eines der beiden Regime wäre eine veränderte Wellenlänge des Laserlichts wünschenswert.

Eine experimentell einfache Möglichkeit, die diesen Zweck erfüllt, wäre die Verdopplung der Laserfrequenz durch einen nichtlinearen Kristall. Darüber hinaus würde ein optisch-parametrischer Verstärker, der von dem Titan-Saphir Laser mit langem Resonator betrieben wird, eine geeignete durchstimmbare Lichtquelle für solche Experimente darstellen.

Eine neuartige Lichtquelle stellt der FEL (*Free Electron Laser*) dar, dessen Wellenlänge wesentlich kürzer ist und bis in den Röntgenbereich reicht. Dabei kann die Wellenlänge aufgrund der großen Bandbreite des Lichts durch einen Monochromator ebenfalls durchgestimmt werden. Die Wechselwirkung zwischen Materie und Licht dieser Art ist bisher weitgehend unerforscht, erste Experimente versprechen weiteren Fortschritt im Verständnis atomarer Strukturen.

Sehr viel kürzere Attosekunden-Lichtpulse können aus ultrakurzen Laserpulsen im nahinfraroten Spektralbereich erzeugt werden. Ihre Zeitdauer ermöglicht zusammen mit dem kohärenten Ausgangslicht Anrege-Abfrage-Experimente, deren zeitliche Auflösung in der Größenordnung der Umlaufdauer äußerer Hüllenelektronen um den Atomkern sind. Dies lässt die Messung von elektronischen, atomaren und molekularen Vorgängen in "Echtzeit" in naher Zukunft möglich erscheinen.

Literaturverzeichnis

- [Alb86] P. Albers, E. Stark, G. Huber, *Continuous-wave laser operation and quantum efficiency of titanium-doped sapphire*, J. Opt. Soc. Am. **3**(1), 134–138 (1986).
- [Amm86] M. V. Ammosov, N. B. Delone, V. P. Krainov, *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*, Soviet Physics - JETP **64**(6), 1191–1194 (1986).
- [Bec02] A. Becker, F. H. M. Faisal, *S-matrix analysis of coincident measurement of two-electron energy distribution for double ionization of He in an intense laser field*, Physical Review Letters **89**(19), 193003 (Nov 2002).
- [Che99] Y. Chen, F. Kärtner, U. Morgner, S. Cho, H. Haus, E. Ippen, J. Fujimoto, *Dispersion-managed mode locking*, J. Opt. Soc. Am. **16**, 1999–2004 (1999).
- [Del91] N. B. Delone, V. P. Krainov, *Energy and angular electron-spectra for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation*, Journal Of The Optical Society Of America B-Optical Physics **8**(6), 1207–1211 (Jun 1991).
- [Dew03] S. Dewald, *Aufbau eines Ti:Saphir Laseroszillators zur Erzeugung ultrakurzer Laserpulse mit hohen Pulsenergien*, Diplomarbeit, Universität Karlsruhe (2003).
- [Dew06] S. Dewald, M. Siegel, U. Morgner, T. Lang, C. D. Schröter, R. Moshammer, J. Ullrich, *Ionization of noble gases with pulses directly from a laser oscillator*, Optics Letters to be published (2006).
- [Dra04] S. Draxler, *Lineare und nichtlineare Interferometrie zur Präzisionsvermessung von Mikrostrukturen*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2004).

- [Eic00] U. Eichmann, M. Dörr, H. Maeda, W. Becker, W. Sandner, *Collective Multielectron Tunneling Ionization in Strong Fields*, Physical Review Letters **84**(16), 3550 (2000).
- [Ell03] R. Ell, *Sub-two cycle Ti:sapphire laser and phase sensitive nonlinear optics*, Doktorarbeit, Universität Karlsruhe (2003).
- [Ere03] E. Eremina, X. Liu, H. Rottke, W. Sandner, A. Dreischuh, F. Lindner, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Moshhammer, B. Feuerstein, J. Ullrich, *Laser-induced non-sequential double ionization investigated at and below the threshold for electron impact ionization*, Journal of physics b-atomic molecular and optical physics **36**(15), 3269–3280 (Aug 2003).
- [Fer04] A. Fernandez, T. Fuji, A. Poppe, A. Fürbach, F. Krausz, A. Apolonski, *Chirped-pulse oscillators: a route to high-power femtosecond pulses without external amplification*, Opt. Lett. **29**(12), 1366–1368 (June 2004).
- [Fis03] D. Fischer, *Mehr-Teilchen-Dynamik in der Einfach- und Doppelionisation von Helium durch geladene Projektile*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (2003).
- [Gal99] L. Gallmann, D. Sutter, N. Matuschek, G. Steinmeyer, U. Keller, C. Iaconis, I. Walmsley, *Characterization of sub-6-fs optical pulses with spectral interferometry for direct electric-field reconstruction*, Opt. Lett. **24**, 1314–6 (1999).
- [Gra98] G. Grau, W. Freude, *Optische Nachrichtentechnik* (Springer, Berlin, 1998), 3. Auflage.
- [Har00] H. W. van der Hart, K. Burnett, *Recollision model for double ionization of atoms in strong laser fields*, Physical Review A **62**(1), 013407 (Jul 2000).
- [Hau91] H. A. Haus, J. G. Fujimoto, E. P. Ippen, *Structures for additive pulse mode locking*, J. Opt. Soc. Am. **B 8**, 2068–76 (1991).
- [Her64] D. Herriot, H. Kogelnik, R. Kompfner, *Off-Axis Paths in Spherical Mirror Interferometers*, Appl. Opt. **3**(4), 523–526 (1964).
- [Ipp94] E. Ippen, *Principles of Passive Mode Locking*, Appl. Phys. **B 58**, 159–70 (1994).

- [Jes04] V. L. B. de Jesus, A. Rudenko, B. Feuerstein, K. Zrost, C. D. Schroter, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Reaction microscopes applied to study atomic and molecular fragmentation in intense laser fields: non-sequential double ionization of helium*, Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena **141**(2-3), 127–142 (Dec 2004).
- [Kal05] V. Kalashnikov, E. Podivilov, A. Chernykh, S. Naumov, A. Fernandez, R. Graf, A. Apolonski, *Approaching the microjoule frontier with femtosecond laser oscillators: theory and comparison with experiment*, New Journal of Physics **7**(217), 217 (2005).
- [Kel65] L. V. Keldysh, *Ionization in field of a strong electromagnetic wave*, Soviet Physics - JETP **20**(5), 1307 (1965).
- [Kil05] A. Killi, *Cavity-Dumping in solitärmodengekoppelten Femtosekunden-Laserszillatoren*, Doktorarbeit, Universität Heidelberg (2005).
- [Leh96] G. Lehner, *Elektromagnetische Feldtheorie für Ingenieure und Physiker* (Springer-Verlag, 1996), 3. Auflage.
- [Mil88] D. R. Miller, *Atomic and Molecular Beam Methods*, Band 14, Kapitel Free jet sources, 14–53 (Oxford University Press, 1988).
- [Mor01] U. Morgner, *Erzeugung kürzester Laserpulse im nahen Infraroten*, Doktorarbeit, Habilitationsarbeit, Universität Karlsruhe (2001).
- [Mos03] R. Moshhammer, D. Fischer, H. Kollmus, *Many Particle Quantum-Dynamics in Atomic and Molecular Fragmentation*, Band 35 von Springer Series on Atomic, Optical, and Plasma Physics, Kapitel Recoil-Ion Momentum Spectroscopy and "Reaction Microscopes", 33–58 (Springer, 2003).
- [Mul83] H. G. Muller, A. Tip, M. J. Vanderziel, *Ponderomotive force and AC stark shift in multiphoton ionization*, Journal Of Physics B-Atomic Molecular And Optical Physics **16**(22), L679–L685 (1983).
- [Nau05] S. Naumov, A. Fernandez, R. Graf, P. Dombi, F. Krausz, A. Apolonski, *Approaching the microjoule frontier with femtosecond laser oscillators*, New Journal of Physics **7**(216), 216 (2005).
- [NIS06] NIST - National Insitute of Standards and Technology, *Handbook of Basic Atomic Spectroscopic Data* - <http://www.physics.nist.gov/PhysRefData/Elements/index.html> (2006).

- [Pop04] V. S. Popov, *Tunnel and multiphoton ionization of atoms and ions in a strong laser field (Keldysh theory)*, Physics-Uspekhi **47**(9), 855–885 (Sep 2004).
- [Rud04] A. Rudenko, K. Zrost, C. D. Schroter, V. L. B. de Jesus, B. Feuerstein, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Resonant structures in the low-energy electron continuum for single ionization of atoms in the tunnelling regime*, Journal Of Physics B-Atomic Molecular And Optical Physics **37**(24), L407–L413 (Dec 2004).
- [Sal91] B. E. A. Saleh, M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics* (Wiley, 1991).
- [SG04] Saint-GobainCrystals, *Reference Guide Saphikon* (2004).
- [Sie05] M. Siegel, *Ein Titan-Saphir-Laserszillator zur Erzeugung von Laserpulsen mit Pulsenergien im μ J-Bereich*, Diplomarbeit, Universität Heidelberg (2005).
- [Sve98] O. Svelto, *Principles of Lasers* (Plenum Press, New York, 1998), 4. Auflage.
- [Ull03] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Schmidt, H. Schmidt-Böcking, *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*, Reports on Progress in Physics **66**(9), 1463–1545 (2003).
- [Wal94] B. Walker, B. Sheehy, L. F. Dimauro, P. Agostini, K. J. Schafer, K. C. Kulander, *Precision-measurement of strong-field double-ionization of helium*, Physical Review Letters **73**(9), 1227–1230 (Aug 1994).

Danksagung

Diese letzte Seite möchte ich nutzen, um all jenen zu danken, die diese Arbeit möglich gemacht haben, und die mich in vielfältiger Weise unterstützt haben.

An erster Stelle sei hier Uwe Morgner genannt, der mich einstellte und dieses Projekt überhaupt erst ermöglichte. Ich habe immer bei ihm ein offenes Ohr für meine Probleme gefunden. Er hat mich mit viel Einsatz unterstützt, auch im letzten Jahr aus seiner neuen Heimat Hannover.

Joachim Ullrich gab den Anstoß zum Bau des Reaktionsmikroskops. In seiner Gruppe habe ich mich sehr wohl gefühlt. Die Diskussionen mit ihm haben mich immer wieder aufs Neue motiviert.

Claus-Dieter Schröter hat mich in die Kunst des Reaktionsmikroskopbaus eingeweiht. Alle möglichen Details hierzu konnte ich mit ihm erörtern.

Robert Moshhammer war ebenfalls immer mit Rat zur Stelle, er half mir über so manches Verständnisproblem hinweg.

Alexander Dorn stellte mir erste Zeichnungen zur Verfügung und hatte immer ein offenes Ohr für meine Fragen.

Durch die Doktoranden aus der "Femto"-Gruppe (Thomas Binhammer, Hartmut Gimpel, Alexander Killi) habe ich viel Unterstützung und kollegiale Zusammenarbeit erfahren. Tino Lang und Martin Siegel arbeiteten direkt mit mir an dem entstandenen Experiment.

Hier will ich auch die Mitarbeiter der Haupt- und Elektronikwerkstatt erwähnen, ganz besonders jedoch die Leuten, die immer oder meist in der Lehrlingswerkstatt zu finden sind. Sie haben mir so manches mal aus der Patsche geholfen.

Allen ein herzliches Dankeschön!

Ganz am Ende möchte ich meiner Freundin Cordula danken, sie unterstützte mich moralisch, wann immer ich es nötig hatte.