

**Fakultät für Physik und Astronomie
Universität Heidelberg**

Bachelorarbeit in Physik
vorgelegt von

Fabian Kaap

geboren in Neuwied

April 2018

Plasma-induzierte Blauverschiebung während der Erzeugung Hoher Harmonischer

Die Arbeit wurde ausgeführt am
Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg
unter Betreuung von
Prof. Dr. Thomas Pfeifer

Abstract

In this work the plasma-induced spectral blueshift of a strong ultrashort laser-pulse in the infrared region during high-harmonic-generation has been investigated. The blueshifting is based on a changing refractive index due to the generation of free electrons. Those are generated in the strong laserfield by tunnel ionization. For this purpose the spectra of the laserfield after the generation of high-harmonics in neon, argon and xenon were taken with a measurement device, designed in the scope of this thesis. To analyse the measured plasma-induced blueshift quantitatively, a simulation based on the Ammosov-Delone-Krainov-model for tunnel-ionisation was created. It will be shown that this spectral shifting depending on the gas pressure is small for neon but for argon and xenon its impact increases due to a lower ionization potential.

Zusammenfassung

In dieser Arbeit wird die plasma-induzierte spektrale Blauverschiebung eines starken ultrakurzen Laserpuls im infraroten Bereich während der Erzeugung Hoher Harmonischer untersucht. Die Blauverschiebung beruht auf der zeitlichen Änderung des Brechungsindex aufgrund der Erzeugung freier Elektronen. Diese werden in dem starken Laserfeld durch Tunnelionisation erzeugt. Dazu wurden die Spektren des Laserpulses nach der Erzeugung Hoher Harmonischer in Neon, Argon und Xenon mithilfe einer im Umfang dieser Arbeit entworfenen Messvorrichtung aufgenommen. Für eine quantitative Analyse der Messergebnisse wurde zudem eine Simulation für die plasma-induzierte Blauverschiebung erstellt, welche auf dem Ammosov-Delone-Krainov-Modell der Tunnelionisation beruht. Wie sich zeigt, ist die spektrale Verschiebung in Abhängigkeit vom Gasdruck in Neon schwach, in Argon und Xenon ist die Auswirkung aufgrund des geringeren Ionisationspotentials jedoch stärker.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	3
2.1	Ultrakurze Laserpulse	3
2.2	Hohe Harmonische	6
2.2.1	3-Stufen-Modell	6
2.2.2	Tunnelionisation	7
2.3	Blauverschiebung in Plasma	8
2.3.1	Dispersionsrelation und Brechungsindex von Plasma	9
2.3.2	Blauverschiebung durch Veränderung des Brechungsindex	10
2.3.3	Verschiebung während Erzeugung Hoher Harmonischer	11
3	Simulation zur Blauverschiebung	13
3.1	Rate der Tunnelionisation aus ADK-Formel	13
3.2	Verschiebung des Spektrums durch zeitliche Aufspaltung	14
4	Experimenteller Aufbau und Spektrometerprogramm	17
4.1	Aufbau der Beamline	17
4.1.1	Pulserzeugung	17
4.1.2	Experiment	18
4.2	Konstruierte Faser-Iris-Halterung	19
4.3	Labview-Programm für Ocean-Optics-Spektrometer	21
5	Ergebnisse	23
5.1	Pulseigenschaften	23
5.2	Blauverschiebung in Argon	26
5.3	Blauverschiebung in Neon	29
5.4	Blauverschiebung in Xenon	31
6	Zusammenfassung	33
	Literaturverzeichnis	36
	Danksagung	37

1 Einleitung

Um das zeitliche Verhalten von Atomen und Molekülen zu verstehen und aus der Theorie vorhergesagte Verhaltensweisen zu validieren, kann man experimentelle 'Werkzeuge' wie ultrakurze Laserpulse nutzen, welche es ermöglichen, dass Verhalten der Elektronen in diesen Atomen oder Molekülen zeitlich aufzulösen. Für den Femtosekunden-Bereich ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$), in welchem zum Beispiel viele Molekülschwingungen ablaufen, stellen modengekoppelte Lasersysteme ein gutes Mittel dar, um Prozesse auf dieser Zeitskala mit der notwendigen Auflösung zu untersuchen[1]. Im Attosekunden-Bereich ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$), in welchem jedoch die Elektronendynamik beobachtet werden kann, ist man auf das Phänomen der Hohen-Harmonischen-Erzeugung (englisch: *high-harmonics generation*, HHG) angewiesen, welches einen in hohem Grade nichtlinearen quantenmechanischen Prozess darstellt[2]. Erzeugt werden diese Attosekunden-Pulse meist in einem Edelgas durch Anwesenheit eines starken Laserfeldes, wie beispielsweise im Fokus eines Femtosekunden-Pulses eines verstärkten modengekoppelten Lasers im nahen infraroten Bereich. Da der HHG-Prozess einen Ionisationsschritt beinhaltet, kommt es zur Entstehung freier Elektronen und damit zu einer zeitlichen Änderung des Brechungsindex, was zu einer Blauverschiebung für einen Teil des Spektrums der erzeugten Hohen Harmonischen sowie für einen Teil des Spektrums des erzeugenden Laserfeldes sorgt.

Mithilfe der Harmonischen und der Fundamentalen kann man Pump-Probe-Experimente durchführen, wobei das Harmonischen-Spektrum gemessen wird. Bei einem Pump-Probe-Experiment wird ein Strahl zur Anregung eines Gases oder Moleküls verwendet und mit einem anderen Strahl, welcher mit beliebigem Zeitversatz zum ersten auf das Gas oder Molekül trifft, kann die Dynamik des Systems erfasst werden[3, 4]. Durch die Blauverschiebung des Fundamentalenspektrums kann es zu Verschiebungen der zentralen Energie und zur Verbreiterung des Spektrums führen, sodass die Eigenschaften des Pump-Strahls, welche für die Experimente von großer Bedeutung sind, nicht mehr genau mit dem Strahl vor der HHG übereinstimmen.

In dieser Arbeit wird die Änderung des Spektrums des Laserfeldes genauer quantifiziert. Dabei wird zum einen das Verhalten des Spektrums nach der HHG-Erzeugung gemessen, zum anderen wird eine Simulation basierend auf dem Ammosov-Delone-Krainov-Modell (ADK-Modell) für die Tunnelionisation und dem Drude-Modell für dieses Verhalten durchgeführt[5][6]. In Kapitel 2 sind die Grundlagen wie die mathematische Beschreibung kurzer Laserpulse, der HHG-Prozess und die Wellenlängenänderung durch Entstehung freier Elek-

tronen beschrieben, welche zum Verständnis dieser Arbeit essenziell sind. In Kapitel 3 wird das Konzept der hier durchgeführten Simulation präsentiert, wobei die in den Grundlagen vorgestellte zentrale Wellenlängenänderung mit dem ADK-Modell verknüpft wird. Der verwendete Versuchsaufbau wird in Kapitel 4 beschrieben. Neben dem Lasersystem und den Experimentkammern, werden die im Umfang dieser Arbeit entworfenen Systeme zur Messung des Spektrums als auch die Benutzeroberfläche des erstellten Programms zur Kontrolle von Ocean-Optics Spektrometern beschrieben. Die Ergebnisse der Messungen werden in Kapitel 5 gezeigt und zusammen mit den passenden Simulationen diskutiert.

2 Theoretische Grundlagen

Im folgenden Kapitel wird auf die in dieser Arbeit essenziellen Grundlagen eingegangen. Dazu gehören die mathematische Beschreibung kurzer Laserimpulse, die Erzeugung hoher Harmonischer, wobei insbesondere auf die Tunnelionisation eingegangen wird, und die Blauverschiebung von Licht aufgrund einer durch Ionisation hervorgerufenen Änderung des Brechungsindex während der hohen Harmonischen Erzeugung.

2.1 Ultrakurze Laserpulse

Elektromagnetische Wellen sind Wellen aus gekoppelten elektrischen und magnetischen Feldern, welche senkrecht zur Ausbreitungsrichtung im Raum stehen. Diese Wellen werden oft durch eine komplexe Darstellung des elektrischen Feldes (E-Feldes) beschrieben, wobei es sich um reelle Felder handelt und diese Darstellung der Vereinfachung dient. Um Laserpulse mathematisch einfach beschreiben zu können, wird lineare Polarisation angenommen, sodass die Vektoreigenschaften des Lichts vereinfacht werden. Zusätzlich wird der komplex konjugierte Term vernachlässigt. Ausführliche Beschreibungen sind zu finden in [7] und [8].

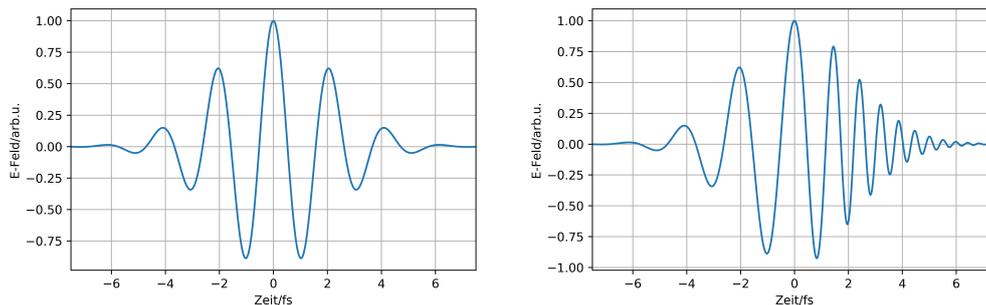


Abb. 2.1: a) Ungechirpeter Puls, b) Puls mit up-chirp ab $t=0$

Ein Laserpuls setzt sich zusammen aus einer schnellen Oszillation des E-Feldes in der Zeit und einer Einhüllenden, welche die Länge des Pulses bestimmt. Kombiniert man eine Oszillation des E-Feldes der Phase Φ und eine

Einhüllende ϵ , so erhalten wir:

$$E(t) = \epsilon(t)e^{i\Phi(t)}, \quad (2.1)$$

wobei ϵ beispielsweise ein Gauß oder ein sech²-Funktion darstellt und

$$\Phi(t) = \Phi_{CEP} + \omega_c t + ct^2 + \dots, \quad (2.2)$$

mit der Trägerfrequenz des Pulses ω_c . Die *carrier-envelope-phase* Φ_{CEP} gibt den Abstand zwischen dem Maximum der Einhüllenden zum nächsten Maximum der Trägerwelle an. Ist $\Phi_{CEP}=0$, so liegen die Maxima aufeinander und das maximale E-Feld des Pulses ist zugänglich. Die dritte Komponente der Phase gibt uns den Chirp des Pulses an, welcher für eine zeitliche Änderung des Frequenz sorgt. Die Frequenz der Oszillation

$$\omega(t) = \frac{d\Phi}{dt} = \omega_c + 2ct + \dots \quad (2.3)$$

ändert sich durch c also linear, wobei man bei $c > 0$ von einem *up-chirp* spricht, bei $c < 0$ von einem *down-chirp*.

Eine analoge Beschreibung von Laserpulsen lässt sich nicht wie oben im Zeit-, sondern auch im Frequenzraum durchführen. Man erhält die Frequenzdarstellung durch Fourier-Transformation des zeitlichen Pulses:

$$\tilde{E}(\omega) = \mathcal{F}\{E(t)\} = \int_{-\infty}^{\infty} E(t)e^{-i\omega t} dt = |\tilde{E}(\omega)|e^{i\Phi(\omega)}, \quad (2.4)$$

wobei $|\tilde{E}(\omega)|$ die spektrale Amplitude und $\Phi(\omega)$ die spektrale Phase darstellt. Aus der $\tilde{E}(\omega)$ erhält man durch die inverse Fourier-Transformation (\mathcal{F}^{-1}) wieder $E(t)$:

$$E(t) = \mathcal{F}^{-1}\{\tilde{E}(\omega)\} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega)e^{i\omega t} d\omega \quad (2.5)$$

Da die Zeit- und Frequenzdarstellung durch die Fouriertransformation direkt miteinander verknüpft sind, ist auch die Länge des Pulses, die wir aus dem Zeitverlauf erhalten, mit dem Spektrum im Frequenzraum verbunden. Definieren wir τ_p als das *Full Width at Half Maximum* (FWHM) des Quadrats der Einhüllenden $|E(t)|^2$ und $\Delta\omega_p$ als das FWHM der spektralen Intensität $|\tilde{E}(\omega)|^2$, so erhalten wir ein minimales Produkt der zwei Werte:

$$\Delta\omega_p \tau_p = 2\pi\nu_p \tau_p \geq 2\pi c_b, \quad (2.6)$$

wobei c_b eine numerische Konstante ist, welche von der Form der Einhüllenden abhängt. In Tabelle [2.1] sind die Werte c_b für unterschiedliche Einhüllende aufgeführt.

Form	$ E(t) ^2$	c_b
Gauss	$e^{-2(t/t_G)^2}$	0,441
Sech ²	$\cosh^{-2}(t/t_s)$	0,315
Lorentz	$[1 + (t/t_l)^2]^{-2}$	0,142

Tab. 2.1: Konstante c_b für unterschiedliche Pulsformen aus [7]

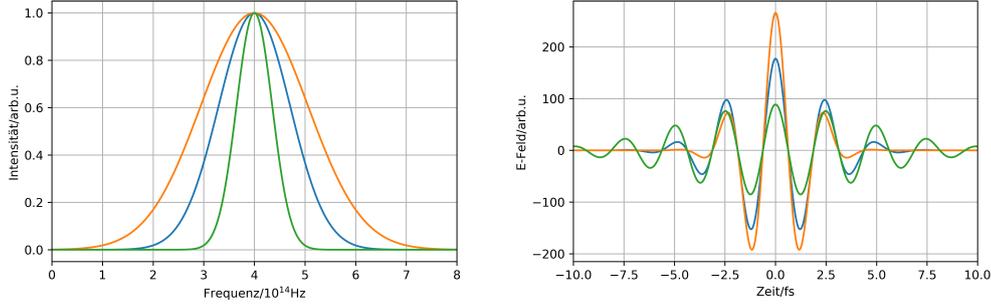


Abb. 2.2: Links: Gaußsche Spektren unterschiedlicher Breite, Rechts: Dazu-gehörige fourierlimitierte Pulse

Auch wenn für diese Ungleichung nicht direkt die Heisenbergsche Unschärferelation, sondern die mathematische Verknüpfung über die Fourier-Transformation verantwortlich ist, so kann man sich das Verhalten der Pulsdauer und der Spektrumsbreite durch die Energie-Zeit-Unschärferelation

$$\frac{1}{2} \leq \frac{\Delta E}{\hbar} \Delta t = \Delta \omega \Delta t \quad (2.7)$$

gut in Erinnerung behalten. In Abbildung [2.2] sind links drei Gauß-Spektren unterschiedlicher Breite zu sehen. Man sieht rechts, dass sich die Pulse verkürzen, je breiter das Spektrum wird, beziehungsweise verlängern, je schmäler das Spektrum ist. Der Puls entspricht einer Oszillation der zentralen Frequenz mit einer Gauß-Funktion als Einhüllender.

Liegt ein Spektrum vor, welches zu Pulsen gehört, die eine flache Phase besitzen, also $c = 0$ in Gleichung [2.2] und, so bleibt die Frequenz konstant und man kann die Pulslänge nach Gleichung [2.6] direkt aus der Breite des Spektrums berechnen oder das Spektrum fouriertransformieren und daraus die Länge des Pulses bestimmen. Solche Pulse nennt man *fouriertransform-limited* (FTL). Dies ist bei kurzen Laserpulsen in der Regel nicht der Fall, da meist durch verschiedenste Optiken immer ein Chirp auftritt, den man zwar minimieren, in der Praxis jedoch nicht komplett kompensieren kann. In diesem Fall sind die Gleichung [2.6] und das FWHM der Fouriertransformation nur eine minimale Abschätzung für die Pulslänge. Um mehr Information wie zum einen die Pulslänge zu erhalten, müssen zusätzliche Messaufbauten verwendet werden,

da nur durch die Messung des Spektrums keine Phaseninformation erhalten werden kann. Solche sind zum Beispiel das frequency-resolved optical gating (FROG) [9], die Dispersion-Scan Methode (D-Scan) [10] oder das Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction (SPIDER)[11]. In diesem Experiment wird ein D-Scan verwendet, welcher mithilfe einer Dispersionsvariation durch Glas und der resultierenden Änderung des Spektrums der in einem BBO-Kristall erzeugten zweiten Harmonischen(*second harmonics*) die spektrale Phase der Laserpulse ermitteln kann.

2.2 Hohe Harmonische

Im folgenden wird der Prozess der Hohen Harmonischen Erzeugung, welcher einen Zugang zur Attosekundenskala ermöglicht, erklärt, wobei vor allem auf den Prozess der Tunnelionisation, welcher für diese Arbeit von großer Bedeutung ist, eingegangen wird.

2.2.1 3-Stufen-Modell

Obwohl der Prozess der Hohen Harmonischen Erzeugung ein hochgradig nicht-linearer quantenmechanischer Prozess ist, kann man ihn gut mit einem 3-stufigen semiklassischen Model beschreiben[12, 13, 14]. Der erste Schritt ist die Ionisation des Mediums, welches zumeist ein Edelgas ist, aber auch mit Molekülen[15] wie H_2 ist dieser Prozess realisierbar. Die vorherrschende Ionisation ist die Tunnelionisation, auf welche im folgenden Abschnitt genauer eingegangen wird. Nachdem ein Elektronen nach dem Maximum des E-Felds eines Lasers das Atom oder Molekül verlässt, bestimmt das Laserfeld die Bewegung des Elektrons. Das Elektron wird durch das E-Feld beschleunigt und durch das sich umkehrende Laserfeld wird es zurück zu dem Atom geführt, wobei die maximale kinetische Energie, die das Elektron erhalten kann durch die Pondermotive Energie U_p ermittelt werden kann. Diese setzt sich folgendermaßen aus den Laserfeldeigenschaften zusammen:

$$U_p = \frac{q_e^2 E_0^2}{4m_e \omega_c} \quad (2.8)$$

wobei E_0 das maximale E-Feld und ω_c die zentrale Frequenz beschreibt. q_e und m_e sind Ladung und Masse des Elektrons.

Trifft das Elektron nun wieder auf das Atom, so kommt es zur Rekombination und es wird ein hochenergetisches Photon emittiert. Die Energie dieses Photons hängt nun von der kinetischen Energie des Elektrons bei der Rekombination als auch vom Ionisationspotentials I_p des Atoms ab. Für die Energie des Photons gilt:

$$\hbar\omega_{\text{Photon}} = n\omega_{\text{Laser}} \leq I_p + E_{\text{kin,max}} = I_p + 3,17U_p \quad (2.9)$$

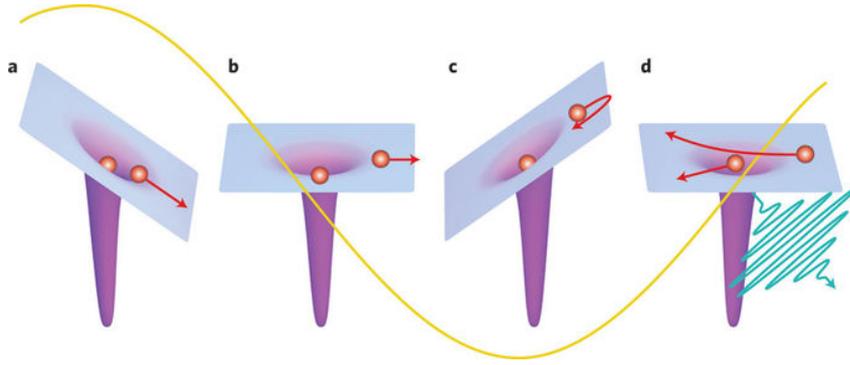


Abb. 2.3: Skizze des 3-Stufenmodells: a) Tunnelionisation durch Deformation des Potentials. b)+c) Umdrehen des Potentials und Rückkehr des Elektrons Richtung Atom. d) Rekombination und Emission eines XUV-Photons, entnommen aus [16].

2.2.2 Tunnelionisation

Befindet sich ein Atom (oder Molekül) in einem starken Laserfeld mit Spitzenintensität der Größenordnung $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$, so ist das E-Feld stark genug um das Coulomb-Potential des Atoms zu modifizieren (siehe Abbildung [2.3]), so dass zuvor gebundene Elektronen im veränderten Potential leichter ionisieren können. Quantenmechanisch lässt sich dies dadurch beschreiben, dass ein Teil der Wellenfunktion des Elektrons ins Kontinuum tunnelt, sodass diese Art der Ionisation Tunnelionisation genannt wird. Ein weiterer Prozess, der zu Ionisation in starken Laserfeldern führt, ist die Multi-Photon-Ionisation. Um das Ionisationspotential zu überwinden, werden mehrere Photonen absorbiert, so dass die Energie der absorbierten Photonen das Ionisationspotential übersteigt. Dabei wird das Potential nicht wie bei der Tunnelionisation verkippt. Ein guter Indikator dafür, ob man sich im Tunnelregime oder im Multi-Photon-Regime bewegt, ist der Keldysh-Parameter γ , der wie folgt definiert ist[17]:

$$\gamma = \omega \frac{\sqrt{2m_e I_p}}{e E_0}. \quad (2.10)$$

Für $\gamma < 1$ dominiert Tunnelionisation, für $\gamma > 1$ dominiert die Multi-Photon-Ionisation (englisch: *multi-photon ionisation*).

Theoretisch kann die Tunnelionisation gut durch das ADK-Modell beschrieben werden[5]. Für die Ionisationsrate R gilt

$$R = \omega_a \left(\frac{2e}{n^*} \right)^{2n^*} \frac{I_p}{2\pi n^*} f_{l,m} \left(\frac{2(2I_p)^{3/2}}{|E(t)|} \right)^{2n^* - |m| - 1} \exp \left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3|E(t)|} \right), \quad (2.11)$$

wobei $\omega_A = 4.134 \times 10^{16} \text{ Hz}$ die atomare Einheit der Frequenz in Hertz und n^* die effektive Quantenzahl ist. Dieses n^* ist durch die Wasserstoff-Ionisationsenergie E_H , die Ionisationsenergie des Gases I_p und Z , welches die Ladung des Ions

2.3. BLAUVERSCHIEBUNG IN PLASMA

nach dem Ionisationsschritt angibt ($Z=1$ für 1. Ionisation, bei der das erste Elektronen das Atom verlässt, usw.), wie folgt definiert:

$$n^* = Z \left(\frac{E_H}{I_p} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (2.12)$$

Für I_p und $|E(t)|$ müssen in [2.11] die Werte in atomaren Einheiten eingesetzt werden. Die atomare Einheit der Energie entspricht zweimal dem Ionisationspotential von atomarem Wasserstoff (1 a.u. = $2 \cdot 13.6 \text{ eV} = 27.2 \text{ eV}$). Der Koeffizient

$$f_{l,m} = \frac{(2l+1)(l+|m|)!}{2^{|m|}|m|!(l-|m|)!} \quad (2.13)$$

hängt nur von den Drehimpulsquantenzahlen l und m ab. In Tabelle [2.2] sind Werte für vier verschiedene Edelgase aufgeführt, wobei für Xenon sowohl die erste als auch die zweite Ionisationsschwelle angegeben ist.

In Abbildung [2.4] ist die numerische Ionisation von Helium, Neon und Argon durch einen 5 fs-langen Puls mit zentraler Energie von 1.6 eV aufgetragen. Das maximale E-Feld des Pulses beträgt 0.14 a.u., was einer Intensität von $I \approx 7 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ entspricht. Wie deutlich zu erkennen ist, unterscheiden sich die Ionisationswerte von Neon und Helium um ungefähr eine Größenordnung, obwohl deren Ionisationspotentiale einen Unterschied von nur 10% aufweisen. Ein ähnliches Bild ist beim Vergleich zwischen Argon und Neon zu erkennen. Dies soll verdeutlichen, dass die Tunnelionisation sehr stark von dem Ionisationspotential des Gases abhängt.

Gas	$I_p(\text{eV})$	$I_p(\text{a.u.})$	n^*
He	24,6	0,90	0,744
Ne	21,6	0,79	0,794
Ar	15,8	0,58	0,929
Xe I	12,1	0,44	1,059
Xe II	21,2	0,79	1,602

Tab. 2.2: Ionisationspotentiale in eV und atomaren Einheiten und effektive Quantenzahlen für verschiedene Edelgase. Werte für I_p aus [18].

2.3 Blauverschiebung in Plasma

Bei der Erzeugung der Harmonischen wird durch Tunnelionisation aufgrund des starken E-Feldes ein Teil des Gases ionisiert, sodass freie Elektronen im Gasstrahl erzeugt werden. Propagiert der NIR-Puls durch den Gasstrahl, so ändert sich über die ganze Pulsdauer die Menge des ionisierten Gases und damit die Anzahl der freien Elektronen. Die Dichte der freien Elektronen beeinflusst den Brechungsindex des Gasstrahls, was zu einer Blauverschiebung des Spektrums sorgt.

2.3. BLAUVERSCHIEBUNG IN PLASMA

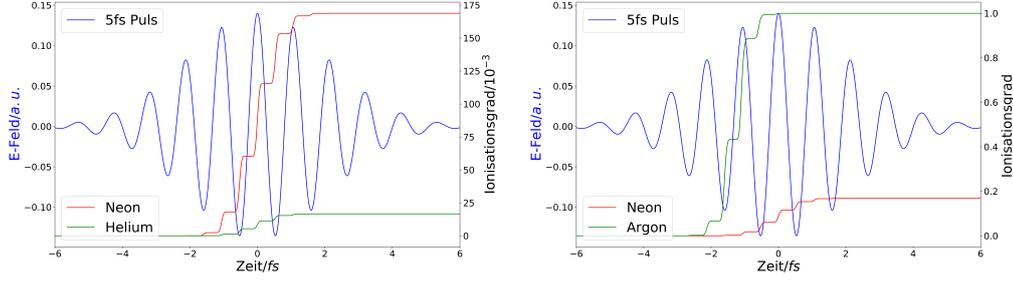


Abb. 2.4: Ionisation durch einen 5fs-Puls mit maximalem E-Feld von $E=0,14a.u.$; links: Vergleich Neon und Helium; rechts: Neon und Argon

2.3.1 Dispersionsrelation und Brechungsindex von Plasma

Um im folgenden Abschnitt die plasmainduzierte Wellenlängenänderung zu bestimmen, muss zuerst der Brechungsindex in Abhängigkeit der Dichte der freien Elektronen bestimmt werden. Dazu werden die Maxwellgleichungen sowie einige einfache Annahmen verwendet. Gegeben sind die zwei Maxwellgleichungen

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t}, \quad (2.14)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu_0 \vec{j} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (2.15)$$

und die Bewegungsgleichung der Elektronen unter der Annahme, dass keine externen Felder agieren,

$$\vec{F} = m \frac{\partial \vec{v}}{\partial t} = \frac{m}{en} \frac{\partial \vec{j}}{\partial t} = e \vec{E}, \quad (2.16)$$

wobei e, m und n die Ladung, Masse und Dichte der Elektronen sind und ϵ_0 und μ_0 die Permittivität und Permeabilität.

Mithilfe der Vektoridentität $\vec{\nabla} \times (\vec{\nabla} \times \vec{a}) = \vec{\nabla}(\vec{\nabla} \cdot \vec{a}) - \Delta \vec{a}$ und $\vec{\nabla} \cdot \vec{E} = 0$ lassen sich die Gleichungen [2.15] und [2.14] zu

$$\Delta \vec{E} = \frac{\partial}{\partial t} \left(\mu_0 \vec{j} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \right) \quad (2.17)$$

zusammenfassen.

Für das E-Feld gilt

$$\vec{E} = \vec{E}_0 \cdot e^{i\vec{k}\vec{x} - i\omega t}, \quad (2.18)$$

2.3. BLAUVERSCHIEBUNG IN PLASMA

sodass als Lösung für Gleichung [2.17] folgt

$$-k^2 = -\mu_0 \frac{ne^2}{m} - \omega^2 \mu_0 \epsilon_0 \leftrightarrow c^2 k^2 = \omega^2 - \frac{ne^2}{m\epsilon_0} = \omega^2 - \omega_p^2. \quad (2.19)$$

Dabei gilt $c = \frac{1}{\sqrt{\mu_0 \epsilon_0}}$ und $\omega_p = \frac{ne^2}{m\epsilon_0}$ ist die sogenannte Plasmafrequenz.

Der Brechungsindex lässt sich aus der Dispersionsrelation [2.19] bestimmen.

$$N = \frac{c}{v_{phase}} = c \cdot \left(\frac{\omega}{k}\right)^{-1} = \sqrt{1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}} = \sqrt{1 - \frac{n}{N_{crit}}} \quad (2.20)$$

wobei $N_{crit} = \frac{\omega_p^2 m \epsilon_0}{e^2}$ die kritische Dichte ist, bei welcher der Brechungsindex verschwindet. Eine ausführliche Herleitung findet man in [19].

2.3.2 Blauverschiebung durch Veränderung des Brechungsindex

Aus dem zuvor ermittelten Brechungsindex [2.20] lässt sich die Verschiebung der Wellenlänge berechnen. Die Wellenlängenänderung für einen bestimmten spektralen Anteil der Wellenlänge λ_0 ist nach [20] gegeben durch

$$\Delta\lambda = \frac{\lambda_0 L}{c} \frac{\partial N}{\partial t} \quad (2.21)$$

mit der Länge L , welche das Licht durch das ionisierte Gas zurücklegt. Setzt man in Gleichung [2.21] den Brechungsindex [2.20] aus dem vorherigen Abschnitt ein, so erhält man

$$\Delta\lambda_0 = \frac{\lambda_0 L}{c} \frac{\partial}{\partial t} \left(1 - \frac{n}{N_{crit}}\right)^{\frac{1}{2}} = -\frac{1}{2} \frac{\lambda_0 L}{c} \frac{1}{N_{crit}} \frac{\partial n}{\partial t} \cdot \underbrace{\left(1 - \frac{n}{N_{crit}}\right)^{-\frac{1}{2}}}_{\approx 1} \quad (2.22)$$

als die Wellenlängenänderung. Im folgenden wird angenommen, dass im Experiment die Elektronendichte deutlich unter der kritischen Dichte liegt, sodass wir den letzten Term der Gleichung [2.22] vernachlässigen.

Somit erhalten wir als endgültige Formel

$$\Delta\lambda = -\frac{\lambda_0^3 L e^2}{8\pi^2 c^3 \epsilon_0 m} \frac{\partial n}{\partial t}, \quad (2.23)$$

wobei als N_{crit} die zuvor eingeführte kritische Dichte eingesetzt wird.

2.3.3 Verschiebung während Erzeugung Hoher Harmonischer

Die zuvor erläuterte Blauverschiebung findet durch den Tunnelionisation-Schritt des 3-Stufen-Modells statt, sodass die Pulse zur Erzeugung Hoher Harmonischer blauverschoben werden. Wie sich später in dieser Arbeit zeigt, kann dieser Effekt sehr deutlich ausfallen. Auch die Harmonischen können in der Theorie eine derartige Blauverschiebung erfahren, welche jedoch in der Praxis deutlich geringer ist, da die λ^3 -Abhängigkeit die Blauverschiebung im Vergleich zur Verschiebung des Laserspektrums deutlich verringert. Allerdings wird trotzdem eine Blauverschiebung des Harmonischenspektrums beobachtet, da Harmonische ebenfalls durch die bereits blauverschobenen Anteile des Laserspektrums erzeugt werden können. Ausführlich wird das Verhalten der Harmonischen in [21] untersucht.

3 Simulation zur Blauverschiebung

Im folgenden Kapitel wird die Simulation erklärt, welche die Blauverschiebung des Spektrums der Pulse mit den gemessenen Ergebnissen beschreiben soll. Die gesamte Simulation wurde mit Python programmiert.

3.1 Rate der Tunnelionisation aus ADK-Formel

Am Anfang der Simulation steht die Erzeugung eines Pulses mit vorgegebenen Parametern, wie die Pulsdauer und das Maximum des E-Feldes. Die Einhüllende wird durch eine Gaußfunktion beschrieben. Um nun aus diesem Puls die zeitabhängige Tunnelionisationsrate zu bestimmen, wird die Gleichung [2.11] verwendet, wobei für $|E(t)|$ der Betrag des erzeugten Pulses und je nach Gas die zugehörigen Werte für die Ionisationsenergie I_p und effektive Quantenzahl n^* eingesetzt werden (siehe [2.2]).

In Abbildung [3.1] sieht man, dass die Ionisationsrate jeden halben Pulszyklus an den Maxima und Minima des E-Feldes ein Maximum aufweist. Aus dieser Rate lässt sich nun einfach der Anteil des einfach ionisierten Gases N bestimmen, indem man die Zeitschritte Δt des Pulses durchläuft. Setzt man den Anfang des Pulses $t_0=0$ und $N(t=0)=0$, so gilt:

$$N(t) = (1 - N(t - \Delta t)) \cdot \Delta t R_i(t) \quad (3.1)$$

Allgemein gilt für die Änderung des Anteils des Gases in einem bestimmten Ionisationszustand N_i folgende Differentialgleichung [20]:

$$\frac{dN_i}{dt} = R_{i-1}N_{i-1} - R_iN_i \quad (3.2)$$

Dies ist wichtig, da in Argon und vor allem in Xenon die Ionisation des ersten in den zweiten Ionisationszustand eine wichtige Rolle spielt. Die Ionisationsrate aller Ionisationszustände ergibt sich aus

$$R_{total}(t) = N_0(t)R_0(t) + N_1(t)R_1(t) + \dots \quad (3.3)$$

Ein weiterer Prozess, welcher zu Ionisation führt ist, ist die Kollisions-Ionisation. Durch das Laserfeld werden die freien Elektronen beschleunigt und sind so in der Lage durch Kollision mit einem Atom weitere Elektronen auszuschlagen.

3.2. VERSCHIEBUNG DES SPEKTRUMS DURCH ZEITLICHE AUFSPALTUNG

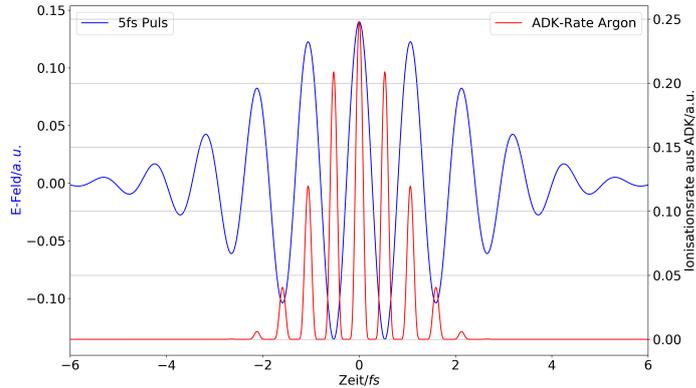


Abb. 3.1: Ionisationsrate für Argon durch 5fs Puls mit maximalem E-Feld von $E=0.14$ a.u.

Definiert man wie in [6] eine Kollisionszeit $\tau = (N_e \sigma \bar{v})^{-1}$ mit der Elektronendichte N_e , dem Wirkungsquerschnitt σ und der mittleren Elektronengeschwindigkeit \bar{v} , so kann man durch Vergleich mit der Pulslänge Aussagen über die Relevanz dieses Prozesses vornehmen. \bar{v} lässt sich mit dem pondermotiven Potential des verwendeten Laserfeldes und N_e mit dem angelegten Druck abschätzen und der Wirkungsquerschnitt lässt sich aus [22] entnehmen. Setzt man nun Werte für das verwendete Lasersystem in diesem Experiment ein, so erhält man für τ eine Größenordnung von einigen 100 Femtosekunden. Aufgrund der Länge dieser abgeschätzten Kollisionszeit wird die Kollisionsionisation in dieser Simulation vernachlässigt, da die im Experiment vorliegenden Pulse von rund 5 fs deutlich kürzer sind.

3.2 Verschiebung des Spektrums durch zeitliche Aufspaltung

Um die Verschiebung des Spektrums nun zu simulieren, wird die in den Grundlagen hergeleitete Formel [2.23] verwendet, welche uns die Wellenlängenverschiebung einer bestimmten zentralen Wellenlänge λ_0 angibt. Um die in der Formel enthaltene Änderung der freien Elektronendichte n zu bestimmen, wird die in der vorherigen Sektion eingeführte Ionisationsrate [3.3] mit der gesamten Atomdichte multipliziert. Diese wird aus der idealen Gasgleichung abgeschätzt:

$$N_{\text{Atom}} = \frac{p}{kT}, \quad (3.4)$$

wobei p der angelegte Gasdruck, k die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur ist, welche als die Raumtemperatur $T = 293$ K, angenommen wird. In

3.2. VERSCHIEBUNG DES SPEKTRUMS DURCH ZEITLICHE AUFSPALTUNG

der Simulation werden nun Gaußspektren der Form

$$f(\lambda) = A \cdot \exp \left[- \left(\frac{\lambda - \lambda_0}{w} \right)^2 \right] \quad (3.5)$$

verwendet, wobei A die Amplitude, w die Breite und λ_0 die zentrale Wellenlänge ist. Die zentrale Wellenlänge des Gaußspektrums $\lambda_{0,i}$ kann nun mit den Gleichungen [2.23] und [3.4] wie folgt verschoben werden:

$$\lambda_{0,b} = \lambda_{0,i} + \Delta\lambda. \quad (3.6)$$

Die in der Simulation verwendete zeitliche Wellenlängenänderung ergibt sich aus den Formeln [2.23],[3.3] und [3.4] zu

$$\Delta\lambda(t) = - \frac{\lambda_0^3 L e^2 p}{8\pi^2 k T c^3 \epsilon_0 m} R_{tot}(t). \quad (3.7)$$

Um nun die gesamte Verschiebung während eines Pulses zu bestimmen, wird der Puls in kleinen Zeitschritten durchfahren. Befindet man sich an einem Zeitpunkt, an dem die Ionisationsrate $R_{tot}=0$ ist, so kommt es zu keiner Verschiebung und das Spektrum zu diesem Zeitpunkt bleibt unverschoben. Betrachtet man Abbildung [3.1], so findet die Verschiebung während der Maxima der ADK-Rate statt, wobei die Wert der Verschiebung proportional zur Ionisationsrate ist. Zu erwarten ist also ein Spektrum, welches zum einen Teil noch charakteristische Merkmale wie Peaks und Dips des Eingangsspektrums aufweist, zum anderen Teil neue Bereiche zu kürzerer Wellenlängen, welche auf der Blauverschiebung im erzeugten Plasma basieren. Durch Summieren der Spektren der Zeitintervalle erhält man also das zu erwartende Spektrum.

4 Experimenteller Aufbau und Spektrometerprogramm

4.1 Aufbau der Beamline

Im folgenden Abschnitt wird zunächst das Lasersystem beschrieben, um einen Einblick in die Erzeugung von kurzen fs-Pulsen zu erhalten und das Spektrum dieses Pulses besser verstehen zu können. Danach wird der Experimentaufbau präsentiert, wobei die Erzeugung der Harmonischen und damit die Blauverschiebung des Spektrums von großer Bedeutung sind.

4.1.1 Pulserzeugung

Am Anfang der Pulserzeugung steht der FemtopowerTM HR/HE CEP der Firma Femtolasers GmbH. Dieser besteht aus einem Oszillator-Laser, welcher bereits sub-10 fs Pulse bei einer Repetitionsrate von 75MHz liefert. Um diese schwachen Pulse mit Energien im nJ-Bereich zu verstärken, wird ein CPA(*chirped-pulse amplifier*) verwendet. Im CPA müssen die Pulse zunächst zeitlich auf einige Pikosekunden verlängert werden, um später im Verstärkungsprozess keine Schäden im Verstärkermedium aufgrund zu hoher Spitzenintensitäten hervorzurufen. Das von dem DM-50 Pump laser von Photonic Industries gepumpte Verstärkermedium besteht ebenfalls wie das Medium des zuvor genannten Oszillators aus einem Titan-dotierten Saphir-Kristall(Ti:Al₂O₃). Der Puls durchläuft den Kristall zehn mal und wird danach komprimiert, sodass die Pulse bei einer niedrigeren Rate von 3MHz nun eine Länge von unter 20fs und eine Energie von 3mJ besitzen.

Um noch kürzere Pulse zu erhalten, muss das Spektrum der Pulse noch weiter verbreitert werden. Dazu leitet man die Pulse durch eine 1m lange Hohl faser, welche an einem Ende mit ungefähr 3bar Helium gefüllt wird und am anderen Ende abgepumpt wird, wodurch auf der Länge der Faser ein Druckgradient entsteht. Propagiert ein Puls durch die Faser, verbreitert sich das Spektrum durch die sogenannte Selbstphasenmodulation(englisch: *self-phase modulation*, SPM). Da bei diesem Vorgang der Puls gestreckt wird, wird er hinter der Faser durch geschirpte Spiegel (*chirped mirrors*) wieder komprimiert, sodass die Pulse kürzer als 5fs sind. Um den Puls, der nun im Experiment verwendet wird, zu charakterisieren, wird ein D-Scan verwendet. Weitere Informationen dazu findet man in[23]. Im folgenden wird dieser Puls als NIR(*near-infrared*)

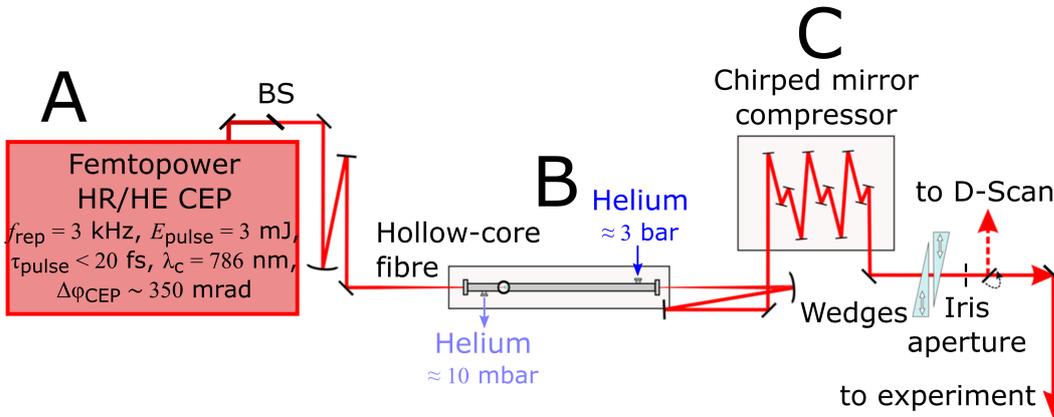


Abb. 4.1: Skizze per Pulserzeugung: A) FemtopowerTM HR/HE CEP; B) Hohl-faser gefüllt mit Helium; C) Chirped mirror compressor; Skizze entnommen aus [4] und bearbeitet.

bezeichnet.

4.1.2 Experiment

Um Hohe Harmonische zu erzeugen, wird der NIR mittels eines 50mm-Fokussierspiegels durch ein Einkoppelfenster in die HHG-Kammer fokussiert. Mit einem beweglichen Verfahrsockel lässt sich ein Macor-Röhrchen mit einem Loch von 200 μm Durchmesser in den NIR-Strahl positionieren. In dem Röhrchen mit einem Innendurchmesser von 2 mm lassen sich nun verschiedene Edelgase bei variablem Druck anlegen, sodass innerhalb des Röhrchens Hohe Harmonische erzeugt werden. Die Harmonischen werden nun als XUV (*extrem ultra-violet*) bezeichnet.

Die erste motorisierte Iris in der Beamline kann durch Variation der Öffnung einen Teil des NIR ausschneiden und so die NIR-Intensität in der Targetkammer steuern. Der kurzwelligere XUV bleibt aufgrund der deutlich geringeren Divergenz unbeeinflusst. Ein variables Spiegelpaar (*split mirror*) sorgt dafür, dass man den Zeitversatz zwischen NIR und XUV kontrollieren kann, was wichtig für Pump-Probe-Experimente ist. Um die zwei Pulse in die Targetkammer zu refokussieren, wird ein Toroidspiegel verwendet. In der Targetkammer kann durch eine kleine Düse Gas in den Strahlengang gepumpt werden, um die Absorptionseigenschaften dieser Gase zu untersuchen. Hinter der Targetzelle befindet sich die im Umfang dieser Arbeit entworfene Iris-Faser-Halterung, welche zum einen den restlichen NIR ausschneidet, zum anderen zur Referenzmessung genutzt werden kann (siehe [4.2]). Um die gewünschten Effekte innerhalb des Gases zu untersuchen, wird zuletzt der XUV mittels eines XUV-Gitters auf eine CCD-Kamera gestreut.

4.2. KONSTRUIERTE FASER-IRIS-HALTERUNG

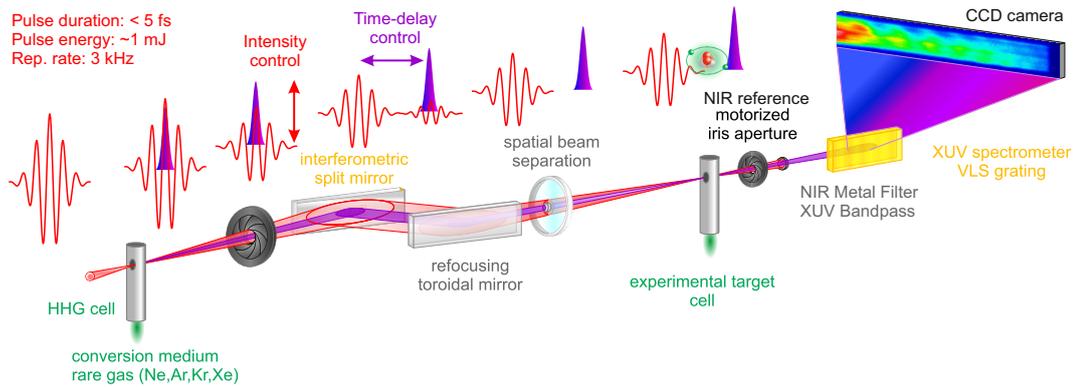


Abb. 4.2: Aufbau der Beamline: Nachdem die XUV-Pulse erzeugt werden, kann man mit der ersten Iris und dem Spiegelpaar die Intensität des NIR und den Zeitversatz zwischen NIR und XUV kontrollieren. Innerhalb der Targetkammer befindet sich die Targetzelle zur Einspritzung des Gases und die konstruierte Iris-Faser-Halterung. Zuletzt kann das Spektrum des XUV mittels eines Gitters und einer CCD-Kamera aufgenommen werden. Die Abbildung wurde entnommen aus [24].

4.2 Konstruierte Faser-Iris-Halterung

Um das Spektrum hinter der Target-Zelle zu ermitteln, muss ein Aufbau konstruiert werden, welcher noch hinter den bewegliche Verfahrsocket der Targetzelle gestellt werden kann und diesen in seiner Beweglichkeit nicht einschränkt. Eine weitere Anforderung ist, dass der Aufbau auch für Vakuum geeignet ist, da der Druck in der Targetkammer bei eingeschalteten Turbopumpen im Bereich 10^{-7} bis 10^{-8} mbar liegt und so Teile verbaut werden sollten, welche nicht zu stark ausgasen und so das Vakuum negativ beeinflussen oder Optiken beschädigen. Damit ein Spektrum aufgenommen werden kann, wird eine Iris als Reflektor benutzt, welche auf einen elektronisch steuerbaren Rotationssockel basierend auf einem Piezo-Motor angebracht wird, sodass man die Öffnung der Iris auch noch bei geschlossener Kammer und Vakuum variieren kann. Bei der verbauten Iris handelt es sich um eine *zero-aperture*-Iris, welche, wie der Name schon sagt, komplett geschlossen werden kann, sodass man bei geschlossener Iris das gesamte Spektrum des NIR aufnehmen kann. Da fokussiertes Licht höherer Wellenlänge nach Durchlaufen des Fokus stärker divergiert als Licht kürzerer Wellenlänge, ist eine geschlossene Iris für eine genaue NIR-Untersuchung von Vorteil.

Um das reflektierte Licht der Iris einfangen zu können, ist es nötig, eine Faser auf die Iris auszurichten. Dafür wird ein vakuum-kompatibler Spiegelhal-

4.2. KONSTRUIERTE FASER-IRIS-HALTERUNG

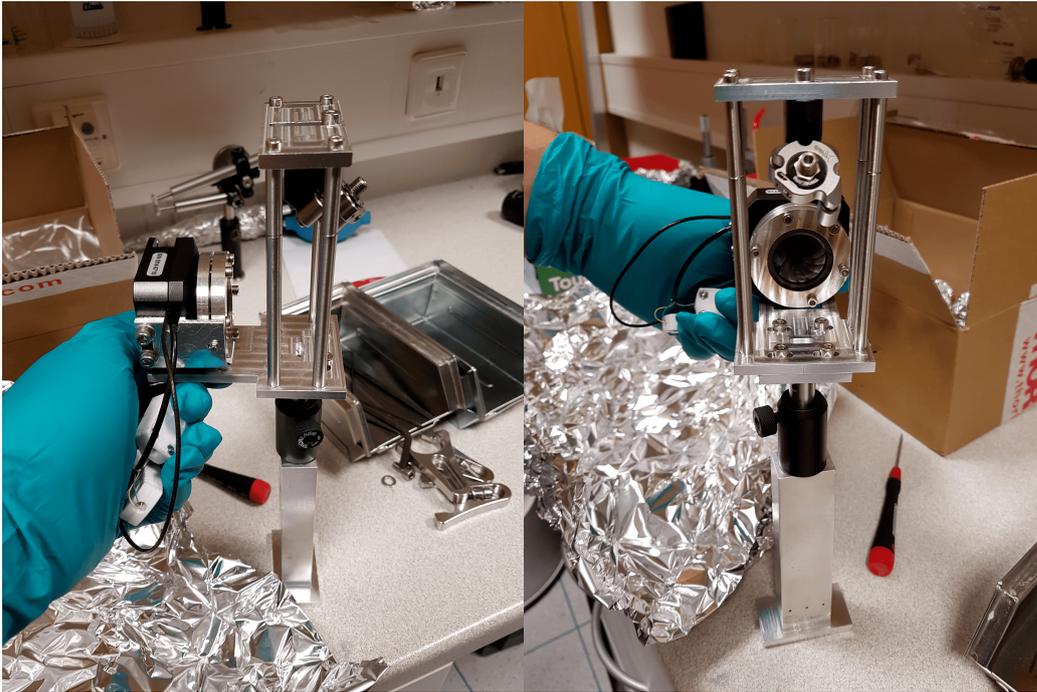


Abb. 4.3: Iris-Faser-Halterung außerhalb der Kammer: der Spiegelhalter zeigt auf die Mitte der Iris, welche auf einem motorisierten Rotationssockel angebracht ist

ter(Thorlabs Polaris) verwendet, in welchen ein Anschluss für gewöhnliche optische Fasern gespannt wird. In Abbildung [4.3] ist der Aufbau zu sehen. Um zu gewährleisten, dass man die Iris auf die Höhe des Strahls bringen kann, steht der Aufbau auf einem höhenverstellbaren Stabhalter (post-holder), der auf einem massiven Aluminiumblock steht. Der Aluminiumblock wurde, genau wie alle Aluminiumplatten, mit der Software Solid Edge entworfen und besitzt am unteren Ende eine 6mm dicke Platte, an der man den Aufbau mit Schrauben in der Kammer befestigen kann. Als Faser dient eine maßgefertigte Faser der Firma Ocean Optics, welche für die Verwendung in Vakuum geeignet ist. Mithilfe einer Faserdurchführung der Firma Ocean Optics, welche an einen Seitenflansch der Kammer angebracht wird, ist es möglich ein Spektrometer direkt anzuschließen und das Spektrum aufzunehmen.

In Abbildung [4.4] sieht man die Target-Kammer mit eingebauter Iris-Faser-Halterung. Man sieht zum einen die angeschraubte Faser auf die Iris zeigend, zum anderen sieht man an der Rückseite des Aufbaus die Stromkabel, die die Iris mit einem Durchführflansch verbindet, sodass die Steuerbox der Rotationssockel angeschlossen werden kann.

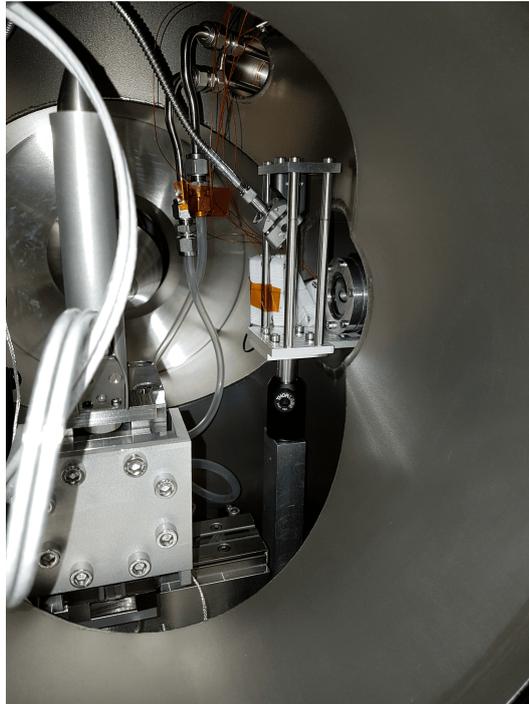


Abb. 4.4: Eingebaute Iris-Faser-Halterung: die Faser ist im Spiegelhalter fixiert und fängt gestreutes Licht der Iris ein

4.3 Labview-Programm für Ocean-Optics-Spektrometer

Für die Aufnahme der Spektren werden in dieser Arbeit Spektrometer der Firma Ocean Optics verwendet. Dazu wird ein LabView-Programm verwendet, welches auf beliebige Ocean Optics Spektrometer zugreifen kann und deren Parameter wie die Integrationszeit, die *boxcar width*, welche die *counts* mehrerer Pixel mittelt, und die Anzahl der Aufnahmen, die zu einem Spektrum gemittelt wird, kontrollieren kann.

Auf dem *frontpanel* des Programms werden verschiedene Graphen angezeigt, wie z.B das Wellenlängenspektrum, das Energiespektrum und die Fouriertransformierte des Frequenzspektrums, welches die ungefähre Form des zeitlichen Laserpulses ausgibt. Des weiteren werden die Halbwertsbreiten (englisch: *full width at half maximum*, FWHM) des Wellenlängen und des Energiespektrums ausgegeben, sowie aus der Fouriertransformierten die Bandbreitenbegrenzung (*fourier transform limit*, FTL) (siehe [2.6]) bestimmt, welches als Indikator für die Länge des NIR-Pulses dient.

Zudem lassen sich die aufgenommenen Spektren direkt speichern und bei Bedarf kann jedes zuvor gespeicherte Spektrum als Referenz in den Graphen angezeigt werden, sowie das aktuell angezeigte Spektrum direkt als Referenz gespeichert werden. So lassen sich Veränderungen im Spektrum leicht beob-

4.3. LABVIEW-PROGRAMM FÜR OCEAN-OPTICS-SPEKTROMETER

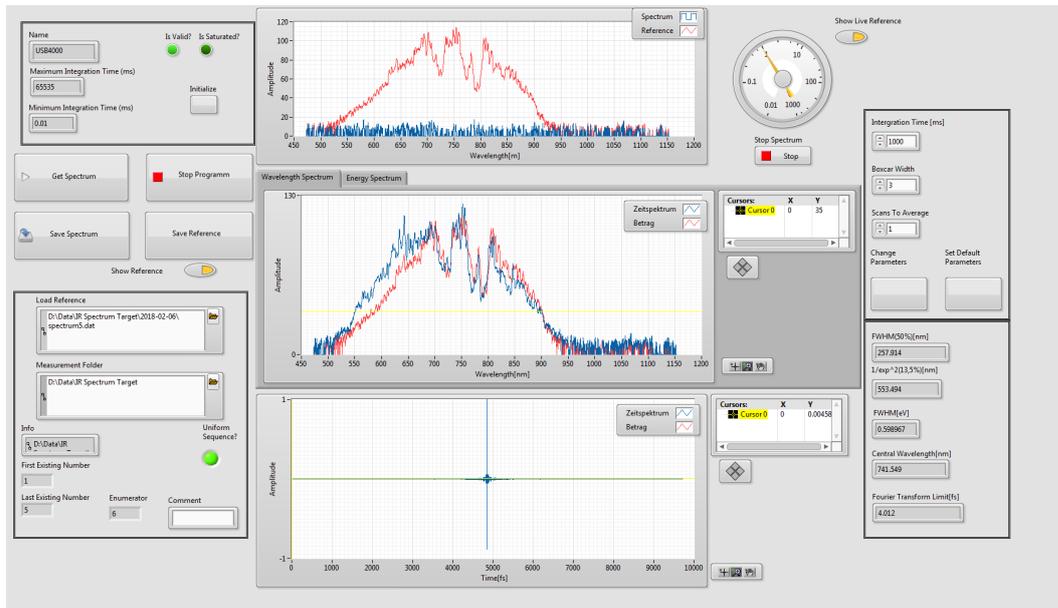


Abb. 4.5: Frontpanel des Spektrometerprogramms

achten und die Reproduzierbarkeit durch Vergleich mit zuvor aufgenommenen Spektren ist gewährleistet.

5 Ergebnisse

Im folgenden Kapitel werden die Ergebnisse dieser Arbeit präsentiert. Zunächst werden kurz die Eigenschaften des verwendeten Pulses analysiert, dessen Parameter in die Simulation eingehen. Dann werden die gemessenen Spektren mit den simulierten Spektren diskutiert.

5.1 Pulseigenschaften

Zunächst wurde ein D-Scans des Laserpulses durchgeführt, um dessen zeitliche Länge zu bestimmen [23]. Die Pulslänge τ_p betrug 4.8 fs mit einem FTL von 3.7 fs. Daran sieht man wieder, dass sich die Pulslänge aufgrund nicht-linearer Effekte nicht genau durch Fouriertransformation des Spektrums bestimmen lässt. Des weiteren wurde die Leistung des Lasers bestimmt, wozu ein Powermeter der Firma Thorlabs verwendet wurde. Dieses wurde vor dem Fokussierspiegel, welchen den Laser zur Harmonischen-Erzeugung fokussiert, platziert. Gemessen wurde eine Leistung von $P = 2.03$ W. Zusammen mit der Repititionsrate des Lasers ν_{rep} von 3kHz erhält man also eine Pulsenergie von ungefähr 0,67mJ. Mithilfe eines Beamprofilers, welcher an die selbe Stelle in Strahlrichtung platziert wurde, an welcher auch die Harmonischen erzeugt werden, konnte der Fokus ermittelt werden. Im Fokus ist die Laserintensität am größten und dadurch auch die erwartete Rate der Tunnelionisation. In Abbildung [5.1] sieht man das Profil des Lasers an der Stelle, an welcher der Strahltaile am kleinsten war. Die Strahltaile des Pulses wird durch die Stelle in der Ebene des Fokuses definiert, an der die Intensität auf $\frac{1}{e^2} \approx 13,5\%$ der maximalen Intensität abfällt. In unserem Fall betrug die durchschnittliche Strahltaile $w = 101,8\mu\text{m}$. Mithilfe dieser 3 gemessenen Werte lässt sich nun die Intensität berechnen. Für ein gaußisches Profil gilt für die Spitzenintensität I_p folgendes:

$$I_p = \frac{2P_p}{\pi w^2}, \quad (5.1)$$

wobei P_p die Spitzenleistung und w die zuvor erklärte Strahltaile ist. Die Spitzenleistung P_p lässt sich wie folgt aus den gemessenen Werten berechnen:

$$P_p = 0,94 \cdot \frac{E_p}{\tau_p} = 0,94 \cdot \frac{P}{\nu_{rep}\tau_p}. \quad (5.2)$$

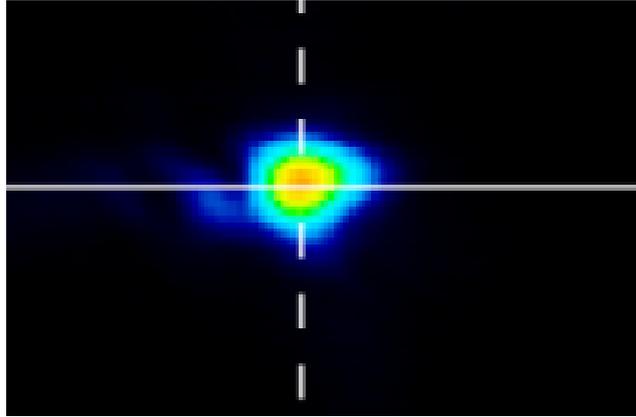


Abb. 5.1: Räumliches Profil des Lasers an der Stelle, an welcher die Breite minimal wird. x-Achse und y-Achse sind die zwei Raumrichtungen senkrecht zum Laser. Aufgenommen wurde das Intensitätsprofil mit einem Beamprofiler, welcher an die Position des HHG-Zelle platziert wurde.

Der Faktor 0,94 ist ein numerischer Wert, welcher für Pulse mit gaußischem Profil gilt. Schließlich lässt sich die Spitzenintensität mit

$$I_p = \frac{1,88 \cdot P}{\pi w^2 \nu_{rep} \tau_p} \approx 8,2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2} \quad (5.3)$$

berechnen. Die mit unseren Werten ermittelte Intensität $I_p = 8.2 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ist äquivalent zu einem maximalen E-Feld von $E = 0.15 \text{ a.u.}$. Da die Harmonischen nicht alle exakt im Fokus erzeugt werden, da das HHG-Röhrchen eine Länge von 2 mm hat, wird in der Simulation nicht der Wert von $E = 0.15 \text{ a.u.}$, sondern ein Wert von $E = 0.14 \text{ a.u.}$ angenommen, welcher als gemittelter E-Feld Wert angesehen wird. Weitere Gründe für die Annahme eines geringeren E-Feld bzw. Intensität sind der 500 mm-Fokussierspiegel, dessen Reflektivität nicht bei 100% liegt, sondern eher im Bereich zwischen 90 und 98%, und das Einkoppelfenster in die HHG-Kammer. Dieses steht im Brewsterwinkel, bei welchem die Reflektivität bei einer bestimmten Polarisierung des Strahls verschwindet, jedoch kann man nicht von perfekter Transmission ausgehen.

In Abbildung [5.2] ist das Spektrum des Lasers bei der D-Scan-Messung und das von der Iris gestreuten und mit der Faser eingefangenen Spektrum in der Targetkammer aufgetragen. Um die Unterschiede der Spektren deutlich zu machen, wurde der Untergrund nicht abgezogen, sondern nur auf den markanten Peak bei $\lambda \approx 780 \text{ nm}$ normiert. Wie zu erkennen ist, weist das Spektrum, gemessen in der Targetkammer, ein deutlich höheres Rauschen auf und der Untergrund ist im Vergleich zum D-Scan-Spektrum aufgrund der höheren Integrationszeit ebenfalls deutlich höher. Des weiteren erkennt man, dass vor allem im Bereich zwischen 800 und 900 nm die Spektren sich deutlich unter-

5.1. PULSEIGENSCHAFTEN

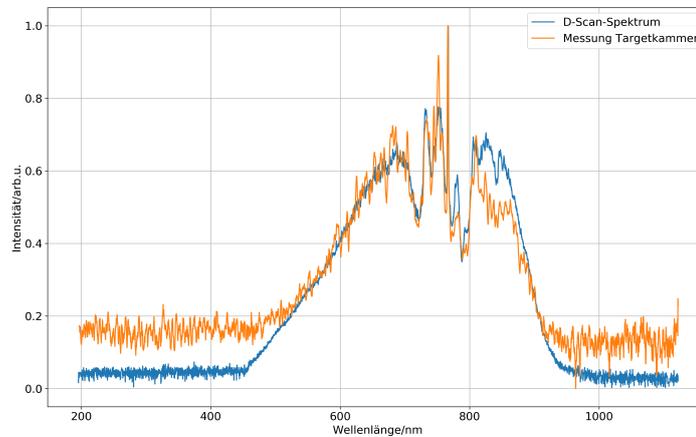


Abb. 5.2: Vergleich des Laserspektrums gemessen beim D-Scan und mit dem gestreuten Licht der Iris in der Targetkammer.

scheiden und dieser Unterschied nicht mit dem hohen Rauschen erklärt werden kann. Mögliche Gründe dafür könnten eine andere Reflektivität der Iris im Vergleich zum Diffuser im D-Scan-Aufbau sein, als auch ein Unterschied der Transmission der Fasern zu dem Spektrometer, welches bei beiden Messungen das Ocean-Optics-Spektrometer HR4000 war.

Wie beschrieben basiert die Simulation darauf, dass Gaußverteilungen spektral verschoben werden. Obwohl also das Spektrum des D-Scans ein rauschärmeres ist und dessen Untergrund im Vergleich zum Untergrund des Targetkammer-Spektrums einen deutlich kleineren hat, wird zur Simulation das Targetkammer-Spektrum verwendet, um die Ergebnisse der Simulation besser mit den verschobenen Spektren in der Targetkammer vergleichen zu können.

In Abbildung [5.3] sieht man das gemessene Referenzspektrum in der Targetkammer zusammen mit dem Spektrum, welches für die Simulation verwendet wird. Dieses setzt sich zusammen aus 3 überlagerten Gaußspektren, deren Form durch Fits ermittelt wurden. In Tabelle [5.1] sind die Parameter der Gaußspektren nach Formel[3.5] angegeben.

Spektrum	λ_0 [nm]	w[nm]	A
1	676	109	32
2	751	17	19
3	839	53	24

Tab. 5.1: Parameter der drei Gaußspektren, welche addiert das gemessene Spektrum darstellen.

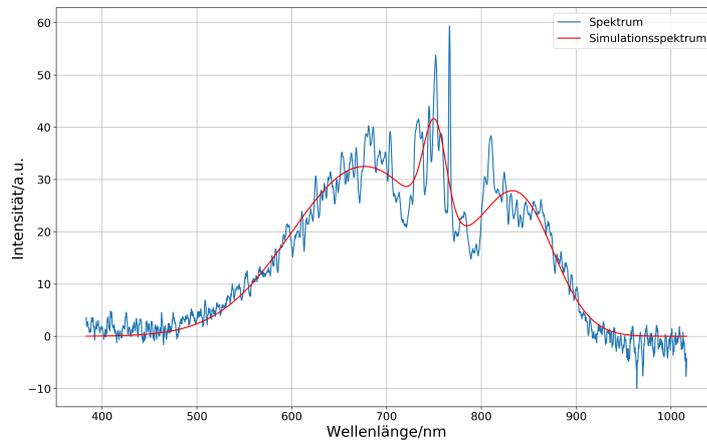


Abb. 5.3: Das gemessene Spektrum ohne HHG-Gas wird in der Simulation durch ein Spektrum, welches sich aus 3 Gaußverteilungen zusammensetzt, repräsentiert.

5.2 Blauverschiebung in Argon

Um die Blauverschiebung bei der Hohen Harmonischen-Erzeugung zu untersuchen, wurde zunächst Argon als Erzeugendenmedium verwendet. Mithilfe eines Drehventils konnte nun Argon in die HHG-Zelle geleitet werden und der Druck variiert werden. Bei der Druckmessung war darauf zu achten, dass der Laser vor dem Einkoppeln in die HHG-Kammer geblockt wird, da durch die hohe Laserintensität die Temperatur stieg und so ein höherer Druck angezeigt wurde, welche nicht direkt mit der Argondichte über die ideale Gasgleichung verknüpft war.

In Abbildung [5.4] sind nun für Drücke von 14mbar, 34mbar und 100 mbar die gemessenen Spektren aufgetragen. Um die Blauverschiebung des Spektrums besser zu erkennen, ist jeweils das unveränderte Spektrum ohne Gas als Referenz zusätzlich aufgetragen. Zu jedem Druck sind zusätzlich die Ergebnisse der Simulation zu sehen. Wie deutlich zu sehen ist, entsteht mit zunehmendem Druck eine Schulter bei kürzeren Wellenlängen. Dies ist damit zu erklären, dass mit zunehmendem Druck die Gasdichte steigt und durch den Puls mehr Elektronen ionisiert werden, was zu einer erhöhten Änderung der freien Elektronendichte und damit nach [2.23] zu einer größeren Wellenlängenverschiebung führt. Des Weiteren ist zu erkennen, dass das restliche Spektrum noch die Merkmale des Eingangsspektrums aufweist. Dies spricht dafür, dass die Ionisation durch Kollision stark unterdrückt ist im Vergleich zur Tunnelionisation, was mit einer zu niedrigen Anzahl an freien Elektronen und einer zu niedrigen Beschleunigung dieser im Laserfeld zu erklären ist. Würde dieser Effekt eine größere Rolle spielen, so wären die markanten Peaks, Dips und Kanten kon-

5.2. BLAUVERSCHIEBUNG IN ARGON

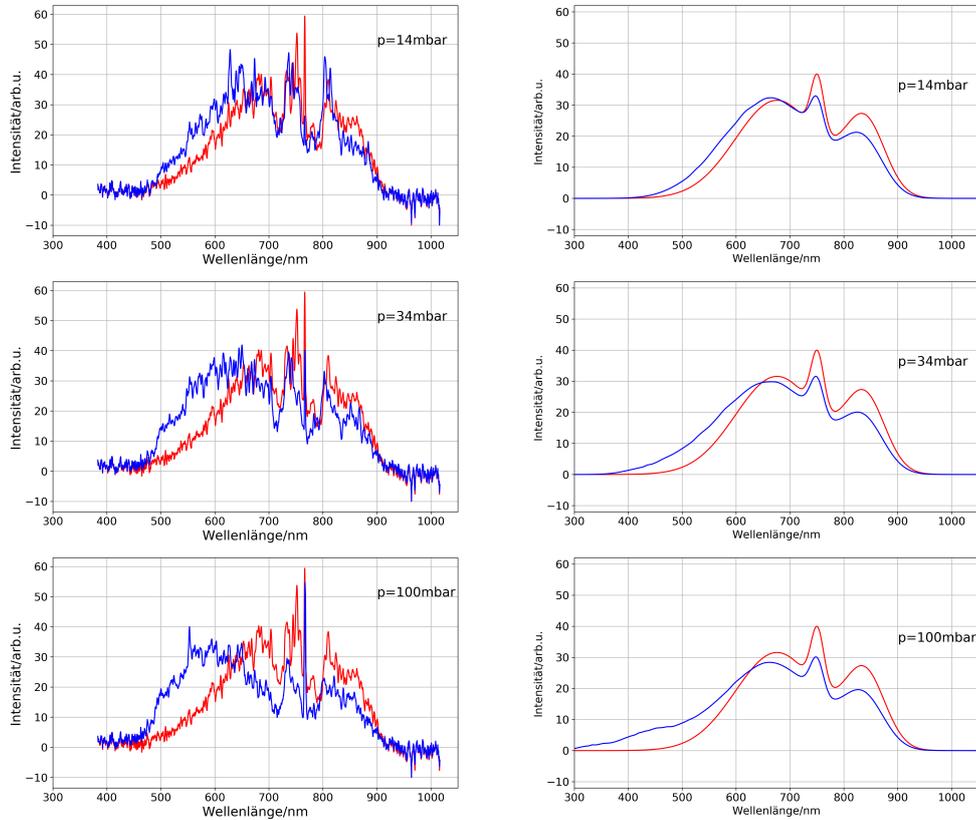


Abb. 5.4: Auf der linken Seite werden die gemessenen blauverschobenen Spektren(blau) in Argon mit dem Spektrum ohne Gas in der HHG-Zelle(rot) für die Drücke 14mbar, 34mbar und 100 mbar verglichen. Rechts sind analog dazu die Ergebnisse der Simulation für diese Drücke aufgetragen.

stant blauverschoben, da Ionisation durch Kollision zu jedem Zeitpunkt des Pulses, besonders zum Ende des Pulses, stattfindet. Durch die immer steigende Blauverschiebung sinkt zudem die Intensität des unverschobenen Anteils, da die zusätzliche Energie durch die Blauverschiebung durch eine geringere Intensität kompensiert werden muss, da sonst die Energieerhaltung verletzt wäre. Vergleicht man nun mit den Ergebnissen der Simulation, so lassen sich sowohl Gemeinsamkeiten als auch Unterschiede erkennen. Auch in der Simulation sinkt die Intensität zu hohen Wellenlängen mit steigendem Druck und ein größerer Teil des Spektrums wird ins Blaue verschoben. Eine Möglichkeit,

5.2. BLAUVERSCHIEBUNG IN ARGON

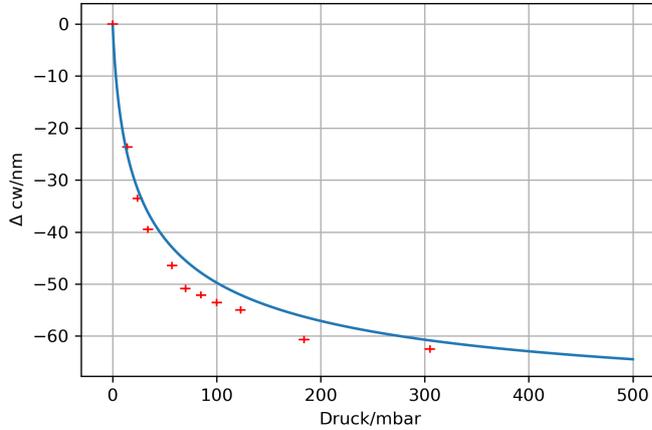


Abb. 5.5: Die Änderung der zentralen Wellenlänge der gemessenen Spektren (rote Punkte) im Vergleich zur Simulation (blaue Linie) in Argon.

das grobe Verhalten der Blauverschiebung zu beschreiben, ist das Definieren einer Wellenlänge, welche durch die Intensität gewichtet wird. Diese zentrale Wellenlänge cw wird wie folgt durch das Intensitätsspektrum $I(\lambda)$ definiert:

$$cw(I(\lambda)) = \frac{\int \lambda I(\lambda) d\lambda}{\int I(\lambda) d\lambda} = \frac{\sum \lambda I(\lambda)}{\sum I(\lambda)}. \quad (5.4)$$

Vergleicht man das in Abbildung [5.5] aufgetragene Verhalten der zentralen Wellenlänge, so stimmt das experimentelle Verhalten ungefähr mit dem simulierten überein.

Man sieht jedoch, dass sich die Form der Verschiebung unterscheidet. So erkennt man in den Messungen einen deutlichen Abfall der blauen Schulter, wohingegen in der Simulation diese Schulter einen immer kurzwelligeren Ausläufer aufweist. Im Folgenden werden mögliche Gründe für die Abweichungen aufgeführt. Die Messergebnisse sind mit einem hohen Rauschen behaftet, was dazu führen kann, dass Teile im Spektrum, welche eine geringe Intensität aufweisen, wie z.B. Ausläufer, wie sie bei den Simulationen zu sehen sind, nicht zu erkennen sind. Außerdem werden in der Simulation einige Eigenschaften vernachlässigt. Zum einen wird der bereits genannte Energiegewinn durch die Blauverschiebung nicht kompensiert, zum anderen ist die eingeführte Wellenlängenänderung [2.23] bereits genähert. So wird zum Beispiel angenommen, dass die Wellenlängenänderung eines Peaks an einer bestimmten Wellenlänge nur von der sich zeitlich ändernden Elektronendichte abhängt, dass sich die Wellenlänge des Peaks jedoch während der Propagation ebenfalls ändert, wird

vernachlässigt. Auch die Berechnung der freien Elektronendichte über den gemessenen Druck, welcher nicht unbedingt mit dem Druck an der Stelle der HH-Erzeugung übereinstimmt und die Annahme der idealen Gasgleichung, sorgen für Abweichungen, ebenso wie die Abschätzung des maximalen E-Feld des Peaks.

5.3 Blauverschiebung in Neon

Die Blauverschiebung des Spektrums wurde ebenfalls in Neon gemessen, wobei die Eigenschaften des Lasers und die Vorgehensweise die selben wie bei der Argon-Messung waren.

In Abbildung [5.6] sind für die Drücke von 28mbar, 100mbar und 350mbar die gemessenen Spektren zusammen mit der Referenz ohne Gas aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass trotz der höheren Drücke die Blauverschiebung deutlich geringer ausfällt als bei Argon, was an dem höheren Ionisationspotential von $I_p = 21.6 \text{ eV}$ liegt (Argon: $I_p = 15.8 \text{ eV}$). Dadurch fällt die Ionisationsrate durch Tunnelionisation deutlich geringer aus. Das allgemeine Verhalten der Spektren folgt den Erklärungen, welche schon für Argon genannt wurden. Zudem ist in Abbildung [5.7] die Änderung der zentralen Wellenlänge aufgetragen. Wie deutlich zu sehen ist, weichen die gemessenen Ergebnisse deutlich von denen der Simulation ab. Da man bei den Messungen eine um etwa 50% geringeren Wellenlängenverschiebung erhält und bei Neon keine komplette Ionisation erwartet wie in Argon, kann man davon ausgehen, dass die Wahl des E-Felds zu stark ausgefallen ist. Es lässt sich sagen, dass die bereits genannten Fehlerquellen der Messung und Vereinfachungen und Annahmen der Simulation bei Neon eine größere Rolle spielen als in Argon. Auch das starke Rauschen spielt bei den Neommessungen eine größere Rolle, da die erwartete kleine Blauverschiebung schwerer zu beobachten ist.

5.3. BLAUVERSCHIEBUNG IN NEON

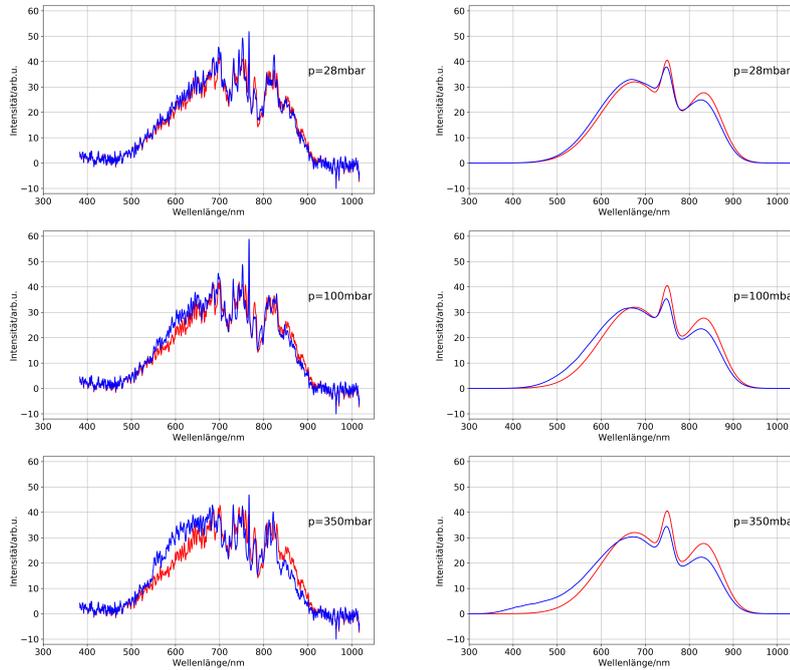


Abb. 5.6: Auf der linken Seite werden die gemessenen blauverschobenen Spektren(blau) in Neon mit dem Spektrum ohne Gas in der HHG-Zelle(rot) für die Drücke 28mbar, 100mbar und 350 mbar verglichen. Rechts sind analog dazu die Ergebnisse der Simulation für diese Drücke aufgetragen.

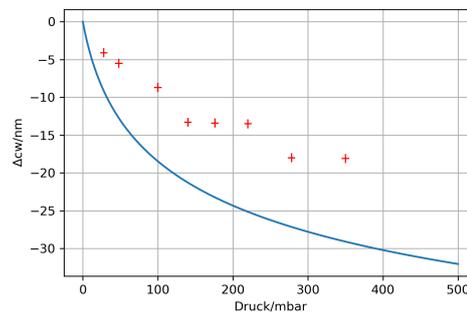


Abb. 5.7: Die Änderung der zentralen Wellenlänge der gemessenen Spektren(roter Punkte) im Vergleich zur Simulation(blau Linie) in Neon.

5.4 Blauverschiebung in Xenon

Die Blauverschiebung in Xenon wurde mit einem Puls gemessen, welcher ein anderes Spektrum aufweist, als das von der Argon- und Neon-Messung. Die Vorgehensweise der Messung war die selbe wie bei Argon und Neon. In Abbildung [5.8] ist für Drücke von 14 mbar, 25 mbar und 57 mbar das blauverschobene Spektrum mit dem unverschobenen aufgetragen. Wie deutlich zu erkennen ist, fällt die Blauverschiebung sehr deutlich aus, obwohl die Drücke im Vergleich zu Neon und Argon kleiner sind. Dies ist in Abbildung [5.9] auch an der großen Verschiebung der zentralen Wellenlänge zu erkennen. Erklärt wird das durch das niedrige Ionisationspotential von Xenon. Des Weiteren ist im Vergleich zu vorherigen Gasen der Anteil des blauverschoben Spektrenanteils deutlich größer. Bei 57 mbar ist der größte Teil des Spektrums verschoben und unverschobene Spektralanteile in der roten Seite des Spektrums sind deutlich zurückgegangen. Dies lässt sich mit der Annahme, dass die Blauverschiebung während der Peaks des E-Feldes des Laserfelds stattfindet, nicht erklären. Eine mögliche Erklärung dafür könnte sein, dass der beschriebene Prozess der Blauverschiebung nicht auf einer Zeitskala von einigen Zehntel oder Hundertstel einer Femtosekunde, sondern eher im Bereich von Femtosekunden stattfindet. Die Änderung des Brechungsindex und die damit verbundene Wellenlängenverschiebung findet also nicht nur während der Peaks der ADK-Rate statt, sondern über einen breiteren, gemittelten Bereich. Die Verschiebung bei Xenon findet über den ganzen Puls statt, da bereits durch die vorderste Flanke des Pulses das Xenon komplett ionisiert wird. Mit höherem Druck wird also das gesamte Spektrum stärker verschoben.

Ebenfalls könnten die zuvor gemessenen Blauverschiebungen in Argon und Neon mit dieser zeitlichen Reaktion erklärt werden. Im Gegensatz zu Xenon tritt in Argon die Blauverschiebung nicht am Anfang des Pulses, sondern erst nach der Hälfte des Pulses statt, sodass ein großer Teil unverschoben bleibt und erst die hintere Flanke des Pulses die Blauverschiebung erfährt. Die Stärke der Blauverschiebung steigt mit dem Druck. In Neon wird ein kleiner Teil am Ende des Pulses verschoben, da die Ionisation noch langsamer stattfindet als in Argon. Dies führt dazu, dass die Blauverschiebung in Neon im Vergleich zu Argon und Xenon deutlich geringer ausfällt.

Die genannten Gründe sorgen dafür, dass auch die Simulation der Spektren (siehe 5.8) und die daraus bestimmte zentrale Wellenlängenverschiebung (siehe 5.9) nicht mit den Messergebnissen übereinstimmt.

5.4. BLAUVERSCHIEBUNG IN XENON

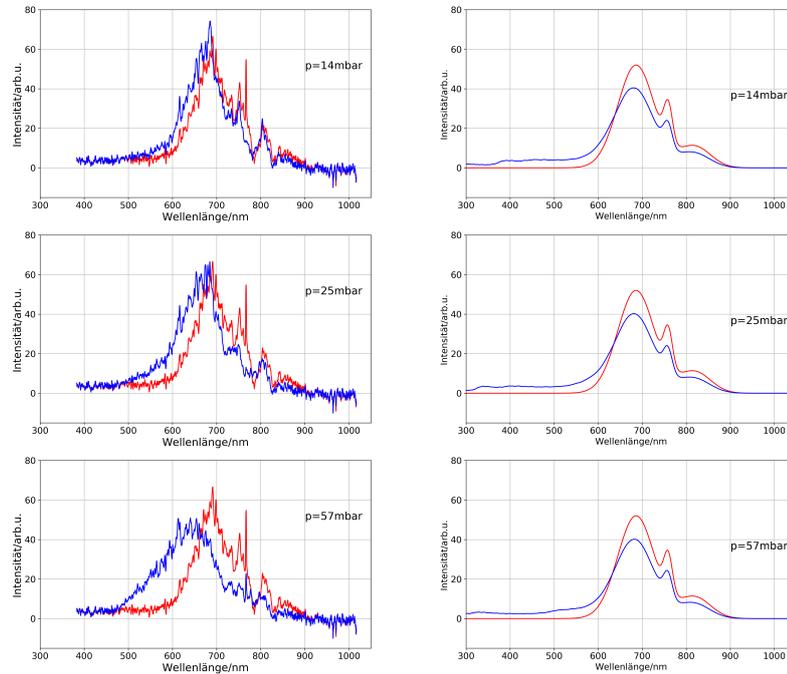


Abb. 5.8: Auf der linken Seite werden die gemessenen blauverschobenen Spektren (blau) in Xenon mit dem Spektrum ohne Gas in der HHG-Zelle (rot) für die Drücke 28 mbar, 100 mbar und 350 mbar verglichen. Rechts sind analog dazu die Ergebnisse der Simulation für diese Drücke aufgetragen.

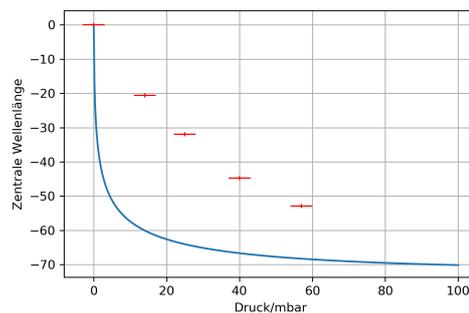


Abb. 5.9: Die Änderung der zentralen Wellenlänge der gemessenen Spektren (rote Punkte) im Vergleich zur Simulation (blaue Linie) in Xenon.

6 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde die spektrale Blauverschiebung von einem starken infraroten ultrakurzen Laserpuls durch Plasmaeffekte während der Erzeugung Hoher Harmonischer untersucht. Dazu wurden die Spektren des Laserpuls für unterschiedliche Gase zur Harmonischen-Erzeugung in Abhängigkeit des Gasdrucks aufgenommen. Um dies zu realisieren, wurde eine Konstruktion verwendet, welche mithilfe einer Faser das gestreute Licht einer im Strahlengang eingebauten Iris zu einem Spektrometer führt, welches durch ein für diese Arbeit erstellte Labview Benutzeroberfläche bedient wurde. Die Blauverschiebung fällt je nach Gasart unterschiedlich stark aus, sodass vor allem bei Argon und Xenon das blauverschobene Spektrum des Lasers, welcher beispielsweise für Pump-Probe-Experimente benutzt wird, zur verbesserten Analyse der Experimente berücksichtigt werden muss.

Die Blauverschiebung des Spektrums basiert auf der Entstehung freier Elektronen während der Harmonischen-Erzeugung und einer damit einhergehenden zeitlichen Änderung des Brechungsindex, welche zu einer Verschiebung der zentralen Wellenlänge des Laserpulses führt. Um diese Prozesse zu quantifizieren, wurde eine Simulation erstellt, welche die gemessenen Spektren beschreiben soll. Die Grundkonzepte dieser Simulation sind das ADK-Modell, mit welchem wir eine zeitabhängige Ionisationsrate erhalten und das Drude-Modell, welches die Brechungsindexänderung angibt. Die Ergebnisse der Simulation zeigen ein qualitativ ähnliches Verhalten der Spektren wie die Messergebnisse, jedoch stimmen sie im Detail nur bedingt mit den Messungen überein. Dies könnte neben Messfehlern und falschen Annahmen bei der Wahl der Simulationsparameter wie den Laser- und Druck-Parametern, auf welche die simulierten Spektren sensitiv reagieren, auch an den Vereinfachungen der Simulation, sowie an nicht beachteten Effekten wie der zeitlich verspäteten Reaktion der Blauverschiebung liegen. Um diese Diskrepanzen besser zu verstehen, könnte in einem Folgeprojekte die Blauverschiebung bei unterschiedlichen Pulslängen untersucht werden und so das zeitliche Verhalten besser verstanden werden. Des Weiteren könnte man versuchen, das Signal des von der Iris gestreuten Lichts zu erhöhen, indem man zum Beispiel die Faser in einem kleineren Einfallswinkel auf die Iris richtet. Zusammen mit einer Intensitätskalibrierung des eingebauten optischen Systems könnten nicht nur Unterschiede zwischen zwei Spektren gemessen werden, sondern auch einzeln gemessene Spektren untersucht werden.

Für transiente Absorptionsexperimente ist es mithilfe des entworfenen Ein-

baus nun möglich geworden, das NIR-Spektrum, wie es das Target im Experiment sieht, zu ermitteln, sodass die Blauverschiebung und die damit steigende zentrale Photonenenergie berücksichtigt werden können. So kann je nach gewünschter zentraler Wellenlänge des NIR das passende Gas zur Erzeugung Hoher Harmonischer gewählt werden.

Literaturverzeichnis

- [1] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked ti:sapphire laser. *Optics Letters*, 16(1):42, 1991.
- [2] P. Agostini and L. F. DiMauro. The physics of attosecond light pulses. *Reports on Progress in Physics*, 67(6):813, 2004.
- [3] P. Birk. Time-dependent strong-field effects in atoms and molecules observed by attosecond transient absorption spectroscopy. Master's thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2016.
- [4] G. D. Borisova. Theoretical and experimental studies of xuv multielectron (auto-)ionization dynamics in helium and molecular hydrogen. Master's thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2017.
- [5] M. Ammosov, N. B. Delone, and V. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Jetp Letters*, 64:1191, 1986.
- [6] W. M. Wood, C. W. Siders, and M. C. Downer. Measurement of femtosecond ionization dynamics of atmospheric density gases by spectral blueshifting. *Physical Review Letters*, 67(25):3523–3526, 1991.
- [7] J.-C. Diels and W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena, Second Edition (Optics & Photonics Series)*. Academic Press, 2006.
- [8] B. E. A. Saleh and M. C. Teich. *Fundamentals of Photonics*. John Wiley & Sons, Incorporated, 2003.
- [9] D.J. Kane and R. Trebino. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 29(2):571–579, 1993.
- [10] M. Miranda, T. Fordell, C. Arnold, A. L'Huillier, and H. Crespo. Simultaneous compression and characterization of ultrashort laser pulses using chirped mirrors and glass wedges. *Opt. Express*, 20(1):688–697, 2012.
- [11] C. Iaconis and I. A. Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Optics Letters*, 23(10):792–794, 1998.

- [12] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49(3):2117–2132, 1994.
- [13] J. L. Krause, K. J. Schafer, and K. C. Kulander. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Physical Review Letters*, 68(24):3535–3538, 1992.
- [14] A. L’Huillier, K. J. Schafer, and K. C. Kulander. Theoretical aspects of intense field harmonic generation. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 24(15):3315, 1991.
- [15] Y. Liang, S. Augst, S. L. Chin, Y. Beaudoin, and M. Chaker. High harmonic generation in atomic and diatomic molecular gases using intense picosecond laser pulses—a comparison. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 27(20):5119, 1994.
- [16] P. B. Corkum and F. Krausz. Attosecond science. *Nature Physics*, 3(6):381–387, 2007.
- [17] L.V. Keldysh. Ionisation in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys.- JETP*, 20(5):1307–1314, 1965.
- [18] A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and and NIST ASD Team. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.5.6), [Online]. Available: <https://physics.nist.gov/asd> [2018, April 9]. National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., 2018.
- [19] U. Stroth. *Plasmaphysik*. Springer Berlin Heidelberg, 2018.
- [20] S. C. Rae and K. Burnett. Detailed simulations of plasma-induced spectral blueshifting. *Physical Review A*, 46(2):1084–1090, 1992.
- [21] F. Tani, M. H. Frosz, J. C. Travers, and P. St. J. Russell. Continuously wavelength-tunable high harmonic generation via soliton dynamics. *Optics Letters*, 42(9):1768, 2017.
- [22] H. Tawara and T. Kato. Total and partial ionization cross sections of atoms and ions by electron impact. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 36(2):167–353, 1987.
- [23] M. Hartmann. Characterization of few-cycle laser pulses. Master’s thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2016.
- [24] V. Stooß. *Doktorarbeit in Bearbeitung*. PhD thesis, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2018.

Danksagung

Sehr herzlich möchte ich mich bei folgenden Personen bedanken:

-**Prof. Dr. Thomas Pfeifer** für die Möglichkeit in seiner Abteilung meine Bachelorarbeit zuschreiben.

-**Dr. Robert Moshhammer** für das Übernahme des Zweitgutachtens dieser Arbeit.

-**Dr. Christian Ott** für das freundliche Aufnehmen in seiner Arbeitsgruppe.

-meinem Betreuer **Paul Birk**, der mir stets geholfen hat und mir vor allem im Labor viele Abläufe gezeigt und erklärt hat.

-**Max Hartmann** für die große Hilfe beim Erstellen der verwendeten Programme.

-der restlichen Interattogruppe, die sich stets Zeit genommen haben, um aufkommende Fragen zu beantworten.

-Zusätzlich danke ich der ganzen Interatto-Gruppe sowie den Leuten von X-music dafür, dass sie mich so freundlich aufgenommen haben und die Zeit im Büro sehr angenehm und abwechslungsreich gemacht haben.

Erklärung

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den

.....