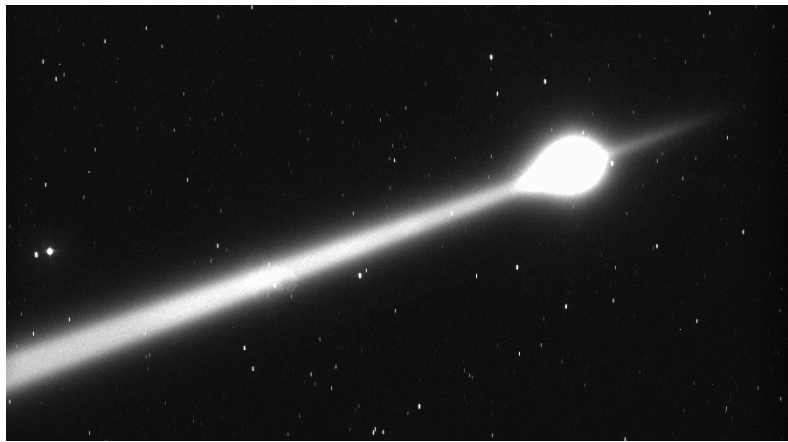


Terawatt-Femtosekunden-Laserpulse in der Atmosphäre: Phänomene und Anwendungen



im Fachbereich Physik der
Freien Universität Berlin
eingereichte Dissertation

vorgelegt von
Miguel RODRÍGUEZ LANGLOTZ
aus Hamburg

Berlin, Februar 2004

Die vorliegende Arbeit entstand in Rahmen des deutsch-französischen Projekts



gefördert durch die
Deutsche Forschungsgemeinschaft
und das
Centre National de la Recherche Scientifique.

1. Gutachter: Prof. Dr. Ludger Wöste
2. Gutachter: Prof. Dr. Roland Sauerbrey

Datum der Disputation: 19. Mai 2004

„While linearization beautifies physics, nonlinearity provides excitement in physics.“

Y. R. Shen

Inhalt

Einleitung	1
 Kapitel 1 Teramobile	 5
1.1 Das Terawatt-Lasersystem	5
1.1.1 Die Erzeugung hochintensiver Femtosekundenpulse (CPA)	6
1.1.2 Eigenschaften des Teramobile-Lasers	9
1.1.3 Einstellbare Parameter des ausgesandten Laserstrahls	11
1.2 Das mobile Labor	14
1.2.1 Betriebs- und Versorgungsfunktionen	16
1.2.2 Transporteigenschaften	17
1.3 Das Detektionssystem	18
 Kapitel 2 Messkampagnen	 21
2.1 Messungen an der Thüringer Landessternwarte	22
(Kilometerweite Ausbreitung von TW-Pulsen in der Atmosphäre – Abbildung und Spektroskopie)	
2.1.1 Motivation	22
2.1.2 Allgemeiner experimenteller Aufbau	25
2.1.3 Bildaufnahmen im Schmidt-Modus	27
2.1.4 Hochauflösende Weißlichtspektroskopie im Coudé-Modus	36
2.1.5 Breitbandige IR-Lidar-Messungen im Coudé-Modus	41
2.2 UV-Lidar-Experiment in Lyon	44
(Höhen aufgelösten Messung der Ozonabsorption mittels wellenlängenabhängiger Lidar-Signale)	
2.2.1 Motivation	44
2.2.2 Durchführung und Ergebnisse	45
2.3 Hochspannungsexperimente an der TU Berlin	51
(Auslösen und Lenken von Megavolt-Blitzentladungen mittels fs-Filamenten)	
2.3.1 Motivation	52
2.3.2 Durchführung und Ergebnisse	55
2.3.3 Diskussion	62
2.4 Laborexperimente und sonstige Messungen	65
2.4.1 Quantitative Messung des Weißlichtspektrums	65
2.4.2 Filamentierung von Terawattpulsen auf einer Strecke von 90 m	71
2.4.3 Dritte Harmonische und UV-Licht in Terawattfilamenten	75

Kapitel 3 Aspekte der nichtlinearen Optik **83**

3.1	Grundlagen der nichtlinearen Optik	84
3.1.1	Polarisation und nichtlineare optische Suszeptibilität	84
3.1.2	Der intensitätsabhängige Brechungsindex	87
3.1.3	Frequenzvervielfachung und -mischung	88
3.2	Filamentierung kurzer Laserpulse	91
3.2.1	Erklärungsmodelle	92
3.2.2	Numerische Simulationen – nichtlineare Schrödinger-Gleichung	97
3.3	Filamentierung von Terawattpulsen in Luft – Eigenschaften und Steuerbarkeit	101
3.3.1	Multifilamentierung	102
3.3.2	Startpunkt der Filamentierung	104
3.3.3	Länge der Filamente	107
3.3.4	Divergenz nach der Filamentierung	113
3.4	Weißlichterzeugung (SCG)	118
3.4.1	Selbstphasenmodulation	119
3.4.2	Form und Steuerbarkeit des Terawatt-Weißlichtspektrums	121
3.5	Konische Emission und dritte Harmonische	130
3.5.1	Konische Emission von Filamenten	131
3.5.2	Erzeugung der dritten Harmonischen (THG) in Luft	136

Kapitel 4 Untersuchung der Atmosphäre **143**

4.1	Die Messtechnik Lidar	144
4.1.1	Grundlagen	145
4.1.2	Differentielles Absorptions-Lidar (DIAL)	147
4.1.3	Terawatt-Femtosekunden-Lidar – eine neue Dimension	149
4.2	Absorption durch Gase – fs-Weißlicht-Lidar	150
4.2.1	Hochaufgelöstes Absorptions-Lidar	151
4.2.2	Breitbandabsorptions-Lidar	161
4.3	Aerosole	166
4.3.1	Multispektrale Messung von Mehrfachstreuung	167
4.3.2	Nichtlineares Aerosol-Lidar	173

Zusammenfassung und Ausblick **177**

Anhänge **181**

A	Auswertung von Bilddaten der Sternwarte	181
---	---	-----

B Auswertung von line-by-line-Absorptionsspektren	186
Literatur	189
Liste eigener Publikationen	199

Englischsprachige Begriffe und Abkürzungen

In der Regel werden in dieser Arbeit deutschsprachige Begriffe für physikalische Phänomene und technische Ausdrücke verwendet. Wenn ein international gebrauchter englischsprachiger Begriff dem Verständnis dienen kann oder keine gebräuchliche Übersetzung für ihn existiert, wird dieser in kursiver Schrift und in der originalen Schreibweise (z.B. mit kleinem Anfangsbuchstaben) eingeführt und dann gegebenenfalls wie ein deutsches Wort weiterverwendet. In Einzelfällen können von diesen Begriffen auch in deutschsprachiger Weise andere Wörter abgeleitet werden, wenn es sich dabei um gängige Ausdrücke handelt. Beispiel: *chirp*, der Chirp, ein gechirpter Puls.

Bei Begriffen englischer Herkunft, die in den allgemeinen physikalisch-technischen Wortschatz Einzug gehalten haben, wird die Einführung übergangen. Beispiele: der Trigger, triggern; der Fit, fitten.

Um dem Leser das Wiedererkennen bekannter Abkürzungen zu ermöglichen, werden diese in ihrer allgemein üblichen, aus der englischen Sprache stammenden Form verwendet. Beispiel: Erzeugung der dritten Harmonischen (THG). In vielen Fällen funktioniert die Abkürzung für beide Sprachen. Beispiel: Selbstphasenmodulation (SPM).

Abbildungen

Die Urheberrechte aller Abbildungen liegen beim Autor bzw. dem Teramobile-Projekt. Ausnahmen sind durch Angabe der Referenz oder des Rechteinhabers gekennzeichnet.

Einleitung

Zwei Gründe sind zu nennen, warum man die Ausbreitung hochintensiver kurzer Laserpulse in Luft erforscht. Auf der einen Seite steht der Bereich, der im Titel dieser Arbeit unter dem Begriff „Phänomene“ zusammengefasst ist. Gemeint sind damit die faszinierenden nichtklassischen Effekte bei der Wechselwirkung dieser mikrometerlangen „Lichtgeschosse“ mit Luft. Sie haben in den vergangenen zehn Jahren das Feld der nichtlinearen Optik, das wie der Laser selbst etwa vierzig Jahre alt ist, in vielfacher Weise bereichert. Phänomene, die bis dahin nur von Kristallen, Gläsern und Flüssigkeiten bekannt waren, traten in teilweise veränderter Form nun auch in Luft auf und neue kamen hinzu. Die Aufhebung der Gesetze der klassischen Optik mit dem bloßen Auge zu beobachten ist am beeindruckendsten, wenn sie in „nichts als reiner Luft“ geschieht. Die Vielfalt und Komplexität der nichtlinearen Optik im Allgemeinen und dieses Teilgebiets im Besonderen bieten reichlich Möglichkeiten Neues zu entdecken. Umso unübersichtlicher ist dafür das Geflecht der Veröffentlichungen zu diesem Themenbereich und Anhaltspunkte für tragfähige theoretische Deutungen sind oft noch schwer zu finden.

Auf der anderen Seite besteht ein ständig wachsendes Interesse daran, die physikalischen und chemischen Prozesse in der Atmosphäre und deren Bedeutung für das Leben auf der Erde besser zu verstehen. Begriffe wie Luftverschmutzung, Zerstörung der Ozonschicht und Klimawandel sind schon lange im öffentlichen Bewusstsein. Der Einsatz von Lasern in der optischen Fernerkundung hat in den vergangenen Jahrzehnten einen wichtigen Beitrag zu ihrem Verständnis geleistet. Trotzdem existieren immer noch viele offene Fragen. Die Möglichkeiten der (klassischen) Methoden der Laserfernerkundung sind inzwischen aber teilweise ausgereizt. Daher lohnt sich die Suche nach neuen Methoden. Der Begriff „Anwendungen“ im Titel steht also für die Fernerkundung von Substanzen in der Atmosphäre. Er ist aber nicht streng darauf beschränkt, wie der Abschnitt 2.3 über das Auslösen und Lenken von Blitzentladungen zeigt.

In der Arbeitsgruppe von Prof. Ludger Wöste an der Freien Universität Berlin sind seit dem Ende der achtziger Jahre viele Arbeiten auf dem Gebiet der Laserfernerkundung der Atmosphäre sowie Laborexperimente an isolierten Luftpartikeln durchgeführt worden. Prof. Roland Sauerbrey und seine Mitarbeiter am Institut für Optik und Quantenelektronik der Friedrich-Schiller-Universität Jena haben langjährige Erfahrung mit der Erzeugung hoch-

intensiver Laserpulse und deren Wechselwirkung mit Materie. Die gemeinsame Initiative von Prof. Wöste und Prof. Sauerbrey die beiden Forschungsgebiete zusammenzuführen geht auf die Beobachtung zurück, dass aus den Pulsen des in Jena entwickelten Terawattlasers bei ausreichend langer Ausbreitung in Luft ein weißer Strahl entsteht. Die Ergebnisse der ersten Testversuche, bei denen der Laserstrahl in die Atmosphäre gesandt und die Rückstreuung gemessen wurde [Wöste et al., 1997; Rairoux et al., 2000], waren so vielversprechend, dass Mitte 1999 ein Projekt mit Namen „Teramobile“ ins Leben gerufen wurde, in dem das weltweit erste mobile Terawatt-Laserlabor gebaut werden sollte.

Die vorliegende Arbeit behandelt den Aufbau dieses Projekts, die Messkampagnen und Experimente der ersten vier Projektjahre, die daraus gewonnenen physikalischen Erkenntnisse und die Entwicklung verschiedener neuer Anwendungen. Die Schwierigkeit bestand darin die vielfältigen Experimente und physikalischen Aspekte in einem schlüssigen Zusammenhang darzustellen. An dieser Stelle folgen daher einige Erläuterungen zur Gliederung der Arbeit. Sie beginnt mit einer Beschreibung der Konzeption und der Eigenschaften des mobilen Labors „Teramobile“. Da die durchgeführten Experimente in ständiger Verflechtung sowohl die nichtlineare Optik (Phänomene) als auch die Untersuchung der Atmosphäre (Anwendungen) betreffen, sind sie sämtlich in Kapitel 2 zusammengefasst, wobei jeweils die Motivation, die Durchführung und die direkten Ergebnisse dargestellt sind. In den folgenden Kapiteln finden sich dann die Auswertungen und Interpretationen der experimentellen Ergebnisse geordnet nach Einzelaspekten, die in die Bereiche nichtlineare Optik (Kapitel 3) und Untersuchung der Atmosphäre (Kapitel 4) aufgeteilt sind. Eine große Zahl von Querverweisen verbindet die einzelnen Elemente miteinander.

Das Kapitel zur nichtlinearen Optik ist das deutlich umfangreichere. Dies erklärt sich nicht nur aus dem grundlegenden Interesse an den Phänomenen, sondern vor allem daraus, dass deren Erforschung eine notwendige Voraussetzung für die Entwicklung der Anwendungen ist. Das heißt auch, dass bei der Untersuchung der Phänomene immer die Bedeutung für die Anwendungen im Vordergrund steht. Viele notwendige Erkenntnisse können erst mit dem Teramobile gewonnen werden, da die entsprechenden Effekte sich weder im Labormaßstab untersuchen noch – bis heute – theoretisch berechnen lassen. So hat das Teramobile gerade mit dieser neuen Möglichkeit, an beliebigen Orten Langstreckenexperimente durchzuführen, viel Aufmerksamkeit bei den Forschern gewonnen, die sich mit der nichtlinearen Ausbreitung von hochintensiven Pulsen beschäftigen.

In Kapitel 2 sind die experimentellen Details ausführlich beschrieben. Der Leser, der an diesen nicht direkt interessiert ist, kann sich anhand der Überschriften und einleitenden Textpassagen der Unterkapitel sowie der Abbildungen einen Überblick über die Motiva-

tion und Ergebnisse der Versuche verschaffen und in Kapitel 3 mit der intensiveren Lektüre beginnen. Dort und in Kapitel 4 finden sich etliche Querverweise auf Kapitel 2, die ein selektives Nachlesen ermöglichen. Eine Ausnahme bildet das Thema Blitzendladungen, das in Kapitel 2 (Abschnitt 2.3) mit der kompletten Auswertung und Diskussion der Ergebnisse geschlossen dargestellt ist.

Die ausführliche Beschreibung der Experimente dient nicht nur der späteren Nachvollziehbarkeit und dem Erhalt der gewonnenen Erfahrungen – vor allem für zukünftige Mitarbeiter des Projekts –, sondern ist auch Ausdruck der Erfahrung, dass gerade in dem hier behandelten Forschungsgebiet oft Details, die zunächst kaum beachtet werden, später von Interesse sein können. So enthält Kapitel 2 auch phänomenologische Teilergebnisse, die nicht in die thematisch geordnete Auswertung und Interpretation (Kapitel 3 und 4) eingegangen sind.

Hinsichtlich der Entwicklung neuer Messmethoden stellt diese Arbeit eine Zwischenbilanz dar. Die vielfältigen Aktivitäten des Teramobile-Projekts laufen unvermindert weiter. Im Ausblick wird kurz auf die neuesten Ergebnisse eingegangen.

Abschließend seien zwei Begriffe eingeführt, die in dieser Arbeit von Beginn an vielfach verwendet, aber erst weiter hinten ausführlich erklärt werden: Filament und Lidar. Sie symbolisieren gewissermaßen die beiden Bereiche Phänomene und Anwendungen.

Mit **Filament** ist eine Zone gemeint, in der ein Laserpuls (oder ein Teil von diesem) aufgrund einer dynamischen Balance aus Selbstfokussierung (optischer Kerr-Linseneffekt) und defokussierenden Mechanismen mit einem konstanten Durchmesser in der Größenordnung von $100\ \mu\text{m}$ und einer Intensität von 10^{13} bis $10^{14}\ \text{W}/\text{cm}^2$ propagiert. Da diese Intensität gerade die Ionisationsgrenze (multiphotonisch) übersteigt, ist die Filamentierung eng mit der Erzeugung von Plasma verbunden. Das Plasma verhindert durch seine defokussierende Wirkung das Kollabieren des Strahls. Filamente erreichen in Luft Längen von vielen Metern. In ihnen entsteht durch starke spektrale Verbreiterung weißes Licht.

Lidar (*Light Detection and Ranging*) ist der Oberbegriff für mehrere der wichtigsten Methoden der optischen Fernerkundung, denen gemeinsam ist, dass man Laserpulse in die Atmosphäre sendet und ihre elastische oder inelastische Rückstreuung aus der Luft mit Teleskopen empfängt. Die Detektion ist an eine schnelle Ausleseelektronik gekoppelt, so dass man das empfangene Licht, welches Informationen über die Atmosphäre enthält, über seine Laufzeit einer Entfernung zuordnen kann.

1 Teramobile

Der Name „Teramobile“ steht im Zentrum dieser Arbeit. Er bezeichnet sowohl das weltweit erste mobile Terawatt-Lasersystem als auch das deutsch-französische Forschungsprojekt, in dessen Rahmen dieses mobile Labor entwickelt wurde. Wie schon in der Einleitung beschrieben, geht die Idee zum Teramobile auf Versuche zurück, die in Zusammenarbeit der Gruppen von Prof. Wöste (FU Berlin) und Prof. Sauerbrey (FSU Jena) mit dem am Institut für Optik und Quantenelektronik (IOQ) in Jena vorhandenem Terawatt-Laser begonnen wurden [Wöste et al., 1997; Rodriguez, 1998; Rairoux et al., 2000]. Später stießen Prof. Jean-Pierre Wolf von der Universität Lyon, Laboratoire de Spectrométrie Ionique et Moléculaire (LASIM), und Prof. André Mysyrowicz von der ENSTA-École Polytechnique, Laboratoire d'Optique Appliquée (LOA), hinzu. Mit der Bewilligung von Fördermitteln durch die Deutsche Forschungsgemeinschaft (DFG) und das Centre National de la Recherche Scientifique (CNRS) begann im Sommer 1999 das deutsch-französische Forschungsprojekt Teramobile. Im Frühjahr 2001 wurde das mobile Labor fertiggestellt und in Betrieb genommen.

In diesem Kapitel werden Konzeption und technische Eigenschaften des Teramobile-Containers und der in ihm integrierten Komponenten beschrieben. Schwerpunkte sind dabei die Erzeugung und Aussendung der ultrakurzen, hochintensiven Terawatt-Laserpulse, die Betriebs- und Transporteigenschaften des mobilen Labors sowie die Detektionseinheit für Lidar und andere Messungen. Zum Teil sind diese systembeschreibenden Punkte – in Verbindung mit einem Bericht zum Stand des Projekts ein Jahr nach Inbetriebnahme des Teramobile-Containers – bereits veröffentlicht worden [Wille et al., 2002].

1.1 Das Terawatt-Lasersystem

Um an die Erfahrungen, die mit dem Lasersystem am IOQ gemacht wurden, anzuknüpfen und die geplanten Forschungsvorhaben umsetzen zu können, wurde als Vorgabe festgelegt, dass der Teramobile-Laser Pulse mit mindestens 4 TW ($4 \cdot 10^{12}$ W) Leistung und eine kürzeste Pulslänge von maximal 100 fs liefern müsse. Diese Werte entsprechen einer Puls-

energie von 400 mJ. Diese Spezifikationen lagen zur Zeit der Vorarbeiten zum Teramobile-Projekt im oberen Bereich des Spektrums der vorhandenen Laborsysteme, die nach dem üblichen Verfahren der *Chirped Pulse Amplification* (CPA, siehe Abschnitt 1.1.1) arbeiten. Zusätzlich sollte das System eine Fläche von nicht mehr als etwa fünf Quadratmetern einnehmen, um in einen Standard-Frachtcontainer eingebaut werden zu können und dort noch bedienbar zu sein. Die Tatsache, dass die vorhandenen Laborsysteme üblicherweise einen weit größeren Raum einnehmen, ist damit zu erklären, dass sie zumeist in weitgehender Eigenentwicklung der Forschungseinrichtungen über Jahre gewachsen sind. Die Erfahrungen, die bei dieser Entwicklungsarbeit, zum Beispiel am IOQ, gemacht wurden, ermöglichten die Herstellung eines Lasersystems, das die Anforderungen unseres Projekts erfüllt.

Vor der Beschreibung des Teramobile-Lasers folgt hier zunächst eine kurze Darstellung des Verfahrens, mit dem es möglich ist, sehr kurze Laserpulse auf Spitzenleistungen von über 10^{12} Watt zu verstärken.

1.1.1 Die Erzeugung hochintensiver Femtosekundenpulse (CPA)

Mitte der achtziger Jahre veröffentlichten Strickland und Mourou ihre Erfindung des Verfahrens, das man heute unter dem Begriff *Chirped Pulse Amplification* (CPA) kennt [Strickland und Mourou, 1985]. Sie sprechen dort von der prinzipiellen Möglichkeit, Sub-Pikosekunden-Pulse mit Energien im Joule-Bereich zu erzeugen. Dies wird heute in der Tat von einigen Systemen erreicht.

Am Anfang der CPA steht ein Laser, der mit sehr hoher Wiederholrate (typischerweise ca. 80 MHz) sehr kurze Pulse abgibt, ein sogenannter **Oszillator**. Strickland und Mourou benutzten einen cw-gepumpten, modengekoppelten Nd:YAG-Laser. Später setzte sich mit Titan dotierter Saphir (Ti:Sa) als Lasermedium durch, da dieses Material einen besonders breiten spektralen Emissionsbereich (Zentralwellenlänge bei ca. 800 nm) aufweist und kurze Pulse grundsätzlich eine große Bandbreite haben. Ein weiterer Vorteil des Ti:Sa ist, dass die maximale Anregungseffizienz im grünen Spektralbereich liegt. Daher können die gängigen frequenzverdoppelten Nd-Festkörperlaser als Pumpquellen verwendet werden.

Bei der Modenkopplung wird ausgenutzt, dass die axialen Moden in einer Laserkavität konstruktiv oder destruktiv überlagern. Wenn man erreicht, dass alle Moden in Phase schwingen, kann ein einzelner intensiver Puls entstehen, der zwischen den Endspiegeln hin- und herläuft. So gibt die räumliche Dimension des Lasers den zeitlichen Abstand der Pulse vor. Die Pulsdauer wird durch die Anzahl der koppelnden Moden bestimmt (mit der Kavitätslänge L und der Lichtgeschwindigkeit c):

$$N = \Delta f \cdot \frac{2L}{c} . \quad (1-1)$$

Bei Lasermedien mit einer großen Linienbreite Δf können über hunderttausend Moden koppeln und somit Femtosekundenpulse erzeugt werden. Eine gängige Methode, die gekoppelten Moden zu verstärken und die ungekoppelten zu unterdrücken, ist die Ausnutzung des Kerr-Linseneffekts. Dazu muss ein Material mit nichtlinearem, intensitätsabhängigem Brechungsindex $n = n_0 + n_2 I$ (siehe Abschnitt 3.1.2) in den Strahlengang gebracht werden (dies kann das Lasermedium selbst sein). Durch seine hohe Intensität I erfährt der aus gekoppelten Moden entstandene Puls Selbstfokussierung, wodurch sich seine transversale Ausdehnung verkleinert. Zum einen kann nun die Überlappung der Strahlengänge des umlaufenden Pulses und des cw-Pumplasers im Lasermedium optimiert werden, zum anderen wird eine Blende eingesetzt, um die ungekoppelten und daher nicht selbstfokussierten Moden zu unterdrücken. Durch Verfeinerung dieser Technik ist es der Arbeitsgruppe von F. Krausz in Wien gelungen, einen Ti:Sa-Femtosekundenlaser (siehe Bild 1-1) zu entwickeln, der mit einer Pulsdauer von 8 fs fast die Bandbreitenbegrenzung erreicht [Stingl et al., 1995]. Um noch kürzere Pulse zu erhalten, geht man zu höheren Laserfrequenzen.

Kommerzielle Femtosekundenoszillatoren liefern typischerweise Pulslängen im Bereich von 20 bis 80 fs. Die Pulsenergien dieser Laser liegen bei einigen Nanojoule. Will man die Pulse nun um etliche Größenordnungen verstärken, ist es notwendig sie zunächst zeitlich zu strecken, da sonst die Intensität die Belastbarkeit der optischen Elemente des Verstärkersystems übersteigen würde. Dies geschieht, indem der Puls einen sogenannten *chirp*

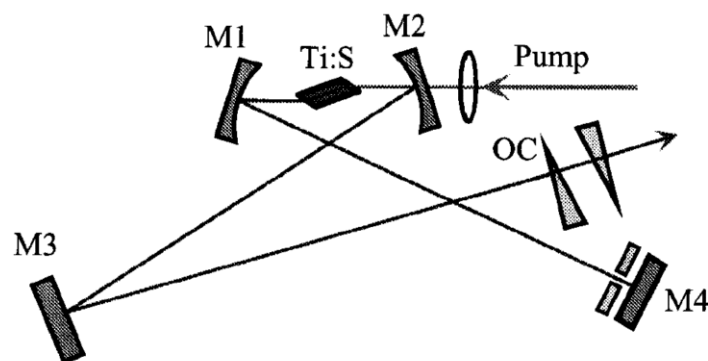


Bild 1-1. Abbildung aus [Xu et al., 1997]. Schematische Darstellung eines Ti:Sa-Femtosekundenoszillators. Die Blende vor dem Endspiegel M4 gehört zur Kerr-Linsen-Modenkopplung. Der Auskoppelspiegel (OC) ist auf ein keilförmiges Substrat aufgebracht, ein weiterer Keil dahinter kompensiert die Dispersion.

(engl. Zirpen, Zwitschern) erhält. Die spektralen Anteile des breitbandigen Pulses werden zeitlich auseinander gezogen. Es ergibt sich eine Zeitabhängigkeit der Frequenz der Form

$$\omega(t) = \omega_0 + 2\gamma t, \quad (1-2)$$

wobei $2\gamma = \frac{d\omega}{dt} = \frac{d^2\phi}{dt^2}$ (ϕ ist die zeitabhängige Phasendifferenz) der Chirpparameter ist, der den linearen Chirp angibt. Treten bei der Taylor-Entwicklung von $\omega(t)$ auch höhere Terme auf, spricht man vom quadratischen bzw. kubischen Chirp.

Strickland und Mourou benutzten zur Erzeugung des Chirps zunächst eine 1,4 km lange Faser, in der der Puls aufgrund von Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) und Selbstphasenmodulation (SPM) auf mehrere hundert Pikosekunden gestreckt wird. Üblicherweise werden heutzutage **Pulsstrecke** (*stretcher*) eingesetzt, bei denen durch ein Gitter unterschiedliche Weglängen für die verschiedenen spektralen Anteile des Pulses entstehen (siehe Bild 1-2). Der dabei erzeugte Chirp ist prinzipiell vollständig reversibel, so dass die Kürze der Oszillatorpulse nicht „verloren geht“.

Der gestreckte Puls wird unter Verwendung von Polarisatoren und einem Faraday-Rotator optisch isoliert, um den Oszillator vor Rückreflexen aus den folgenden Verstärkerstufen zu schützen. Eine Pockelszelle und ein Polarisator dienen zur Auswahl einzelner Pulse (*pulse picker*), um die Wiederholrate von den ca. 80 MHz des Oszillators auf den gewünschten Wert zu verringern (typischerweise zwischen ca. 10 Hz bei sehr hoher Energieverstärkung und 1 kHz). Häufig ist die Pulsauswahl in eine erste Verstärkerstufe, einen **regenerativen Verstärker**, integriert (in Bild 1-2 nicht enthalten).

Um nun sehr hochenergetische Pulse mit der reduzierten Wiederholrate zu erhalten, werden ein oder mehrere **Multipass-Verstärker** angeschlossen. Sie enthalten das Lasermedium (Ti:Sa-Kristall), in das durch starke, gepulste Laser Energie gepumpt wird, die dann die Pikosekundenpulsen in mehreren Durchläufen verstärkt.

Schließlich werden die spektralen Anteile des Pulses in einem **Gitter-Kompressor** wieder „zusammengeschoben“. Es gibt Kompressoren mit vier Gittern in spiegelsymmetrischer Anordnung oder mit zwei Gittern und einem Reflektor (siehe Bild 1-2). Da die nach dem Pulsstrecke durchlaufenen Optiken das Spektrum und die Phase des Pulses verändert haben, ist es in der Regel nicht möglich die ursprüngliche Pulslänge wieder zu erhalten. Typisch ist etwa eine Verdopplung der Pulslänge im Vergleich zum Oszillatorpuls. Kommerzielle voll integrierte CPA-Systeme (z.B. mit regenerativem, aber ohne Multipass-Verstärker) liefern üblicherweise Pulsenergien von einigen hundert Mikrojoule. Größere

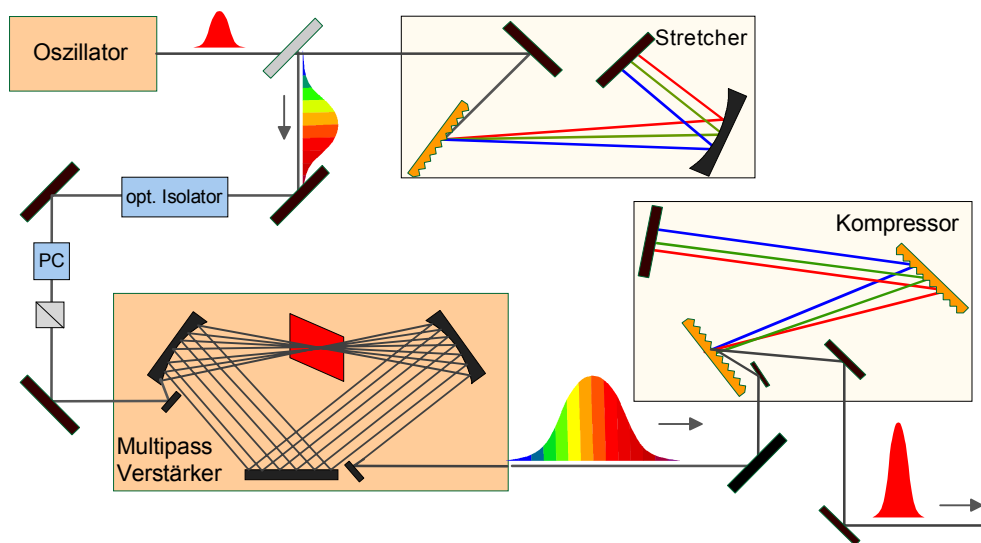


Bild 1-2. Schematische Darstellung eines Kurzpuls-Verstärkersystems.

Laborsystem erreichen Energien von einigen Millijoule (bei bis zu 1 kHz Repetitionsrate) oder mehreren hundert Millijoule, also Spitzenleistungen im Terawattbereich. Um ein solches Terawattsystem handelt es sich beim Teramobile-Laser.

Ausführliche Informationen zur CPA finden sich in Übersichtsartikeln mit Schwerpunkten bei der Erzeugung extrem hoher Leistungen [Backus et al., 1998] und extrem kurzer Pulse [Brabec und Krausz, 2000].

1.1.2 Eigenschaften des Teramobile-Lasers

Der Laser für das Teramobile-Projekt wurde in Zusammenarbeit mit der Firma Thales Laser (früher B.M.Industries, Orsay, Frankreich) entwickelt. Am Anfang der CPA-Kette steht ein Ti:Sa-Oszillator Femtosource Compact Pro von Femtolasers (Wien). Die Pulsverstärkung passiert in einem regenerativen und zwei Multipass-Verstärkern. Letztere, ein Vor- und ein Hauptverstärker, haben jeweils vier Durchgänge. Der Ti:Sa-Kristall des Hauptverstärkers wird pro Puls mit maximal 2 J bei 532 nm gepumpt. Danach hat der Pikosekundenpuls eine Energie von bis zu 800 mJ. Am Ende durchläuft der Puls einen Zwei-Gitter-Kompressor. Um die Optiken, vor allem die Gitter, zu schonen, wird der Strahl auf einen Durchmesser von etwa 30 mm aufgeweitet. Der Kompressor (siehe Bild 1-4) hat eine Transmission von etwas unter 50 %. In Bild 1-3 ist der Aufbau des gesamten Systems dargestellt. Zur einfacheren Übersicht zeigt die rechte Abbildung schematisch die Anordnung

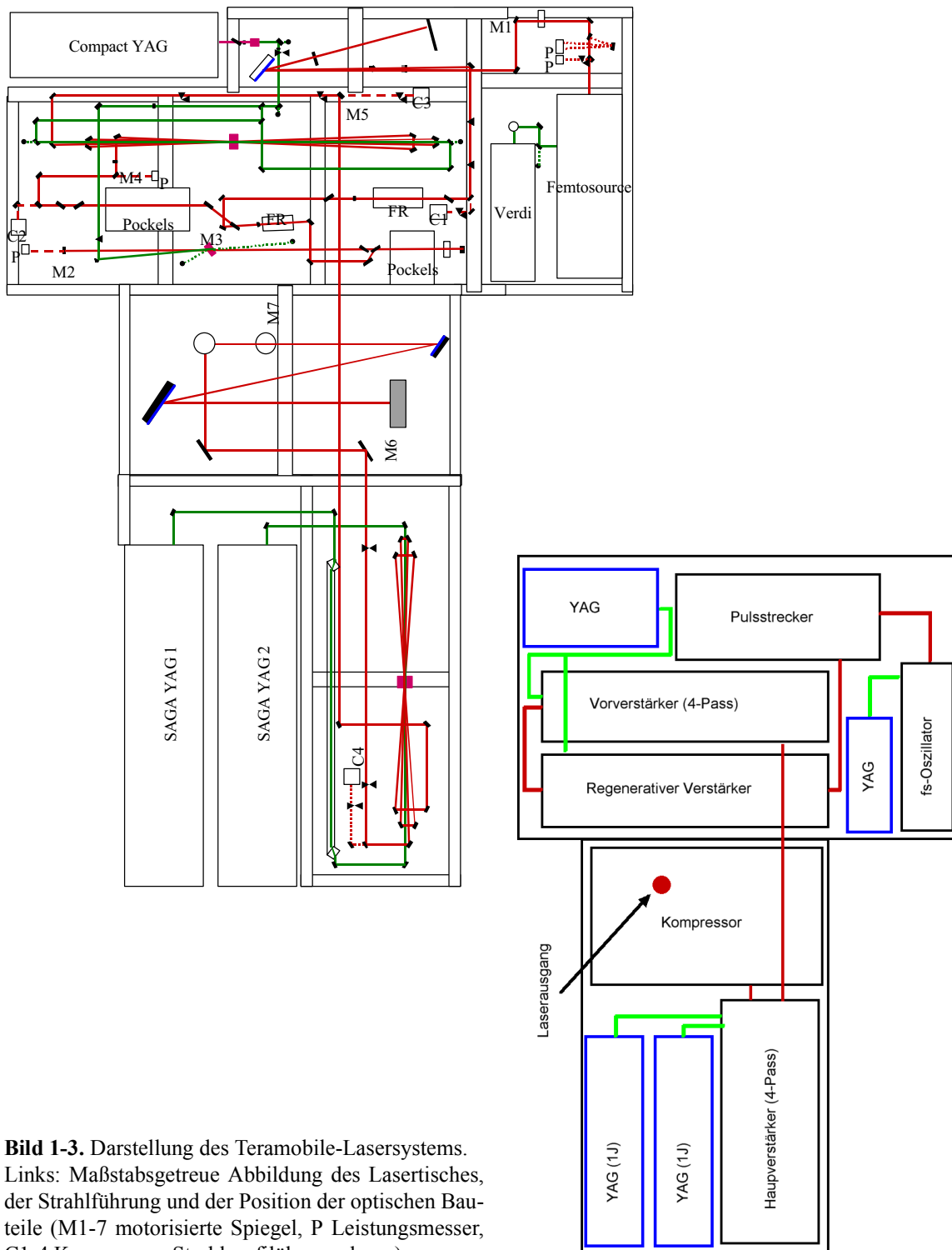


Bild 1-3. Darstellung des Teramobile-Lasersystems. Links: Maßstabsgetreue Abbildung des Lasertisches, der Strahlführung und der Position der optischen Bauteile (M1-7 motorisierte Spiegel, P Leistungsmesser, C1-4 Kameras zur Strahlprofilüberwachung). Rechts: Schematische Übersicht über die Anordnung der CPA-Komponenten. Grüne Linien: Pumpstrahle. Rote Linien: Strahlengang des verstärkten Ti:Sa-Pulses. Blaue Linien: Gitteroberflächen. Blaue Umrandung: Pumplaser.

der Komponenten des CPA-Systems, deren Funktionen im vorherigen Abschnitt erklärt wurden. Die wichtigsten Charakteristika des Lasers sind in Tabelle 1-1 zusammengefasst.

Die T-Form des Lasertisches, bestehend aus einem $1\text{ m} \times 2\text{ m}$ großen und einem $1,2\text{ m} \times 1,9\text{ m}$ großen Element, wurde gewählt, um bei dem begrenzten Innenraum des Laborcontainers (ca. $2,2\text{ m} \times 3,2\text{ m}$ für den Laserbereich) eine optimale Kombination aus Kompaktheit und Bedienbarkeit zu erreichen. (Siehe auch Abschnitt 1.2 und Bild 1-7.)

Tabelle 1-1. Spezifikationen des Teramobile-Lasers.

Zentrale Wellenlänge	793 nm
Bandbreite	20 nm HWB
Pulsenergie	350 mJ
Pulsdauer	70 fs sech ²
Spitzenleistung	5 TW
Wiederholrate	10 Hz
Strahldurchmesser	30 mm
Pulsdauer mit variablem Chirp	70 fs bis 2 ps
Energiestabilität	2.5% QMW über 400 Schüsse
Tischfläche	2,9 m $\times$ 2,0 m (T-Form)

1.1.3 Einstellbare Parameter des ausgesandten Laserstrahls

Der in Tabelle 1-1 angegebene Betrag der **Pulsenergie** ist ein typischer Maximalwert. Normalerweise wird der Teramobile-Laser im Bereich der höchstmöglichen Energie eingesetzt. Jedoch kann, z.B. wenn in einem Experiment die Energieabhängigkeit gemessen werden soll, die Energie auf jeden beliebigen Wert verringert werden, indem eine der kritischen Verzögerungszeiten innerhalb der CPA-Kette aus der optimalen Einstellung verfahren wird. Diese Form der Energiebeeinflussung bietet eine gute Reversibilität und Reproduzierbarkeit, eine Veränderung der Pulsenergie der Pumplaser ist weniger geeignet.

Für die meisten Experimente mit dem Teramobile ist die Wahl der **Pulslänge** und des **Chirp** von großer Bedeutung. Um diese verändern zu können, wurde der Kompressor speziell so konstruiert, dass eines der beiden Gitter (das obere in Bild 1-4) entlang ihrer gemeinsamen Normalen verschoben werden kann. Die ferngesteuerte, motorisierte Verfahrstrecke ist 40 mm lang. In der Position, die dem kürzesten Puls entspricht, wird die

Wirkung des Pulsstreckers bestmöglich rückgängig gemacht. Dort hat der Puls keinen Chirp. In der einen Richtung von dieser Position wird die vorherige Pulsstreckung nicht vollständig kompensiert, in der anderen überkompensiert, das heißt, die Richtung des Chirp dreht sich um. In beiden Richtungen verlängert sich der Puls annähernd linear um einen Wert, der variiert, aber bei etwa 50 fs pro mm Fahrstrecke liegt. Auf diese Weise hängen Chirp und Pulslänge direkt voneinander ab. Um begrifflich die beiden Chirprichtungen (Vorzeichen von γ in Gleichung 1-2) unterscheiden zu können, nennen wir den Chirp, den ein Puls auch bei der Propagation durch ein normal dispersives Medium (z.B. Luft) aufgrund der GVD erhält, positiv, den entgegengesetzten negativ. Mit dem größten negativen Chirp, der im Teramobile-Kompressor erzeugt werden kann, wird die GVD auf bis zu 1,5 km Luftweg vorkompensiert, das heißt, der Puls verkürzt sich auf dem Weg bis zu der entsprechenden Distanz (siehe dazu Abschnitt 3.3, Bild 3-11). Zur Messung der Pulslänge in Abhängigkeit der Gitterposition im Kompressor wird ein Autokorrelator zweiter, gelegentlich dritter (bei Wartungen durch die Firma Amplitude) Ordnung verwendet.

Ein **Sendeteleskop** aus zwei sphärischen Spiegeln, deren Abstand veränderbar ist (Bild 1-5), ermöglicht es, den Strahl auf eine Brennweite von ca. 10 m bis zu einer leichten Divergenz einzustellen. Um die Pulseigenschaften nicht zu verändern, ist das Teleskop rein reflektierend mit dielektrisch beschichteten Spiegeln aufgebaut. Dadurch bedingte *off-axis*-Fehler wurden durch einen kleinen Winkel von 6° zwischen den Strahlengängen minimiert und spielen keine Rolle. Die Länge von über zwei Metern ist hierfür eine Voraussetzung. Aus Platzgründen ist das Teleskop in ein Gestell über dem Lasertisch eingebaut (siehe Bild 1-7). Die spezielle Z-Form des Strahlengangs um die bewegliche Einheit zweier Spiegel

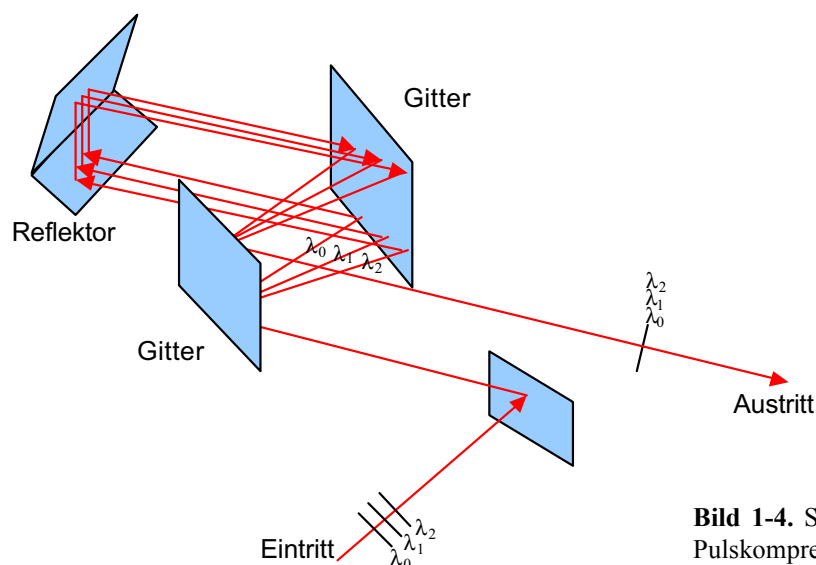


Bild 1-4. Schematische Darstellung des Pulskompressors im Teramobile-System.

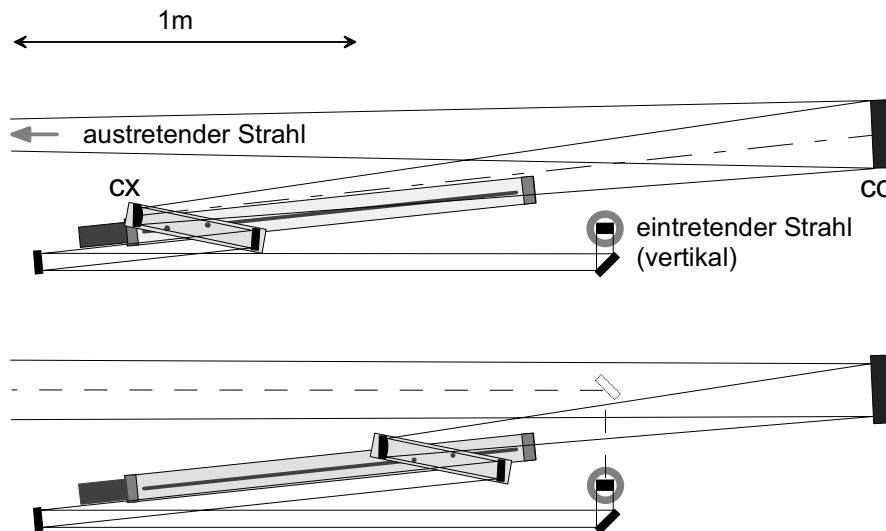


Bild 1-5. Variables *off-axis*-Sendeteleskop mit Schrittmotorschiene. Oben: Einstellung für stärkste Fokussierung ($f < 10$ m). Unten: Einstellung für leichten Zerstreueffekt. CX: konvexer Spiegel ($\varnothing$ 75 mm). CC: konkaver Spiegel ($\varnothing$ 200 mm). — - — zeigt den Strahlengang zwischen den sphärischen Spiegeln an und ist gleichzeitig die Verfahrstrecke des konvexen Spiegels. - - - zeigt die Option der direkten Aussendung des Strahls durch Überbrückung des Teleskops.

(plan und konvex) ermöglicht die Verwendung von nur einer motorisierten Lineareinheit, deren Genauigkeit nicht kritisch ist. Es entfallen zusätzliche Präzisionsdrehtische, somit Kosten und eine komplizierte Steuerung. Für die Lineareinheit erwies sich, auch angesichts der benötigten Verfahrstrecke von mehr als einem Meter, ein kostengünstiges Industrieprodukt (isel automation) mit $12,5 \mu\text{m}$ Schrittweite als ideal geeignet. Die Richtungsstabilität des Sendestrahls ist mit einer Schwankung von maximal $0,3 \text{ mrad}$ sehr gut.

Durch die Möglichkeit der (sanften) Fokussierung kann der Prozess der Selbstfokussierung verstärkt werden. Die Wählbarkeit des Ortes, wo die Filamentierung des Stahls beginnt, ist für einige Experimente sehr wichtig, ebenso wie die durch aktive Fokussierung bedingte starke Bündelung der Filamente. Die gleichzeitige Aufweitung des Strahldurchmessers um das dreifache schon die nachfolgende Optik (z.B. die optionalen Quarzfenster in den Austrittsöffnungen des Containers) und kann sich als Vorteil erweisen, wenn zu frühe Selbstfokussierung unerwünscht ist. Eine Einstellbarkeit des Strahldurchmessers als unabhängigen Parameter wäre vorteilhaft, jedoch technisch aufwendig.

1.2 Das mobile Labor

Die komplette Entwicklung eines mobilen Labors für das Teramobile-Projekt stellte eine große Herausforderung dar, beginnend mit der Festlegung der gewünschten, notwendigen bzw. verlangten Spezifikationen. Die Projektmitglieder an der FU Berlin haben dies in Zusammenarbeit mit dem Ingenieurbüro impres GmbH (Bremen) geleistet. Gebaut wurde der Laborcontainer von der Firma TSU in Bremerhaven.

Im Vergleich zu „klassischen“ mobilen Lidar-Laboren, in deren Entwicklung impres Erfahrungen hatte, stellte der Terawattlaser in zweierlei Hinsicht besondere Anforderungen. Erstens ist ein solches Lasersystem weit komplexer als beispielsweise ein kommerzieller Nd:YAG-Laser und man musste davon ausgehen, dass es viel empfindlicher auf Erschütterungen, thermische Schwankungen etc. reagieren würde. Zweitens hat der Laser in der Summe der Komponenten einen erheblich größeren Energieverbrauch und eine hohe Wärmeabgabe. Diese Tatsachen verlangten nach einem besonders anspruchsvollen System der Strom- und Kühlwasserversorgung sowie der Wärmeabfuhr und Klimatisierung.

Das Labor basiert auf einem ISO 20-Fuß-Standardcontainer mit den Außenmaßen $6,1 \text{ m} \times 2,4 \text{ m} \times 2,6 \text{ m}$ (L $\times$ B $\times$ H). Die Innenmaße des speziell wärmeisolierten und mit einer Klimadruckdecke ausgestatteten Containers betragen $5,70 \text{ m} \times 2,15 \text{ m} \times 2,20 \text{ m}$ (Mindestwerte). Das voll ausgestattete Labor hat ein Gewicht von etwa 10 t. Der Innenraum ist aufgeteilt in einen ca. 3,2 m langen Laserraum und einen ca. 1,5 m langen Kontroll- und



Bild 1-6. Der Teramobile-Container. Links: Innenansicht des Laserraums vor dem Einbau des Lasertisches. Im Hintergrund Trennwand zum Kontrollraum mit den zwei Durchgangstüren (schmalere rechte geschlossen). Rechts: der fertiggestellte Labor-Container.

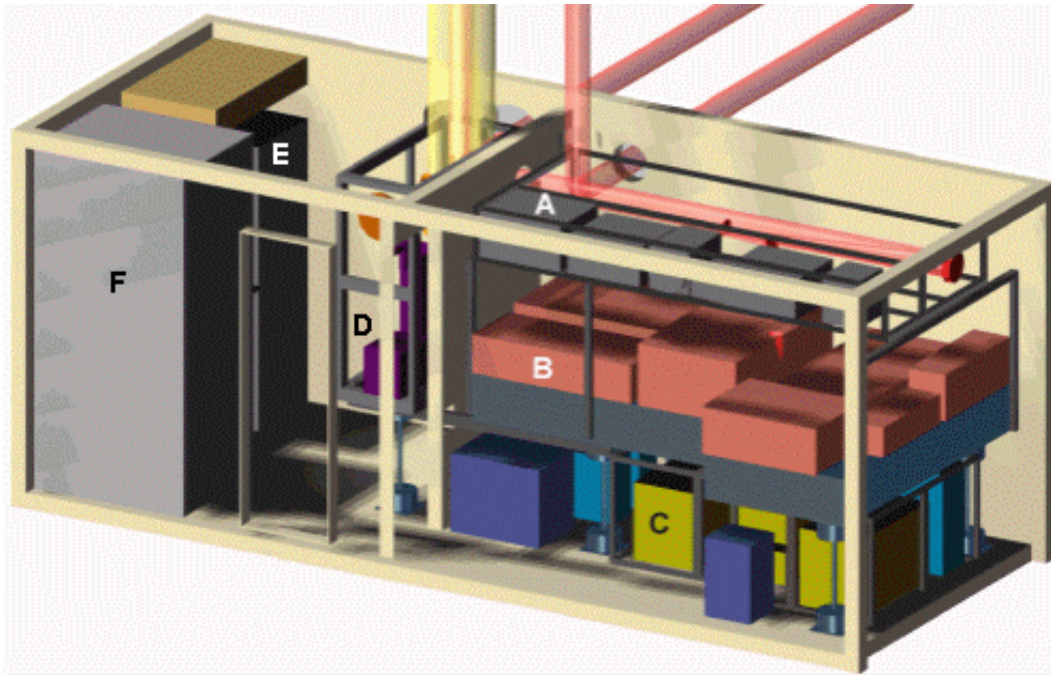


Bild 1-7. Raumaufteilung und Ausstattung des Teramobile-Containers (Grafik basierend auf exaktem 3D-Konstruktionsplan). Laserraum: Steuer- und Kontrollgeräte, Sendeteleskop (A), Lasersystem (B, vergleiche Bild 1-3), Lasernetzgeräte in geschlossener Box mit Wärmetauscher (C). Kontroll- und Detektionsraum: Detektionsbox (D, vergleiche Bild 1-9), Schrank mit Computer und Messelektronik (E), Arbeitsfläche (verdeckt), Schaltschrank und Klimaanlage (F).

Detektionsraum (siehe Bild 1-7). Zum Aussenden des Laserstrahls gibt es im Laserraum zwei Luken mit 25 cm Durchmesser, eine im Dach für vertikales Senden und eine in der Seitenwand, durch die der Strahl horizontal etwa zwei Meter über dem Außenboden austritt. Zusätzlich kann der Laser durch die Trennwand in den Kontroll- und Detektionsraum geleitet werden, um dort durch eine der Luken (ebenfalls in Decke und Wand), die mit einem Durchmesser von 50 cm für die Detektion vorgesehen sind, gesendet zu werden. Diese Option wird zum Beispiel bei Lidar-Messungen im sogenannten *on-axis*-Modus benötigt.

Betreten wird der Container durch die kleine Seitentür, die zum Kontrollraum führt. Um einen gewissen Wärme- und Schmutzschleuseneffekt zu erzielen, sollen die Türen zum Laserraum bei offener Außentür immer geschlossen sein. Die große Portaltür am Ende des Laserraums wird nur zum Installieren und Entfernen von Sicherungsvorkehrungen vor und nach einem Transport geöffnet.

1.2.1 Betriebs- und Versorgungsfunktionen

Bei der Entwicklung des Containers wurde spezifiziert, dass der Betrieb des Teramobile-Systems bei Außentemperaturen zwischen -20°C und 35°C sowie bei beliebiger Luftfeuchte (0 bis 100%) möglich sein müsse. Dabei soll die **Temperatur im Laserraum** auf $\pm 1^{\circ}$ stabil gehalten werden können. Im Kontrollraum ist die Anforderung geringer, das heißt, es genügt ein einfaches Klimagerät, um eine akzeptable Arbeitstemperatur zu gewährleisten. Da im Laserraum eine große **Abwärme** anfällt, wurde ein dreiteiliges System zur Wärmeregulierung entwickelt. Ein Teil der Lasernetzgeräte und -kühlgruppen geben Wärme direkt an einen Kühlwasserkreislauf ab. Da einige Geräte aber über Gebläse Wärme an die Umluft abgeben, wurden diese in eine geschlossene Kühlbox unter einem Teil des Lasertisches verstaut. Eine Ableitung dieser Wärme über die Klimaanlage des relativ kleinen Raums hätte zu sehr starkem Luftzug und einer ungleichmäßigen Temperaturverteilung im Raum geführt. Neben unangenehmen Arbeitsbedingungen würde dies trotz umfangreicher Abdeckung der Laseraufbauten Störungen verursachen. Ein weiterer Vorteil der **geschlossenen Kühlbox** ist, dass darin die Temperatur niedrig ($<15^{\circ}\text{C}$) sein kann, um die Wärme effektiv ableiten zu können. Dies funktioniert mittels eines Kühlgeräts mit starkem Gebläse und einem Wärmetauscher, der wiederum an den Kühlwasserkreislauf angeschlossen ist. Schließlich regelt eine **Klimaanlage** die Raumtemperatur. Über Zuluftventile, die über die gesamte Decke des Laserraums verteilt sind, wird mit gefilterter Luft ein leichter Überdruck erzeugt, wodurch der Staubeintrag in den Raum reduziert wird. Dies ist, auch aus thermischer Sicht, wichtig, wenn der Laserstrahl durch eine offene Luke nach draußen gesendet wird. Für die Zeit außerhalb des Laserbetriebs bei geringen Außentemperaturen ist der Container mit Heizlüftern ausgestattet. Dem Kühlwasser kann Frostschutzmittel zugegeben werden (je nach Menge Schutz bis -20°C).

Das Wasser für den **Kühlkreislauf** wird von einem externen Kühlaggregat in den Container gepumpt. Das Teramobile benötigt also am Betriebsort keine Kühlwasseranschlüsse, der Tank des Aggregats wird am Ort einmalig mit 160 Litern Leitungswasser gefüllt. Da für eine ausreichende Leistung der Kühlbox im Laserraum das zugeführte Wasser eine Temperatur von ca. 12°C haben muss, diese aber für die direkte Kühlung der Lasergeräte zu niedrig ist, existiert ein zweiter interner Kreislauf, dem bei Bedarf über ein Thermostatventil kaltes Wasser zugemischt wird.

Zur **Stromversorgung** benötigt das Teramobile-System einen 380V-Dreiphasen-Drehstromanschluss. Die elektrische Leistungsaufnahme des Containers liegt im Vollbetrieb bei etwa 10 bis 12 kW. Eine 32A-Leitung ist für den Betrieb ausreichend. Das Kühlwasseraggregat hat zusätzlich eine wetterabhängige Durchschnittsleistung von ca. 3 kW. Wegen

kurzzeitig hoher Spitzenströme kann das Gerät jedoch nicht mit einer 16A-Leitung betrieben werden. Somit benötigt das gesamte Teramobile-System entweder zwei 32A-Leitungen oder eine 63A-Leitung. Dies stellte an den Orten der bisherigen Messkampagnen kein Problem dar. Das System ist allerdings auch für den Betrieb mit einem Generator spezifiziert.

1.2.2 Transporteigenschaften

Äußerlich ist das Teramobile ein Standardcontainer, der entsprechend mit Kran oder Gabelstapler gehoben und mit LKW, Zug oder Schiff transportiert werden kann. Er ist versiegelbar und besitzt alle nötigen Zertifikate für den internationalen Frachtverkehr.

Da es vor dem Teramobile noch keinen mobilen Terawattlaser gegeben hat, war vorab nicht völlig klar, ob ein solches System überhaupt in einer Weise transportierbar ist, dass weder Schäden entstehen noch der Aufwand bei der Wiederinbetriebnahme zu groß wird. Dass in dieser Hinsicht keinerlei Probleme aufgetreten sind, ist ein glücklicher Umstand oder ein großer Erfolg, der aus einer sorgfältigen Planung und Konstruktion der Lagerung und Transportsicherung des Lasertisches resultiert. Wie sich allerdings ein Fall des Containers, wenn auch nur aus wenigen Zentimetern Höhe, auswirken würde, ist nicht bekannt. Mit 40t-Kränen ist ein sanftes Absetzen keine Schwierigkeit. Die Erfahrung hat gezeigt, dass thermische Schwankungen, z.B. das Auskühlen bei einem längeren Transport im Winter, die Wiederinbetriebnahme des Lasers eher erschweren kann als mechanische Einflüsse.



Bild 1-8. Abladen des Teramobile-Containers auf dem Gelände der Universität Lyon 1.

Der Lasertisch ist auf vier Füßen gelagert, die jeweils aus zwei Naturgummi-Hutelementen (Willbrandt) und einer M30-Stahlgewindestange bestehen. Die Hutelemente sind fest mit dem Containerboden bzw. der Unterseite des Lasertisches und untereinander über die Gewindestange verbunden. Mit einer annähernd linearen Ausdehnung bei Druck- und Zugkraft sind sie für eine bestimmte Last ausgelegt, um Stöße abzufedern und hochfrequente Schwingungen zu dämpfen. Außerdem kann durch leichte Variation der Länge der unbelasteten Füße die ungleichmäßige Gewichtsverteilung des Lasersystems ausgeglichen werden. Ursprünglich waren für den Betrieb luftgefederte Laserfüße vorgesehen. Die Transportfüße erwiesen sich jedoch als für den Laserbetrieb geeignet, was eine aufwendige Prozedur der Umlagerung des Tisches vor und nach den Transporten erspart.

Die hantelförmigen Füße reagieren relativ weich auf seitliche Scherkräfte. Daher werden der Tisch und das daran befestigte Gestell für den Transport über weitere Gummielemente und Druckkissen mit speziell verstärkten Streben in der Containerwand bzw. -decke verbunden. Diese Verbindungen bleiben zum Teil auch für den Betrieb bestehen, um ein langsames horizontales Schwingen des Tisches zu verhindern.

1.3 Das Detektionssystem

An erster Stelle ist das Teramobile für die Durchführung von Femtosekunden-Lidar-Experimenten entwickelt worden (siehe Abschnitt 4.1.1 zu den Grundlagen der Lidar-Technik). Die dafür benötigten Optiken und Detektoren sind in einer Box eingebaut, die sich im Kontroll- und Detektionsraum des Teramobil-Containers befindet. In Bild 1-9 ist der Aufbau der Box dargestellt. Die Bildunterschrift enthält Informationen zu den einzelnen Komponenten.

In der Detektionsbox befindet sich ein typisches **Lidar-Teleskop**, genau unter der 50 cm breiten Dachluke des Containers. Beim Hauptspiegel des Teleskops handelt es sich um ein Paraboloid mit einem Durchmesser von 40 cm und einer Brennweite von 120 cm. Er ist mit Aluminium und Quarz beschichtet und besitzt somit eine hohe Reflektivität im gesamten Spektralbereich vom nahen UV bis ins Infrarot. Ein Sekundärspiegel lenkt das empfangene Licht so um, dass der Fokuspunkt außerhalb des Teleskops liegt. Dort kann das Licht in optische Fasern eingekoppelt und direkt in eine Einkanal-detektion oder in ein Spektrometer geleitet werden. Mittels eines Strahlteilers können zwei dieser Wege gleichzeitig genutzt werden.

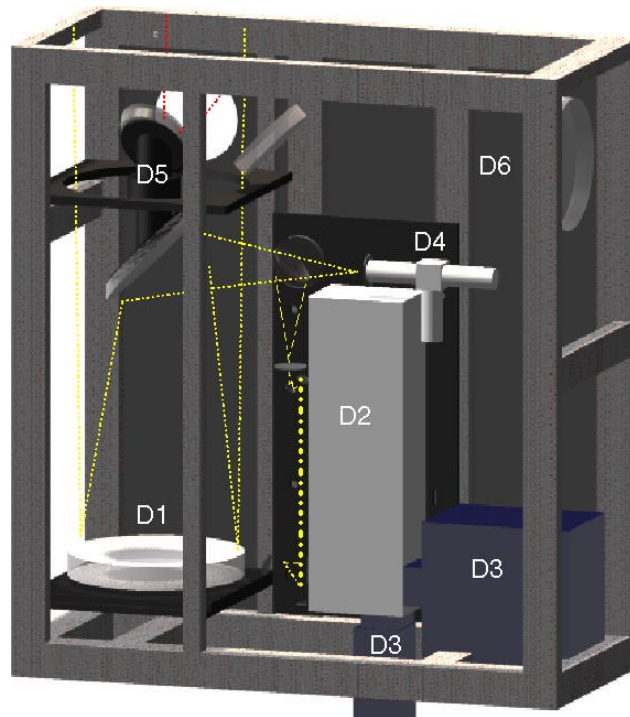


Bild 1-9. Die Teramobile-Detectionsbox. **D1:** vertikales Teleskop (40 cm, $f/3$) für Lidar. **D2:** abbildendes Spektrometer (Chromex, $f=0.5$ m), drei Gitter (UV-IR) mit unterschiedlichen Auflösungen, zwei Ausgänge für Spektrographen- bzw. Monochromatormodus. **D3:** verschiedene wechselbare Einkanal-detektoren für Wellenlängen von UV bis $1,7\ \mu\text{m}$ (Photomultiplier/Hamamatsu, Lawinenphotodiode/Licel) sowie eine ICCD-Kamera (Princeton Instr.) für den Bereich 180 – 930 nm, triggerbare Belichtungszeiten > 5 ns. **D4:** direkter Lidar-Kanal, verschiedene Einkanal-detektoren anschließbar, Polarisationsmessung möglich. **D5:** Laser-Sendespiegel für *on-axis*-Messungen. **D6:** Teleskop für horizontale Rückstreuungsmessungen.

In dem direkten Detektionskanal kann das Licht z.B. grob spektral gefiltert oder polarisationsselektiv gemessen werden. Der **Spektrograph** dient in erster Linie der Messung hochaufgelöster Spektren des aus der Atmosphäre zurückgestreuten Weißlichts mit Hilfe eines Vielkanal-detektors (intensivierte CCD-Kamera). Zusätzlich kann der Monochromatormodus mit Einpunktdetektoren benutzt werden, z.B. bei Messungen in Spektralbereichen, in denen die Kamera unempfindlich ist.

Die Verwendung von Fasern kann die Handhabung und Justage eines Aufbaus vereinfachen. Bei manchen Messungen, z.B. wenn die Polarisation des Lichts eine Rolle spielt, kann man sie jedoch nicht benutzen. Für spektrographische Anwendungen stehen Faserbündel zur Verfügung, die trotz gewisser Verluste in der Transmission eine bessere Signalausnutzung bieten können, da sie ein Rundprofil (Durchmesser 1 mm), das im Fokus des Teleskops plaziert wird, in eine Linie ($50\ \mu\text{m} \times 12\ \text{mm}$) übertragen. Dadurch werden Verluste am Spektrometerspalt vermieden und die volle Fläche der CCD genutzt.

Die **Wahl des Detektionskanals** hängt vom Gegenstand der jeweiligen Messung ab. Möchte man die Absorption von Atmosphärgasen anhand schmaler Absorptionslinien in einem langwelligen Spektralbereich, wie sie für molekulare Schwingungs- und Rotationsbanden typisch sind, oder die Fluoreszenz anhand schmaler Emissionslinien messen, benötigt man eine hohe **spektrale Auflösung**. Diese bietet das Spektrometer in Verbindung mit der ICCD-Kamera. Die bei Lidar übliche Entfernungsinformation über die Laufzeit des Lichts ist auch hierbei zugänglich, da die Kamera mit Verzögerungs- und Öffnungszeiten in Einheiten von Nanosekunden betrieben werden kann. Jedoch lässt sich pro Laserpuls nur ein Zeit- bzw. Entfernungsfenster setzen, so dass je nach der Breite des Fensters ein Großteil des Rückstreulichts verloren geht. Die gesamte **Entfernungsinformation** in hoher Auflösung erhält man, wenn man in für Lidar typischer Weise das Signal eines in Echtzeit auslesbaren Detektors (Photomultiplier oder Photodiode) mit einem schnellen Oszilloskop oder einem Transientenrekorder aufzeichnet. Die Messung solcher Signale für sehr viele Punkte im Spektrum mittels Durchfahren des Monochromators ist aber sehr zeitaufwendig, wobei durch Veränderung der atmosphärischen Bedingungen das Ergebnis verfälscht werden kann. Zuweilen genügt jedoch eine geringe spektrale Auflösung. Zum Beispiel ist diese Methode für die Messung der breitbandigen Absorption von Gasen im UV gut geeignet. (Näheres zu den Messmethoden der Atmosphärenforschung findet sich in Kapitel 4.)

Der Laserstrahl kann vom Laserraum durch die Trennwand in die Detektionsbox geleitet werden, um von dort aus durch eine der Luken gesendet zu werden. Der Sendespiegel befindet sich in Achse mit dem Empfangsteleskop. Bei Lidar-Messungen, wo in der Regel der Laserstrahl parallel zur Teleskopachse justiert wird, erreicht man mit dieser *on-axis*-Variante, dass der Strahl früher in das Sichtfeld des Teleskops eintritt als im *off-axis*-Fall. Unabhängig davon, ob sich der Sendespiegel in der Detektionsbox oder über dem Lasertisch befindet, muss sichergestellt sein, dass sich der Laserstrahl und das Teleskop samt Detektion nicht gegeneinander bewegen. Daher ist die Detektionsbox über zwei starke Aluminiumprofile durch Aussparungen in der Trennwand fest mit dem Lasertisch verbunden und auf zwei weiteren Füßen der Art des Lasertisches gelagert.

Die Trennwand zwischen Laser- und Detektionsraum besitzt eine geschlossene leitende Oberfläche. Auf diese Weise wird der Einfluss elektromagnetischer Störungen, die vor allem von den Pockelszellen des Lasers stammen, auf die Detektion reduziert. Eine vollständige Abschirmung ist allerdings nicht möglich, wie man an Signalstörungen der besonders empfindlichen Photomultiplier sehen kann. Ein begrenztes, schnell abklingendes Störsignal ist aber oft als Referenz für den Zeitpunkt des Laserschusses willkommen.

2 Messkampagnen

Im Zeitraum zwischen der Fertigstellung des Teramobile-Systems im Frühjahr 2001 und dem Ende des Jahres 2002 sind drei große Messkampagnen an unterschiedlichen Orten mit dem mobilen Labor durchgeführt worden. Diese sind einzeln in den Abschnitten 2.1 bis 2.3 beschrieben. Der Abschnitt 2.4 widmet sich einigen kleineren Experimenten, von denen eines mit dem Teramobile-System auf dem Gelände der Freien Universität Berlin, die übrigen mit den vorhandenen Terawatt-Lasersystemen der Institute in Jena und Palaiseau durchgeführt wurden. Letztere fanden zum Teil schon während der Aufbauphase des mobilen Labors statt.

In diesem Kapitel soll, neben der Beschreibung der Motivation, vor allem die Durchführung der Experimente veranschaulicht und ein Überblick über die erhaltenen Daten gegeben werden. Die Resultate sind in weitgehend roher Form dargestellt. Sie beinhalten lediglich geräteabhängige Korrekturen sowie einfachere Datenumwandlungen und Auswertungen. Die ausführliche Analyse und Interpretation der Daten wird, je nach ihrem Inhalt, erst in den Kapiteln 3 und 4 präsentiert. Die Einteilung der Abschnitte dieses Kapitels sowie die damit einhergehende Gewichtung der verschiedenen Experimente steht in Zusammenhang mit der thematischen Schwerpunktsetzung dieser Arbeit, wie sie in den Kapiteln 3 und 4 zum Ausdruck kommt. Die einzelnen Experimente werden um so genauer und ausführlicher beschrieben, je mehr sie in die Auswertung und Ergebnisinterpretation dieser Arbeit eingehen.

Eine Ausnahme stellt der Abschnitt 2.3 „Hochspannungsexperimente an der TU Berlin“ dar. Die darin beschriebene Messkampagne steht außerhalb der thematischen Struktur dieser Arbeit und wird nur in diesem Kapitel behandelt. Sie ist aber für das Projekt von großer Bedeutung und darf in einer kompletten Darstellung der bisherigen Teramobile-Aktivitäten nicht fehlen.

2.1 Messungen an der Thüringer Landessternwarte

(Kilometerweite Ausbreitung von TW-Pulsen in der Atmosphäre – Abbildung und Spektroskopie)

In einer Kooperation der Teramobile-Projektpartner mit der Thüringer Landesternwarte (TLS), die von Prof. Artie P. Hatzes geleitet wird, fand im Winter 2001/2002 eine Messkampagne auf dem Gelände der TLS bei Tautenburg, 15 km nördlich von Jena, statt. Der Teramobile-Container wurde auf dem Vorplatz des Observatoriums der TLS (Bild 2-1) aufgestellt. Der Kuppelbau beinhaltet ein Teleskop mit einem Spiegeldurchmesser von 2 m und einer Brennweite von 4 m („Alfred-Jensch-Teleskop“, Carl Zeiss Jena), das je nach Mondphase für Bildaufnahmen (Schmidt-Modus) oder Spektroskopie an Himmelsobjekten (Coudé-Modus) eingesetzt wird. Im Bildmodus ist das TLS-Teleskop die größte „Schmidt-Kamera“ der Welt (Siehe auch unter <http://www.tls-tautenburg.de/telesc.html>). Zu den Ergebnissen der Experimente, die im Rahmen dieser Kooperation durchgeführt wurden, sind bisher zwei Veröffentlichungen erschienen bzw. eingereicht worden [Méjean et al., 2003; Rodriguez et al., 2004]. Ein erster Bericht findet sich auch in einem Review-Artikel, der in *Science* erschienen ist [Kasparian et al., 2003].

2.1.1 Motivation

Jeder Atmosphärenphysiker, der mit Lidar arbeitet, wünscht sich zuweilen ein Teleskop von „astronomischen Ausmaßen“, das heißt von der Größe wie sie in der Astronomie üblich ist. Meint man damit nicht die Dimensionen heutiger internationaler Großprojekte, sondern Teleskope mittlerer Größe, wie das in Tautenburg, dann kann man sagen, dass für einige Lidar-Forscher dieser Wunsch Wirklichkeit wurde. Als Beispiel seien die zwei 1,8-m-Lidar-Teleskope an der ALOMAR-Station (Andøya, Norwegen) genannt [von Zahn et al., 2000]. Solche Spiegeldurchmesser ermöglichen die Messung des zurückgestreuten Laserlichts z.B. aus der oberen Stratosphäre in 50 km Höhe. Die Spiegel der Lidar-Teleskope sind aber üblicherweise paraboloid, das heißt dafür ausgelegt, parallel einfallendes Licht auf einen möglichst scharfen Punkt zu fokussieren. Die Möglichkeit, die Ausbreitung des Laserstrahls über lange Strecken abbilden zu können, indem man ihn aus leicht gekippter Richtung in einem relativ großem Winkelbereich ($0,6^\circ \times 0,6^\circ$) betrachtet, ist eine der Besonderheiten der hier vorgestellten Experimente.

Schon in den Anfängen der Atmosphärenfernerkundung, noch vor Erfindung des (gepulsten) Lasers, wurde die Rückstreuung von Scheinwerferlicht bis in Höhen von mehreren

Kilometern aus großer Distanz und mit sehr langer Belichtung fotografisch aufgenommen [Duclaux, 1936; Hulbert 1937]. Auf diese Weise konnte schon damals ein Dichteprofil der Atmosphäre berechnet werden. Diese Methode wurde allerdings durch die zeitaufgelöste Messung der Rückstreuung von Laserpulsen (Lidar) abgelöst.

Bei der Verwendung von monochromatischem Laserlicht könnte die **Abbildung des Strahls** über große Strecken in der Atmosphäre bereits interessant sein, da Mehrfachstreuung in Nebel- und Wolkenschichten die Strahlform verändern kann. Gemessen wurde dieser Effekt bisher durch eine grobe Aufteilung des Sichtfeldes von Teleskopen zum Beispiel in Ringe unterschiedlicher Raumwinkelbereiche (*multiple-field-of-view lidar* [Bissonnette und Hutt, 1995; Eloranta, 1998]). In unserem Fall ist aber die räumliche Entwicklung des Strahlprofils über lange Strecken in der Atmosphäre von grundlegendem Interesse. Die dabei auftretenden Prozesse, vor allen der Filamentierung, lassen sich nicht immer auf einen verkleinerten Maßstab ins Labor übertragen. Dies gilt sowohl für das Experiment als auch für die numerische Simulation. Bei der Arbeit mit langen Filamenten im Labor ist wiederum deren direkte Untersuchung schwierig, da ihre hohe Intensität jede Oberfläche zerstört.

Um Aufschluss über die nichtlinearen optischen Effekte zu erhalten, macht die Abbildung jedoch nur in Verbindung mit einer gewissen Wellenlängeninformation Sinn. Um diese zu erhalten, konnten spektrale Filter vor der Kamera des Schmidt-Teleskops eingesetzt werden. Es bestand die Möglichkeit, die von den Astronomen üblicherweise verwendeten

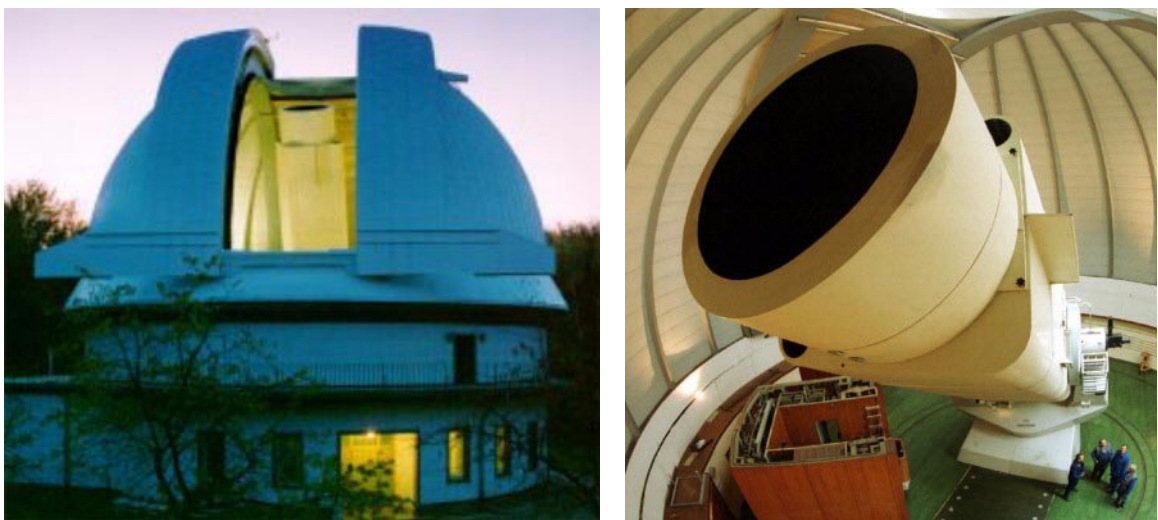


Bild 2-1. Das Karl-Schwarzschild-Observatorium der Thüringer Landesternwarte Tautenburg mit dem 2m-Teleskop von Zeiss. [Fotos: TLS]

Farbgläser (Bandbreite etwa 100 nm bis 200 nm) zu benutzen und diese durch andere zu ergänzen. Vor allem sollte dabei das in der Luft erzeugte Weißlicht vollständig getrennt von dem ursprünglichen Laserlicht im Wellenlängenbereich um 800 nm detektiert werden können. Ein Vergleich der mit unterschiedlichen Filtern aufgenommenen Strahlbilder würde quantitative Informationen über die (breitbandige) spektrale Veränderung der Laserpulse in der Luft liefern. Diese umfassende Charakterisierung des Strahls sollte die Besonderheiten der nichtlinearen Lichtausbreitung in der Atmosphäre direkt oder zumindest über ihre Auswirkung auf das abgestrahlte Licht sichtbar machen. Gleichzeitig ist das Wissen über den Zustand der Pulse in Abhängigkeit der Höhe wichtig für die Durchführung und Interpretation von Lidar-Experimenten. Beide Aspekte sollten systematisch unter Variation der steuerbaren Laserparameter untersucht werden.

Im Coudé-Modus bietet das Tautenburger Teleskop in Verbindung mit einem Echelle-Spektrograph eine hohe spektrale Auflösung bei gleichzeitiger Überdeckung eines großen Spektralbereichs in einer einzelnen Aufnahme. Aufgrund der Größe des Teleskops und der angenommenen Empfindlichkeit der Detektion war mit **hochaufgelösten Absorptionsspektren** zu rechnen, die die Ergebnisse früherer Experimente [Rairoux et al. 2000] in der Qualität übertreffen würden. Dazu zählt auch, dass die Höhe, aus der auswertbare Spektren gemessen würden, deutlich gesteigert werden könnte (gegenüber maximal 1,1 km bei [Rodriguez, 1998; Rairoux et al., 2000]). Der Echelle-Spektrograph erlaubt dabei die simultane Messung sehr vieler Absorptionslinien. Da die Empfindlichkeit des Spektrographen auf den Spektralbereich zwischen ca. 350 nm und 950 nm beschränkt ist, konnte jedoch nur von der gleichzeitigen Erfassung von Wasserdampf und Sauerstoff sicher ausgegangen werden. Von den atmosphärenrelevanten Gasen, die im sichtbaren bzw. UV-Bereich Absorptionsbanden besitzen, könnten unter Umständen noch die Stickoxide NO_2 und NO_3 detektiert werden. Diese absorbieren allerdings nicht, wie im langwelligen



Bild 2-2. Künstlicher Stern erzeugt durch einen gelben Laserstrahl (589 nm). Natrium-Fluoreszenz in ca. 90 km Höhe (oben) und Rayleigh-Streukegel (unten). [Foto: Calar Alto Observatorium, MPIA/MPE]

Bereich typisch, in Form einzelner getrennter Linien, sondern zeigen breitbandige Strukturen, was die Erkennung speziell im Echelle-Spektrogramm erschwert. Außerdem war keine erhöhte Konzentration dieser Schadstoffgase am Messort (Waldgebiet) zu erwarten.

Als dritter Punkt, der eine Verbindung zur Arbeit der Astronomen herstellt, sollte untersucht werden, ob mit dem Teramobile-Laser ein **künstlicher Leitstern** erzeugt werden kann. Hierbei handelt es sich um die Anregung der resonanten Fluoreszenz von Alkalimetallen in einer Schicht der Mesosphäre bei etwa 90 km bis 100 km. Am stärksten ist die Fluoreszenz der Natrium-D₂-Linie bei 589 nm. Die Konzentration von Natrium liegt in dieser Schicht bei 10^3 - 10^4 Atomen pro cm^3 . Prinzipiell wären auch Kalium und Kalzium geeignet. Der Nutzen dieser künstlichen Sterne resultiert daher, dass heutzutage viele Observatorien adaptive Optiken zur Korrektur von atmosphärischen Turbulenzen einsetzen. Hierfür wird, wie bei der automatischen Nachführung des Teleskops, das Bild eines ausreichend hellen Objekts benötigt. Es sind jedoch nicht genügend geeignete Sterne am Himmel vorhanden. Entsprechende Laserleitstern-Systeme wurden z.B. am deutsch-spanischen Calar Alto Observatorium (Almeria, Spanien) [Eckart et al., 2000] und am Lawrence Livermore National Laboratory (Kalifornien) entwickelt (Theorie in [Morris, 1994], Experimentelles in [Max et al., 1994]). Bei diesen wird mit Farbstofflasern gearbeitet, die auf die Natrium-D₂-Linie eingestellt sind (siehe Bild 2-2). Der Teramobile-Laser könnte dagegen mit dem verbreiterten Spektrum mehrere Alkali-Fluoreszenzen gleichzeitig anregen.

2.1.2 Allgemeiner experimenteller Aufbau

Der Teramobile-Container wurde einmalig neben dem Kuppelbau der TLS so aufgestellt, dass während der gesamten Kampagne ein konstanter Abstand von $d = 30 \text{ m} \pm 0,5 \text{ m}$ zwischen der Achse des Teleskops (Vertikale durch das Rotationszentrum) und dem Laserstrahl bestand (siehe Bild 2-3). In Verbindung mit der Justage der Lidar-Detektion im Container wurde der Laserstrahl bestmöglich vertikalisiert. Hierzu simuliert man senkrecht einfallendes Licht mit mindestens zwei Justierstrahlen, die von einer Wasseroberfläche auf sich selbst zurückreflektiert werden, und positioniert die Lochblende der Detektion in den Fokus bzw. Schnittpunkt dieser Strahlen. Um einen unverzerrten Fokus zu gewährleisten, muss zuvor der paraboloider Hauptspiegel des Lidar-Teleskops mit einer Wasserwaage möglichst genau ausgerichtet werden (siehe Darstellung des Lidar-Teleskops in Bild 1-9). Durch Maximierung des Lidar-Signals in möglichst großer Höhe stellt man dann den Laser parallel zur vertikalen Lidar-Teleskopachse ein. Durchgeführt wurde dies einmalig am Anfang der Kampagne durch Justage des Sendespiegels (letzter Laserspiegel), dessen Stellung während aller Messungen gleich blieb. Die Auswertung der Azimutwinkel des Strahls

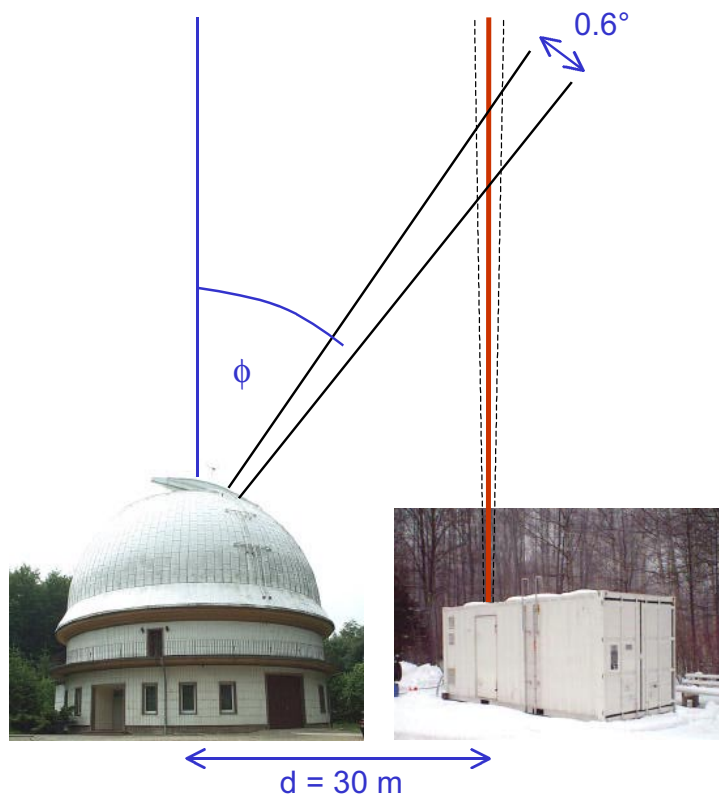


Bild 2-3. Messanordnung an der TLS Tautenburg. Der Winkel ϕ des Teleskops zur Vertikalen und der Abstand zwischen Teleskop und Laserstrahl (immer 30 m) ergeben zusammen die Messhöhe. Diese wird abgeglichen mit Lidar-Signalen, die mit der Teramobile-Detektion aufgenommen wurden (angedeutet durch gestrichelte Linien). Die Breite des Teleskopsichtfelds von $0,6^\circ$ gilt für die Bildaufnahmen (Schmidt-Modus). Das Spektrometer (Coudé-Modus) sieht nur einen Raumwinkelement von $1,2'' \times 9''$.

(zu den Koordinatensystemen siehe Anhang A) in den ersten Bildern ergibt eine maximale Abweichung der Strahlachse gegenüber der Vertikalen von lediglich ca. 0,01 mrad. Allerdings ist dies nur senkrecht zur Blickrichtung „sichtbar“, über eine mögliche Abweichung entlang der Linie zwischen Teleskop und Laserstrahl kann keine sichere Aussage gemacht werden. Der Fehler, der durch Verstellung des Chirp, also des Gitterabstands im Pulskompressor entsteht, bewegt sich ebenfalls in der Größenordnung von weniger als 0,01 mrad. Unter der Annahme, dass dies auch für die „unsichtbare“ Richtung gilt, ergeben sich Fehler bei der Höhenberechnung, die kleiner sind als die, die aus der Unsicherheit von d folgen. Diese liegen bei etwa 100 m in 5 km und etwa 400 m in 20 km Höhe (siehe Anhang A). Für die letzten Bildaufnahmen, die nach der Messung der hochaufgelösten Spektren gemacht wurden, wurde das fokussierende Sendeteleskop verwendet. Bei der Umstellung auf Fokussierung sowie durch die Verstellung der Fokuslänge ergaben sich maximale Verkippungen des Laserstrahls um 0,3 bis 0,4 mrad. Die entsprechenden Höhenfehler sind ca.

300 m bei 5 km und ca. 5 km bei 20 km. Die Bilder vom fokussierten Strahl werden jedoch ohnehin nicht oberhalb von 5 km ausgewertet.

Bei einem Großteil der Messungen, sprich Aufnahmen von Bildern oder Spektren, wurden zeitgleich Lidar-Signale vom Teramobile-Container aus gemessen (siehe Bild 2-5 rechts). Man kann diese als Aerosol-Rückstreuprofile bezeichnen, da sie vor allem die Struktur und Streuintensität der Nebel- und Wolkenschichten anzeigen. Um diese ohne Sättigung messen zu können, wurde der Detektor (Si-APD von Licel) so betrieben, dass der weit schwächere Rayleigh-Anteil der Signale nicht auswertbar ist. Die Signale dienen daher hauptsächlich zur Kalibrierung der Messhöhe, aber auch zum Vergleich der Atmosphäre bei verschiedenen Messungen, vor allem um Aufschluss über die Aerosolextinktion des Laserlichts unterhalb der Messhöhe (Bildausschnitt) zu erhalten.

Bei allen Messungen lag die Pulsenergie des Lasers zwischen 260 mJ und 290 mJ. Die minimale Länge des ungechirpten Pulses bei entsprechender Kompressoreinstellung war ca. 70 fs. Der Strahldurchmesser bei direktem Senden unter Umgehung des Sendeteleskops war ca. 3 cm (volle $1/e^2$ -Breite). Bei Benutzung des Sendeteleskops zur Fokussierung des Strahls vergrößert sich der Durchmesser je nach eingestellter Brennweite (Abstand der sphärischen Spiegel) um das 3- bis 4-fache.

2.1.3 Bildaufnahmen im Schmidt-Modus

Durch Einsetzen der im Durchmesser 1,34 m großen sogenannten Schmidt-Platte wird das Teleskop der TLS für die Aufnahme von Bildern eingerichtet. Die Methode, eine teilweise bündelnde, teilweise zerstreuernde Korrekturplatte vor einem großen sphärischen Spiegel zu verwenden, entwickelte der Optiker Bernhard Schmidt, geboren 1879 in Estland, um das Jahr 1930 [Schmidt, 1931]. Diese Erfindung revolutionierte die astronomische Fotografie, indem es die großflächige Abbildung ungewohnt großer Sichtfelder erlaubte. An der TLS wurden früher Winkelsegmente von bis zu $3,3^\circ \times 3,3^\circ$ auf Fotoplatten abgebildet, die heutige Kamera füllt einen deutlich kleineren Ausschnitt der Bildfläche.

Die CCD-Kamera der TLS, ein 2048×2048 Pixel großer Chip von SITe® mit einer Pixelgröße von $24 \mu\text{m} \times 24 \mu\text{m}$, hat eine minimale Belichtungszeit von einer Sekunde. Daher war ein vom Laser gesteuertes Triggern der Kamera weder möglich noch sinnvoll. Ein Bild stellt daher die Summe von mindestens zehn Laserpulsen dar und es gibt keine Möglichkeit, den Sensor während der relativ langen Pause zwischen den Pulsen zu schließen. Die daraus resultierende relativ hohe Intensität des Hintergrundlichts, vor allem der Sterne, bedeutet einen Nachteil dieser Kamera gegenüber einer schnell schließbaren intensivierten

CCD, wie sie in der Teramobile-Detektion für spektroskopische Messungen verwendet wird. Dafür besitzt die TLS-Kamera eine hohe Empfindlichkeit, eine gute Linearität bei einer Dynamik von 16 Bit und eine sehr gute Rauschunterdrückung. Letzteres erfordert eine Auslesezeit von drei Minuten pro Bild, was sich wiederum auf die Anzahl der Aufnahmen in einer bestimmten Messzeit auswirkte.

Tabelle 2-1. Liste der im Schmidt-Modus verwendeten Farbfilter. Alle Filter sind aus genormten Farbgläsern (SCHOTT Glas) zusammengesetzt, Johnson-Filter sind spezielle in der Astronomie verwendete Kombinationen. Die Wellenlängenbereiche der Transmission beinhalten die spektrale Effizienz der CCD. Die Schätzung des Anteils des fundamentalen Laserlichts am gesamten Licht, das durch einen Filter detektiert wird, basiert auf Labormessungen des Weißlichtspektrums (siehe Abschnitt 2.4.1, Bild 2-31).

Symbol	Filtertyp, -dicke	10% max. Transm.	50% max. Transm.	Beschreibung	Anteil fund. Laserlichts
B	Johnson B, 8 mm + BG39, 2 mm	370 – 510 nm	390 – 480 nm	Blauer Teil des Weißlichts	–
BG	BG39, 3 mm	340 – 610 nm	370 – 580 nm	Sichtbarer Teil des WL (grün)	–
R	Johnson R, 8 mm	560 – 800 nm	570 – 720 nm	Rotes Licht (WL und fund.)	30%
I	Johnson I, 8 mm	750 – 1000 nm	770 – 950 nm	Fundamentales Laserlicht	50%
RG	RG850, 3 mm	830 – 970 nm	840 – 950 nm	Nahes Infrarot (WL und fund.)	15%

Die Kamera bildet ein Winkelsegment von $0,6^\circ \times 0,6^\circ$ ab, bestimmt durch die Öffnung des Filterhalters. Da der Laserstrahl vertikal gesendet wurde, konnte er durch Ausrichten des Teleskops auf den Zenit sofort gefunden werden. Bei Platzierung des Zenitpunkts auf den Rand des Bildausschnitts war der Strahl bis hinunter zu einer Höhe von etwa 3 km sichtbar (siehe Bild 2-4). Darüber hinaus war der Strahl auf dem kontinuierlichen Bild der TV-Kamera des außen am Hauptteleskop angebrachten Leitteleskops deutlich zu sehen. Die Kanten der Hauptkamera liegen parallel zu den beiden Bewegungsrichtungen des Teleskops, also Deklination (ungefähr ein Maß der Strahlhöhe) und Stundenwinkel (Erddrehung). Daher verlaufen die Sternspuren, deren Länge der Belichtungszeit entspricht, waagrecht (siehe Bild 2-8). Die schräge Lage des Strahls in den Bildern rührt daher, dass der Teramobile-Container nicht exakt in Nordrichtung vom Observatorium stand, sondern 20° östlich.

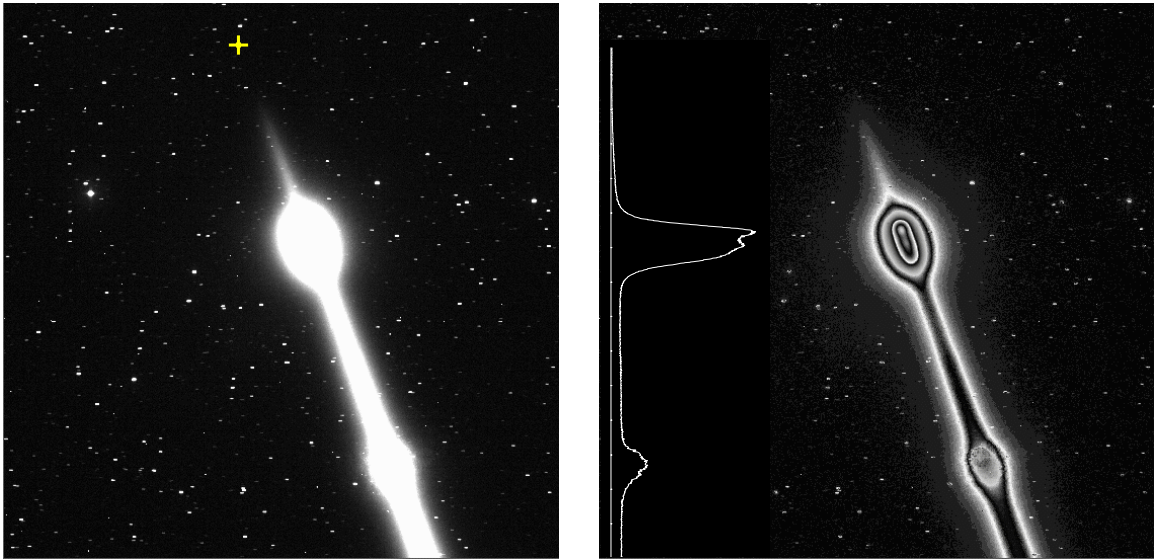


Bild 2-4. Schmidt-Kamerabild von 10 Laserpulsen (1 s) mit dem I-Filter (hauptsächlich fundamentales Laserlicht). Links: Darstellung der 16-Bit-Daten mit 8-Bit-Graustufen. Rechts: Konturdarstellung und Intensitätsprofil entlang der Strahlachse. Das Kreuz im linken Bild markiert den Zenit. Die Höhe der unteren Nebelschicht ist ca. 4 km, die mehrschichtige dünne Wolke befindet sich in 8 bis 9 km Höhe. Der Strahl ist bis ca. 25 km zu sehen.

In Tabelle 2-1 sind die Filter aufgelistet, die zur grob wellenlängenselektiven Abbildung des Strahls verwendet wurden. Sie konnten jederzeit vom Kontrollpult der Sternwarte aus gewechselt werden. Die Form der Transmissionskurve ist bei allen fünf Filtern etwa glockenförmig und die Halbwertsbreiten liegen in der Größenordnung von 100 nm bis 200 nm. Die Flanken der Glockenkurven sind jedoch nicht immer spiegelsymmetrisch, daher sind auch die Wellenlängenintervalle angegeben, in denen die Transmission höher als 10% des Maximalwerts ist. Das Transmissionsmaximum der Filter variiert zwischen 0,5 bei B und 0,8 bei R. Die Filter B und BG ermöglichten Messungen „reinen“ Weißlichts, da beide mit Transmissionswerten kleiner 10^{-15} um 800 nm das fundamentale Laserlicht vollständig unterdrücken. Wegen der verschiedenen Filterdicken wurde die Kamera jeweils auf der Teleskopachse präzise positioniert, um immer eine scharfe Abbildung parallel einfallenden Lichts zu erhalten. Bild 2-4 zeigt eine der ersten Aufnahmen der Kampagne, die mit dem I-Filter, also mit der maximalen Intensität, gemacht wurde. Beim I-Filter wurden typischerweise Belichtungszeiten von 1 s bis 5 s gewählt, bei R und RG 30 s, bei BG 180 s und bei B 360 s.

In mehreren Messnächten wurden verschiedene Bildserien aufgenommen, um die Abhängigkeit der Strahleigenschaften von den einstellbaren Parametern zu untersuchen. Variiert

wurden der Chirp, zwischen positiver Richtung mit 600 fs Pulslänge und negativer Richtung (Kompensation der Gruppengeschwindigkeitsdispersion) mit ebenfalls 600 fs Pulslänge, sowie die Brennweite der Sendeoptik, zwischen $f = 16$ m und $f = \infty$ (unter Umgehung des Sendeteleskops). In der Regel wurde in jeder Parameterkombination eine Serie von Bildern mit den verschiedenen Filtern aufgenommen. Der Großteil der Bilder zeigt den Höhenbereich von drei oder vier Kilometern bis zum Zenit. In einer Serie wurde allerdings der gesamte Strahl bis hinunter zu 580 m in acht überlappenden Aufnahmen abgebildet. Bild 2-5 zeigt das zusammengesetzte Gesamtbild. Die Graustufung der Intensität ist bei allen Teilbildern dieselbe. Die Sichtbarkeit einzelner Übergänge ist ein Anzeichen für die Instabilität der Aerosolverteilung im unteren Kilometer der Atmosphäre in der Zeitskala von drei Minuten. Vermutlich handelt es sich um vorbeiziehende Hochnebelfelder. Oberhalb der Planetaren Grenzschicht, die deutlich in Form einer scharfen Aerosol-/Nebelschicht bei 1,6 km zu erkennen ist, passen die Bilder perfekt aneinander. Da das Teleskop auf die Abbildung unendlich weit entfernter Objekte eingestellt ist, erscheint der Strahl im unteren Bereich unscharf. Der dunklere Streifen in der Mitte des Strahls resultiert aus der Verdeckung des Teleskopspiegels durch die Halterung für Kamera bzw. Umlenkspiegel. Der Unschärfefefferkt kann aber herausgerechnet werden (siehe Anhang A).

In Bild 2-5 erkennt man die Übereinstimmung der Wolkenhöhen in der Kameraaufnahme und im Lidar-Signal, obwohl letzteres ca. eine Stunde vor dem oberen Teilbild aufgenommen wurde (zu den meisten Bildern wurden exakt zeitgleich Lidar-Messungen durchgeführt). Dabei ist die Bestimmung beider Höhenskalen unabhängig voneinander. Bei der Festlegung einer für alle Bilder gültigen Funktion der Höhe in Abhängigkeit des Bildpunkts und der in der Sternwarte registrierten Himmelskoordinaten mussten allerdings Lidar-Signale verwendet werden (siehe dazu Anhang A). Das Lidar-Signal in Bild 2-5 ist in unbearbeiteter Form dargestellt. Dabei ist zu berücksichtigen, dass die Signalintensität einer konstanten Strahlungsquelle mit dem Quadrat der Höhe abnimmt ($1/R^2$ -Effekt). Daraus und aus dem Eintritt des Strahls in das Sichtfeld des Lidar-Teleskops resultiert das Signalmaximum bei ca. 800 m. Der breite Peak enthält jedoch auch die erhöhte Streuintensität der unteren Aerosolverteilung. Diese ist auch im Bild zu sehen, wobei man sich wegen der Unschärfe die Intensität über die Strahlbreite integriert vorstellen muss. Im Gegensatz zum Lidar-Signal mit seiner linearen Höhenskala wird im Bild der $1/R^2$ -Effekt durch die perspektivische Stauchung aufgehoben. Für den Höhenausschnitt dh , aus dem im Winkelsegment $d\phi$ Licht auf genau einen Kamerapixel fällt, gilt

$$dh(R) = \frac{R^2 d\phi}{d} , \quad (2-1)$$

wobei für die Strahlhöhe h und den Abstand R vom Teleskop $h \approx R$ gilt, wenn ϕ klein ist (siehe Bild 2-3). Das heißt, dass ein Lichtstrahl mit konstanter Divergenz bei gleichbleibender (Streu-)Intensität aus jeder Höhe die gleiche Lichtmenge auf eine horizontale Kamerazeile werfen würde (siehe Anhang A). Daher zeigt das Bild 2-5 (links) bei der oberen Wolke bei weitem die höchste Intensität.

Grundsätzlich wird der Strahl in zwei unterschiedlichen Formen abgebildet. In Bereichen, wo das Licht nur von der Luft gestreut wird, erhält man eine Seitenansicht des Strahls. In dem in Bild 2-6 (a) dargestellten Fall wäre dies der einzige Bestandteil des Bildes. Ein zum

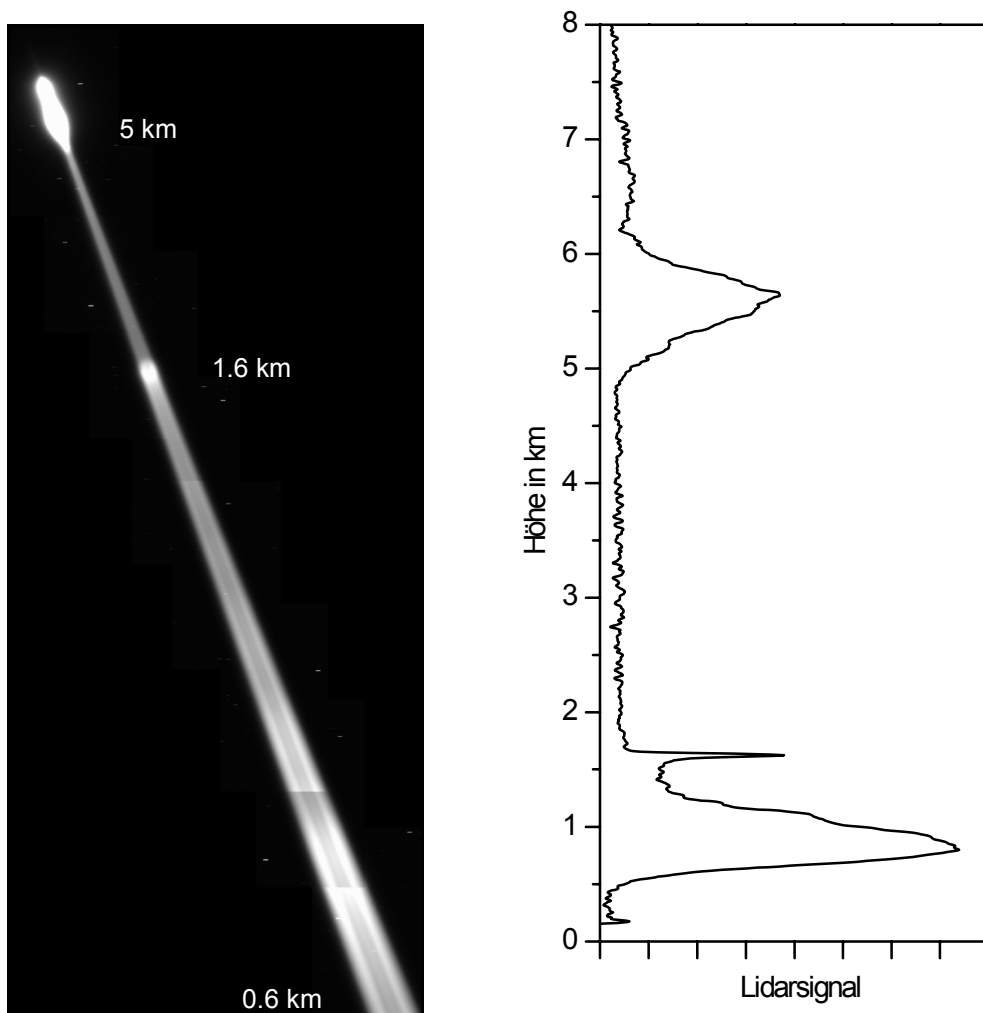


Bild 2-5. Links: Laserstrahl (I-Filter, 50 Pulse) im Höhenbereich von 600 m bis 45 km, zusammengesetzt aus acht überlappenden Einzelbildern, alle auf unendlich fokussiert (unscharf im unteren Bereich) und mit gleicher Graustufenscala. Rechts: Lidar-Signal aus dem Teramobile bei ähnlichem Atmosphärenzustand (ca. 1 h Zeitdifferenz gegenüber den Bildaufnahmen).

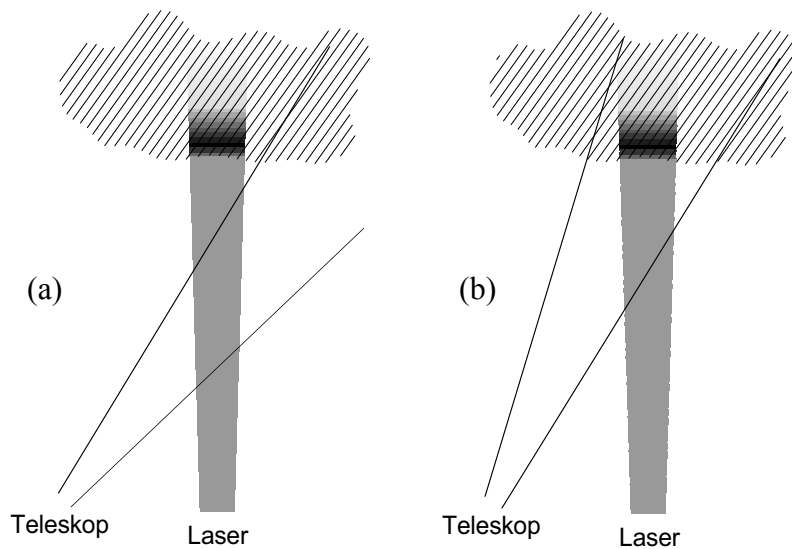


Bild 2-6. (a) Seitliche Abbildung des Laserstrahls und (b) Kombination mit dem Bildschirmeffekt an Nebel/Wolke. Die Streuintensität im Strahl ist durch Graustufung angedeutet. Die Dichte der Wolke bestimmt die Stärke der Streuung sowie die Abschwächung des Strahls.

Strahl senkrechter Schnitt in einem solchen Bild(-bereich) liefert die Breite und die integrierte Intensität, d.h. die Leistung in einer bestimmten Höhe. Da der Strahl eine transversale Ausdehnung hat und nicht unter 90° betrachtet wird, handelt es sich allerdings um eine Mittelung über den Höhenbereich dh . Solange keine größeren Schwankungen der Streuintensität (Nebel, Wolken, allgemein Aerosolschichten) auftreten, entsteht dadurch aber kein großer Fehler. Die zweite Form der Abbildung kann als Bildschirmeffekt der Aerosolschichten bezeichnet werden. Hierbei wird das Strahlprofil zweidimensional abgebildet. Das fast kreisförmige Aufleuchten der scharfen Streuschicht in 1,6 km Höhe in Bild 2-5 (links) ist ein Beispiel dafür. Die meisten Bilder sind Kombinationen des Bildschirmeffekts mit der schrägen Seitenansicht des von der Luft gestreuten Strahls. Dieser Fall ist in Bild 2-6 (b) schematisch dargestellt.

Bild 2-7 zeigt ein Beispiel für die **Chirpabhängigkeit der Weißlichterzeugung**. Die Wolkendichte in 6 km Höhe sowie die Aerosolverteilung in der unteren Atmosphäre ist bei beiden Aufnahmen vergleichbar, wie den zugehörigen Lidar-Signalen zu entnehmen ist. Für einen genaueren Vergleich der Intensitäten sind aber die Strahlen in der Rayleigh-Streuzone unterhalb der Wolkenstreuung zu betrachten. Bei gleicher Pulslänge von 600 fs ist die Erzeugung von Weißlicht im Bereich 370 nm bis 580 nm (BG-Filter) wesentlich höher, wenn die GVD durch einen negativen Chirp kompensiert wird, als wenn der voreingestellte Chirp schon die Richtung besitzt, wie ihn auch die Luft verursacht.

Bei kurzen Pulsen mit nur leichter GVD-Kompensation wurde in den Weißlichtbanden auf der kurzwelligen Seite **konische Strahlung** festgestellt, die den axialen Strahl umgibt. Bild

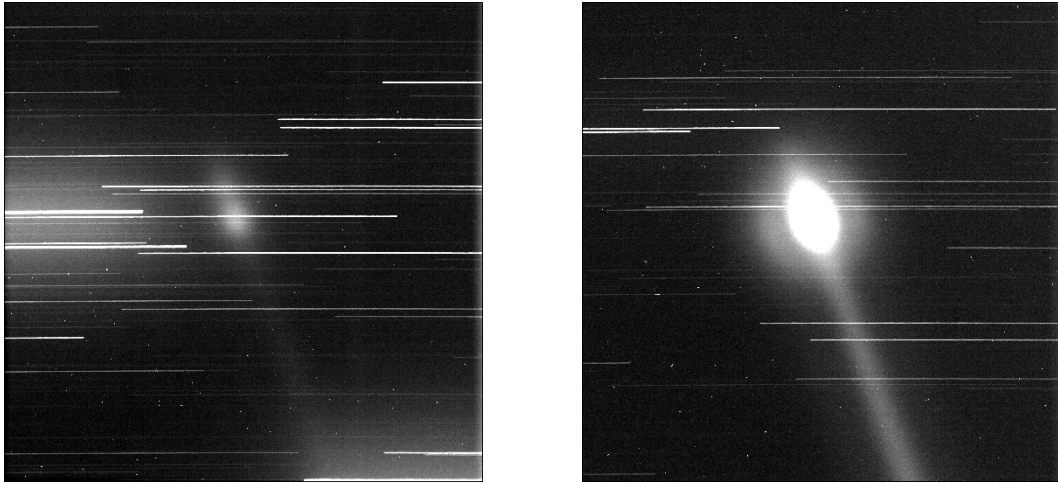


Bild 2-7. Chirpabhängigkeit der Weißlichtintensität im BG-Filter (blau-grünes Licht) bei 180 s Belichtung. Links: Pulse mit positivem Chirp (600 fs Pulslänge). Rechts: negativer Chirp (600 fs Pulslänge). Beide Bilder haben die gleiche Graustufung nach Abzug des Hintergrunds. Die Mitte der Wolkenschicht liegt bei 5,6 km. Zwei helle Bereiche im linken Bild (Mitte links und unten rechts) sind Spuren besonders heller Sterne.

2-8 zeigt dies in Aufnahmen mit den entsprechenden Filtern, dem schmalen B-Filter und dem BG-Filter, der die B-Bande an seinem blauen Rand einschließt und den sichtbaren Bereich bis 600 nm abdeckt. Die Intensität des axialen Strahls ist in der BG-Bande etwa eine Größenordnung höher als bei B. Der Vergleich der konischen Strahlung in beiden Aufnahmen zeigt, dass diese wellenlängenabhängig ist. Umgekehrt als bei der normalen Beugung nimmt der Winkel mit abnehmender Wellenlänge zu. Der breitere BG-Filter füllt daher die Lücke zum axialen Strahl, die in der B-Bande deutlich zu sehen ist. (Es sei angemerkt, dass die gesamte Breite des Konus nur scheinbar im rechten Bild größer ist als im linken. Die ringförmige Strahlung rechts ist in ähnlicher absoluter Intensität auch links enthalten. Jedoch ist sie gegenüber der in Richtung zur Achse zunehmenden Intensität des Lichts, das spektral der fundamentalen Laserwellenlänge näher ist, sehr schwach und kaum darstellbar.) Diese Strahlung kann im Labor an selbstfokussierenden Femtosekundenpulsen (bei Laserleitungen ab ca. 10-30 GW) qualitativ leicht beobachtet werden und wird als konische Emission von Laserfilamenten bezeichnet [Nibbering et al., 1996; Kosareva et al., 1997]. Die weitere Auswertung der Messergebnisse hinsichtlich der konischen Emission und anderer Aspekte, wie z.B. der Effizienz der Weißlichterzeugung und der Strahldivergenz sowie die daraus zu ziehenden Schlussfolgerungen über die Vorgänge bei der Filamentierung der Laserpulse werden in Kapitel 3 präsentiert.

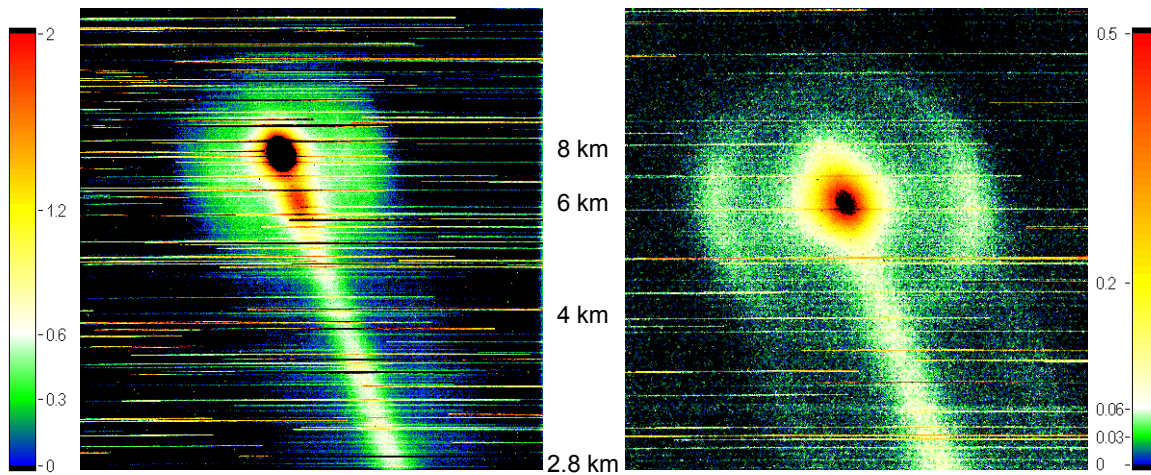


Bild 2-8. Abbildungen des Weißlichtstrahls bei leichtem negativen Chirp (150 fs Pulslänge). Links: BG-Filter (blau-grünes Licht), 180 s Belichtung. Rechts: B-Filter (blaues Licht), 360 s Belichtung. Die Höhenskala gilt für beide Seiten. Beide Farbskalen der Intensität sind auf eine Belichtungszeit von 1 s normiert. Die abgezogene Hintergrundintensität und Werte, die die Skalen übersteigen, sind auf Schwarz gesetzt. Zu erkennen ist die wellenlängenabhängige konische Emission von Laser-Plasma-Filamenten.

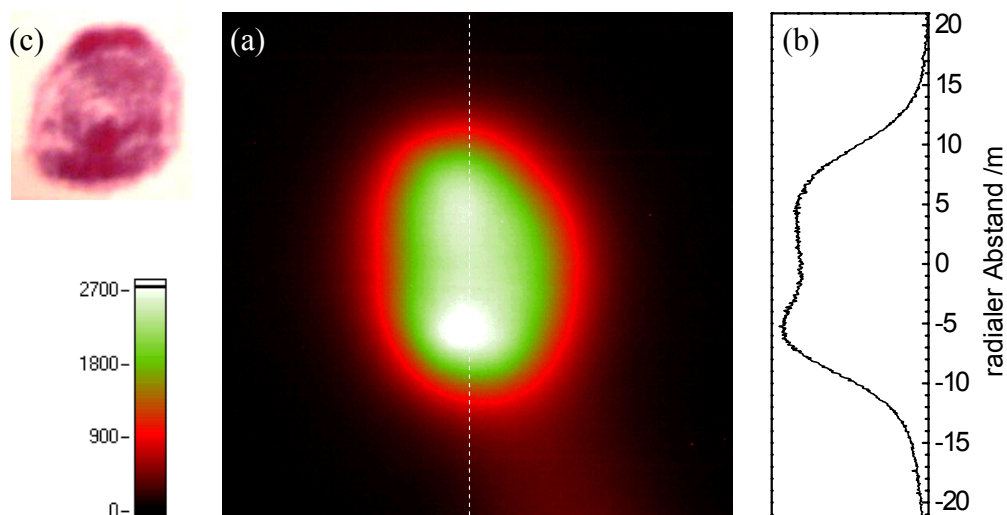


Bild 2-9. Wolkenreflektion eines leicht fokussierten Strahls. (a): Ausschnitt einer Aufnahme mit dem RG-Filter (nahes IR), Brennweite der Sendeoptik ca. 25 m, Belichtung 60 s, Wolkenhöhe 9,6 km. (b): Querschnitt durch die gestrichelte Linie in (a). Die Abstandsskala ist für eine Entfernung von 9,6 km berechnet. (c): Strahlprofil vor den Pulskompressor (Fotopapier, spiegelverkehrt).

Der **Bildschirmeffekt** ermöglicht die Bestimmung der genauen transversalen Strahlform, z.B. in Bild 2-8 rechts. Auf diese Weise ist es gelungen, das Ergebnis der Wechselwirkung der Terawattpulse mit der Luft über sehr lange Distanzen direkt zu beobachten. Das Verhältnis der Intensitäten der beiden Bildkomponenten, Seiten- und Bildschirmansicht des Strahls, hängt von der Dichte der Wolke ab. Tatsächlich war der Himmel bei den meisten Messnächten in Tautenburg nur schwach bewölkt, wie man an den Sternen sehen kann. Die Schichten erhöhter Streuung in den Aufnahmen sind wohl eher als Hochnebel zu bezeichnen. Eine dichte Bewölkung mit einer scharfen unteren Grenzfläche würde einen sehr guten fernen Bildschirm darstellen. Das Eindringen des Lichts in eine transparentere Schicht (angedeutet in Bild 2-6) hat eine gewisse Unschärfe des Bildes zur Folge, wie man an der Inhomogenität des Rings in Bild 2-8 sehen kann. Dabei ist auch Mehrfachstreuung innerhalb des Nebels zu berücksichtigen. Weiterhin wird das Querschnittsbild durch die Streuung an den Luftmolekülen unterhalb des Nebels gestört. Da die Rayleigh-Streuung an Luft im Gegensatz zur Aerosolstreuung stark mit der Wellenlänge abnimmt (λ^{-4}), ist die Störung im nahen Infrarot erheblich kleiner als im Sichtbaren. Bild 2-9 zeigt eine entsprechende Aufnahme des Strahlprofils mit dem RG-Filter. Hierbei handelt es sich um die Reflexion von einer Zirkuswolke. Trotz der leichten Fokussierung des Strahls mit $f \approx 25$ m – bei der, wie wir aus direkter Beobachtung wissen, ein dichtes Multifilamentbündel entsteht – kann man noch in fast 10 km Höhe die charakteristische Struktur des Strahlprofils erkennen, das zum Zeitpunkt des Experiments nicht sehr „sauber“, d.h. radialsymmetrisch, war.

Ein direktes Ergebnis der Messkampagne an der TLS sind die **maximalen Höhen** aus denen mit der Schmidt-Kamera Licht in den verschiedenen Wellenlängenbereichen detektiert werden konnte. Der I-Filter ist im Bereich der **Fundamentalen des Lasers** transparent und in seinen Transmissionsbereich fällt auch nach der spektralen Verbreiterung ein Großteil der gesamten Lichtleistung. (Aufnahmen ohne Filter wurden nicht gemacht, da alle Filterplätze auszunutzt wurden.) Mit ihm konnte der Strahl bis in mindestens 25 km Höhe bei einer Sekunde Belichtung und bis **30 km** bei einer Minute nachgewiesen werden. Dies zeigt, dass die Abbildung mit einem astronomischen Teleskop an die Reichweiten üblicher Lidar-Systeme mit ähnlichen Pulsenergien, also einigen hundert Millijoule, und einem Einpunktdetektor im Teleskopfokus heranreicht. Eine einstündige Aufnahme mit dem R-Filter (ca. 30% Anteil der Laserbande am gemessenen Licht) lieferte ebenfalls ein Signal aus bis zu 30 km Höhe. Das eigentliche Ziel dieser Langzeitmessung war der Nachweis der Alkalifluoreszenz in 80 km bis 100 km Höhe, da diese, vor allem die starken Natrium-D-Linie, in der R-Bande liegt. Ein entsprechendes Signal ist in den Bilddaten allerdings nicht erkennbar. Bei erheblicher Reduktion des Hintergrundlichts durch Schließen der Kamera

zwischen den Pulsen könnte dies eventuell möglich sein. In jedem Fall aber wäre das durch den Femtosekunden-Weißlichtstrahl erzeugte Signal wohl viel schwächer als bei Verwendung eines auf 589 nm eingestellten leistungsstarken Farbstofflasers.

Mit dem B-Filter, d.h. in der am weitesten von der Fundamentalen entfernten und schmalsten der benutzten **Weißlichtbanden**, konnte bei zehn Minuten Belichtung aus bis zu 14 km und bei einer Stunde aus bis zu **18 km** Höhe ein Bildsignal detektiert werden. Die entsprechenden Aufnahmen wurden bei fast klarem Himmel gemacht. Daher ist – gerade in diesem Spektralbereich – das Sternenlicht sehr intensiv. Auch hier könnten die Ergebnisse durch periodisches Schließen der Kamera wahrscheinlich deutlich verbessert werden. Trotzdem stellen die erreichten Höhen eine deutliche Steigerung gegenüber den frühen Weißlicht-Lidar-Messungen dar. Dort wurde das Aerosolsignal von Zirruswolken aus ca. 13 km Höhe gemessen, dies aber in der breiteren BG-Bande [Wöste et al., 1997].

2.1.4 Hochauflösende Weißlichtspektroskopie im Coudé-Modus

Das Coudé-System der TLS besitzt eine Brennweite von 92 m, das heißt, das Licht fällt mit f/46 auf den Spalt des Echelle-Spektrometers. Der Spalt hatte eine Breite von 0,52 mm, was eine spektrale Auflösung von etwa 67000 bedeutet. Die Spalthöhe war 4 mm. Die Spaltbreite entspricht einem Sichtwinkel des Teleskops von 1,2 Bogensekunden, in der Höhe werden etwa 9 Bogensekunden auf den Spalt abgebildet. In den Bildaufnahmen, wie im vorigen Abschnitt beschrieben, wird der Raumwinkel von einer Bogensekunde auf weniger als einen Kamerapixel abgebildet. In den Bildern 2-4, 2-7 und 2-8 sind dagegen jeweils 1800×1800 Bildpunkte dargestellt. Die volle Halbwertsbreite der Strahlen liegt – je nach der Divergenz – in der Größenordnung von 100 Punkten. Das heißt, dass bei den Coudé-Messungen nur das Streulicht von einem sehr kleinen Ausschnitt des Strahls gemessen wurde. Die entsprechende Bildfläche ist etwa vergleichbar mit der Bildgröße eines Sterns bei kurzer Belichtung (siehe Bild 2-4).

Das Echelle-Spektrometer ist großflächig in einem begehbaren Raum installiert, der temperiert und vollständig verdunkelt wird. Es benutzt ein Gitter mit nur 31,6 Linien pro Millimeter. Dieses hat einen Blazewinkel von 65° und wird in den Ordnungen 62 bis 166 betrieben. Anschließend kann zwischen drei so genannten *grisms* (*grating* + *prism*), rechtwinklige Prismen mit Gittern auf der Hypothenusenfläche, gewählt werden, die die Ordnungen aufgefächert auf eine CCD-Kamera lenken (siehe Bild 2-10). Damit stehen drei Spektroskopiekanäle zur Verfügung, die als UV (340 nm – 550 nm), VIS (475 nm – 730 nm) und IR (550 nm – 950 nm) bezeichnet sind. Die Empfindlichkeit des Spektrographen ist im Zentrum der CCD am Höchsten und fällt entlang beider Achsen ab, d.h. inner-

halb einer Ordnung (siehe Bild 2-12) und in geringerem Maße auch zu den Rändern des Spektralbereichs eines Kanals. Je kleiner die Wellenlänge ist, desto stärker fällt die Intensität innerhalb einer Ordnung zu den Rändern hin ab, desto mehr überlappen aber benachbarte Ordnungen, was ersteres kompensiert.

In Anbetracht des extrem kleinen Sichtwinkels war die Ausrichtung des Teleskops auf den Laserstrahl nicht unproblematisch. Es wurde die gleiche Prozedur angewandt, mit der die Astronomen das Licht eines Sterns spektroskopieren. Wie im Schmidt-Modus wird erst ein Himmelsausschnitt auf dem Bild der TV-Leitkamera betrachtet, darin wird dann grob ein Beobachtungspunkt gewählt. Ob das anvisierte Objekt tatsächlich sein Licht auf den Spalt des Echelle-Spektrometers wirft – oder ein Leitobjekt auf einen definierten Punkt neben den Spalt –, wird schließlich über ein Okular und eine Kontrollkamera (Sichtfeld $29'' \times 24''$) direkt festgestellt. Auf diese Weise wird das Teleskop exakt ausgerichtet und bei Bedarf nachgeführt. Obwohl der Strahl, wie schon im vorigen Abschnitt erwähnt, mit dem TV-Leitsystem zu sehen war, konnte er in Bereichen reiner Rayleigh-Streuung nicht vermessen werden. Die gemittelte Intensität reichte nicht aus, um das Licht auf dem Spalt sehen zu können. (Zwar war die Rayleigh-Streuung vom Laserstrahl im Schmidt-Modus deutlich intensiver als viele sichtbare Sterne, aber möglicherweise ist ein solcher Stern wegen seines größeren Kontrasts mit der Kontrollkamera auf oder neben dem Spalt erkennbar.) Da man also nicht sicher sein konnte, ob der Strahl getroffen wurde, machte es keinen Sinn, mit langen Belichtungszeiten die Messung der Rayleigh-Streuung zu versuchen.

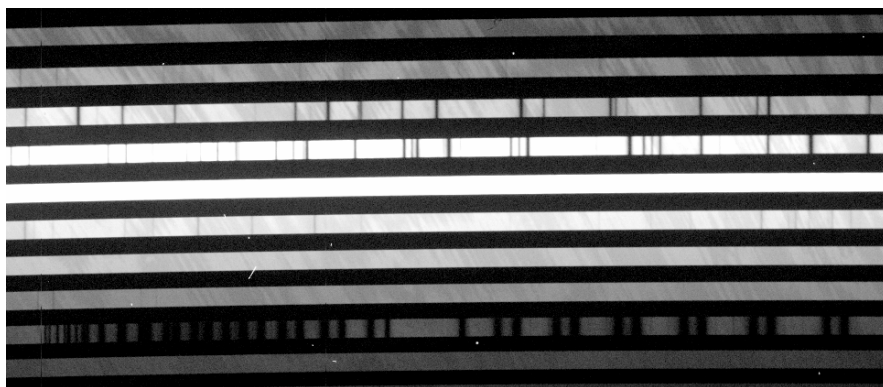


Bild 2-10. Ausschnitt eines Coudé-Spektrogramms ($\frac{1}{2} \times \frac{1}{4}$ der gesamten CCD-Detektorfläche) im so genannten IR-Kanal (538 nm - 927 nm). Absorptionsspektrum von ca. 8,5 km Luftweg. Die dargestellte Breite der einzelnen Ordnungen ist ca. 6 nm. Die Mitte des Bildes entspricht etwa 800 nm. Unten ist die teilweise gesättigte O₂A-Bande um 762 nm zu erkennen (sogar vereinzelte Isotopenlinien). Im oberen Bereich sind einige H₂O-Linien zu sehen. (Darstellung in logarithmische Graustufung.)

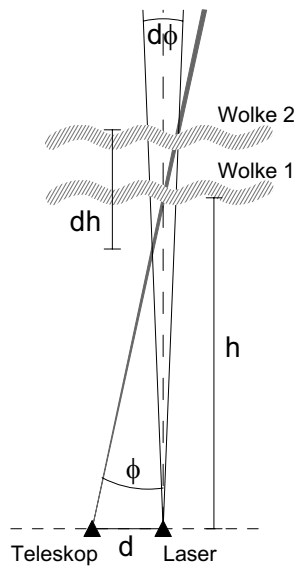


Bild 2-11. Höhenfenster dh , aus dem bei der Spektroskopie des divergenten Laserstrahls Licht empfangen wird, wenn das Sichtfeld die Mittelachse des Strahls in der Höhe h kreuzt. Die Streuung von einer Wolke trägt je nach ihrer Lage innerhalb von dh zum Signal bei.

So konnten keine beliebigen Sequenzen von Spektren aus verschiedenen Höhen aufgenommen werden. Stattdessen wurden Wolken bzw. Hochnebelschichten in 4 km bis 5,5 km Höhe genutzt, um das von dort gestreute Licht zu messen. Die jeweilige genaue Messhöhe ist im Prinzip durch die Teleskopkoordinaten gegeben, sie wird aber auch mit den Lidar-Signalen aus dem Teramobile abgeglichen. Da der Winkel ϕ zwischen Blickrichtung und Strahl (vergleiche Bilder 2-3 und 2-11) sehr klein ist, kann man dessen Divergenz wie eine Verkippung des Teleskops um $d\phi$ behandeln. Das heißt, Gleichung 2-1 liefert die Höhe dh der Schicht, aus der das Teleskop in einer festen Position Streulicht eines Strahls der Breite $d\phi$ empfängt. Am stärksten ist das Signal von einer Wolke in der formalen Messhöhe $h(\phi)$, wo der Schnittpunkt von Teleskop- und Laserachse liegt (Wolke 1 in Bild 2-11). Aber auch aus einer anderen Höhe innerhalb von dh (Wolke 2) fällt Streulicht auf den Spalt des Spektrometers. Nimmt man für $d\phi$ eine typische volle HWB des Laserstrahls von 0,25 mrad an – dies entspricht 51" und ist deutlich größer als der Sichtwinkel des Teleskops – ist nach Gleichung 2-1 $dh = 200$ m in 5 km Höhe.

Es wurden Messreihen unter Veränderung des Chirp (zwischen negativ/600 fs und positiv/600 fs) in den Kanälen IR und VIS aufgenommen. Die Belichtungszeiten lagen zwischen 5 min und 20 min. Während der Aufnahme einzelner Spektren – bzw. von einer zur nächsten, wenn die Teleskopstellung beibehalten wurde – veränderte sich teilweise die Bewölkung. Daher sind einige Messungen wegen eines zu schwachen Signals unbrauchbar. Unter Berücksichtigung der obigen Rechnung für dh konnte dies in den einzelnen Fällen anhand der Lidar-Signale nachvollzogen werden. Da die Aufnahmen aber erst nach Beendigung

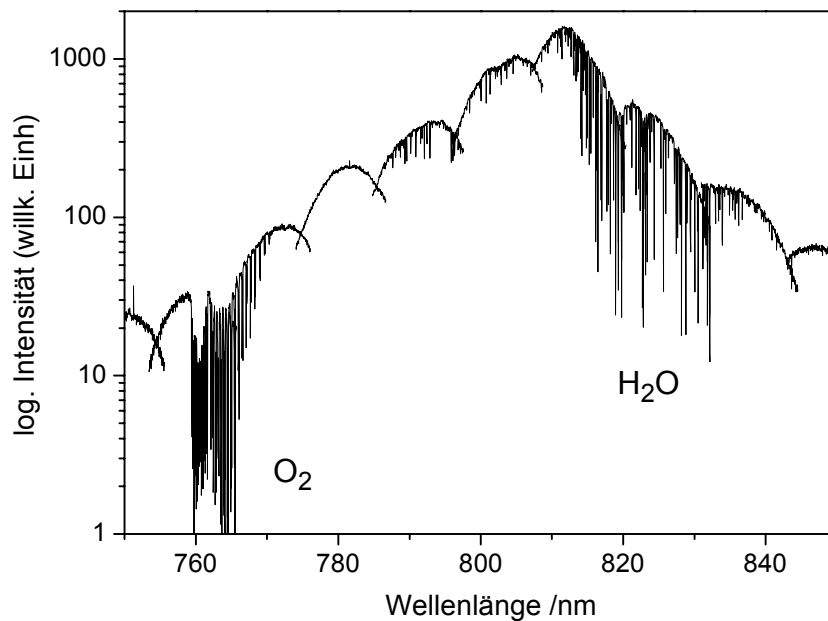


Bild 2-12. Absorptionsspektrum der Atmosphäre aus 4,4 km Höhe. Logarithmische Darstellung des rückgestreuten Laser-Weißlichts um die Fundamentale Laserwellenlänge (Untergrund abgezogen, ohne Effizienzkorrektur). Die Echelle-Ordnungen entsprechen dem Ausschnitt des Spektrogramms in Bild 2-10.

des Experiments als unbrauchbar erkannt wurden, fehlen Spektren in den Messreihen zur Bestimmung der Chirpabhängigkeit. Brauchbar sind zwei Messungen im VIS- und fünf im IR-Kanal, von denen eine bei positivem Chirp (600 fs) aufgenommen wurde, die übrigen bei negativem. Wegen der veränderlichen Bewölkung ist die absolute spektrale Intensität der Spektren nicht exakt vergleichbar, wohl aber ihre breitbandige Form. Die IR-Spektren gleichen sich weitgehend, bis auf das bei positivem Chirp. Dieses hat ein etwas abgeflachteres Maximum, das bei der Laserwellenlänge liegt (~ 795 nm), während bei den übrigen das Maximum nach 810 nm verschoben ist (Bild 2-12).

Bild 2-12 zeigt einen Ausschnitt einer Messung im IR-Kanal als Kette der einzelnen Ordnungen. Dargestellt ist die absolut gemessene Intensität nach detektorspezifischen Korrekturen und Abzug des Untergrunds. Nicht berücksichtigt ist, dass in diesem Bereich die Empfindlichkeit des Spektrographen zur langwelligen Seite leicht abfällt. Das heißt, nach entsprechender Korrektur – für die keine exakten Daten vorliegen – würde der rechte Flügel im Bild etwas angehoben sein. Dies entspricht der Erwartung, da das Weißlichtspektrum in der Umgebung der Zentralwellenlänge über der Frequenz aufgetragen in erster Näherung symmetrisch sein sollte, nicht aber in der Darstellung mit der Wellenlängenskala (vergleiche Bild 2-31 in Abschnitt 2.4.1). Der Grund dafür ist, dass die Selbstphasenmodulation die entscheidende Rolle bei der Verbreiterung spielt (näheres dazu in Abschnitt 3.4).

In Bild 2-13 ist ein Großteil eines Spektrums aus dem IR-Kanal dargestellt, das nach einem Verfahren der TLS normiert wurde. Der Teil des Spektrums im oberen Kasten ist wegen der besserer Signalqualität in diesem Bereich einer VIS-Kanalmessung entnommen. Der IR-Kanal erstreckt sich aber auch über den gesamten dargestellten Bereich. Somit veranschaulicht die Darstellung, welche große Zahl an Absorptionsbanden mit sehr hoher Auflösung in einer einzelnen Messung erfasst wurde. So kann die Absorption durch Sauerstoff (festes Mischungsverhältnis von 20,9% in Troposphäre und Stratosphäre) als genaue Referenz dienen. Dagegen können sich bei zeitversetzter Messung atmosphärische oder experimentelle Parameter verändern. Im unteren Kasten von Bild 2-13 sind, neben einem Anstieg des Rauschens, Probleme bei der Normierung festzustellen. Vor allem im Wellenlängenbereich größer 920 nm, wo eine starke Sättigung der Absorptionslinien zu sehen sein müsste, versagt der Normierungsalgorithmus, da in Wirklichkeit in einem breiten Bereich die Transmission deutlich unter der 100%-Linie liegt. In schwächerem Maße tritt dieser Fehler aber im gesamten Spektralbereich auf. Eine exakte Normierung erhält man nur als Nebenprodukt beim genauen Fit der Absorptionslinien, wofür dann die nicht normierten Ein-

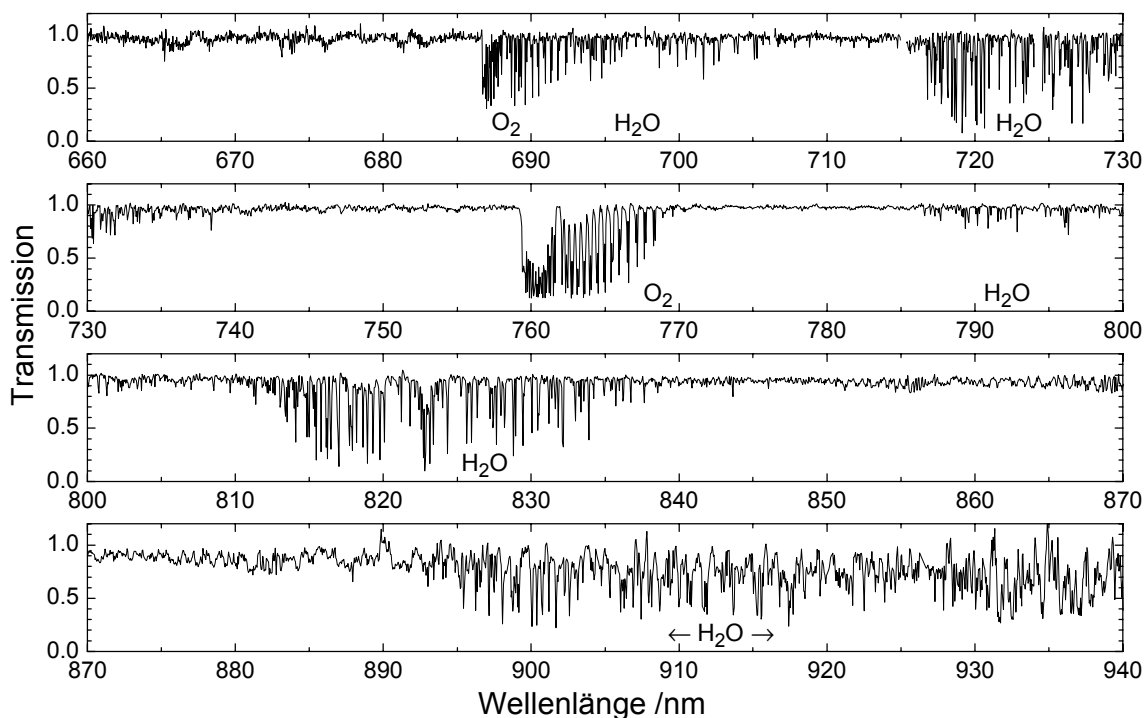


Bild 2-13. Normiertes Spektrum aus Teilen eines VIS-Spektrums (660 nm – 730 nm) und eines IR-Spektrums (730 nm – 940 nm, vgl. Bild 2-12) von Laserlicht aus ca. 4 km Höhe. Sauerstoffbanden: O_2B bei 688 nm und O_2A bei 762 nm. Wasserdampfbanden: 4v-Obertöne bei 698 nm, 703 nm, 724 nm, 796 nm, 806 nm und 823 nm, 3v-Obertöne bei 906 nm, 920 nm und 942 nm (Zuordnung nach HITRAN [Rothman et al., 2003]). Nur jeder zehnte von 62400 Punkten ist dargestellt.

zelspektren in den verschiedenen Ordnungen (Bild 2-12) verwendet werden. Das heißt, dass der Fit, bei dem viele Parameter eingehen – dazu gehört die effektive Entfernung, in der das Weißlicht erzeugt wird –, die Form der spektralen Intensität des anfänglichen Weißlichtstrahls liefert. Die Ergebnisse dieser Auswertung werden in Kapitel 4, Abschnitt 4.2.1 präsentiert. Details des hierzu entwickelten Auswerteverfahrens sind in Anhang B zu finden.

2.1.5 Breitbandige IR-Lidar-Messungen im Coudé-Modus

Im vorigen Abschnitt ist im sichtbaren bis nahinfraroten Spektralbereich demonstriert worden, dass das Weißlicht der Terawattpulse geeignet ist, um die feine Linienstruktur atmosphärischer Absorptionsbanden hochaufgelöst zu messen. Die Obertöne des Wasserdampfs sind dabei „Vorboten“ einer Vielzahl von Absorptionslinien, die im nahen bis mittleren Infrarot die spezifischen „Fingerabdrücke“ vieler Spurengase bilden. Dabei handelt es sich vor allem um Kohlenwasserstoffverbindungen, die in der Atmosphärenchemie eine große Rolle spielen. An erster Stelle in Richtung steigender Wellenlänge steht eine Methanbande bei etwa $1,6\ \mu\text{m}$ (siehe Bild 2-34). Es liegt zum Teil am Mangel an geeigneten Laserquellen, dass die Möglichkeiten, die dieser Spektralbereich bietet, in der atmosphärischen Fernerkundung bisher nicht sehr weit ausgeschöpft worden sind. Zusätzlich ist die Detektion von Licht im IR technisch wesentlich problematischer als im Sichtbaren oder UV. Der Mangel an geeigneten Sensoren – unter Berücksichtigung der Kosten – bremst die Forschung auf diesem Gebiet und betrifft auch das Teramobile-Projekt. So ist es nicht verwunderlich, dass das Echelle-Spektrometer der TLS bedingt durch die begrenzte Empfindlichkeit des Siliziumchips der Kamera nur bis etwa $950\ \text{nm}$ verwendbar ist.

Um dennoch die Größe des astronomischen Teleskops auch bei größeren Wellenlängen nutzen zu können, wurde im Spektrometerraum des Observatoriums eine zusätzliche Detektion aufgebaut. Das Lichtbündel ($f/46$) vom Teleskop im Coudé-Modus wurde vor dem Spalt des Echelle-Spektrometers mit einem Umlenkspiegel, der für das Okular benutzt wird, durch eine fokussierende Linse auf einen Photomultiplier (Hamamatsu R 5509-72) gelenkt. Der Empfindlichkeitsbereich dieses mit flüssigem Stickstoff gekühlten Detektors reicht von $300\ \text{nm}$ bis $1,7\ \mu\text{m}$. Auf diese Weise konnte mit der klassischen Lidar-Methode gemessen werden. Das heißt, das transiente Signal des Photomultiplier wurde mit einem schnellen Oszilloskop (LeCroy 334, Samplerate $250\ \text{MHz}$), das mit dem Laser synchronisiert war, gelesen und gespeichert. Die Zeitskala kann dann in Entfernung umgerechnet werden. Durch das Fehlen des Spektrometerspalts war das Sichtfeld des Teleskops nun viel größer, als bei der hochaufgelösten Messung. Also wurden Lidar-Signale aus einem

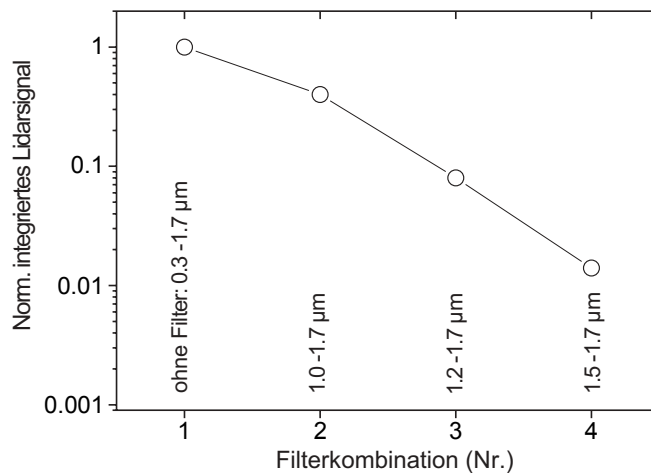


Bild 2-14. NIR-Lidar-Signale in drei verschiedenen durch Kantenfilter und die Empfindlichkeitsgrenze des Photomultipliers ($1,7 \mu\text{m}$) aufgespannten Spektralbereichen (2, 3 und 4), dargestellt im Verhältnis zum Signal ohne Filter (1). Mittelung über jeweils 16 Laserpulse. Laserparameter: Pulsenergie 290 mJ, 200 fs negativ gechirpt, leichte Fokussierung mit $f = 31 \text{ m}$.

bestimmten Höhenbereich um den Kreuzungspunkt von Laser und Teleskopachse gemessen. Dieser Bereich war groß genug, um das vollständige Rückstreuprofil der Wolkenschicht, die zur Zeit der Messung zwischen 4 km und 4,5 km Höhe vorhanden war, zu erfassen. Es wurde jeweils über 16 Laserpulse gemittelt. Rayleigh-Streuung von der Luft unterhalb der Wolke konnte nicht nachgewiesen werden.

Um zumindest eine grobe Wellenlängenauflösung zu erhalten, wurde in vier durch Kantenfilter eingegrenzten Spektralbanden gemessen: 1.) ohne Filter, also im gesamten Messbereich des Photomultipliers von $0,3 \mu\text{m}$ bis $1,7 \mu\text{m}$; 2.) mit einem Langpass-Interferenzfilter (Corion) von $1,0 \mu\text{m}$ bis $1,7 \mu\text{m}$; 3.) mit zwei Glasfiltern UG7 und VG12 (Schott) von $1,2 \mu\text{m}$ bis $1,7 \mu\text{m}$; 4.) mit zwei Langpass-Interferenzfilter von $1,5 \mu\text{m}$ bis $1,7 \mu\text{m}$ (der $1 \mu\text{m}$ -Filter wurde hier zusätzlich zur sicheren Unterdrückung der fundamentalen Laserwellenlänge eingesetzt).

Der Laser lieferte eine Pulsenergie von 290 mJ. Mit der Filterkombination 3 ($> 1,2 \mu\text{m}$) wurde grob das optimale Signal bei Variation der Fokussierung (fünf verschiedene Einstellungen zwischen $f \approx 20 \text{ m}$ und $f \approx 60 \text{ m}$) und des Chirp (zehn Einstellungen zwischen 400 fs, negativer Chirp, und 200 fs, positiver Chirp) gesucht. Daraufhin wurden die Parameter $f = 31 \text{ m}$ und 200 fs, negativer Chirp, für die Messreihe gewählt. Es sei darauf hingewiesen, dass eine Optimierung bei gleichem Aufbau im Spektralbereich 390 nm bis 580 nm (Schott-Glas BG 18, 50% T_{max}) nicht zu genau denselben Parametern führte, sondern in den Bereich der kürzesten Pulse und zu etwa 20 m Brennweite.

Bild 2-14 zeigt die integrierten Lidar-Signale der Wolkenstreuung normiert auf das Signal ohne Filter. Im Filterbereich 4 ($1,5\ \mu\text{m} - 1,7\ \mu\text{m}$) hatte das über 16 Laserpulse gemittelte Signal ein Maximum von knapp 1 mV und ein Signal-zu-Rauschverhältnis ($S^2/\sigma_{\text{rausch}}^2$) von etwa 250. Die einzelnen Messungen, die in dem Bild dargestellt sind, wurden in einem Zeitabstand von fünf bis sechs Minuten durchgeführt. Ein nicht genau abschätzbarer Fehler beim Vergleich der Werte – sowie bei der Signalsoptimierung durch Variation der Laserparameter – liegt in der möglichen Veränderung der nicht sehr dichten Wolkenschicht von Messung zu Messung. Es kann sich hierbei vor allem um Schwankungen der Höhe der Wolkenuntergrenze handeln. Der große Höhenbereich, der durch Teleskop und Detektion erfasst wird, deckt diesen Schwankungsbereich voll ab. Der dennoch resultierende Fehler der Signalintensität sollte etwa 20% und somit die Größe der Messpunkte in Bild 2-14 nicht übersteigen.

Die kilometerweite Lidar-Messung von Femtosekunden-Weißlicht im IR ist in dieser Form bisher einzigartig. Die weitere Auswertung der Messdaten, vor allem ein Vergleich mit der im Labor gemessenen spektralen Intensität (siehe Bild 2-31), findet sich in Kapitel 3, Abschnitt 3.4.2. Die Ergebnisse dieses Teilaspekts der Messkampagne an der TLS sind kürzlich in Applied Physics B in einer Sonderausgabe mit dem Thema *Supercontinuum generation* veröffentlicht worden [Méjean et al., 2003]. Auf die Anwendung des IR-Lichts in der Atmosphärenuntersuchung wird in Kapitel 4 (Abschnitt 4.2.1) eingegangen.

2.2 UV-Lidar-Experiment in Lyon

(Höhenaufgelösten Messung der Ozonabsorption mittels wellenlängenabhängiger Lidar-Signale)

Im Juli 2002 fand auf dem Gelände der Université Claude Bernard in Lyon eine Lidar-Messkampagne statt, bei der sich der Teramobile-Container als mobile Messeinrichtung für die atmosphärische Fernerkundung bewähren sollte. Das heißt, dass bei dieser Kampagne keine zusätzlichen Einrichtungen oder Gerätschaften außerhalb des Laborcontainers verwendet wurden. Die Messungen konzentrierten sich auf den UV-Bereich zwischen 230 nm und 310 nm, erstreckten sich aber zum Teil bis 600 nm in das sichtbare Spektrum. Die Erfahrungen aus den vorherigen Experimenten konnten direkt genutzt werden. Trotzdem stellt auch diese Messkampagne eine Kombination beider Bereiche dar, nämlich der Erprobung der Lidar-Anwendung und der weiteren Sammlung von Erkenntnissen über die grundlegende Physik der Ausbreitung von Terawatt-Laserpulsen über weite Strecken in Luft.

2.2.1 Motivation

In Abschnitt 2.1.4 wurde gezeigt, wie mit hoher spektraler Auflösung die Absorption des Laserweißlichts durch Atmosphäregase in Form schmaler Absorptionslinien gemessen werden kann. Wie bereits in Abschnitt 2.1.5 angesprochen, muss bei der Weiterentwicklung dieser Art der Messung von Gaskonzentrationen weiter in das nahe und mittlere Infrarot vorgestoßen werden. Hier werden nun Messungen im UV vorgestellt, wo ebenfalls viele atmosphärenrelevante Stoffe absorbieren, jedoch in Form breiter Absorptionsbanden. Für Atmosphärenuntersuchungen wird dieser Spektralbereich schon seit einiger Zeit genutzt. Die *differential optical absorption spectroscopy* (DOAS) nutzt weiße (breitbandige) Lichtquellen, um umweltrelevante Gase zu messen. Wegen der geringen Intensität der verwendeten Lampen benötigt die Technik jedoch einen Empfänger oder Reflektor am Ende der Messstrecke, was die Anwendung räumlich einschränkt und prinzipiell nur über die gesamte Strecke integrierte Ergebnisse liefert. Dafür ist die Messgenauigkeit relativ hoch. Unter den Lasermethoden wird vor allem *differential absorption lidar* (DIAL) im UV-Bereich eingesetzt. Das vermutlich am häufigsten mit dieser Technik gemessene Spurengas ist Ozon, das für Atmosphärenchemiker und Umweltschützer von großem Interesse ist. Es ist allgemein bekannt, dass Ozon UV-Licht effektiv absorbiert. Denn darin liegt die Bedeutung der stratosphärischen Ozonschicht für das Leben auf der Erde.

Das im Folgenden beschriebene Experiment zur Erprobung einer neuen Methode, des Breitband-UV-Lidar mit einem Femtosekunden-Terawattlaser, versucht die Vorteile von DOAS und DIAL zu vereinen. DIAL bietet die für Lidar übliche hohe räumliche Flexibilität und Auflösung, ist aber relativ fehleranfällig, da nur die Absorption an zwei Punkten im Spektrum gemessen und verglichen wird (eine Beschreibung der DIAL-Methode findet sich in Kapitel 4, Abschnitt 4.1.2). Die gleichzeitiger Beeinflussung der Messwerte durch weitere Gase oder Luftpartikel stellt dabei häufig ein Problem dar. Durch den Einsatz des Femtosekunden-Weißlichts soll sich dies in einen Vorteil umkehren. Die DOAS-Methode hat sich bereits bei der gleichzeitigen Messung mehrerer Stoffe bewährt [Platt, 1994].

2.2.2 Durchführung und Ergebnisse

Da für die Messungen im UV eine hohe Auflösung weder nötig noch von Vorteil war, konnte als Detektor anstelle der ICCD-Kamera ein Photomultiplier (Electrontube 9829QB) – also ein Einpunktdetektor – verwendet werden, der in diesem Spektralbereich eine höhere Effizienz besitzt. Statt kompletter Spektren aus einzelnen Höhen wurden bei festen Wellenlängen vollständige Lidar-Signale mit einer Höhenauflösung von wenigen Metern aufgenommen. Bestimmt durch unterschiedliche Sampleraten des Oszilloskop (LeCroy 334) von 250 MHz und 67 MHz betrug der Abstand der Messpunkte 0.6 m bzw. 1.5 m. Zum Durchstimmen der Wellenlänge wurde ein 0.125m-Gittermonochromator (Jobin Yvon H10-UV, Öffnungsverhältnis f/3.5, Auflösung 1 nm bei 0.1 mm Spaltbreite) verwendet,

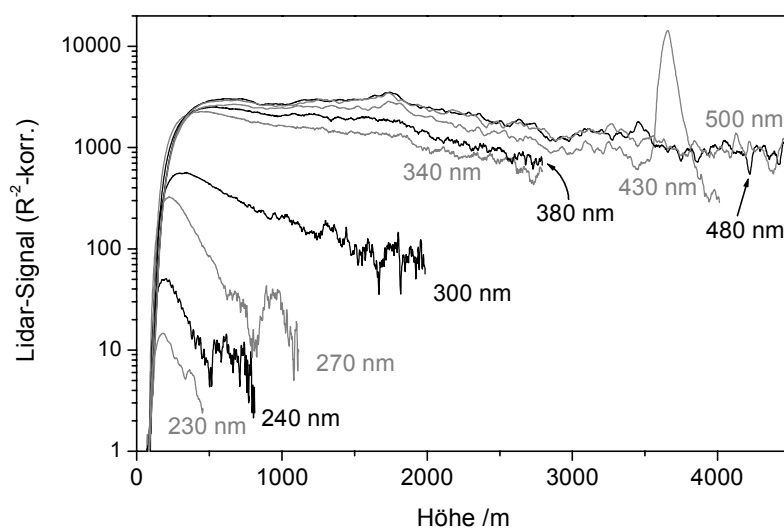


Bild 2-15. Lidar-Signalen bei verschiedenen Wellenlängen in logarithmischer Darstellung (Lyon, 30.07.02, 02:00), summiert über 1000 Laserpulse und multipliziert mit dem Quadrat der Höhe (Korrektur des $1/R^2$ -Effekts). Spektrale Effizienz der Detektion nicht korrigiert. Hochfrequentes Detektorrauschen gefiltert.

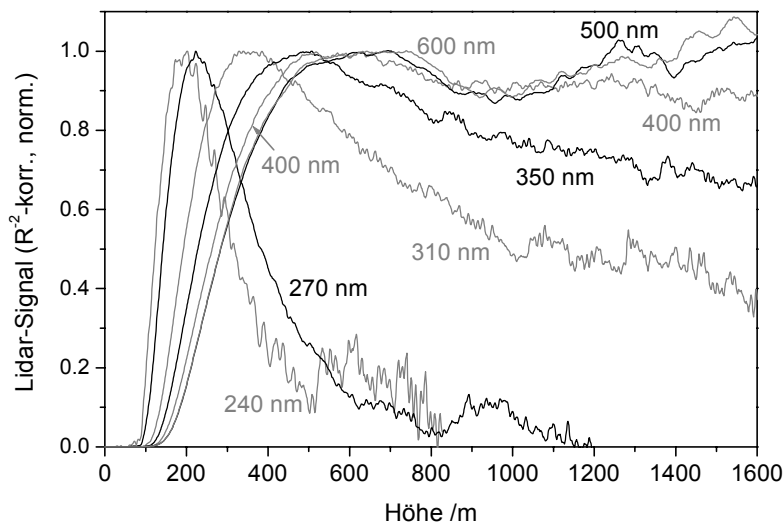


Bild 2-16. Lidar-Signale wie in Bild 2-15, jedoch normiert auf das jeweilige Maximum nach Eintritt des Laserstrahls in das Sichtfeld des Teleskops und mit linearer Skala.

dessen 2 mm breiter und 1 cm hoher Eintrittsspalt direkt in die Fokalebene des Lidar-Teleskops ($f/3$) gestellt wurde. Der Austrittsspalt von 0.5 mm erzeugte eine Bandbreite von 4 nm. Der Laser hatte zur Zeit des Experiments eine Pulsenergie von 230 mJ. Der Strahl wurde vertikal durch die Dachluke im Laserraum des Teramobile-Containers gesendet, das heißt in einem Abstand von ca. 80 cm zur Teleskopachse.

In Testexperimenten während mehrerer Nächte erwiesen sich Laserpulse einer Länge von etwa 450 fs bei negativem Chirp und eine Fokussierung mit der Brennweite $f = 18$ m als gut geeignet, um unterhalb einer relativ niedrigen Höhe von schätzungsweise 50 m effektiv UV-Licht zu erzeugen, das für Lidar-Messungen in einigen hundert Metern bis zu wenigen Kilometern Höhe genutzt werden kann. In einer 24-stündigen Messreihe vom Morgen des 29. bis zum Morgen des 30. Juli 2002 wurden dann halbstündlich bis stündlich Serien von Lidar-Signalen in Schritten von 10 nm aufgenommen. In allen Serien wurde der Bereich zwischen 230 nm und 310 nm aufgenommen, bei Dunkelheit gingen einige Serien bis 500 nm oder 600 nm. Etwa bei 310 nm endet die Absorptionsbande des Ozon (siehe Bild 4-10). Aufgrund der Ozonschicht gelangt daher unterhalb dieser Wellenlänge wenig Sonnenlicht zur Erde, so dass Lidar-Messungen auch bei Tageslicht möglich sind. Im folgenden werden exemplarisch die Ergebnisse der Serie von zwei Uhr am Morgen des 30. Juli beschrieben.

Bild 2-15 zeigt Lidar-Signale zu einer Auswahl von Wellenlängen. Die Auftragung ist logarithmisch, um die Signale absolut vergleichen zu können. Die Effizienz von Spektro-

meter und Photomultiplier ist nicht korrigiert, der Effekt ist jedoch klein: annähernd konstante Werte von 230 nm bis 360 nm, Abnahme um etwa 60% bis 500 nm. Unterhalb von 400 nm wurde nur bis in eine Höhe von etwa 2,7 km gemessen. Bei Signalen, die im Diagramm schon bei tieferen Höhen enden, beginnt das Rauschen ungefähr oberhalb des dargestellten Bereichs der Messung die Signalstärke zu überragen.

Man sieht also, dass die Reichweite sich mit abnehmender Wellenlänge deutlich verringert. Einerseits liegt dies an der geringeren Lichtintensität bei größerer Entfernung von der Laserwellenlänge (die spektrale Intensität ist in etwa am absoluten Maximum des jeweiligen Signals abzulesen). Aber auch die geringere Transmission durch die Atmosphäre reduziert die Reichweite. Hierfür ist der Verlauf der Signalkurve ein Maß. Denn die entfernungsbedingte Abnahme des Signals ($1/R^2$ -Effekt) ist durch Multiplikation mit dem Quadrat der Höhe korrigiert. Abgesehen vom anfänglichem Anstieg der Signale (näheres dazu im folgenden Absatz) zeigt daher jede Abweichung von einer Geraden mit konstantem Intensitätswert einen atmosphärischen Effekt an (Bild 2-16). Die Abschwächung durch Streuung an den Luftmolekülen ist wegen der λ^{-4} -Abhängigkeit der Rayleigh-Streuung bei kurzen Wellenlängen wesentlich größer als bei langen. Dazu kommt die nicht unerhebliche Absorption durch Ozon, die ihr Maximum bei 255 nm hat. Zur Zeit des Experiments wurden in Lyon von Bodenmessstationen des Comité pour le contrôle de la Pollution Atmosphérique dans le Rhône et la région Lyonnaise (COPARLY) sogar nachts Konzentrationen im Bereich von $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ registriert (die EU-weite Vorwarnstufe beginnt bei $180 \mu\text{g}/\text{m}^3$).

Anstiege bzw. lokale Maxima in den Signalen sind sichere Zeichen für erhöhte Rückstreuung durch Luftpartikel (Aerosole). Anzeichen für erhöhte Aerosolkonzentrationen sind um 1000 m und 1700 m zu erkennen. In ca. 3,5 km Höhe trat gelegentlich ein Hochnebelfeld auf.

Der anfängliche Anstieg der Signale ist auf die höhenabhängige Überlappung von Laserstrahl und Sichtfeld des Teleskops zurückzuführen. (Die Funktion, die dies und alle weiteren Verluste des in Richtung Teleskopspiegel gestreuten Lichts, z.B. durch Verdeckungen, beschreibt, wird geometrische Kompression genannt.) Normiert man die Signale auf ihr Maximum nach dem Anstieg (siehe Bild 2-16), so erkennt man einen weiteren Unterschied zwischen den verschiedenen Wellenlängen. Der Anstieg der Signale beginnt früher, d.h. in geringerer Höhe, je kleiner die Wellenlänge ist. Eine gewisse Verschiebung des Maximums kann durch die oben beschriebene stärkere Abschwächung des „blauer“ Lichts erklärt werden. Aber die Größe des Effekts und die deutlich verschiedenen Steigungen der Flanken zeigen eindeutig, dass zusätzlich eine Wellenlängenabhängigkeit der geometrischen

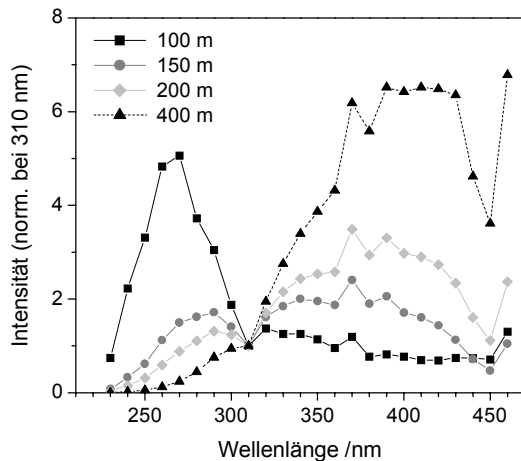


Bild 2-17. Weißlichtspektren aus verschiedenen Höhen, errechnet aus den Lidar-Signalen vom 30.07.02, 02:00 Uhr. Die Spektren sind durch die Detektoreffizienz geteilt und auf ihren Wert bei 310 nm normiert.

Kompression vorliegt. Betrachtet man einen spektralen Ausschnitt des Laserlichts, so ist die Divergenz des Strahls größer, je kleiner die Wellenlänge ist bzw. je weiter entfernt sie von der fundamentalen Laserwellenlänge (793 nm) liegt. Dies äußert sich in einer starken Veränderung des resultierenden Spektrums mit der Höhe während des Eintritts des Laserstrahls in das Sichtfeld. Bild 2-17 zeigt die Spektren, die aus Höhen zwischen 100 m und 400 m gemessen wurden. Die spektrale Empfindlichkeit der Detektion ist hierbei korrigiert und die Spektren sind für den Vergleich der Form willkürlich auf ihren Wert bei 310 nm normiert. Man erkennt eine starke Linie der dritten Harmonischen bei etwa 265 nm im Spektrum aus 100 m Höhe, wo in etwa der Eintritt des Strahls in das Sichtfeld beginnt. Es liegt jedoch eine gewisse Überhöhung des kurzwelligen Bereichs gegenüber dem langwelligeren Weißlicht vor, da sich die Rückstreuung durch die Luftmoleküle proportional zu λ^{-4} verhält (Rayleigh-Streuung).

Bild 2-18 (a) zeigt die Form der Spektren, wieder bei 310 nm normiert, nach Herausrechnen der Rayleigh-Streuung. Hierzu wurde durch den Rückstreuungskoeffizienten $\beta(\lambda)$ und den Verlustterm $\exp[-2R \alpha(\lambda)]$ geteilt, wobei $2R$ die Summe aus Hin- und Rückweg des gestreuten Lichts ist. Der so genannte Extinktionskoeffizient $\alpha(\lambda)$ beschreibt die Abschwächung des Laserstrahls durch Streuverluste. Beispielsweise beträgt der Verlust auf 1 km Wegstrecke (Höhedifferenz 500 m) 24% bei 260 nm, 13% bei 300 nm und 4% bei 400 nm. Auf die dargestellten normierten Spektren wirkt sich diese Wellenlängenabhängigkeit nicht sehr stark aus. Somit ist die Änderung der Form der Spektren von Bild 2-17 zu Bild 2-18 (a) fast vollständig auf $\beta(\lambda)$ zurückzuführen.

Bild 2-18 (b) zeigt die Spektren im absoluten Vergleich der Intensitäten. Im Höhenbereich oberhalb von 400 m, in dem die maximale Überlappung vom Laser und Sichtfeld erreicht

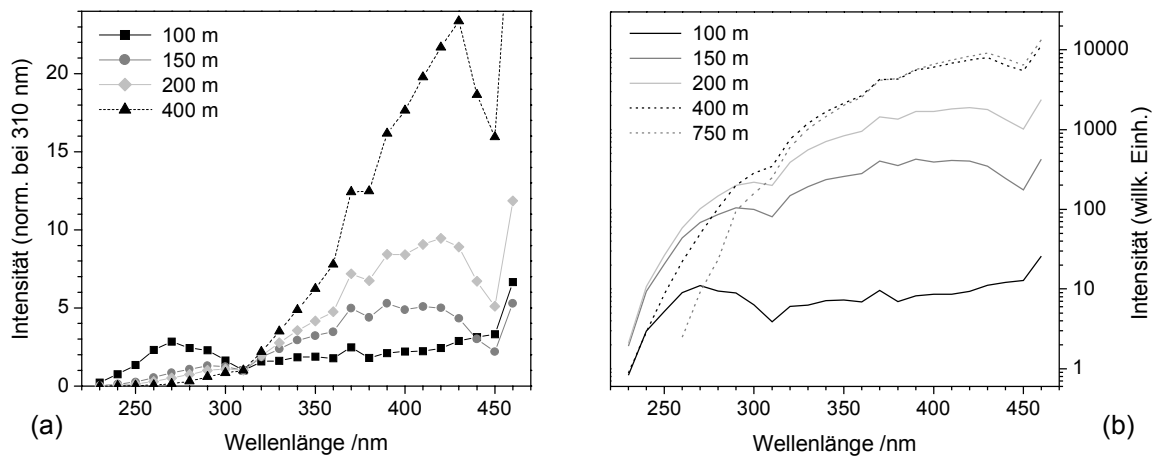


Bild 2-18. Spektren wie in Bild 2-17, jedoch mit Korrektur der Rayleigh-Streuung (siehe Text). (a) Normiert bei 310 nm. (b) Absoluter Vergleich der Spektren aus unterschiedlichen Höhen in logarithmischer Darstellung.

wird, ändert sich die Intensität auf der langwelligen Seite kaum. Auf der kurzwelligen Seite findet dagegen eine starke Abnahme mit der Höhe statt. Diese ist nun auf die Absorption durch Ozon zurückzuführen. Bei einer erhöhten Konzentration von $100 \mu\text{g}/\text{m}^3$ beträgt die Absorption auf 1 km Strecke 5% bei 300 nm und 74% bei 260 nm. Man vergleiche dies mit den oben genannten Werten der Rayleigh-Extinktion.

Man kann also aus den Messungen prinzipiell die Ozonkonzentration höhenaufgelöst bestimmen. Gleichzeitig muss die Wirkung des Aerosols berücksichtigt werden. Es ist aus der DIAL-Methode bekannt, dass der Fehler in der Ozonkonzentration davon abhängt, inwieweit man bei der Auswertung den Aerosoleinfluss im Griff hat. Gelingt es den Fehler zu reduzieren, gewinnt man in der Regel gleichzeitig Informationen über das Aerosol in der Luft. Das hier vorgestellte Femtosekunden-Weißlicht-Lidar sollte auch hierbei Vorteile haben im Vergleich zu DIAL, wo nur bei zwei diskreten Wellenlängen gemessen wird.

Die beobachtete wellenlängenabhängige Divergenz ist grundsätzlich interessant für das Verständnis der nichtlinearen Effekte, die zur Entstehung von Weißlicht führen. Auch bei den Experimenten an der Sternwarte wurde die Divergenz bei ähnlicher Fokussierung in verschiedenen spektralen Banden gemessen. Die Auswertung dieser Messungen findet sich in Kapitel 3, Abschnitt 3.3.4. Solche Eigenarten der Strahlgeometrie müssen bei der Auswertung der Lidar-Experimente berücksichtigt werden, um die atmosphärischen Parameter korrekt bestimmen zu können. Zu beachten ist dabei auch die Form des Sichtfelds des Lidar-Teleskops. In dem hier beschriebenen Experiment lag die Projektion des Monochromatorspalts ($2 \text{ mm} \times 1 \text{ cm}$) parallel zur Verbindungslinie Laser-Teleskop. Damit besaß das

Sichtfeld in dieser Richtung einen fünfmal kleineren Öffnungswinkel als senkrecht dazu (Vollwinkel 1,7 mrad bzw. 8,3 mrad).

In Kapitel 4 (Abschnitt 4.2.2) werden die Ergebnisse dieser Auswertungen präsentiert. Es sei noch angemerkt, dass die Qualität der Signale, die während der 24-stündigen Messung am Tag (vor allem um die Mittagszeit) aufgenommen wurden, durch das Sonnenlicht deutlich beeinträchtigt ist.

2.3 Hochspannungsexperimente an der TU Berlin

(Auslösen und Lenken von Megavolt-Blitzentladungen mittels fs-Filamenten)

Aus zwei Gründen – dem Wissen, dass der Teramobile-Laser die Luft über längere Strecken ionisiert, und der einzigartigen Mobilität des Systems – entstand im Frühjahr 2001 die Idee einer Zusammenarbeit zwischen Teramobile und dem Institut für Elektrische Energietechnik der Technischen Universität Berlin, unter der Leitung von Prof. W. Kalkner. Kurzfristig und ohne lange Planungsphase fanden im Juni 2001 Messungen in einer großen Versuchshalle der TU statt. Die Halle ist mit mehreren Hochspannungsgeneratoren ausgestattet; für die hier beschriebenen Experimente eignete sich ein Stoßspannungsgenerator, der bis zu 2,8 MV Spannung erreicht, am besten. Es gelang dort, mit dem Laser aktiv meterlange Blitzentladungen zu beeinflussen.

Die wichtigsten Ergebnisse der Messkampagne sind in einem Artikel veröffentlicht worden [Rodriguez et al., 2002]. Der Themenkomplex der lasergesteuerten Hochspannungsentladungen stellt eine der interessantesten Anwendungsmöglichkeiten des Teramobile dar und



Bild 2-19. Das Teramobile (am linken Rand) in der Hochspannungshalle der TU Berlin. Direkt daneben der 14-stufige Marx-Generator. Am rechten Rand Versuchsaufbau mit torusförmigen Elektroden. (Vergleiche schematische Darstellung in Bild 2-21.)

hat auch in den öffentlichen Medien Aufmerksamkeit erhalten. Da er trotzdem nicht im Vordergrund dieser Arbeit steht, werden die Ergebnisse der Hochspannungsexperimente und deren Interpretation in diesem Kapitel in straffer Form präsentiert und weiter hinten, beispielsweise in Kapitel 4 „Untersuchung der Atmosphäre“, nicht wieder aufgegriffen.

Die in diesem Abschnitt dargestellten Auswertungen der Messergebnisse (v.a. zu sehen in den Bildern 2-24 bis 2-26) wurden in unmittelbarer Zusammenarbeit mit Holger Wille durchgeführt. Sie werden daher ebenfalls in seiner Dissertation präsentiert und diskutiert.

2.3.1 Motivation

Die Dimensionen einer Hochspannungsversuchshalle und die Größenordnungen der dort verwendeten Generatoren, die Spannungsstöße von einigen Megavolt erzeugen, bieten ideale Voraussetzungen für einen Übergang von Experimenten im kleineren Labormaßstab, typischerweise mit einigen zehn Kilovolt, hin zu dem Versuch natürliche Gewitterblitze zu beeinflussen.

Schon seit mehr als dreißig Jahren ist eine Kanalisierung von elektrischen Blitzentladungen mittels Laserstrahlung ein Thema in der Forschung. Über Versuche mit einem fokussierten gütegeschalteten Nd-Glaslaser (bis zu 50 J Pulsenergie) und einem Spannungspuls von 350 kV berichten Koopman und Wilkerson [1971]. Ihnen gelang es bei einem Elektrodenabstand von 63 cm, einen Blitz entlang des Laserkanals über eine Strecke um den Fokus von 28 cm Länge zu lenken. Dabei beobachteten sie mit Laser – bei fester Höhe der Spannung – Durchschläge bei Elektrodenabständen, die etwa 1,5 mal größer waren als die größte Durchschlagslänge ohne Laser. Die Autoren denken bereits an die Kontrolle und die Erforschung von natürlichen Blitzen als mögliche Anwendung. Bezugnehmend auf solche Experimente veröffentlicht Ball [1974] einen Artikel mit dem Titel *The Laser Lightning Rod System: Thunderstorm Domestication*. Dort diskutiert er, mit welchen Arten von Laserstrahlung die Luft ausreichend ionisiert werden könnte, und schlägt einen modenkoppelten Laser vor, um über große Distanzen Multiphotonionisation zu erzeugen.

Mit dem erklärten Ziel der Entwicklung einer lasergestützten Technik zum Schutz vor Blitzschäden wird seit den achtziger Jahren vor allem in Japan mit leistungsstarken CO₂-Lasern gearbeitet [Miki et al., 1993]. Das langwellige Licht dieser Infrarot-Laser muss fokussiert werden, um die Luft zu ionisieren. Dabei tritt jedoch das Problem auf, dass punktuell Plasma sehr hoher Dichte entsteht, wobei die Plasmafrequenz die Laserfrequenz übersteigt. Das Plasma blockt dadurch die weitere Ausbreitung des Strahls ab. Dies macht den Ansatz ineffizient. Japanische Forscher haben daraufhin versucht, mittels aufwendiger

Fokussieroptiken längere leitende Kanäle zu erzielen. Die Arbeitsgruppe von S. Uchida an der Universität Osaka versucht in Feldexperimenten mit gleichzeitigem Einsatz verschiedener Lasertypen – jedoch hauptsächlich CO₂-Laser im Kilojoulebereich – sowie versetzten Strahlrichtungen und unterschiedlichen Fokuslängen lange Plasmakanäle zu erzeugen, um natürliche Blitze auszulösen. Auf einer Konferenz im Jahr 1997 haben sie berichtet, dass ihnen dies erstmals gelungen sei [Shimada et al., 1998]. Es scheint jedoch unter Blitzforschern nicht als sicher zu gelten, dass die von einem Forschungsturm ausgehenden Entladungen wirklich durch Laser ausgelöst wurden.

Um die Nachteile, die bei der Benutzung von IR-Lasern auftreten, zu vermeiden, wird nun auch mit UV-Strahlung experimentiert, von der man sich bei geringerer Leistung längere Plasmakanäle und eine höhere Effektivität der Blitzauslösung erhofft [Miki und Wada, 1996]. In der Arbeitsgruppe von J.-C. Diels, University of New Mexico, wurden in den letzten Jahren umfangreiche experimentelle und theoretische Untersuchungen zur Blitzauslösung mittels Femtosekunden-UV-Pulsen (frequenzverdreifachter Ti:Sa-Laser) durchgeführt [Zhao et al., 1995; Rambo et al., 2001]. Bei diesen Experimenten wurden Elektrodenabstände von weniger als einem halben Meter überbrückt und der Laser mit Brennweiten von etwa einem Meter fokussiert. Dabei hing die Länge des gelenkten Teils des Blitzes empfindlich von der Position des Fokus ab (siehe Bild 2-20). Schon L.M. Ball äußerte 1974 die Vermutung, dass die Übertragung von Ergebnissen mit fokussiertem Laserlicht auf parallele Strahlen nicht trivial sei.

Der Einsatz von Filamenten, die durch Selbstkanalisierung von Femtosekundenpulsen entstehen, ist ein vielversprechender Ansatz die genannten Probleme zu überwinden. Denn

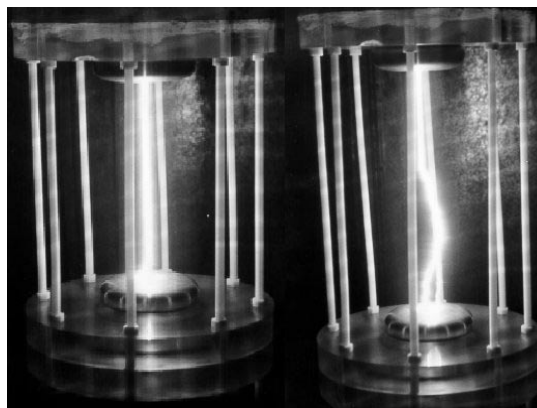


Bild 2-20. Abbildung aus [Rambo et al., 2001]. Links: Fokus des UV-Laserpulses (249 nm, 535 fs, 25 mJ) der Mitte der Zelle, Elektrodenabstand 30 cm. Rechts: Fokus nahe der oberen Elektrode, Abstand zu unter 42 cm. Messungen bei Normaldruck.

man erhält lange Kanäle mit freien Ladungsträgern, ohne dass man zu sehr hohen Pulsenergien gehen muss. Das Teramobile-System bietet in dieser Hinsicht ideale Voraussetzungen. Im Vorfeld sind mit den ähnlichen Lasersystemen in Jena und Palaiseau die Eigenschaften der Plasmakanäle untersucht worden. Am LOA, Palaiseau, wurden 10^{16} freie Elektronen pro cm^3 in einem Filament gemessen [Tzortzakis et al., 1999]. Bei Leitfähigkeitsmessungen am IOQ, Jena, wurde der Wert mit etwa $10^{12} \text{ e}^-/\text{cm}^3$ abgeschätzt [Schillinger und Sauerbrey, 1999]. Der Unterschied kann geometrische Gründe haben – in Jena wurde über mehrere Filamente gemittelt (Multifilamentierung) – oder zeitliche – in einer anderen Veröffentlichung wurde der Wert von Schillinger und Sauerbrey mit einer berechneten zeitlichen Abnahme der Elektronendichte verglichen [La Fontaine et al., 2000]. In beiden Fällen aber liegt der Wert über den nach [Zhao et al., 1995] für die Auslösung von Blitzen benötigten $5 \cdot 10^{11} \text{ e}^-/\text{cm}^3$. Im Allgemeinen muss man jedoch feststellen, dass es sehr schwierig ist, die experimentellen Ergebnisse durch theoretische Berechnungen vorauszusagen oder das als möglich Eingeschätzte in die Realität umzusetzen. Ein sorgfältiger Vergleich der unterschiedlichen Experimente kann möglicherweise am besten Aufschluss über die Bedeutung der vielen experimentellen Parameter geben.

Ein direkter Vergleich der im Folgenden beschriebenen Experimente, die mit dem Teramobile durchgeführt wurden, ist nur mit Arbeiten des Institut National de la Recherche Scientifique (INRS) in Québec, Kanada, möglich. Bevor die Teramobile-Messungen stattgefunden hatten, war es dort mit einem ähnlichen Lasersystem und einem vergleichbaren Hochspannungsaufbau gelungen, Blitzentladungen über 2 m auf der Bahn von Filamenten

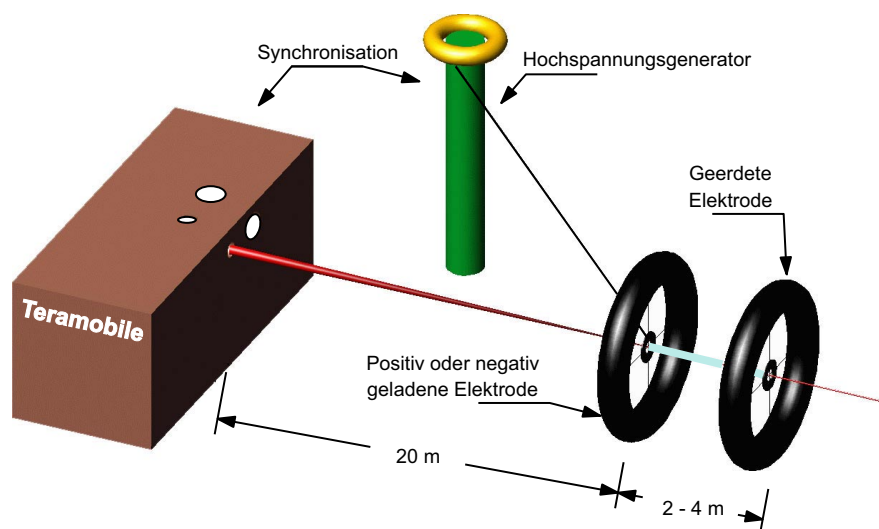


Bild 2-21. Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus an der TU Berlin mit der ersten Elektrodenkonfiguration (Torus-Torus).

zu lenken [La Fontaine et al., 2000]. Zu diesen Versuchen wurde aber keine laserbedingte Reduktion der Durchschlagsspannung (Definition für das „Auslösen“ von Blitzen) berichtet. Kurz zuvor hatte dieselbe Gruppe bei einem Elektrodenabstand von 2,8 m Blitze über 2,3 m auf der Laserbahn gelenkt und dabei die Durchschlagsspannung um 40% bis 50% reduziert [Comtois et al., 2000]. Bei diesem Experiment wurden die Laserpulse (600 fs, 200 mJ) jedoch wiederum nahe der in Richtung des Laserstrahls hinteren Elektrode, an der die Hochspannung anlag, fokussiert ($f = 4,7$ m), so dass man nicht von einer Überbrückung des Elektrodenzwischenraums durch lange Filamente ausgehen kann.

Eine andere, aufwendige Technik zur Erforschung von Blitzen wird in gewitterreichen Gebieten der USA angewandt. Man schießt kleine Raketen mit Drähten, die mit der Erde verbunden sind, in Gewitterwolken [Rakov et al., 1998]. Dies ist gewissermaßen die moderne Variante der Versuche von Benjamin Franklin. Diese Methode ist aber nicht für den Blitzschutz geeignet, sondern dient lediglich der Blitzforschung.

Nicht nur bei der Beeinflussung von Entladungen mittels Laser gibt es noch viel Forschungsbedarf, auch die grundlegenden Mechanismen der Blitzentstehung und -ausbreitung sind bis heute nicht vollständig verstanden. Eine ausführliche Behandlung des Themas findet man z.B. in [Gallimberti, 1979] und [Bondiou und Gallimberti, 1994].

2.3.2 Durchführung und Ergebnisse

Der Teramobile-Container wurde an ein Ende der 40 m langen und 17 m hohen Hochspannungshalle der TU Berlin gestellt (siehe Bild 2-19). In der Halle befindet sich ein 14-stufiger Marx'scher Stoßspannungsgenerator. Dieser liefert Spannungspulse von bis zu 2,8 MV und ist aus einzeln austauschbaren Elementen aufgebaut, so dass unter anderem zwischen Blitzstoßspannung (Anstiegszeit 1,2 μ s, Abfall auf halbes Maximum in 50 μ s) und Schaltstoßspannung (Anstieg 250 μ s, Abfall 2,5 ms) gewählt werden kann. Die Höhe und Polarität der Spannung sowie der Zeitpunkt des Pulses können jederzeit vom Kontrollpult aus eingestellt werden. Dort wird auch der zeitliche Verlauf des Spannungspulses mit einem Oszilloskop gemessen. So konnte relativ zum Durchgang des Laserpulses der Zeitpunkt der ansteigenden Flanke der Spannung und – im Falle eines Durchschlag zwischen den Elektroden – auch des Spannungsabfalls bestimmt werden. Außerdem ließ sich am Oszilloskop die tatsächliche Maximalspannung ablesen. Diese kann bei fester Einstellung (Spannung pro Generatorstufe) etwas schwanken. Während der Experimente wurden die Spannungspulse mit einer UND-Schaltung des 10Hz-Lasersignals und eines manuellen Starters ausgelöst. Das heißt, bei gedrücktem Starterknopf wartete der Spannungsgenerator auf ein Triggersignal, das über eine optische Leitung vom Teramobile-Container zum Kontrollpult

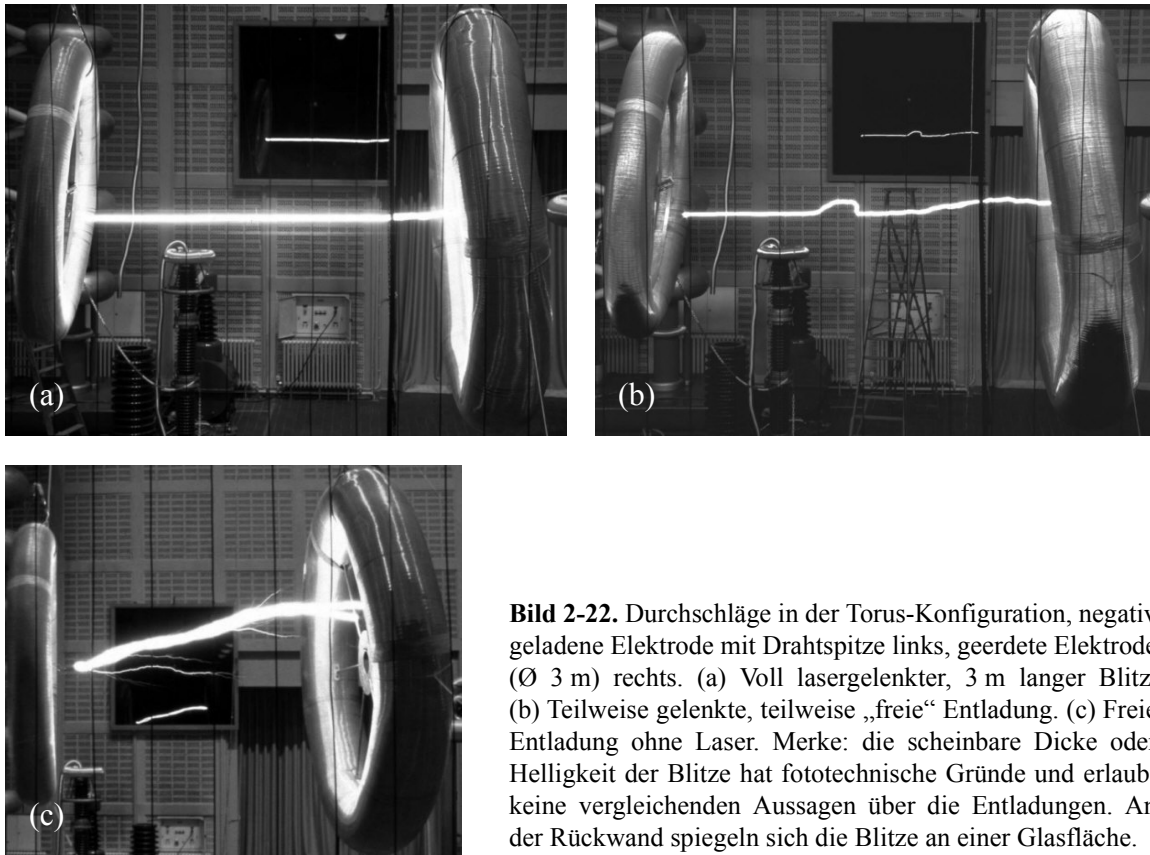


Bild 2-22. Durchschläge in der Torus-Konfiguration, negativ geladene Elektrode mit Drahtspitze links, geerdete Elektrode ($\varnothing$ 3 m) rechts. (a) Voll lasergelenkter, 3 m langer Blitz. (b) Teilweise gelenkte, teilweise „freie“ Entladung. (c) Freie Entladung ohne Laser. Merke: die scheinbare Dicke oder Helligkeit der Blitze hat fototechnische Gründe und erlaubt keine vergleichenden Aussagen über die Entladungen. An der Rückwand spiegeln sich die Blitze an einer Glasfläche.

übertragen wurde. Der Trigger konnte zwischen $180 \mu\text{s}$ vor und beliebig lange nach jedem Laserpuls verschoben werden.

Der Teramobile-Container befand sich in 20 m Abstand von der ersten Elektrode, an die die Hochspannung angelegt wurde. Der Laserstrahl wurde bei allen Versuchen durch das Sendeteleskop leicht fokussiert. Der geometrische Fokus lag dabei etwa einen Meter vor der ersten Elektrode. Bei einer solchen Brennweite von über 20 m (inklusive ca. 3 m im Innern des Containers ab dem konkaven Spiegel) kann man im Falle eines TW-Lasers nicht von einem wirklichen Fokus – im Sinne des im vorigen Abschnitt besprochenen – reden. Vielmehr dient die Bündelung der Verstärkung der Selbstfokussierung, damit die Filamente in einer bestimmten festen Distanz beginnen. Prinzipiell kann dies auch durch Einstellung des Chirp beeinflusst werden, jedoch treten stärkere Puls-zu-Puls-Schwankungen auf und die einzelnen Filamente (Multifilamentierung) beginnen bei leicht unterschiedlichen Entfernungen. Außerdem ist es vorzuziehen, den Chirp als freien Parameter zu erhalten. Alle Versuche, die nicht speziell der Untersuchung der Chirpabhängigkeit dienten, wurden mit kaum gechirpten, 150 fs langen Pulsen durchgeführt. Mit der leichten Fokussierung begannen die Filamente etwa einen Meter vor dem geometrischen Fokus, also ca.

zwei Meter vor der ersten Elektrode und reichten stets mindestens bis zur zweiten Elektrode. Auf diese Weise wurden allerdings die Filamente stark gebündelt, in einen intensiven Kanal von etwa 0,5 cm Durchmesser, wogegen sich die Filamente bei parallel gesendetem Strahl über fast das gesamte anfängliche Strahlprofil (Durchmesser ca. 3 cm) verteilen. Inwieweit sich dieser Unterschied auf den Erfolg von Blitzversuchen auswirkt, ist nicht klar und sollte weiter untersucht werden. Denn auch eine leichte Fokussierung kann wiederum die maximale Filamentlänge verringern (siehe dazu Abschnitt 3.3.3).

In Bild 2-21 ist der schematische Versuchsaufbau mit einer von mehreren (im Wesentlichen zwei) verwendeten Elektrodenkonfigurationen dargestellt. Diese erste Konfiguration bestand aus zwei Tori mit Ringplatten im Zentrum, sämtlich aus Aluminium. Die Idee war, ein relativ homogenes Feld zu erzeugen. Es stellte sich jedoch heraus, dass die Tori das Feld in ihrem Zentrum, wo der Laserstrahl die Elektroden passierte, abschirmten. Erst durch Anbringung einer Drahtspitze, die vom Zentrum der Hochspannungselektrode aus über den Rand des Torus ragte, gelang die Lenkung der Entladungen. Gleichzeitig bewirkte die nahe am Laserstrahl platzierte Spitze natürlich eine Erhöhung der Feldstärke in ihrer Umgebung. In Bild 2-22 sind drei beispielhafte Entladungsfälle dargestellt. In einem bestimmten Spannungsbereich führten fast alle Versuche zu 100% gelenkten Entladungen. Im Teilbild (b) ist ein besonders kurioser Fall einer teilweisen Lenkung gezeigt. Der Blitz verlässt die Laserbahn nach etwa 40% der Distanz – in der Vorstellung dass er sich von links nach rechts ausbreitet –, kehrt aber mit einer „scharfen Kurve“ für ein kurzes Stück darauf zurück, um dann auf einem typischen „zufälligen“ oder „freien“ Weg die Lücke zu schließen. Teilbild (c) zeigt zum Vergleich eine freie Entladung ohne Laser, hier bei einem geringeren Elektrodenabstand. Die Form der Verzweigung des Blitzes legt die Ausbreitungsrichtung von der Drahtspitze hin zum rechten (geerdeten) Torus nahe.

Die in der Hochspannungstechnik und der Blitzforschung übliche und hauptsächlich untersuchte **Elektrodenkonfiguration** besteht aus einer **Spitze** oder Kugel und einer großen leitenden **Fläche**, die senkrecht zur Verbindung beider steht. Dabei spielt es prinzipiell keine Rolle, welche der beiden an die Hochspannung angeschlossen ist, wohl aber welche Polarität vorliegt. Man unterscheidet also zwischen den Konfigurationen mit positiver bzw. negativer Spitze. Um diesem Standard zu entsprechen, wurden alle systematischen Messungen, d.h. ein Großteil der Messkampagne, in einer Konfiguration mit einer 12 cm großen Kupferkugel als Hochspannungselektrode und einer geerdeten, runden Aluminiumplatte (3 m Durchmesser) durchgeführt (siehe Bild 2-23). Die Ergebnisse aus diesem Aufbau werden im Folgenden behandelt, sie unterscheiden sich jedoch nicht wesentlich von denen der Torus-Drahtspitzen-Konfiguration.

Bei negativ aufgeladener Kugel (Blitzspannung $1,2/50\mu\text{s}$) wurden für verschiedene Elektrodenabstände die U_{50} -Werte für freie Durchschläge und für Entladungen mit Laser bestimmt. (Als U_{50} bezeichnet man die Spannung, bei der sich in einer festen Konfiguration im Mittel 50% der Pulse, die diesen Wert im Maximum annehmen, durch einen Blitz zwischen den Elektroden entladen. In den übrigen Fällen entlädt sich die Spannung im Generator während der Abklingzeit.) Hierzu wurden jeweils mehrere Punkte auf der Kurve der Durchschlagshäufigkeit über der Spannung gemessen. Diese Kurven stellen sich als abgerundete Stufenfunktionen dar, deren Flanken sich über Bereiche von etwa 100 kV ohne Laser und etwa 300 kV mit Laser erstrecken. Das heißt, die Übergänge von 0 nach 100% sind relativ scharf und die U_{50} genau bestimmbar. Die Literatur gibt für Versuchsanordnungen dieser Art an, dass sich die freie Durchschlagsspannung $U_{50,\text{frei}}$ zwischen 700 kV/m und 1000 kV/m bewegt [Beyer et al., 1986]. Die in Bild 2-24 dargestellten Ergebnisse ohne Laser bestätigen dies. Die lineare Funktion des Abstands $U_{50,\text{frei}}(d)$ hat eine Steigung von 790 kV/m während sich beispielsweise für den Punkt bei 2 m 900 kV/m ergeben. Verlängert man die Gerade bis zu $d = 0$, liest man einen Untergrund von 200 kV ab. Nach Aussage der Experten an der TU Berlin ist es jedoch normal, dass die Kurve einen stärkeren, nicht linearen Anstieg im Bereich kleiner Abstände zeigt und erst danach in eine Gerade übergeht.

Mit Laser zeigen die U_{50} -Punkte in Bild 2-24 einen ähnlichen Verlauf, jedoch mit deutlich niedrigeren absoluten Werten und einer geringeren Steigung. Die Verringerung gegenüber den Durchschlagsspannungen ohne Laser beträgt für die einzelnen Punkte zwischen 30%

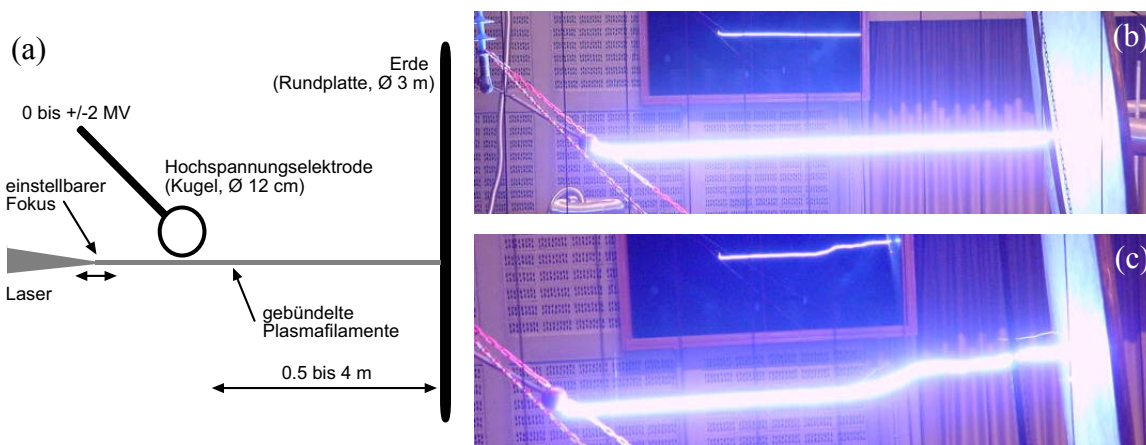


Bild 2-23. Kugel-Platten-Konfiguration. (a) Schematischer Versuchsaufbau. (b) Voll gelenkter Blitz bei 2,5 m Abstand, 1,4 MV, Laserpuls: 160 fs, 240 mJ, Entladung 2,1 μs nach Laser. (c) Zu 60% gelenkter Blitz bei 2 m Abstand, 1,2 MV, Laserpuls: 160 fs, 300 mJ, Entladung 5,4 μs nach Laser.

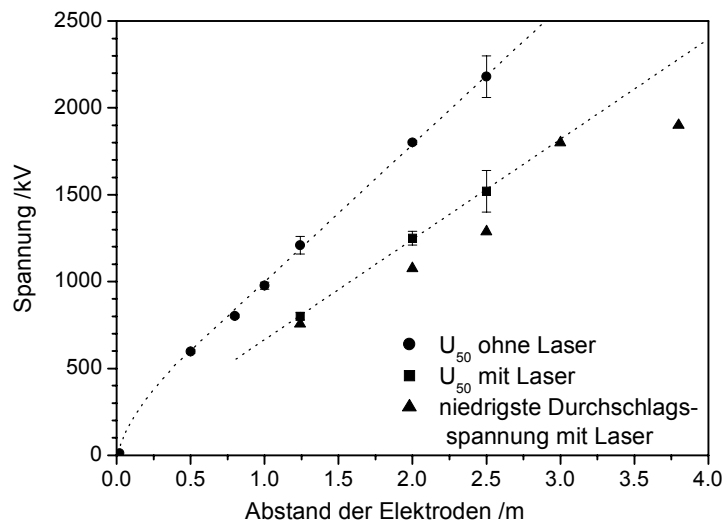


Bild 2-24. U_{50} -Werte mit (■) und ohne (●) Laser für verschiedene Elektrodenabstände d . Polarität: negative Hochspannung an der Kugel. Fehlerbalken ergeben sich aus der Versuchsstatistik. Mit ▲ markierte Punkte stehen für Einzelversuche mit der jeweils niedrigsten Spannung, bei der ein lasergelenkter Blitz auftrat. Der Verlauf der U_{50} -Werte ist linear, außer bei sehr kleinen Elektrodenabständen.

und 34%. Die Steigung ist um 26,2% geringer. Darin erkennt man deutlich ein **Auslösen der Blitzentladung** durch die Laserfilamente. Denn wegen des oben beschriebenen scharfen Anstiegs der Durchschlagswahrscheinlichkeit ist der Bereich $U_{50, \text{Laser}}$ deutlich getrennt von der jeweils niedrigsten Spannung, bei der ein freier Durchschlag stattfindet. Das heißt, es gibt Spannungsbereiche, in denen es ohne Laser nie, mit Laser aber praktisch bei jedem Versuch zu einer Blitzentladung kommt. Zum Zeitpunkt der Veröffentlichung dieser Ergebnisse [Rodriguez et al., 2002] war kein anderer Bericht über meterlange Blitzentladungen, die durch Laserfilamente gelenkt und ausgelöst wurden, bekannt. Die größte Länge eines voll gelenkten Blitzes in dieser Versuchsreihe beträgt 3,8 m. Auch dies stellt einen der höchsten erreichten Werte dar.

Nicht alle gelenkten Blitze, die in die U_{50} -Auswertung eingegangen sind, waren vollständig gerade (siehe Bild 2-23 c). Dabei lag das gerade Stück stets auf der Seite der Kugel. Bild 2-25 zeigt für Einzelereignisse bei $d = 1,24$ m die Größe η , den **gelenkten Anteil der Entladung**, auf dem der Blitz der Bahn des Lasers folgt, aufgetragen über der Spannung. Die Streuung von η nimmt mit steigender Spannung in der Form ab, dass die Unterkante des Streubereichs von ca. 30% bei etwas unter $U_{50, \text{Laser}}$ linear bis 100% ansteigt. Die Spannung, bei der für alle Versuche $\eta \approx 100\%$ gilt, entspricht in diesem untersuchten Fall etwa $U_{50, \text{frei}}$. Ab dieser Spannung ist der Laser nicht mehr Voraussetzung für Entladungen. Ein Blitz kann ganz oder teilweise gelenkt sein oder aber trotz Anwesenheit der Laserfilamente

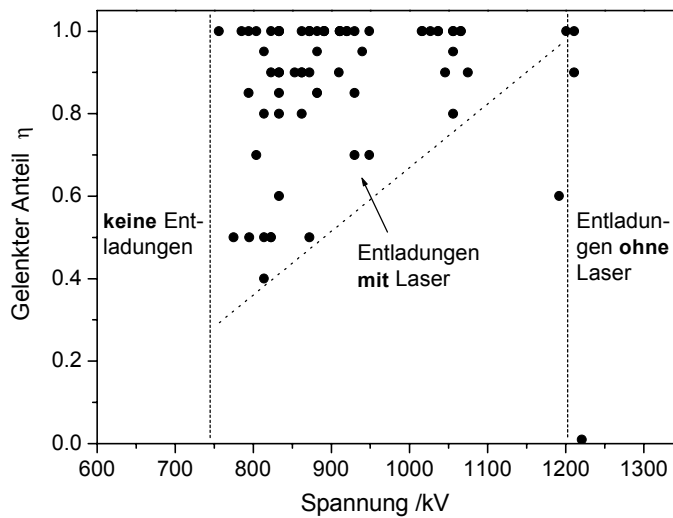


Bild 2-25. Streuung der Länge des gelenkten (geraden) Anteils η der Blitze beim Elektrodenabstand 1,24 m. Unterhalb von ca. 750 kV wurden keine Entladungen beobachtet. Oberhalb von $U_{50, \text{frei}}$ (1210 kV) treten gelenkte und un gelenkte Blitze auf.

die Form einer völlig freien Entladung haben. Auffällig ist die Häufigkeit von Fällen mit $\eta = 100\%$ bei allen Spannungswerten innerhalb der Eingrenzung. Während der gesamten Messkampagne traten keine Fälle mit $\eta < 30\%$ auf (abgesehen von $\eta = 0$). Dies kann als weiteres Zeichen für die auslösende Wirkung der Filamente angesehen werden, da der Laser zur Überbrückung mindestens eines Drittels der Strecke benötigt wird, damit die bleibende Lücke auch in Form eines freien Durchschlags geschlossen werden kann.

Ein weiterer Parameter, der bisher nicht einbezogen wurde, ist die Zeit. Wenn nicht speziell erwähnt, war bei allen Versuchen der Laserpuls zeitlich so eingestellt, dass er die Elektroden $1 \mu\text{s} \pm 0,5 \mu\text{s}$ nach dem Erreichen des Maximums der Spannung passierte. Für jeden Versuch wird nun τ , die **Verzögerung zwischen dem Laser und dem Beginn des Spannungsabfalls**, bestimmt. Bild 2-26 zeigt τ über η für einige Durchschläge zwischen den Elektroden in einem Abstand von 2 m. Die Symbole stehen für verschiedene Maximalspannungen, die jedoch alle ausreichend weit unterhalb der entsprechenden Grenze zur freien Entladung ($U_{50, \text{frei}, 2\text{m}} = 1800 \text{ kV}$) gehalten wurden. In Anbetracht der Streuung der Punkte, kann man keine eindeutige Aussage über eine Abhängigkeit von der Höhe der Spannung machen. Es scheint jedoch, dass sich vor allem der freie Teil der Durchschläge – zu sehen bei Fällen mit kleinem η – etwas schneller ausbildet, wenn die Spannung höher ist.

Allgemein wird 10^5 m/s als ungefähre Geschwindigkeit angegeben, mit der sich ein Entladungskanal ausbreitet [Beyer et al., 1986]. Schon Koopman und Wilkerson [1971] vermu-

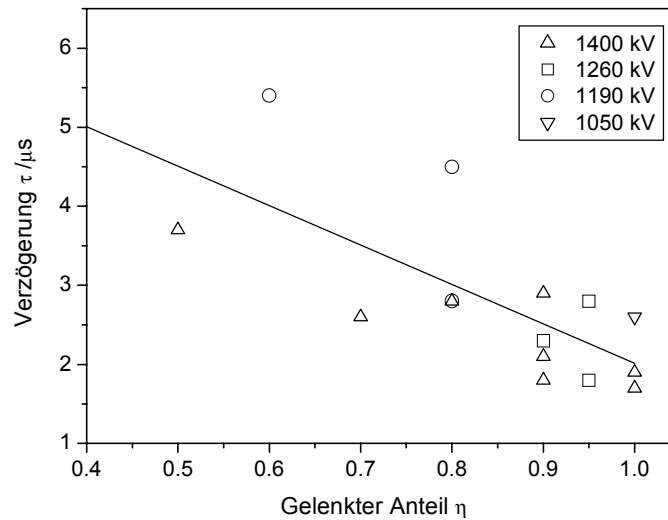


Bild 2-26. Verzögerung τ zwischen Laserpuls und Einsetzen der Entladung bei 2 m Elektrodenabstand für Versuche bei verschiedenen Spannungen unterhalb von $U_{50,\text{frei}}$. Die Gerade stellt den Fit gemäß Gleichung 2-2 dar.

teten, dass der Laser die Geschwindigkeit erhöht. In einem einfachen **Modell zweier Geschwindigkeiten**, v_g für den gelenkten Teil und v_f für den freien, gilt unter der Annahme, dass die Laserfilamente den Entladungsvorgang augenblicklich auslösen, die Beziehung

$$\tau = d \left(\frac{\eta}{v_g} + \frac{1-\eta}{v_f} \right). \quad (2-2)$$

Ein Fit durch die Punkte $\tau(\eta)$, dargestellt in Bild 2-26, liefert $v_g = (1,0 \pm 0,2) \cdot 10^6$ m/s und $v_f = (2,9 \pm 0,5) \cdot 10^5$ m/s. Der Wert von v_f liegt im Bereich des Literaturwerts für freie Entladungen, der von v_g entspricht dem, den La Fontaine et al. [2000] mittels Streak-Kameraaufnahmen von Entladungen, die durch Filamente gelenkt wurden, bestimmt haben.

Im Folgenden seien weitere Einzelergebnisse der Experimente in kurzer Form zusammengefasst:

- Der Kontakt der Filamente mit der Kugel bzw. Drahtspitze war entscheidend. Bei Vergrößerung des Abstands – der typischerweise ca. 1 cm betrug – um wenige Zentimeter sank die Häufigkeit der Blitzauslösung rapide ab.
- Nur Laserpulse, die nach dem Anstieg der Hochspannung die Elektroden erreichten, konnten Blitze auslösen und lenken. Erfolgreiche Versuche gab es mit Zeitabständen

zwischen 0 und 15 μs . La Fontaine et al. [2000] beobachteten gelenkte Entladungen durch Laserpulse, die die Elektroden bis zu 15 μs vor dem Spannungspuls passierten. Dies ist damit zu erklären, dass bei ihren Versuchen der Laser nicht zum Auslösen der Entladung benötigt wurde (siehe weiter unten im Abschnitt „Diskussion“).

- Eine Messung der Abhängigkeit von der Pulsenergie des Lasers wurde bei $d = 1,24\text{ m}$, Spannungen zwischen 850 kV und 890 kV und einer Pulslänge von 150 fs durchgeführt. Ausgehend von 300 mJ wurde bis hinunter zu 150 mJ eine unveränderte Durchschlagsfrequenz von 70% bis 80% registriert. Erst zwischen 50 mJ und 30 mJ sank die Häufigkeit unter 40%, bei 20 mJ wurden keine Entladungen mehr ausgelöst. Es ist nicht anzunehmen, dass bei einer bestimmten Pulsenergie die Ionisation durch den Laser bzw. die Anzahl der erzeugten Filamente in Sättigung übergeht. Vielmehr zeigt sich hierdurch, dass es einen Grenzwert der Pulsenergie (oder -leistung) für die Blitzauslösung gibt. Die darüber erreichte maximale Durchschlagswahrscheinlichkeit hängt wiederum von anderen Parametern ab.
- Die Veränderung des Chirp und damit der Pulslänge schien zunächst keine Auswirkung zu haben, da sich die Durchschlagshäufigkeit nicht signifikant änderte. Die Pulsenergie war dabei 300 mJ, $d = 1,24\text{ m}$ und $U = (870 \pm 20)\text{ kV}$. Bei genauerer Analyse zeigt sich jedoch eine geringe Abhängigkeit der Verzögerung τ und damit auch der Lenkungslänge (η). Die kürzesten Verzögerungen, im Mittel ca. 0,5 μs , wurden mit Pulslängen von 1 ps bei negativem Chirp erzielt, gefolgt von 650 fs bei positivem Chirp (0,9 μs). Bei kürzeren Pulsen, aber auch längeren (2 ps), wurden im Mittel längere Zeiten gemessen. Da dies aber mit einer größeren Streuung der Werte einhergeht, sind die Mittelwerte mit einem großen Fehler behaftet. Bei 150 fs ohne Chirp ergibt sich 1,5 μs , bei 300 fs mit negativem Chirp 2,6 μs und bei 2 ps mit negativem Chirp 1,2 μs . Man kann also nur sagen, dass eine begrenzte Pulsverlängerung, unabhängig von der Richtung des Chirp, die Lenkungswirkung leicht zu verbessern scheint.

2.3.3 Diskussion

Aus den Ergebnissen lässt sich nun folgende Erklärung der beobachteten Phänomene ableiten: Um die (negativ) aufgeladene Kugel bildet sich eine so genannte Korona freier Ladungen. Sobald der Laserpuls die Elektrode passiert, entsteht ein Kontakt zwischen der Korona und den Plasmafilamenten. Die in den Filamenten vorhandenen freien Elektronen – bzw. nach einer bestimmten Zeit hauptsächlich negative Ionen, die durch Anlagerung der Elektronen an Sauerstoffmoleküle entstehen [Pépin et al., 2001] – erhöhen lokal das elektrische Feld. Wenn die Feldstärke den Grenzwert von ca. 27 kV/cm (bei normalem Atmosphären-

druck) übersteigt, setzt lawinenartige Ionisation ein. So wächst ein Entladungskanal. Die hohe Geschwindigkeit dieses Wachstums (ca. 10^6 m/s) unterliegt wahrscheinlich natürlichen Schwankungen. Das gleiche gilt möglicherweise für einen minimalen Zeitversatz bei der Auslösung des Entladungsvorgangs. Je höher die Spannung ist, desto weniger dürften Fälle mit verzögert einsetzender oder langsamer Ausbreitung vorkommen. Dies erklärt den im Mittel größeren gelenkten Anteil η der Blitze bei höherer Spannung (Bild 2-25). Denn mit der Zeit klingt das Laserplasma ab – nach Berechnungen von Pépin et al. [2001] fällt die Ladungsträgerdichte in 5 μ s auf etwa 10^{11} cm $^{-3}$ ab – und die Filamente müssen immer mehr mit anderen möglichen Entladungswegen konkurrieren. Der wenn auch nur geringe Einfluss des Chirp könnte ein Hinweis darauf sein, dass die Plasmadichte leicht von der Pulslänge abhängt. Schließlich verlässt der Entladungskanal nach der Strecke ηd die Bahn des Lasers und erreicht die flache Elektrode auf einem freien Weg. Ein Vergleich der Verzögerungen τ (bei ungefähr festen η -Werten) mit den zugehörigen Fotos zeigt, dass die Zeit größer ist, je größere „Umwege“ der Entladungskanal nimmt. Die Tendenz zu kleineren τ bei höherer Spannung (Bild 2-26) spricht für eine „begradigende“ Wirkung einer hohen Spannung. Sobald die Elektronen verbunden sind, baut sich die Spannung mit einem hell aufleuchtenden Blitz ab. Dieser hinterlässt ein heißes Plasma, das an einzelnen Stellen, die scheinbar zufällig über die Entladungsstrecke verteilt sind, bis zu 0,1 s lang nachleuchtet. Dies zeigen Videoaufnahmen einiger Entladungen in der Torus-Konfiguration (Bild 2-27). (Unter Gewitterexperten existiert der Begriff des Perlschnurblitzes, der selten beobachtet wird.)

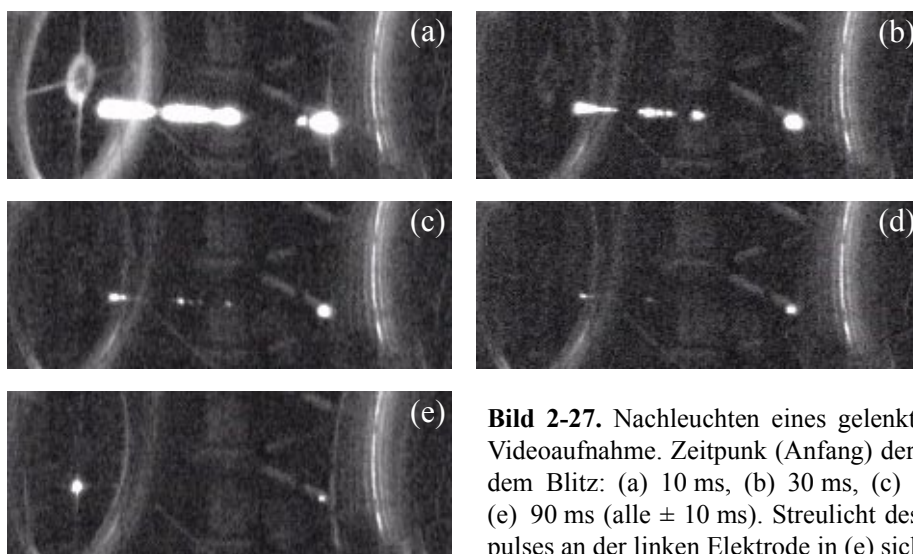


Bild 2-27. Nachleuchten eines gelenkten Blitzes. 50Hz-Videoaufnahme. Zeitpunkt (Anfang) der Einzelbilder nach dem Blitz: (a) 10 ms, (b) 30 ms, (c) 50 ms, (d) 70 ms, (e) 90 ms (alle ± 10 ms). Streulicht des folgenden Laserpulses an der linken Elektrode in (e) sichtbar.

Die Konkurrenten der Laserfilamente sind Ionisationswellen, so genannte *streamer*, die dem eigentlichen Entladungskanal, dem so genannten *leader*, den Weg weisen. Streamer gehen in stärkerem Maße von der positiven Elektrode aus (siehe die freie Entladung mit positiv geladener Drahtspitze in Bild 2-22 c und den Streamer an der positiven Platte in Bild 2-23 c). Auf ihrer Seite sollte also die Konkurrenz größer sein. In der Kugel-Platte-Konfiguration wurden einige Messungen in der umgekehrten **Polarität**, also mit positiv geladener Kugel durchgeführt. Der gerade, gelenkte Teil der Blitze lag hierbei auf der Seite der Platte. Allgemein gilt aber, dass sich unabhängig von der Polarität die Entladung von der Spitze (Kugel) hin zur Platte ausbildet. Die positive Spitze kann direkt freie Elektronen zu sich hin beschleunigen, während bei der negative Spitze die Korona das Feld etwas abschirmt. Daher ist $U_{50, \text{frei}}$ bei positiver Spitze deutlich niedriger als bei negativer. Eine Verringerung der Durchschlagspannung bzw. eine auslösende Wirkung durch den Laser ist deswegen und aufgrund der Konkurrenz der positiven Streamer in dieser Polarität schwer zu beobachten. La Fontaine et al. [2000], die zwar zwei flache Elektroden benutzten, aber an der positiven eine 5,5 cm lange Spitze angebracht hatten, von der aus sie die Bildung des Entladungskanals beobachteten, konnten kein Auslösen durch die Laserfilamente feststellen. (Nebenbei bemerkt wäre die Maximalspannung von 1,2 MV, die ihnen zur Verfügung stand, für die Untersuchung negativer Entladungen bei 2 m Abstand etwas zu gering gewesen.)

Die Experimente der kanadischen Gruppe, die nach der Theorie von Gallimberti [1979] interpretiert wurden, haben gezeigt, dass unter den gegebenen Bedingungen Streamer nur kurze Strecken (≤ 2 m) überbrücken können [Pépin et al., 2001]. Bei größeren Distanzen – experimentelle und theoretische Untersuchungen beziehen sich vor allem auf positive Entladungen – schiebt der Leader eine Streamer-Korona vor sich her. Es muss in der Zukunft weiter untersucht werden, welche Bedeutung solche Theorien oder die Frage der Polarität bei der Interpretation der hier präsentierten Ergebnisse haben, und zwar in Hinsicht auf ihre Übertragbarkeit auf die Beeinflussung natürlicher Gewitterentladungen. Können die Laserfilamente die Streamer ersetzen, und wenn ja, über wie große Distanzen? Die Geschwindigkeit der durch die Filamente ausgelösten und gelenkten Entladungen wird auch in der Natur beobachtet. Und zwar haben Untersuchungen bei Gewittern gezeigt, dass Nachblitze, die den vorhandenen Kanal eines negativen Wolke-Boden-Blitzes für weitere Entladungen der Wolke nutzen, eine Geschwindigkeit von 10^6 m/s haben [Beyer et al., 1986]. Dies spricht dafür, dass der Laser die Vorionisation der Luft, z.B. durch Streamer, ersetzen kann.

2.4 Laborexperimente und sonstige Messungen

Im Folgenden werden einige Experimente beschrieben, die seit Beginn des Teramobile-Projekts mit den TW-Lasersystemen der Partnerinstitute bzw. – seit dem Frühjahr 2001 – mit dem Teramobile-System in Jena, Palaiseau und Berlin durchgeführt wurden. Die Ergebnisse sind zum Teil in einer eigenen Publikation veröffentlicht oder als Teilergebnisse in Artikel mit aufgenommen worden. Zum Teil handelt es sich um kleinere Einzelaspekte, die bei einer umfassenden Diskussion verschiedener Ergebnisse nützliche Hinweise liefern können. Sie werden daher in den folgenden Kapiteln dieser Arbeit wieder aufgegriffen.

2.4.1 Quantitative Messung des Weißlichtspektrums

Im Jahr 1970 wurde die spektrale Verbreiterung von kurzen (ps) Laserpulsen in Kristallen und Gläsern entdeckt [Alfano und Shapiro, 1970]. Corkum et al. [1986] berichteten erstmals von der Erzeugung von Weißlicht, d.h. von der *supercontinuum generation* (SCG), in Gasen. Sie untersuchten die SCG in einigen Edelgasen sowie Wasserstoff, Stickstoff und Kohlendioxid bei Drücken zwischen einer und 40 Atmosphären im Spektralbereich zwischen 300 nm und 800 nm. Als Lichtquelle dienten dabei fokussierte Laserpulse von 2 ps und 70 fs Länge und 500 μ J Energie bei einer Grundwellenlänge von 600 nm. Ein Ergebnis ihrer Experimente war, dass die SCG für jedes Gas einen unteren Grenzwert der Pulsleistung aufweist, der sich umgekehrt proportional zum Druck des Gases verhält.

Nishioka et al. [1995] haben mit einem fs-Ti:Sa-Laser bei einer 9 m langen Transmissionsstrecke durch verschiedene Edelgase unter Normaldruck breite, plateauförmige Weißlicht-

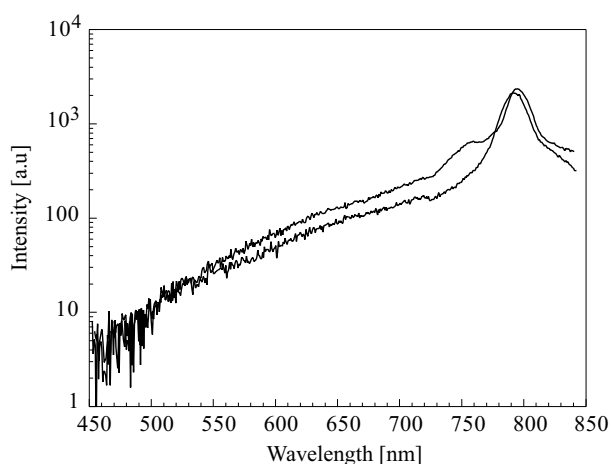


Bild 2-28. Abbildung aus [Wöste et al., 1997]. Weißlichtspektrum bei zwei unterschiedlichen Chirpeinstellungen, erzeugt mit einem 2TW-100fs-Laser, empfangen aus der Atmosphäre (oberhalb von 500 m) bei Lidar-Messungen mit Spektrometer und Mehrkanaldetektion.

kontinua im sichtbaren bis zum VUV-Bereich gemessen. Die Plateaus, deren spektrale Intensität etwa zwei Dekaden unter dem Maximum (Laserwellenlänge 790 nm) liegen, erstrecken sich von ca. 600 nm bis zu einer Abbruchkante, deren Lage je nach Gas zwischen 300 nm und 150 nm variiert.

Mit einem Lasersystem sehr ähnlichen Typs (Ti:Sa-CPA, 790 nm, 100 fs, 2 TW) wurden während der Experimente, die im Vorfeld des Teramobile-Projekts stattfanden, am IOQ Jena, in Kooperation mit der FU Berlin, Weißlicht-Lidar-Messungen durchgeführt [Wöste et al., 1997]. Hierbei war der Laser nur leicht fokussiert ($f = 30$ m), so dass sich in einigen zehn Metern Höhe lange Filamente bildeten. Spektren des von ihnen emittierten und aus der Atmosphäre zurückgestreuten Lichts sind in Bild 2-28 dargestellt. Auf diese Weise konnte ein intensives, breites Kontinuum im Sichtbaren nachgewiesen werden, das bei der Wechselwirkung von Terawattpulsen mit Luft über lange Strecken entsteht.

Es stellte sich die Frage nach dem **Infrarotgehalt des Superkontinuums**. Dies ist von großer Bedeutung für die Anwendung der Weißlichtpulse für die Atmosphärenanalyse, da im mittleren Infrarot, etwa im Bereich 1 μm bis 4 μm , viele relevante Spurengase Absorptionsbanden besitzen, die in Form charakteristischer Linienmuster der einzelnen Rotations-Schwingungsübergänge auftreten (siehe Abschnitt 4.2.1). Bis Ende der neunziger Jahre war kein SCG-Spektrum im Infrarot veröffentlicht, vielmehr wurde von einzelnen Autoren bezweifelt, dass sich das Weißlicht um wesentlich mehr als 150 nm ins Infrarot erstrecken würde [Brodeur und Chin, 1998] (die Aussage wurde im Zusammenhang mit Messungen an Flüssigkeiten und Kristallen getroffen, ist aber als eine allgemeine zu verstehen). Daher wurden die im Folgenden beschriebenen Experimente – die ersten, die im Rahmen des Teramobile-Projekts im Spätsommer 1999 durchgeführt wurden – dieser Frage gewidmet. Die wichtigsten Ergebnisse sind in [Kasparian et al., 2000] veröffentlicht.

Am IOQ Jena wurden Messungen des Weißlichts im nahen Infrarot bis 1,6 μm mit dem dortigen 2TW-Lasersystem durchgeführt. Die Laserpulse hatten eine feste Länge von 100 fs, einen Durchmesser von 35 mm (volle HWB) und wurden für das Experiment mit einer dünnen Linse ($f = 8$ m) fokussiert. Bild 2-29 (a) zeigt das resultierende Strahlprofil, das am Messort keine extrem hohe Intensität aufwies, so dass ein Umlenkspiegel in den Strahl gebracht werden konnte, ohne beschädigt zu werden. Das gleiche wäre mit dem unfokussierten Strahl (siehe Teilbild c) wegen der Länge der Filamente nicht möglich gewesen. Außerdem wäre die spektrale Veränderung der Pulse nach ca. 30 m noch nicht abgeschlossen. Die Detektion, bestehend aus einem Prismenspektrometer (Zeiss) und einem Germaniumdetektor, befand sich 20 m hinter dem Fokus. Bei jeder Wellenlängenposition des Spektrometers wurde über die Signale einiger zehn Laserpulse gemittelt. In

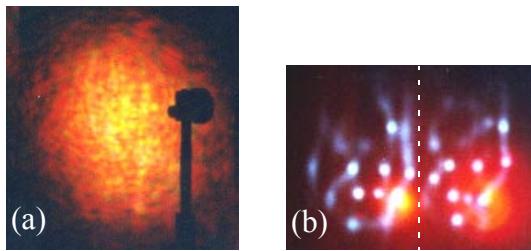


Bild 2-29. Fotografien von Pulsprofilen (IOQ-Laser, 2 TW) ca. 50 m hinter dem Kompressor. (a) Fokussiert mit 8m-Linse, Durchmesser ca. 20 cm, Schatten eines Umlenkspiegels. (b) Zwei aufeinander folgende Profile ohne Linse, Multi-filamentierung mit leichten Schwankungen, Gesamtdurchmesser eines Profils ca. 5 cm.

Bild 2-30 sind zwei Spektren zu sehen, die bei unterschiedlichen Pulsenergien gemessen wurden. Die Energiewerte 100 mJ und 200 mJ ergeben 1 TW bzw. 2 TW Pulsleistung. Beide Spektren sind mit demselben Faktor normiert worden, das heißt, sie sind quantitativ vergleichbar. Man kann also feststellen, dass die Verdopplung der Pulsleistung – bei gleichbleibender Pulslänge – nicht zu einer Erhöhung der spektralen Intensität im Bereich um die Laserwellenlänge (800 nm) geführt hat, sondern die zusätzliche Energie vollständig in das Weißlichtkontinuum geflossen ist.

Am LOA Palaiseau wurden die Messung zur Bestimmung der IR-Intensität des Weißlichts fortgesetzt. Dort stand ein ähnliches Lasersystem zur Verfügung. Die Pulsenergie war mit 60 mJ etwas niedriger, dafür wurden sehr kurze Pulse erzeugt (35 fs), womit die maximale Pulsleistung ebenfalls fast 2 TW betrug. Der Strahl, der einen Durchmesser von 25 mm (volle HWB) besaß, wurde mit einer 10m-Linse fokussiert, was auch hier zu einem Strahlprofil in der Art des in Bild 2-29 (a) dargestellten führte. Aufgrund der Kürze der Pulse war die Dispersion der Linse nicht zu vernachlässigen. Der 35fs-Puls wurde durch die Linse gechirpt und auf 115 fs verlängert (berechneter Wert). Zum Vergleich der Spektren bei verschiedenen Pulslängen, wurde bei einer zweiten Messreihe im Kompressor ein negativer Chirp eingestellt, der eine Pulslänge nach der Linse von 86 fs zur Folge hatte. Beide Spek-

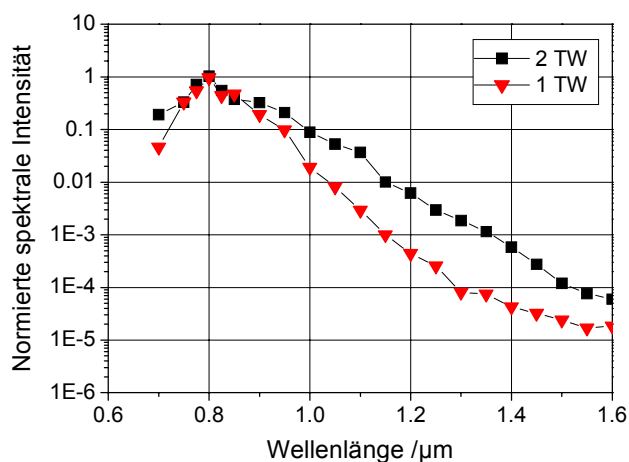


Bild 2-30. NIR-Anteil des Weißlichts in Luft für verschiedene Pulsleistungen, gemessen 20 m hinter dem Fokus einer 8m-Linse. IOQ-Laser: 800 nm, Pulslänge 100 fs, Pulsenergie 100 mJ (▼) bzw. 200 mJ (■). Detektion: Prismenspektrometer/ Zeiss + Ge-Detektor. Beide Kurven sind mit demselben Faktor normiert.

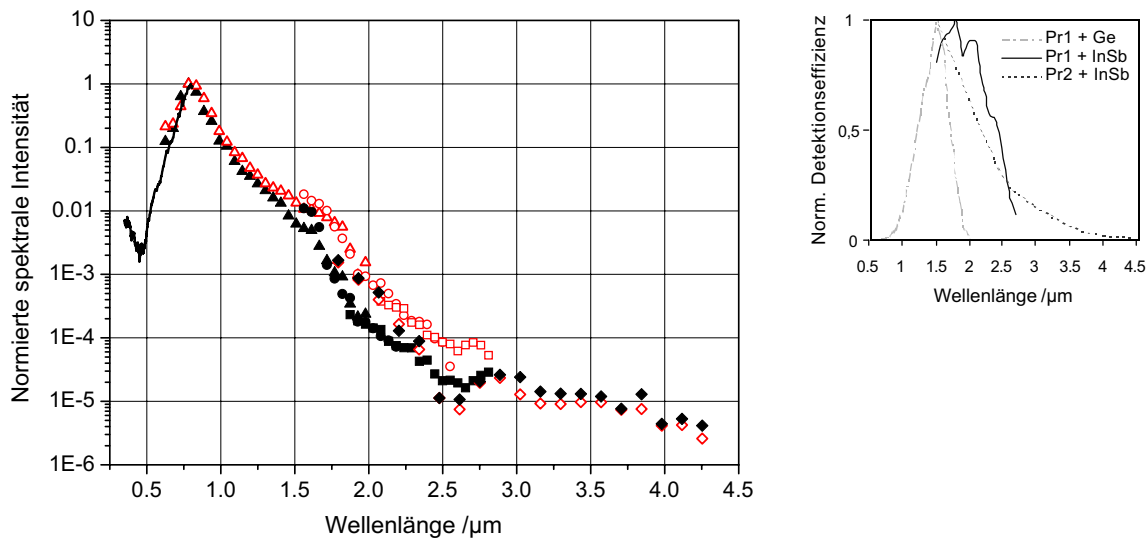


Bild 2-31. Weißlichtintensität vom Sichtbaren bis zum mittleren Infrarot, 20 m hinter dem Fokus einer 10m-Linse. LOA-Laser: 800 nm, 60 mJ, min. 35 fs (115 fs nach Linse, volle Symbole, bzw. – mit negativem Chirp nach Kompressor – 86 fs nach Linse, offene Symbole). Detektion (jeweils gleich für volle und offene Symbole): $\frac{1}{2}$ m-Gitterspektrometer/ Chromex + ICCD/ Princeton Instr. (—), Prismenspektrometer/ Zeiss + Ge-Detektor ($\blacktriangle$), Prismenspektrometer/ Zeiss + LN-gekühlter InSb-Detektor/ Hamamatsu ($\bullet$, $\blacksquare$), Zweifach-LiF-Prismenspektrometer/ Perkin Elmer + LN-gekühlter InSb-Detektor/ Hamamatsu ($\blacklozenge$). Kleines Diagramm: Spektrale Effizienz der drei Infrarot-Einkanaldetektionen (jeweils normiert).

tren sind in Bild 2-31 dargestellt. Der experimentelle Aufbau glich – bis auf die genannten Unterschiede – dem in Jena, nur wurden zusätzliche Detektoren und Spektrometer eingesetzt (nähere Angaben in der Bildunterschrift), um weiter ins Infrarot vorzudringen. Die spektrale Effizienz aller Detektorkombinationen wurde sorgfältig mit einem Schwarzkörperstrahler kalibriert, um die einzelnen Teilspektren durch Anpassung ihrer Form in den Überlappungsbereichen aneinandersetzen zu können. Ebenso wurden eine Wellenlängenkalibrierung der Spektrometer durchgeführt. Bei dem Spektrometer für das mittlere Infrarot scheint allerdings eine Streckung der Wellenlängenskala vorzuliegen. Etwa zwischen 4,2 μm und 4,3 μm sind schon wenige Meter Luft wegen der CO₂-Absorption praktisch

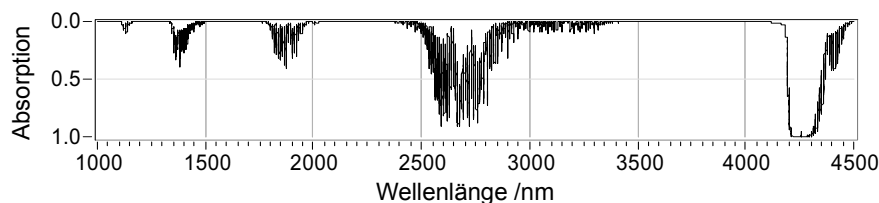


Bild 2-32. Absorptionsspektrum von 20 m Luft (0,2% H₂O), Auflösung 1 nm. Stark gesättigte CO₂-Bande bei 4250 nm, unter 4000 nm H₂O-Banden (berechnet mit Daten aus HITRAN [Rothman et al., 2003]).

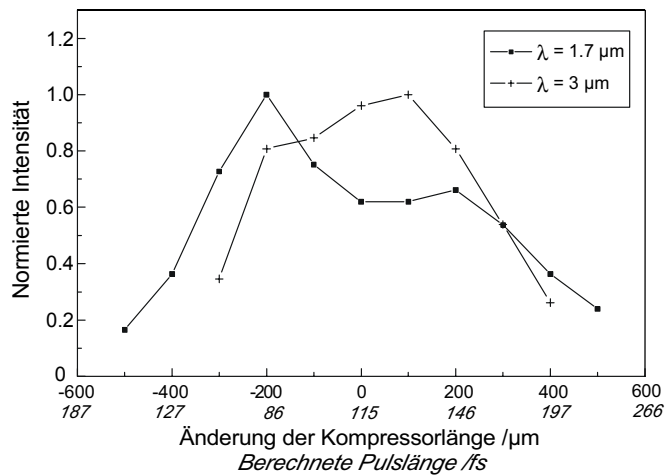


Bild 2-33. Intensität im nahen und mittleren Infrarot in Abhängigkeit des Chirp. Beide Maxima auf 1 normiert. Kompressoreinstellung 0 μm (Pulslänge 35 fs vor der Linse) entspricht den vollen Symbolen in Bild 2-31, -200 μm den offenen.

undurchsichtig (bei Normalkonzentration 340 ppm, siehe Bild 2-32). In den gemessenen Spektren kann man den Intensitätseinbruch bei einer ca. 0,25 μm kürzeren Wellenlänge erkennen. Die schwächeren Wasserdampfbanden haben auch bei niedriger Auflösung eine ausgeprägte Linienstruktur und sind daher in der Messung durch das Auftreten einzelner tiefer Messpunkte zu erahnen (kein quantitativer Vergleich, H_2O -Konzentration und Auflösung nur geschätzt). Bei den gemessenen Spektren scheint die Wellenlängenskala im Bereich der 2,7 μm -Bande um ca. 0,15 μm bis 0,2 μm verschoben zu sein. Der Fehler spielt aber für das Ziel des Experiments keine große Rolle, vielmehr beweist das Auftreten der atmosphärischen Signaturen, dass wirklich Licht bis 4 μm gemessen wurde. Die Veröffentlichung dieser Ergebnisse [Kasparian et al., 2000] ist eine der am häufigsten zitierten Referenzen in theoretischen Arbeiten zum Femtosekundenweißlicht (in Luft), bzw. oft die einzige, wenn der Infrarotbereich besonders hervorgehoben wird.

In weiten Bereichen (1,5 μm bis 2,8 μm) zeigt das Spektrum des kürzeren Pulses, der durch einen leichten negativen Chirp im Kompressor erzeugt wurde, eine deutlich höhere Intensität als der längere. Bei 3 μm und darüber scheint sich dieses Verhältnis allerdings umzukehren. Um dies genauer zu untersuchen, wurde bei 1,7 μm und 3 μm mit einer Bandbreite von ca. 5 nm jeweils die Chirpabhängigkeit der Intensität gemessen. Das Ergebnis ist in Bild 2-33 dargestellt. Es bestätigt, dass bei verschiedenen Wellenlängen die maximale Weißlichtintensität mit unterschiedlich gechirpten Pulsen erzielt wird.

Die in diesen Experimenten gemessenen Spektren stellen eine erste Referenz dar. Man musste davon ausgehen, dass ebenso wie der Chirp die Stärke der Fokussierung Einfluss auf die spektrale Form des Weißlichts hat, vor allem da die Geometrie der Filamente von ihr abhängt (siehe den folgenden Abschnitt 2.4.2). Da es nicht möglich ist, dies in den

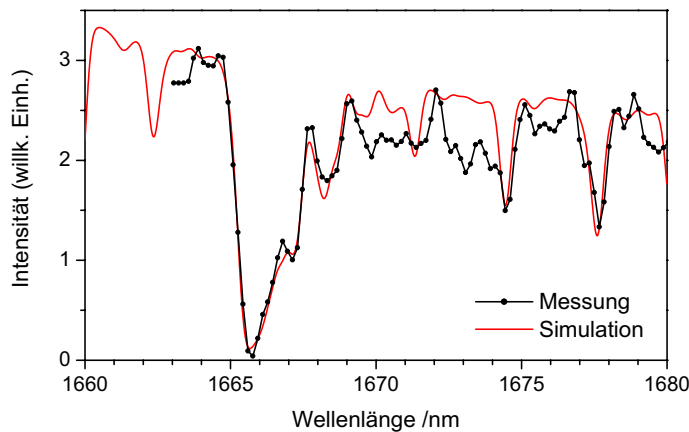


Bild 2-34. Absorption des Weißlichtstrahls durch Methan. Messung: 1 m lange Gaszelle, gefüllt mit etwa 1 atm CH_4 , im Strahlengang vor der Detektion; Messpunkte in 0,17 nm Abstand (bei ca. 0,2 nm Auflösung); Kurve gefaltet mit einer zwei Punktabstände breiten (volle HWB) Gauß-Funktion (leichte Glättung). Simulation (berechnet mit Daten aus HITRAN [Rothman et al., 2003]): 1 m Absorptionsstrecken, 1000 mbar CH_4 , 23°C, Auflösung 0,4 nm, Neigung der Grundlinie (Absorption Null) an die gemessene Intensität angepasst.

Laboren zu untersuchen, sind Langstreckenexperimente im Freien nötig (siehe Abschnitt 2.1, besonders 2.1.5).

Um nachzuweisen, dass das Weißlichtkontinuum für die **Absorptionsspektroskopie** von Gasen geeignet ist, wurde bei den Messungen am IOQ eine 1 m lange Gaszelle vor der Detektion in den Lichtweg gestellt. Dabei handelte es sich um ein Stahlrohr mit Glasfenstern an beiden Enden und einem Einlassventil. Die Zelle wurde evakuiert und anschließend bis auf Atmosphärendruck mit reinem Methan gefüllt. Mit einem Gittermonochromator (600 linien/mm, Spalt 60 μm) und kleineren Schrittweiten (0,17 nm) als bei der Übersichtsmessung wurde nun das Spektrum um die kurzwelligste Infrarotbande von Methan bei 1,67 μm aufgenommen. Ein Interferenzfilter (Transmission bei $\lambda > 1 \mu\text{m}$) blockte dabei die Laserwellenlänge, um Störungen durch die zweite Beugungsordnung zu vermeiden. Bei der Absorptionsbande handelt es sich um die zweifache Anregung (Overtone) der stark absorbierenden ν_3 -Schwingungsmode des CH_4 -Moleküls, die bei 3,3 μm liegt. Bild 2-34 zeigt ein Ergebnis und den Vergleich mit einem auf Basis der Messparameter gerechneten Spektrum. Die Messung wurde leicht geglättet (Gaußsche Mittelung über etwa drei Punkte), um das Rauschen zu unterdrücken. Messung und Rechnung zeigen in weiten Teilen eine gute Übereinstimmung. Bereiche größerer Abweichung könnten auf Schwankungen der Lichtintensität während des Durchfahrens der Wellenlänge hindeuten. Die Zeit zwischen zwei Messpunkten betrug etwa 10 bis 15 Sekunden, daher sind Effektivitäts- oder Richtungsschwankungen beim Prozess der Weißlichtentstehung als Ursache

unwahrscheinlich. Bei Betrachtung der Daten zu den einzelnen Linien fällt auf, dass gerade in den Bereichen der Abweichung viele relativ starke Linien des zweiten Methanisotops $^{13}\text{CH}_4$ liegen. Bei HITRAN ist der Parameter Linienstärke (integrierter Absorptionsquerschnitt) mit dem natürlichen Isotopenverhältnis in der Atmosphäre gewichtet. Danach hat $^{13}\text{CH}_4$ einen Anteil von ca. 1%. Ein nur etwas erhöhter Anteil (unterhalb von 10%) bei dem verwendeten Laborgas könnte die Diskrepanz zwischen gemessenem und gerechnetem Spektrum erklären. Dies ist jedoch schwer zu überprüfen. In jedem Fall kann festgehalten werden, dass ein Fit des gemessenen Spektrums die korrekte Menge an Methan in der Absorptionsstrecke wiedergibt.

2.4.2 Filamentierung von Terawattpulsen auf einer Strecke von 90 m

Als das Teramobile fertiggestellt war, galt das Interesse natürlicherweise zuerst den direkt zu beobachtenden Wechselwirkungen der Laserpulse mit Luft. Die Pulsleistung von über 3 TW mit Spitzenwerten von bis zu 5 TW überstiegen die Werte der bis dahin verwendeten Systeme in Jena und Palaiseau. Die Filamentierung auf Basis der reinen Selbstfokussierung sollte nun ohne die räumlichen Einschränkungen der Labore untersucht werden. Bei den zuvor durchgeführten Messungen in Gebäuden wurden die Laserpulse fokussiert, nur gelegentlich konnten sie in längere freie Korridore gelenkt werden – z.B. maximal 50 m im IOQ –, um einen Eindruck von der Multifilamentierung bei parallelen Strahlen zu erhalten.

An der FU Berlin konnte in einer Parkplatzanlage eine teilweise überdachte freie Strecke von 90 m Länge für Versuche genutzt werden, bei denen der Strahl horizontal aus dem Teramobile-Container gesendet wurde. Der Laser wurde bei diesem Experiment mit einer Pulsenergie von 330 mJ betrieben, die kürzeste Pulslänge entsprach zu dieser Zeit etwa 100 fs (volle HWB). Diese wurde jedoch nicht verwendet, um den Sendespiegel (Abstand vom Puls kompressor ca. 2,5 m) nicht zu beschädigen. Denn bei voller Pulsleistung können Inhomogenitäten im Strahlprofil (*hot spots*) durch lokale Selbstfokussierung schon nach wenigen Metern Luftweg sehr hohe Intensitätsmaxima hervorrufen, die die Zerstörungsschwelle der Laserspiegel übersteigen. Der Strahldurchmesser ($1/e^2$) war mit ca. $4\text{ cm} \times 5\text{ cm}$ etwas größer als bei späteren Messungen. Die Beziehung zwischen dem Gitterabstand im Kompressor und der Pulsdauer in der jeweiligen Chirprichtung ist in Bild 2-37 durch die Quadrate und die fein gestrichelte Linie dargestellt. Die Messungen bestätigen die lineare Abhängigkeit der Pulsdauer von der Gitterverschiebung (außerhalb des Bereichs, in dem der Puls am kürzesten ist und keinen Chirp hat). Dabei unterliegt die Messung der Pulslängen einem gewissen Fehler. Innerhalb dieser Fehlergrenzen wurden die Punkte und Geraden in der Darstellung (bedingt willkürlich) mit der Steigung 50 fs/mm aufgetragen.

Bei fünf Kompressoreinstellungen in Abständen von 5 mm wurden die Strahlprofile entlang der 90 m langen Strecke untersucht. Das Intensitätsprofil der Pulse wurde anhand der Wirkung auf weißes sowie tonergeschwärztes Papier abgeschätzt. Alle fünf Meter wurde die Abbildung des Strahls auf beiden Papierarten digitalfotografisch festgehalten. Die Aufnahmen sind weitgehend farbecht, nur am Anfang des nahen Infrarot, d.h. zwischen der Laserwellenlänge 793 nm und etwas darüber, hat die Kamera im Gegensatz zum menschlichen Auge eine gewisse Empfindlichkeit. Außerdem können am weißen Papier leichte Fluoreszenzen auftreten.

Bild 2-35 zeigt eine Auswahl von Aufnahmen zweier Serien. Die entsprechenden Gitterabstände des Kompressors sind -2 mm (oben) und +8 mm (unten) bezogen auf die Einstellung des kürzesten Pulses. In der oberen Reihe beinhaltet der dargestellte Bereich von 5 m bis 45 m Anfang und Ende der Filamente, bei dem längeren Puls (unten) sind am Ende der Messstrecke noch aktive Filamente zu sehen. Alle Längenangaben entsprechen dem Abstand von der Außenwand des Teramobile-Containers; 2,5 m Lichtweg innerhalb des mobilen Labors müssen dazuaddiert werden. Neben Lage und Länge der Filamente ist der auffälligste Unterschied der beiden Serien das Auftreten farbiger Strukturen (aus den sichtbaren Spektralbereich) beim kurzen Puls, die bei 450 fs nicht zu sehen sind, obwohl auch

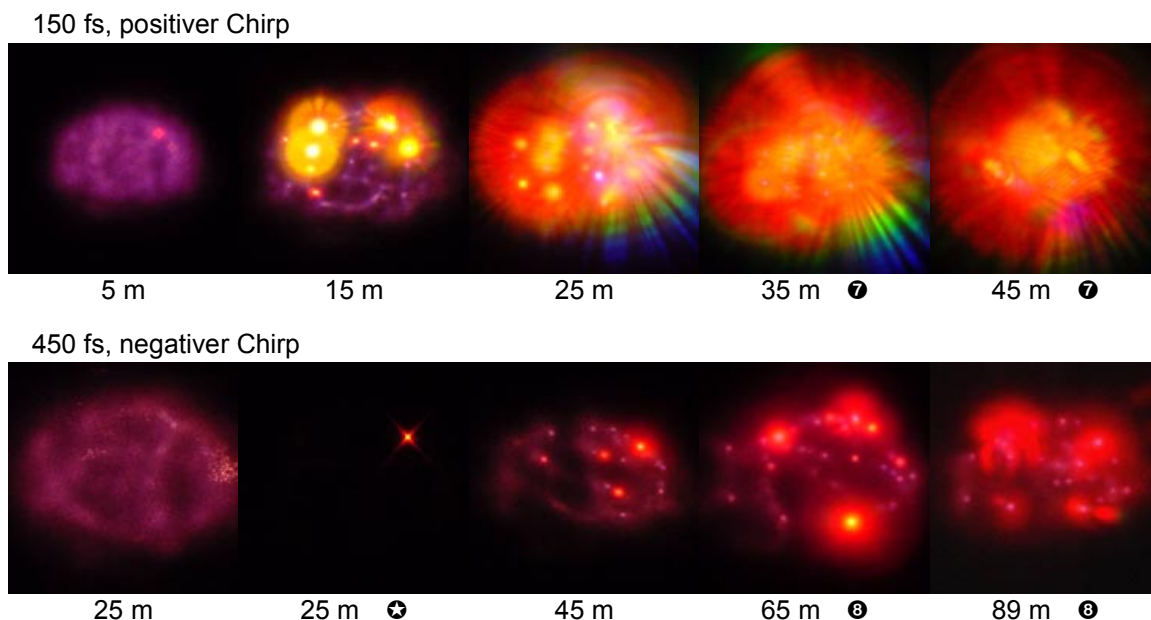


Bild 2-35. Strahlprofile der Multifilamentierung von 3TW-Pulsen bei verschiedenen Einstellungen des Pulskompressors. Einzelpulsaufnahmen (Belichtung 1/30 s) der Streuung von weißem Papier (geschwärztes Papier bei ⊕) mit Digitalkamera (Sony Cyber-shot DSC-F). Angezeigte Distanzen ab Außenwand des Containers. Anfänglicher Durchmesser ca. 5 cm × 4 cm. Abstand zwischen Schirm und Kamera kann variieren (Bildgrößen nicht vergleichbar). Einzelne Bilder gegenüber den übrigen verkleinert, ⑦ auf 70%, ⑧ auf 80%.

hier die Filamente weißes Licht erzeugen. Hierbei spricht der Vergleich aller fünf Serien für eine Abhängigkeit von der Pulslänge, nicht von der Richtung des Chirp.

Die Bestimmung der Orte, an denen die Filamente beginnen und enden, ist nicht einfach, speziell bei der Multifilamentierung von Terawattpulsen. Das Problem beginnt schon bei der Definition, wo ein Filament vorliegt. Aktuell werden verschiedene Methoden zum Nachweis von Filamenten entwickelt. Hauptsächlich handelt es sich um direkte oder indirekte Messungen der freien Ladungen (Plasma). Ob das Auftreten von Ionisation die einzig richtige Definition ist, muss diskutiert werden. In jedem Fall bedeutet ein Filament eine hohe lokale Intensität. Um diese nachzuweisen, ist geschwärztes Papier besser geeignet als weißes. Dies gilt erstens, weil das schon produzierte (sichtbare) Weißlicht – als Punkt auf der Achse des Filaments oder in Form farbiger konischer Strahlung, die das gesamte Bild ausfüllt – weit weniger von der Oberfläche gestreut wird, zweitens, weil bei hoher Intensität die Tonschicht gewissermaßen verbrennt, das heißt die Absorption von Energie ist sichtbar und hörbar. Vor allem am Filamentende, das besonders schwer zu erkennen ist, da die entstandenen weißen Strahlen sehr geringe Divergenz haben, kommt dieser Vorteil zum tragen. Ein Beispiel für eine Abbildung auf geschwärztem Papier zeigt das Foto 25 m ☛ in Bild 2-35, wo in dem speziellen Fall nur an einer herausgehobenen Stelle ein Filament (oder mehrere eng nebeneinander) aufleuchtet.

Selbst wenn die Lage einzelner Filamente genau messbar wäre, könnte man bei der hier vorherrschenden Multifilamentierung keinen eindeutigen, scharfen Anfangs- bzw. Endpunkt bestimmen, da diese für einzelne Filamente innerhalb eines Strahlprofils sowie von Puls zu Puls stark schwanken können. Die breiten Balken in Bild 2-37 geben an, welche Entfernungen hier für die fünf Chirpeinstellungen gemessen wurden. Innerhalb des jeweils so eingegrenzten Bereichs traten Filamente weitgehend über den gesamten Strahlquerschnitt verteilt auf (vergleiche Bild 2-35). Der Fehler dieser Punkte (nicht in der Grafik eingezeichnet) lässt sich nur grob abschätzen, steigt jedoch mit der Entfernung. Er liegt

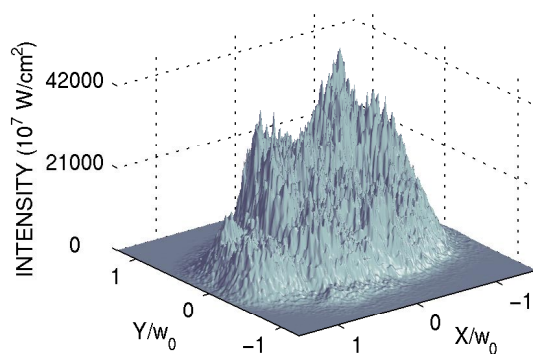


Bild 2-36. Intensitätsprofil des Lasers (neg. Chirp 400 fs) 3,5 m nach dem Kompressor. Die Daten wurden von C. Gouédard für [Bergé et al., 2004] aus dem Farbbild einer Aufnahme mit der Digitalkamera erzeugt.

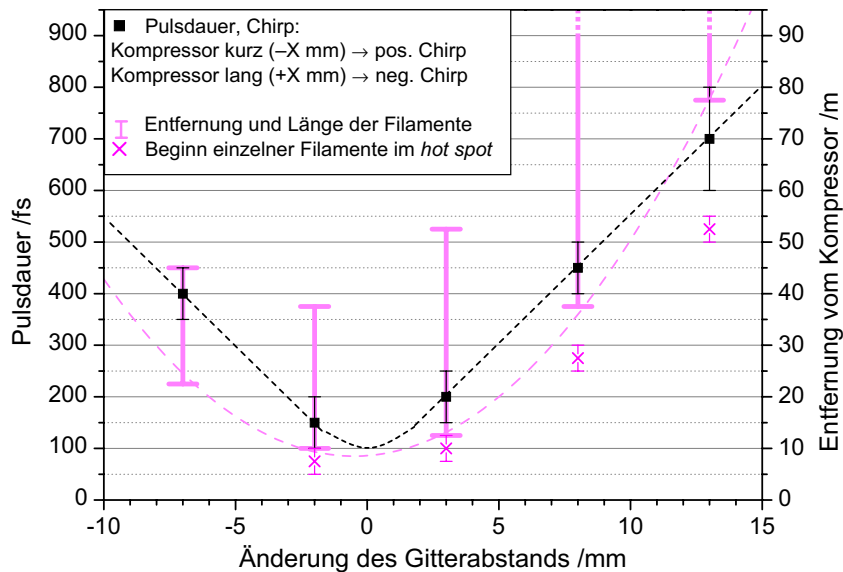


Bild 2-37. Multifilamentierung von TW-Pulsen, gemessen in Abhängigkeit von Pulsdauer und Chirp. Die Pulsdauer (■) ist als Funktion des Gitterabstands x im Kompressor dargestellt (kein Chirp bei 0 mm, positiver Chirp bei negativer Abstandsänderung bzw. umgekehrt). Die Balken geben die Lage der Filamentbündel als Entfernung vom Laser (d.h. Kompressor) an (zu Fehlern siehe Text). Durch die Startpunkte der Filamentbündel ist eine Parabel $d = 0,38(x-0,5)^2 + 8,5$ m gelegt (---). An der stärksten Intensitätsspitze des Strahlprofils treten vereinzelt Filamente auf, die schon bei kürzeren Distanzen beginnen (×).

zwischen etwa ± 2 m für den Startpunkt bei kurzen Pulsen und etwa ± 5 m für Endpunkte oder den Startpunkt bei 700 fs. Speziell an einem Punkt, an dem das Strahlprofil während der gesamten Messzeit eine besondere Intensitätsspitze aufwies (siehe 5 m bei 150 fs und 25 m bei 450 fs in Bild 2-35 sowie Bild 2-36), bildeten sich Filamente schon bei kürzeren Distanzen. Hierbei sieht man bei Betrachtung einer festen Entfernung die Puls-zu-Puls-Schwankung am deutlichsten (zwei Aufnahmen bei 25 m mit 450 fs, pos. Chirp). Die jeweils kürzesten Entfernungen, bei denen Filamente an diesem herausgehobenen Punkt auftraten, sind in Bild 2-37 durch Kreuze dargestellt.

Wegen der Linearität der Beziehung zwischen der Kompressorlänge und der Pulsdauer – unabhängig vom genauen Proportionalitätsfaktor – entspricht die Darstellung der Filamententfernungen in Bild 2-37 einer Auftragung über der Pulsdauer. Es zeigt sich, dass die Startpunkte der Filamentbündel in guter Näherung quadratisch mit der Pulslänge ansteigen. Der Scheitelpunkt der angepassten Parabel liegt bei $-0,5$ mm bezogen auf den angenommenen Nullpunkt der Gitterverschiebung. Dies liegt aber im Rahmen des Fehlers bei der Kalibrierung des Kompressors, das heißt eine Verschiebung der Pulsdauerkurve (■) um $0,5$ mm ist möglich. Die somit gegebene Symmetrie der Punkte um die Einstellung der kürzesten Pulsdauer zeigt, dass die Länge der Selbstfokussierung, die zur Filamentierung

führt, bei einer Strecke unter 100 m nur von der Pulslänge abhängt, nicht aber von der Chirprichtung. Bei der Länge der Filamente deutet sich dagegen eine Asymmetrie an, mit der Tendenz zu längeren Filamenten bei negativem Chirp. Schließlich fällt auf, dass die Distanz der vereinzelt auftretenden Filamente, die durch die Intensitätsspitze im Strahlprofil entstehen, nicht quadratisch, sondern eher linear mit der Pulslänge ansteigen.

2.4.3 Dritte Harmonische und UV-Licht in Terawattfilamenten

Die Erzeugung der dritten Harmonischen (THG) von Laserlicht – in den meisten Fällen entsteht Strahlung im ultravioletten Bereich, was häufig den direkten UV-Laserquellen vorgezogen wird – ist neben ihrer technischen Anwendung von grundlegendem Interesse. Ein Beispiel ist die THG in Mikrotropfen, deren Durchmesser etwa im Bereich zwischen 100 nm und 100 μm liegen. Dieses Phänomen wurde ausführlich sowohl theoretisch [Carroll und Zheng, 1998] als auch experimentell in Hinblick auf ihre Relevanz in der Atmosphärenphysik, vor allem für Anwendungsmöglichkeiten in der Fernerkundung, untersucht [Kasparian et al., 1997; Zimmer, 2001].

Während die zweite Harmonische nur in doppelbrechenden Kristallen effektiv erzeugt wird, tritt THG in isotropen Medien auf. Dies können, wie im Beispiel der Mikrotropfen, Flüssigkeiten sein, aber auch Luft bei entsprechend hoher Lichtintensität. Somit spielt THG auch im Zusammenhang der Filamentierung von hochintensiven Femtosekundenpulsen eine Rolle. Bei der starken spektralen Verbreiterung (SCG) von TW-Pulsen wird Licht im Bereich von 270 nm, wo die Verdreifachte der Ti:Sa-Emission liegt, beobachtet. Um zu

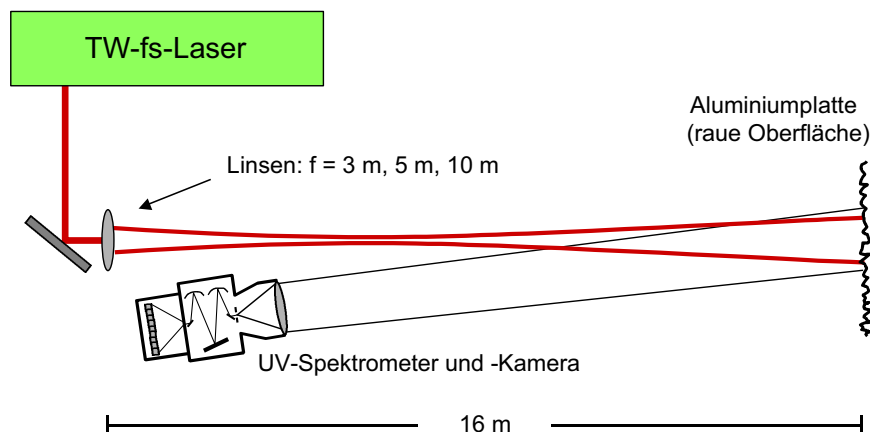


Bild 2-38. Schematischer Versuchsaufbau. Laser: 800 nm, 110 mJ pro Puls, Pulsdauer zwischen 100 fs und 1,5 ps. UV-Detektion: Objektiv $f = 33$ mm, Spektrometer mit $10 \mu\text{m} \times 4$ mm Spalt, ICCD-Kamera (spektrales Fenster ca. 70 nm in 960 Kanälen).

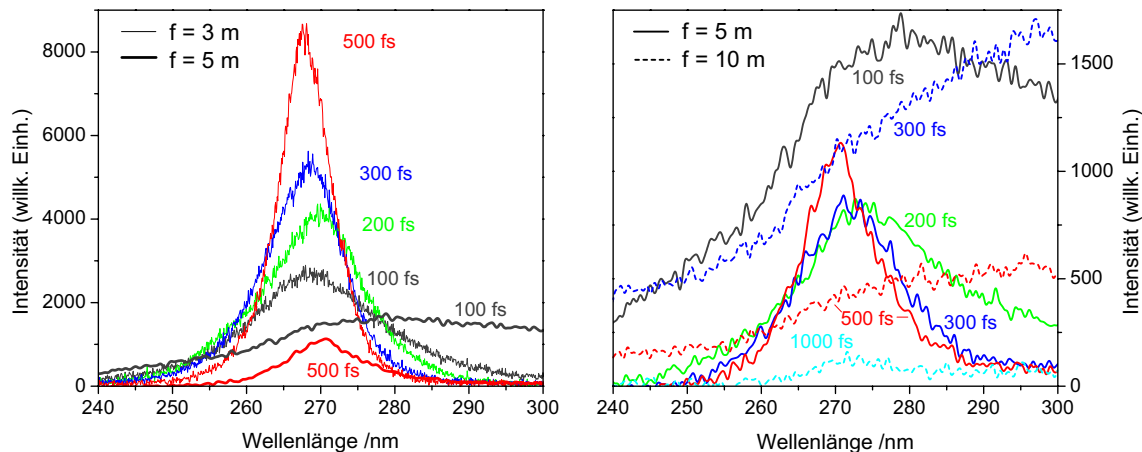


Bild 2-39. Spektren im Bereich der dritten Harmonischen von Ti:Sa-Laserpulsen mit 1,1 TW (max., bei konstant 110 mJ Pulsenergie) 16 m hinter der jeweiligen Fokussierlinse (drei unterschiedliche Brennweiten). Links: Vergleich verschiedener Pulslängen bei $f = 3$ m mit zwei Spektren bei $f = 5$ m, rechts: $f = 5$ m und $f = 10$ m. Die Spektren zu $f = 5$ m und $f = 10$ m sind leicht geglättet. Man beachte die unterschiedlichen, aber vergleichbaren Intensitätsskalen.

untersuchen, inwieweit dies auf THG zurückzuführen ist oder eine Überlagerung von THG und SCG als eher unabhängige Effekte mit wechselnder relativer Intensität stattfindet, wurden im September 2002 am IOQ in Jena Experimente mit dem dortigen Terawattsystem durchgeführt. Dies geschah in Zusammenarbeit mit B. Eberle, D. Seiffer und H. Bürsing vom Forschungsinstitut für Optronik und Mustererkennung der Forschungsgesellschaft für Angewandte Naturwissenschaften (FGAN-FOM) in Ettlingen.

Der Versuchsaufbau ist in Bild 2-38 schematisch dargestellt. Der Jenaer Terawattlaser wurde mit einer Pulsenergie von 110 mJ betrieben, die Pulsdauer wurde zwischen 100 fs und 1,5 ps variiert. Damit lag die Spitzenleistung bei 1,1 TW. Der Strahldurchmesser betrug etwa 6 cm, die Laserwellenlänge 800 nm. Die Pulse wurden mit Linsen der Brennweiten 3 m, 5 m und 10 m fokussiert (eine Vergleichsmessung wurde mit einer 32m-Linse und der Aluminiumplatte in 50 m Abstand durchgeführt). Das Objektiv des UV-Spektrometer-ICCD-Systems wurde auf die diffuse Streuung des Laserstrahls von der aufgerauten Oberfläche einer Aluminiumplatte ausgerichtet. Auf diesem Schirm, der 16 m von der Fokussierlinse entfernt stand, war das Sichtfeld der Detektion etwa 5 mm breit und 1,2 m hoch (Abbildung des Spalts). Um sicherzustellen, dass das Aluminium nicht durch Wechselwirkung mit der Strahlung das Ergebnis verfälscht, wurde die Reflexion von der Platte mit der von Spectralon, einem garantiert spektral neutralen Material verglichen. Es zeigten sich keine Unterschiede in der Form der Spektren im Messbereich 240 nm bis 300 nm. Lediglich in einem Spektrum, das mit der 32-Linse von Pulsen mit 1 ps Länge aufgenom-

men wurde, erkennt man eine schwache Linienstruktur bei 237 nm und 257 nm, wobei es sich um Plasmaemission von Aluminium handeln kann. Nur in diesem Fall reichte die Länge der Laserfilamente bis zum Schirm. Bei stärkerer Fokussierung war die Intensität nach weniger als 6 m zu sehr gesunken, um auf der Aluminiumoberfläche Plasma zu erzeugen.

Bei allen Messungen wurde das Signal von einhundert Laserpulsen aufsummiert. Soweit nicht anders angegeben sind alle Spektren mit einem Verstärkungswert der ICCD-Kamera von 100 aufgenommen worden, das heißt, dass die willkürliche Intensitätsskala in den entsprechenden Darstellungen vergleichbar ist. In Bild 2-39 sind UV-Spektren in dem Bereich um die THG-Wellenlänge (267 nm) dargestellt, die unter Variation der Brennweite der fokussierenden Linse und der anfänglichen Pulslänge gemessen wurden. Die Aufteilung in zwei Diagramme mit unterschiedlicher Skalierung der Intensität (rechts etwa fünffach vergrößert) dient der Übersichtlichkeit. Man erkennt eine stärkere THG bei kürzeren Brennweiten und eine Verbreiterung der THG-Linie bei Reduzierung der Pulslänge. Zusätzlich zu der Linie erscheint ein Kontinuum als Untergrund mit unterschiedlicher Intensität. Das Kontinuum, das wir als Weißlicht bezeichnen, tritt in diesem Spektralbereich bei starker Fokussierung praktisch nicht auf, bei der größten Brennweite in diesem Vergleich ist es am intensivsten. Bei gleicher Fokussierung ist das Weißlicht stärker, je kürzer die Pulse sind. Das Weißlichtspektrum steigt bei allen Messungen in einer annähernd geraden Linie mit der Wellenlänge an. Dass eine Gerade bei einem 60 nm breiten Ausschnitt in diesem Bereich des Übergangs vom nahen UV zum Sichtbaren eine gute Näherung ist, zeigt das Spektrum des Weißlichts in Bild 2-40. Es wurde in Einzelmessungen mit der 10m-Linse und einer Pulslänge von 1 ps aufgenommen. Der linke Rand entspricht dem Spektrum bei gleichen Parametern in Bild 2-39, nur war bei den Messungen zu Bild 2-40 die Kameraver-

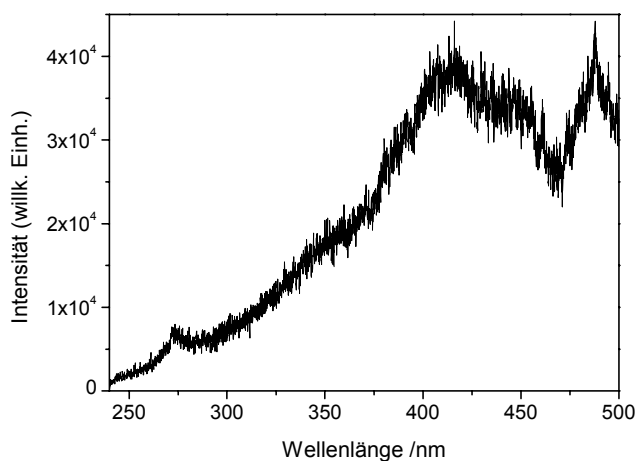


Bild 2-40. Weißlichtspektrum mit schwacher THG-Linie (links unten) nach 16 m bei Pulsdauer 1 ps und Fokussierung mit $f=10$ m. Zusammengefügt aus ca. 60 nm breiten Einzelspektren. Merke: die spektrale Effizienz ist nicht korrigiert (Spektrometer für UV ausgelegt).

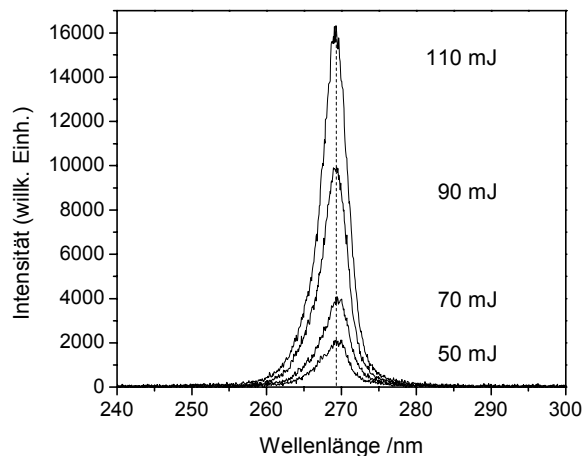


Bild 2-41. THG-Spektren bei Fokussierung mit $f=3$ m und fester Pulslänge 1,5 ps in Abhängigkeit der Pulsenergie. Bei allen Energiewerten beträgt die Zentralwellenlänge ca. 269 nm und die Linienbreite ca. 4,2 nm.

stärkung 240 statt 100. Die Messung des Weißlichts bis 500 nm soll einen qualitativen Eindruck des Verlaufs der Lichtintensität außerhalb des in der Regel aufgenommenen Ausschnitts um 270 nm geben. In der dargestellten Form ist die spektrale Effizienz nicht kalibriert. Das Spektrometer ist für den ultravioletten Bereich ausgelegt. Die Reflektivität des Gitters nimmt im Sichtbaren tendenziell ab und kann auch für die Schwankungen oberhalb von 400 nm verantwortlich sein. Andererseits wurde ein lokales Minimum im Weißlichtspektrum von Femtosekundenlasern in der Umgebung von 500 nm schon mehrfach beobachtet, sowohl experimentell (Bild 2-31) als auch in Simulationen.

Bei der 3m-Linse – wo nur bei sehr kurzen Pulsen ein Weißlichtuntergrund zu erahnen ist – ergibt eine grobe Auswertung der Fläche unter der Linie, dass die Intensität der THG in erster Näherung nicht von der Pulslänge abhängt. Dagegen erkennt man deutlich, dass das Maximum der Linie sich bei Änderung der Pulslänge, und damit des Chirp, leicht verschiebt. Dies wurde in dem Maße nicht beobachtet, wenn statt der Pulslänge die Pulsenergie variiert wurde, sowohl bei 100 fs als auch bei 1,5 ps. Bild 2-41 zeigt vier Spektren der Messreihe mit 1,5 ps, bei der neben der Zentralwellenlänge auch die Breite der Linien annähernd konstant für alle Energiewerte ist. Bei 100 fs dagegen verbreitert sich das THG-Spektrum mit zunehmender Pulsenergie.

Bei der 10m-Linse und kurzen Pulsen wurde am meisten Weißlicht gemessen. Gleichzeitig ist die Breite der THG-Linie sehr groß, so dass ihre Fläche, also die Gesamtintensität der THG nur schwer zu erkennen ist. Vergleichsmessungen, die bei einem Abstand von 50 m zwischen Linse und Aluminiumschirm durchgeführt wurden, zeigen, dass sich die Weißlichtintensität von 100fs-Pulsen bei einer großen Brennweite von 32 m gegenüber der Fokussierung mit $f=10$ m wieder verringert, und zwar etwa auf ein Achtel (Bild 2-42).

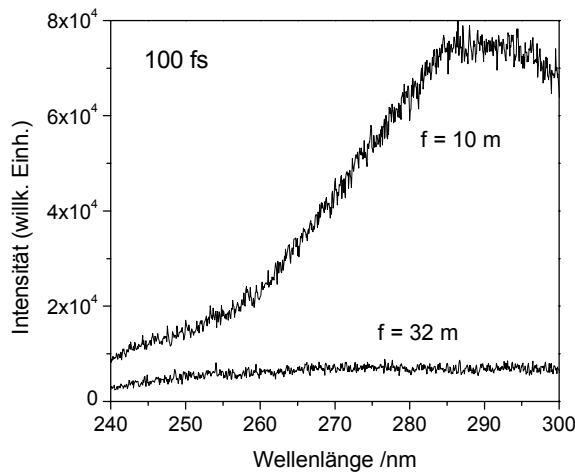


Bild 2-42. Weißlicht-THG-Spektren von 100fs-Pulsen 50 m hinter der Fokussierlinse. Vergleich von großer und sehr großer Brennweite. Die geschwungene Form kann auch bei $f = 32$ m noch auf THG zurückgeführt werden. (Kameraverstärkung 240).

Dabei sind die Zahlenwerte mit Vorsicht zu behandeln, da bei 100 fs und $f = 32$ m der 50 m entfernte Schirm möglicherweise die spektrale Verbreiterung abbricht. Es ist jedoch unwahrscheinlich, dass dies eine größere Bedeutung für den Vergleich hat. Also bleibt der Aufbau mit der 10m-Linse derjenige mit der stärksten SCG in diesem Spektralbereich. Was die THG-Linie angeht, setzt sich der Trend der Verbreiterung und (zumindest scheinbaren) Intensitätsabnahme dagegen wie gehabt fort. So verwundert es nicht, dass bei $f = 32$ und einer Pulsdauer von 1 ps weder THG noch Weißlicht nachzuweisen ist. Es ist allerdings zu berücksichtigen, dass sich bei den längeren Pulsen die Filamente vermutlich noch weiter Richtung Schirm verlagern, da die Selbstfokussierlänge größer ist. Dies wird durch das schon erwähnte Auftreten von Emissionslinien des Aluminiums in der entsprechenden Messung bestätigt. Genaueres zur Auswertung und Interpretation aller Spektren findet sich in Kapitel 3, besonders Abschnitt 3.5.2.

Mit dem Ziel, Aussagen über den Entstehungsort von dritter Harmonischer und Weißlicht zu erhalten und diesen mit der Filamentaktivität in Beziehung zu setzen, wurde an mehreren Punkten hinter dem geometrischen Fokus der Linse Papier in den Strahlengang gestellt. Diese Versuche wurden mit der Brennweite $f = 10$ m und Pulsen von 1 ps durchgeführt. Abhängig von der Intensität am jeweiligen Ort entstanden nach einigen Sekunden bis zu wenigen Minuten Löcher, deren Größe sich dann während der folgenden Minuten nicht weiter zu verändern schien. Nach Erreichen dieser Zustände wurden die Spektren des Lichts, das die Löcher passierte, wie zuvor in Rückstreuung von dem 16 m hinter der Linse platzierten Schirm gemessen. Bild 2-43 zeigt Beispiele dieser Löcher. Die abgebildeten Papierstücke sind aus $10 \text{ cm} \times 10 \text{ cm}$ großen Blättern ausgeschnitten, das heißt auf dieser Fläche wurde das Licht außerhalb der Löcher abgeblockt und erreichte nicht den Schirm.

Bild (a) ist zu entnehmen, dass durch die Bündelung ein etwa 5 mm breiter intensiver Strahl entsteht, der vermutlich aus einer dichten Anordnung von Filamenten besteht. Der scheinbare Fokus lag etwa zwischen 11 m und 12 m hinter der Linse. Die spezifizierte Brennweite der Linse (10 m) gilt vermutlich für kürzere Wellenlängen, möglicherweise ist auch die anfängliche Divergenz des Strahls zu berücksichtigen. Bild (a) zeigt also die Wirkung des Strahls in der Nähe der stärksten Bündelung. Zwei Meter dahinter (Bild b) hatte sich das Filamentbündel in einige Stränge geteilt und es bildeten sich mehrere kleinere Löcher. Ihre Form und Größe wurde durch die Anzahl und Lage der benachbarten Filamente sowie deren transversale Fluktuation bestimmt. So wurden durch minutenlangen Beschuss Flächen einer Ausdehnung von ein bis zwei Millimetern so zu sagen aus dem Papier gefräst. Ein Papier an derselben Position (14,5 m), das weniger als eine Minute beschossen wurde, lässt durch mehrere sehr kleine, kaum erkennbare Löcher die einzelnen Filamente erahnen.

Betrachtet man die Spektren, die jeweils nach dem Lochbrennen gemessen wurden (Bild 2-44), so erkennt man, dass ein Papier bei 11,5 m das Weißlicht und die THG-Linie abschwächt. Letzteres ist mit bloßem Auge allerdings schwerer zu sehen. Das Papier bei 12,5 m reduziert das gemessene Weißlicht unwesentlich mehr, das THG-Licht aber wird vollständig abgeblockt. Letzteres gilt ebenso für Papiere bei 13,5 m und 14,5 m. Diese blocken nun zunehmend auch den Teil des Weißlichts ab, der eine größere Divergenz hat als die intensiven Bereiche des Strahls, die jeweils noch Löcher erzeugen. Bei dem sehr schwachen Signal, das mit Papier bei 14,5 m gemessen wurde, ist jedoch zu berücksichtigen, dass die kleinen Löcher den Strahldurchmesser auf dem Schirm stark reduziert haben und dieser möglicherweise nicht mehr optimal in das streifenförmige Sichtfeld der Detektion fiel.

Angesichts des Lochs bei 12,5 m (Bild 2-43 a) kann man wohl sicher sagen, dass nur bis maximal zu dieser Entfernung von der Linse THG stattfand. Dass aber dahinter noch Berei-

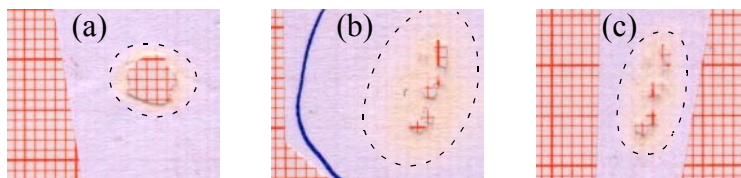


Bild 2-43. Löcher in normalem Druckerpapier nach Beschuss mit ca. 1000 Laserpulsen (110 mJ, 1 ps) bei Verwendung der 10m-Linse, unterlegt mit Millimeterpapier. (a) Abstand des Papiers von der Linse 12,5 m, (b) 14,5 m, (c) 14,5 m bei gleichzeitigem Durchschuss eines Papiers in 13,5 m Abstand. Gestrichelte Linien deuten die Bereiche an, in denen eine Abtragung der Papieroberfläche (Verdünnung des Papiers) zu erkennen ist. (Abgebildete Papierstücke aus 10 cm × 10 cm großen Blättern ausgeschnitten.)

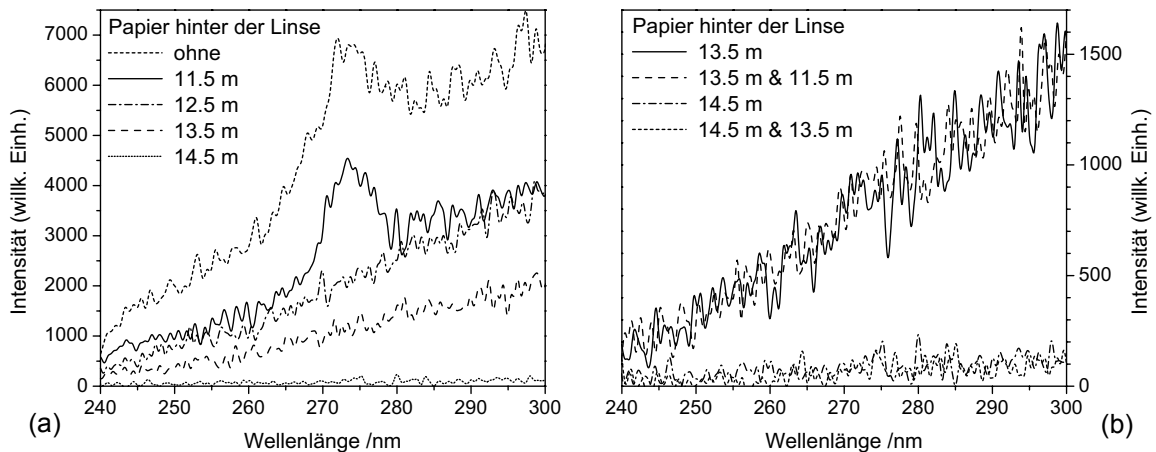


Bild 2-44. Weißlicht- und THG-Spektren nach dem Brennen von Löchern durch Papier an der angegebenen Position (1ps-Pulse fokussiert mit $f = 10$ m, Schirm 16 m hinter der Linse, Kameraverstärkung 240, geglättet). Gemessen wurde nur Licht, das durch die Löcher dringt (vgl. Bild 2-43). (a) Alle Messungen mit einem Blatt Papier. (b) Vergleich von Fällen mit einem und zwei hintereinander platzierten Papierstücken.

che hoher Intensität (Filamente) vorhanden waren, zeigen die Löcher bei 13,5 m (ein zusammenhängendes Loch mit länglicher Form, ca. $3 \text{ mm} \times 8 \text{ mm}$, bedingt durch Linsenverzerrung) und 14,5 m (siehe Bild 2-43 b). Es ist bekannt, dass schmale Blenden (Durchmesser $< 1 \text{ mm}$) die Ausbreitung einzelner Filamente abbrechen können. Um zu zeigen, dass die Papiere nicht diese Wirkung hatten, zumindest nicht vor 14,5 m, wurden Versuche mit zwei Papieren an verschiedenen Stellen des Strahls durchgeführt. Bilder 2-43 (b) und (c) zeigen, dass sich Form und Größe der Löcher in dem zweiten Papier dadurch praktisch nicht geändert hat. Man erkennt allerdings, dass der Wirkungsradius des Strahlkegels, der die Filamente umgab, etwas kleiner wurde. Hierbei handelt es sich vermutlich um spektral wenig verbreitertes Laserlicht, das nicht zur Filamentierung beigetragen hat. Denn die Menge an Weißlicht, das die Löcher passiert, wird nicht durch ein zusätzliches, davor platziertes Papier reduziert (siehe Bild 2-44 b).

Die Beobachtung, dass keine messbare Menge an THG-Licht das Papier bei 13,5 m passiert hat, wird durch einen weiteren Versuch mit den gleichen Parametern untermauert. Bei diesem wurde ein rundes Loch in der Aluminiumplatte in das Zentrum des Strahlprofils geschoben, so dass der innere Bereich des Strahls mit einem Durchmesser von 4 cm nicht von der Detektion erfasst wurde. Direkt vor dem Loch betrug die Energie pro Puls 100 mJ, hinter dem Loch schwankte die Energie zwischen 90 mJ und 95 mJ. Das heißt, dass die Platte nur 5% bis 10% der Pulsenergie reflektierte. Dennoch bleibt die gemessene THG-Intensität gegenüber der Reflexion des vollen Strahlprofils annähernd unverändert, wäh-

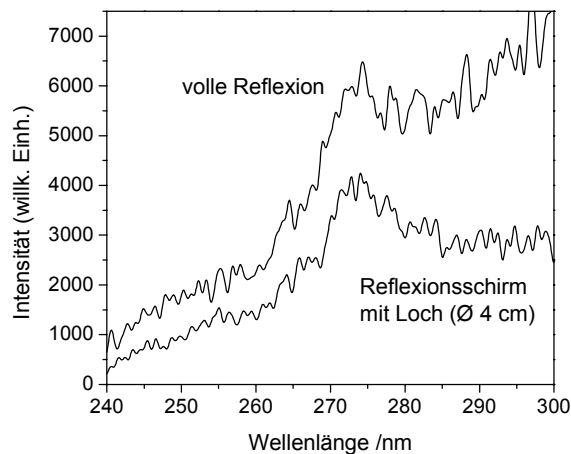


Bild 2-45. Radiale Variation des Spektrums im Strahlprofil nach 16 m. Oberes Spektrum (volle Reflexion): Parameter wie in Bild 2-44 ohne Papier. Unteres Spektrum: Reflexion von der Fläche um ein rundes Loch im Aluminiumschirm mit 4 cm Durchmesser, das im Zentrum des Strahlprofils platziert wurde.

rend sich das Weißlicht deutlich verringert. Außerdem scheint sich die Form des Weißlichts zu verändern, was als Anzeichen für eine wellenlängenabhängige Divergenz gewertet werden kann. Es sei darauf hingewiesen, dass die genaue Lage des in das Spektrometer abgebildeten Streifens der Schirmfläche gegenüber dem 4cm-Loch nicht genau bekannt ist. Trotzdem kann festgehalten werden, dass mit Loch weniger Weißlicht gemessen wird – dies beweist, dass die Detektion das Loch deutlich sieht –, die THG-Intensität sich aber nicht signifikant ändert. Dieses Ergebnis spricht für eine konische Ausbreitung der dritten Harmonischen. Ein solches Verhalten haben Moll et al. [2002] in Saphir beobachtet (näheres dazu in Kapitel 3, Abschnitt 3.5.2).

3 Aspekte der nichtlinearen Optik

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

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

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

3.1 Grundlagen der nichtlinearen Optik

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

3.1.1 Polarisation und nichtlineare optische Suszeptibilität

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

$$\mathbf{P}(t) = \chi \epsilon_0 \mathbf{E}(t) \quad (3-1)$$

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

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 [\chi^{(1)} \mathbf{E} + (\chi^{(2)} \mathbf{E}) \mathbf{E} + ((\chi^{(3)} \mathbf{E}) \mathbf{E}) \mathbf{E} + \dots]. \quad (3-2)$$

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

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

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

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

$$\begin{aligned} \mathbf{P} &= \epsilon_0 [\chi^{(1)} \mathbf{E}_0 \sin(\omega t) + (\chi^{(2)} \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 \sin^2(\omega t) + ((\chi^{(3)} \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 \sin^3(\omega t) + \dots] \\ &= \chi^{(1)} \epsilon_0 \mathbf{E}_0 \sin(\omega t) + \frac{\epsilon_0}{2} (\chi^{(2)} \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 [1 - \cos(2\omega t)] \\ &\quad + \frac{\epsilon_0}{4} ((\chi^{(3)} \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0) \mathbf{E}_0 [3 \sin(\omega t) + \cos(3\omega t)] + \dots \\ &= \mathbf{P}_{\omega}^{(1)} + \mathbf{P}_0^{(2)} + \mathbf{P}_{2\omega}^{(2)} + \mathbf{P}_{\omega}^{(3)} + \mathbf{P}_{3\omega}^{(3)} + \dots \end{aligned} \quad (3-4)$$

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

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

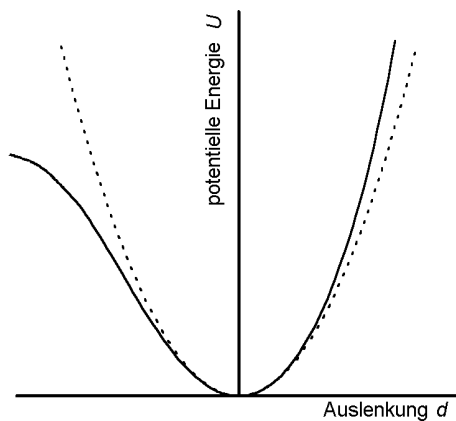


Bild 3-1. Vergleich eines harmonischen Potentials (gestrichelte Linie) mit dem realen, anharmonischen Potential eines elastisch gebundenen Elektrons (durchgezogene Linie).

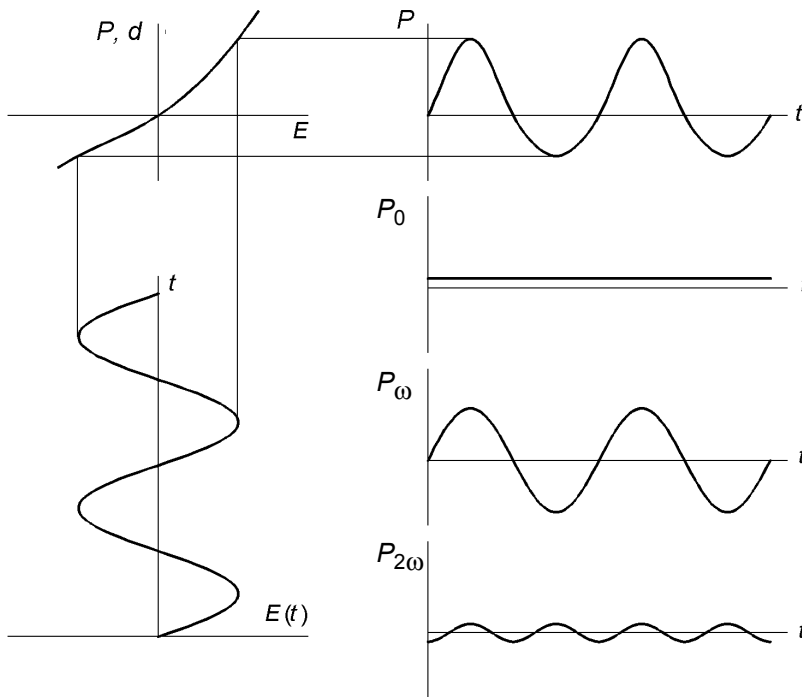


Bild 3-2. Die nichtlineare Kennlinie des Elektrons (links oben) bewirkt die Umwandlung einer eingestrahnten Sinuswelle in eine anharmonische Schwingung, deren Fourier-Zerlegung bis zur zweiten Ordnung dargestellt ist.

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

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

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

Aus dieser Beziehung folgt eindeutig, dass

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

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

3.1.2 Der intensitätsabhängige Brechungsindex

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

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

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

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

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

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

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

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

3.1.3 Frequenzvervielfachung und -mischung

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

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

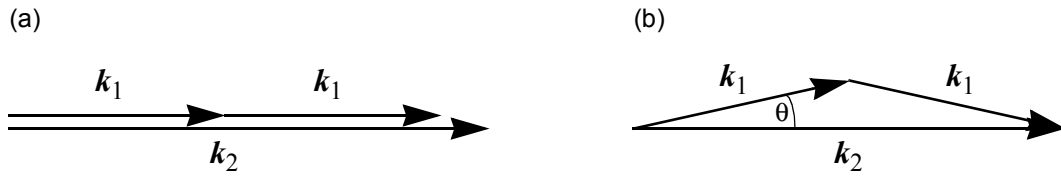


Bild 3-3. Phasenanpassungsdiagramm der Frequenzverdopplung. (a) Fehlende Anpassung bei einem Medium mit normaler Dispersion. (b) Phasenanpassung durch Winkelunterschied der einzelnen Wellen bzw. Photonen bei annormaler Dispersion. (Eingestrahlte Welle: $k_1 = k(\omega)$, erzeugte Welle: $k_2 = k(2\omega)$)

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

3.2 Filamentierung kurzer Laserpulse

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

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

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

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

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

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

3.2.1 Erklärungsmodelle

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

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

wobei N_0 die anfängliche neutrale Teilchendichte und $\sigma^{(K)} I^K$ die zeitabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit ist. $\sigma^{(K)}$ enthält den Koeffizienten für die K -Photonenabsorption $\beta^{(K)}$ und die K -fache Photonenenergie. Bei Luft (N_2 und O_2) ist K für 800nm-Pulse ungefähr 10 ($K_{\text{O}} = 8$, $K_{\text{N}} = 11$). Aus der Elektronendichte ergibt sich die Plasmafrequenz

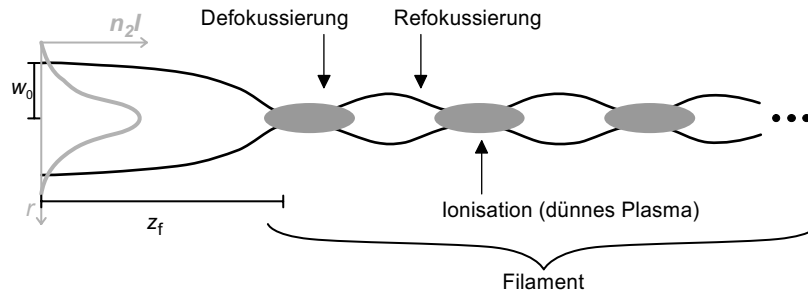


Bild 3-4. Schematische Darstellung des *self-guiding* eines Femtosekundenpulses in Luft als abwechselnde Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung. Der nichtlineare Anteil des Brechungsindex im neutralen Medium (graue Kurve) hat die radiale Form der Pulsintensität $I(r)$. Die schwarzen Linien zeigen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

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

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

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

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

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

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

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

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

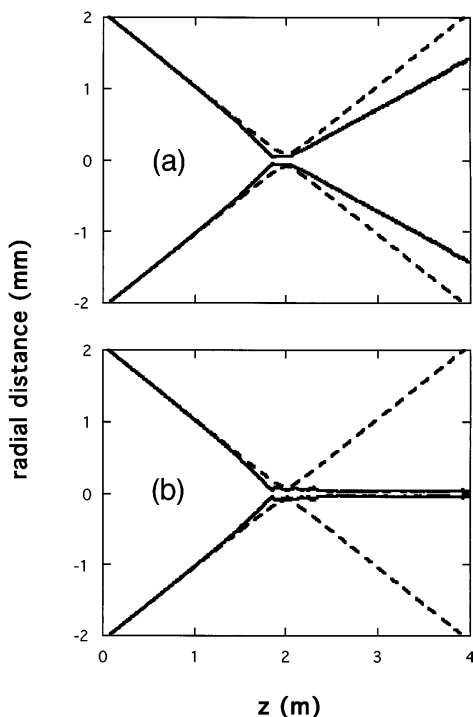


Bild 3-5. Abbildung aus [Lange et al., 1998]. Simulation der Ausbreitung eines fokussierten Pulses mit Gauß-Profil durch Luft. Anfangsbedingungen: $\tau = 120$ fs, $E_0 = 3,9$ mJ, $w(0) = 3,5$ mm $\Leftrightarrow r(0) = 2$ mm (HWB), $f = 2$ m. Die durchgezogenen Linien zeigen die Halbwertsbreite der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

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

3.2.2 Numerische Simulationen – nichtlineare Schrödinger-Gleichung

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

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

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

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

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

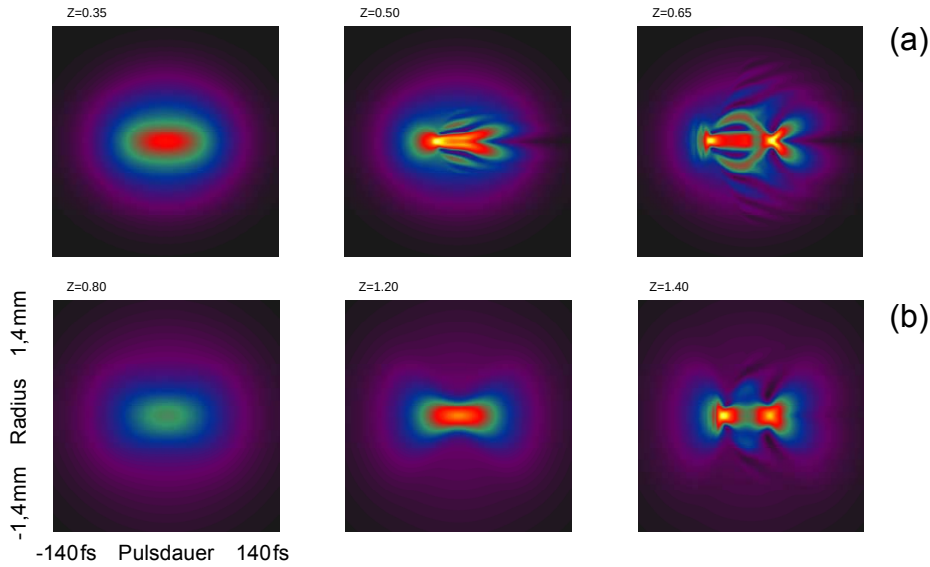


Bild 3-6. Abbildung aus [Skupin, 2001]. Numerische Simulation der Ausbreitung von kurzen Pulsen (100 fs volle HWB, $\lambda = 775$ nm, $w_0 = 0,7$ mm) in Luft mittels einer 2D+1-SVEA-NLSE mit Kerr-Effekt, MPI, Plasmadefokussierung und GVD. Dargestellt ist die Feldamplitude $|E_0|$. Die Skalen links unten gelten für alle Bilder. Die Ausbreitungslänge z ist in Meter angegeben. (a) Pulsleistung $9,9$ GW $= 5,8 P_{kr}$. (b) Pulsleistung $3,4$ GW $= 2 P_{kr}$ ($n_2 = 5,6 \cdot 10^{-19}$ cm²/W wurde hier angenommen).

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

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

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

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

Ein weiteres Beispiel mit einer etwas erweiterten NLSE ist in Bild 3-7 dargestellt. Ein 50fs-Puls mit einer Leistung von ca. $30P_{kr}$ bildet ein über 6 m langes Filament aus. Auf der Mittelachse schwankt das Intensitätsmaximum etwa zwischen $2 \cdot 10^{13}$ W/cm² und 10^{14} W/cm² (Teilbild b). Da die Plasmadichte ρ von I^K ($K \geq 8$) abhängt, gibt ρ die Struktur der Intensität in deutlich verstärkter Form wieder (man beachte die logarithmische Skala in Teilbild c). Aus demselben Grund treten freie Elektronen nur im sehr achsennahen Bereich auf [Skupin, 2001]. Interessant ist, dass Sauerstoff aufgrund des etwas geringeren Ionisationspotentials bzw. K -Werts hundertmal mehr ionisiert wird als Stickstoff. Am Anfang des Filaments ist die Elektronendichte über mehr als einen Meter relativ hoch. Vermutlich überschneiden sich hier De- und Refokussierung noch, wie in Bild 3-6 (a) zu sehen ist.

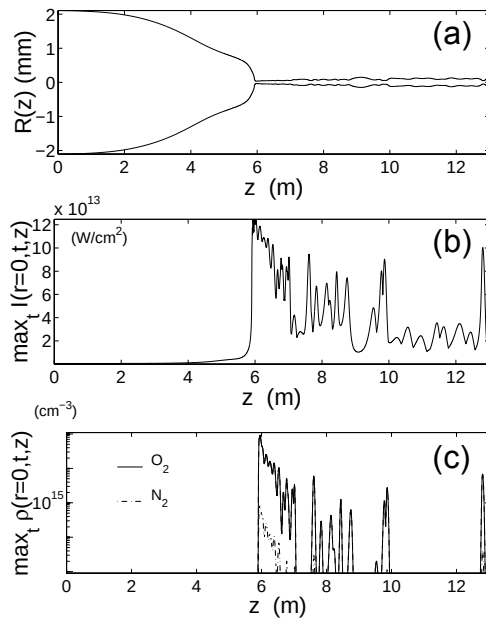


Bild 3-7. Abbildung aus [Couairon et al., 2002]. Simulation der Ausbreitung von unfokussierten Pulsen mit 50 fs Länge und 5 mJ Energie. Ähnliches Verfahren wie bei Bild 3-6, jedoch mit zur Hälfte verzögertem Kerr-Effekt und getrennter Behandlung der Ionisation von N_2 und O_2 . (a) Halbwertsbreite des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

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

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

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

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

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

3.3 Filamentierung von Terawattpulsen in Luft – Eigenschaften und Steuerbarkeit

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

3.3.1 Multifilamentierung

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

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

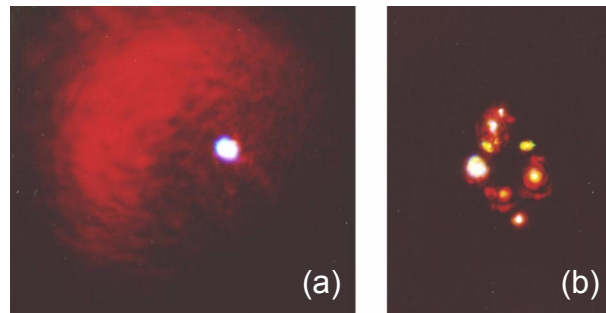


Bild 3-8. „Einzel filament“-Erzeugung mit dem TW-Laser des IOQ Jena (200 fs, 3m-Linse, 150 mJ nach der Linse). Digitalkamera-Aufnahmen von weißem Papier etwa 8 m hinter der Linse, Bildhöhe ca. 10 cm. (a) Linse in 90°-Stellung zum Strahl. Weißer Punkt: volle HWB ca. 1 mm, Energiegehalt ca. 3 mJ. (b) Linse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

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

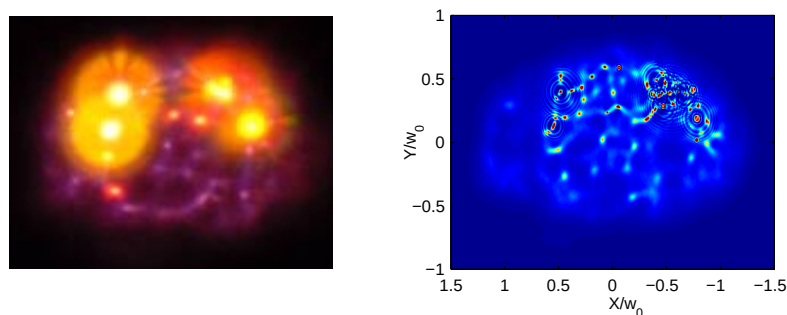


Bild 3-9. Simulation der Multifilamentierung von 2TW-Pulsen. Links: Teramobile-Messung, unfokussierter 150fs-Puls bei 15 m (wie in Bild 2-35). Rechts: Pulszeitgemittelte 3D-Simulation des Strahlprofils nach 15 m Luftweg, ausgehend vom digitalisierten Laserprofil (dargestellt in Bild 2-36) [Bergé et al.,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

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

3.3.2 Startpunkt der Filamentierung

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

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

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

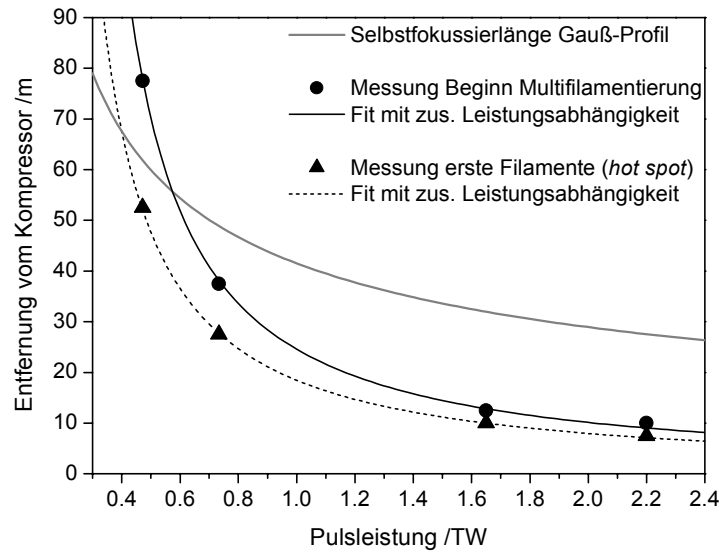


Bild 3-10. Beginn der Filamentierung von 330mJ-Pulsen bei unterschiedlichen Pulsleistungen (bzw. -längen, Messpunkte sind aus denen in Bild 2-37 umgerechnet). Die graue Kurve zeigt die theoretische Selbstfokussierlänge z_f für ein Gauß-Profil mit dem Durchmesser aus der Messung. Die Messpunkte stehen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

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

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

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

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

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

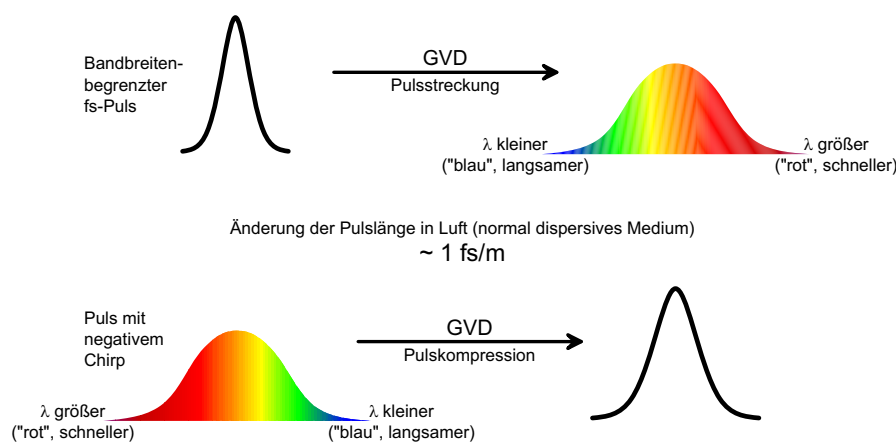


Bild 3-11. Wirkung der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD) auf kurze Pulse in einem normal dispersiven Medium, z.B. Luft. Das Wellenlängenspektrum (blau-rot) ist stark überzeichnet dargestellt.

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

3.3.3 Länge der Filamente

Nach dem Startpunkt wird nun die Länge der Filamente und deren Steuerbarkeit behandelt. Wie in Abschnitt 2.4.2 beschrieben, ist die experimentelle Bestimmung des Endes der Filamente nicht einfach. Dabei ist noch nicht einmal eindeutig klar, wie das Ende definiert sein soll. Eine mögliche Definition ist der entfernteste Ort, an dem Ionisation auftritt. Methoden, die in den letzten Jahren zur Ortung der Filamente vorgeschlagen worden sind, basieren auf der Messung des Plasmas, direkt über die elektrischen Eigenschaften [Proulx et al., 2000] bzw. indirekt über die Emission von N₂-Fluoreszenzlicht [Talepour et al., 1999], Terahertzstrahlung [Tzortzakakis et al. 2002] oder Schallwellen [Yu et al., 2003]. Diese Verfahren sind zum Teil sehr aufwendig. In jedem Fall müssen sie am Objekt durchgeführt werden und sind daher für Langstreckenversuche, zumal bei vertikalem Senden, ungeeignet. In Verbindung mit dem Bild vom Photonenreservoir bei MF gibt es aber auch Anzeichen dafür, dass über den Plasmabereich hinaus – zumindest in längeren Abschnitten, in denen Ionisation nur noch sehr sporadisch lokale Selbstfokussierung stoppt – filamentartige Strukturen mit hohen Intensitätsspitzen auftreten. Solange Teile des Strahls selbstfokussieren, können andere nichtlineare Effekte, z.B. Änderungen des Spektrums, auftreten. Das Ende wäre dann dort, von wo an sich das Licht nur noch mit normaler Divergenz ausbreitet.

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

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

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

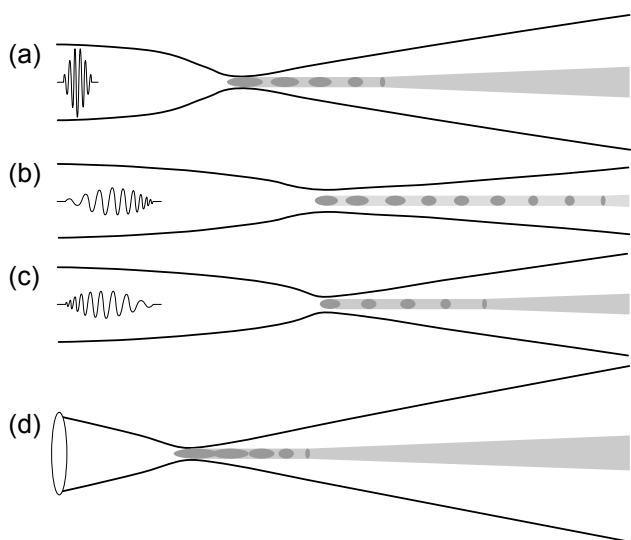


Bild 3-12. Abhängigkeit der Filamentlänge von Pulsdauer (Intensität), Chirp und Fokussierung (empirische Modellvorstellung). Schwarze Linien: äußerer Rand des Strahls bzw. Photonenreservoirs, dunkelgraue Bereiche: Plasma, hellgrau: im Filament gebündeltes, verändertes und von ihm emittiertes Licht. (a)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

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

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

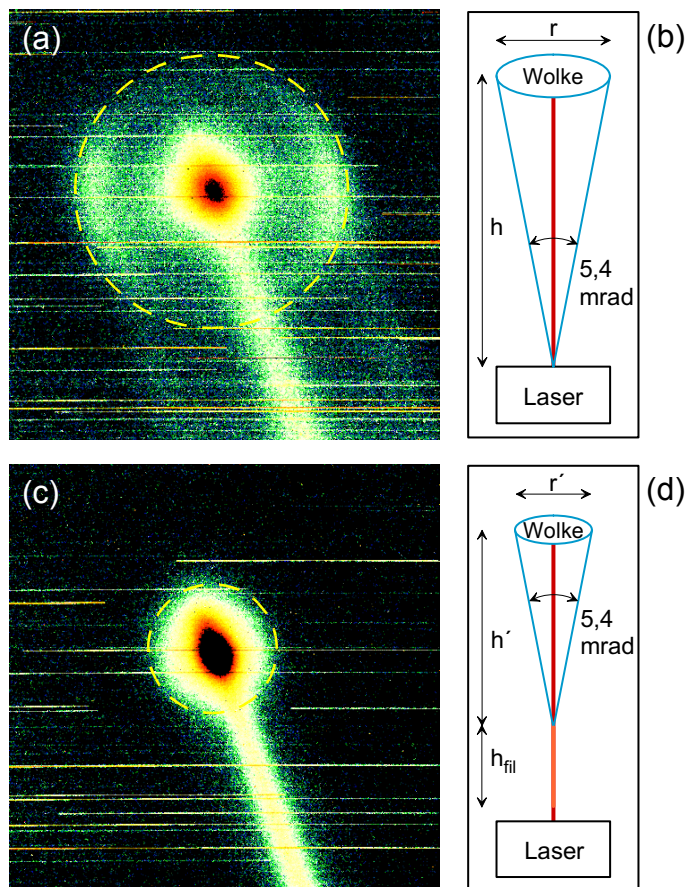


Bild 3-13. Unterschiedlicher Durchmesser der konischen Emission in der B-Filterbande (390 – 480 nm) bei 150 fs (a) und 600 fs, neg. Chirp (c). Die sonstigen Parameter des Lasers und der Detektion sowie die Farbskala sind gleich. (Abb. (a) ist identisch mit Bild 2-8.) Höhe der Streumaxima (Wolkenhöhe):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

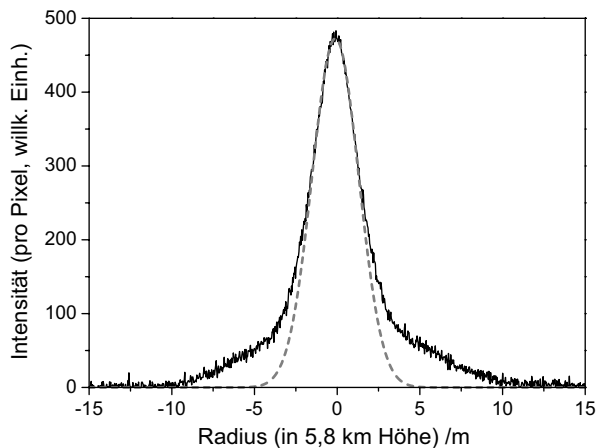


Bild 3-14. 600 fs, neg. Chirp. Horizontaler Schnitt (über 9 Pixelreihen gemittelt) durch die Wolkenstreuung (390 – 480 nm) in 5,8 km Höhe. Gestrichelt: Gauß-Fit des Zentralstrahls. Die Schultern zeigen v.a. die konische Emission, aber auch Anzeichen von Mehrfachstreuung.

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

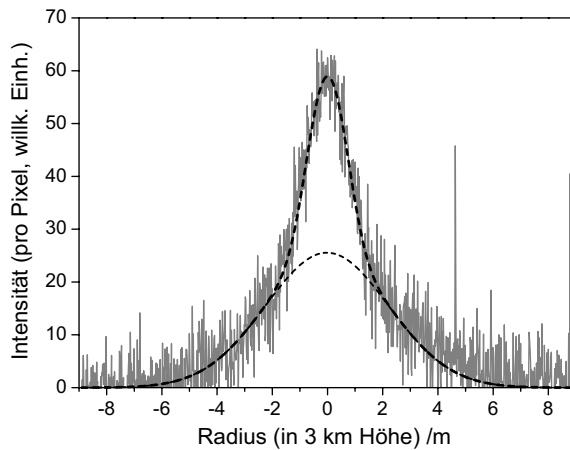


Bild 3-15. 600 fs, neg. Chirp. Senkrechter Schnitt (über 9 Pixelreihen gemittelt) durch den Strahl in Bild 3-13 (c) bei 3 km. Gestrichelt: Gauß-Fit des Zentralstrahls und der konischen Emission (als Untergrund, da über eine transversale Koordinate integriert).

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

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

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

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

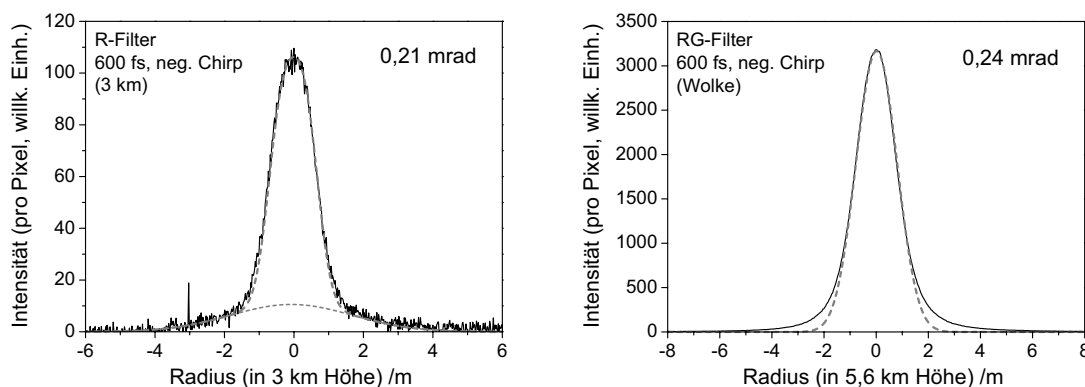


Bild 3-16. Querschnittsprofile des Laserstrahls (600 fs, negativer Chirp), Bestimmung der Blickwinkel (Divergenz). Links: 570 – 720 nm, transversale Projektion, gemittelt über 9 Pixelreihen, schwache konische Emission als Untergrund, Bildunschärfe als leichte Deformation der Gauß-Kurve sichtbar (korrigiert).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

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

3.3.4 Divergenz nach der Filamentierung

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

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

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

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

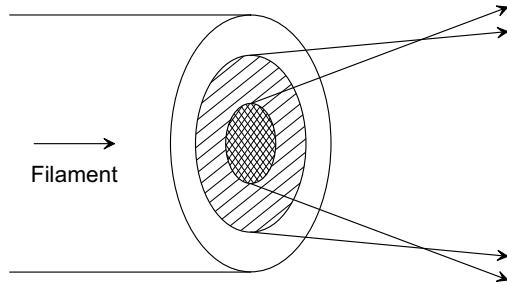


Bild 3-17. Abbildung nach [Brodeur et al., 1996]. Abhängigkeit der Divergenz vom jeweiligen Durchmesser der Strahlungsquelle innerhalb des Filaments.

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

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

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

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

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

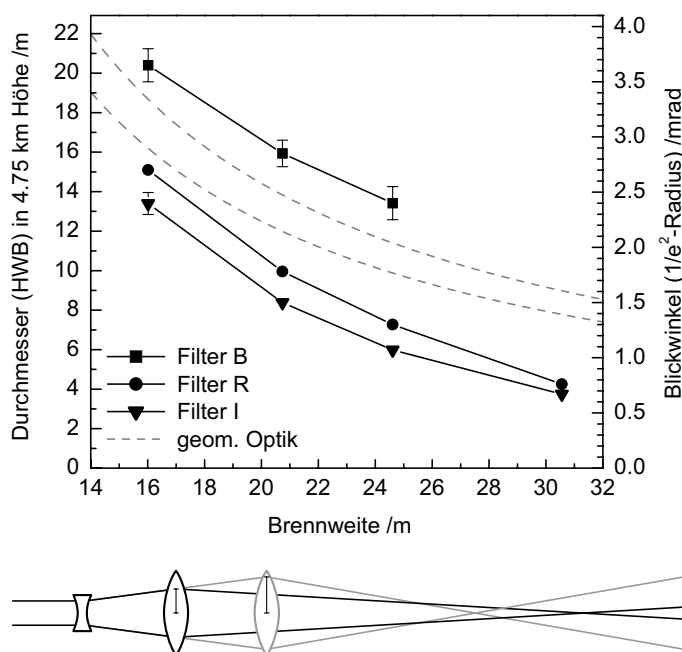


Bild 3-18. Divergenz in Abhängigkeit der Fokussierung für verschiedene Filterbanden: B (390–480 nm), R (570–720 nm), I (770–950 nm), gemessen in 4,75 km Höhe. Graue Kurven: geometrisch optische (lineare) Divergenz entsprechend dem Sendeteleskop (unten schematisch dargestellt, vergleiche Bild 1-5).

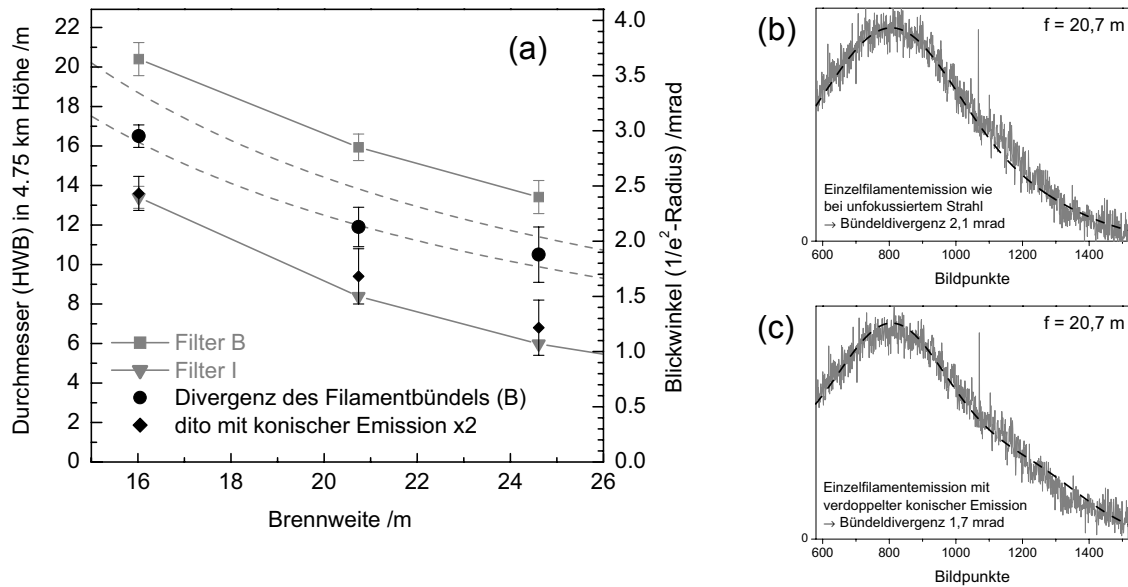


Bild 3-19. Abschätzung der Divergenz des Filamentbündels durch Faltung mit dem Querschnitt des Einzelfilaments (Bild 3-31, Schnitt durch die Abbildung des unfokussierten Strahls in Bild 3-13 a) (●) bzw. mit doppelter konischer Emission (◆). (b, c) Beispiele der Bestimmung der Bündeldivergenz (Gauß-Profil,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

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

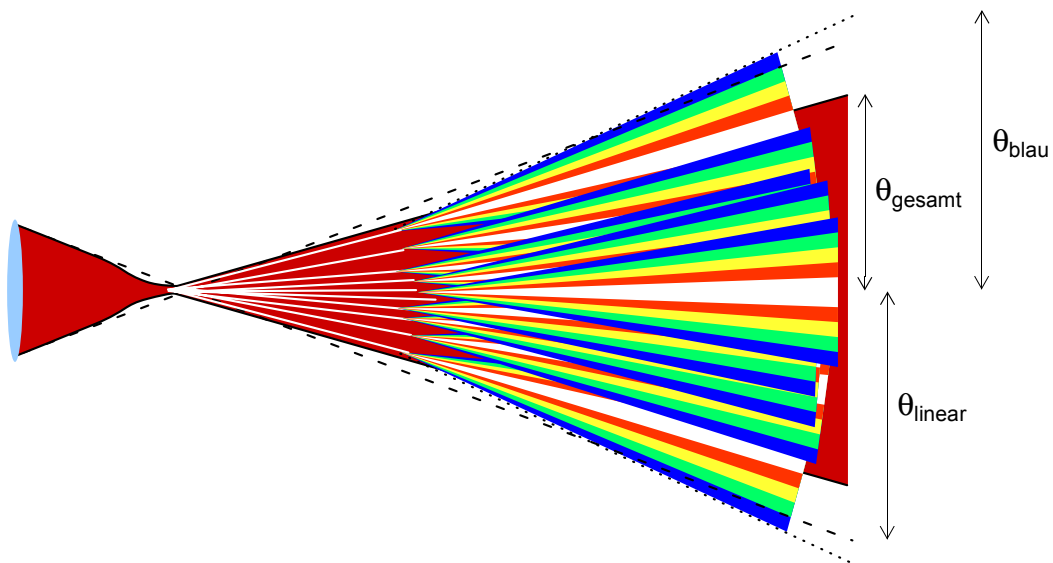


Bild 3-20. Multifilamentierung eines fokussierten Strahls. Die Darstellung erklärt schematisch die verschiedenen Winkel, wie sie in Abhängigkeit der Fokussierung in 4,8 km Höhe gemessen wurden (Bild 3-18). θ_{gesamt} entspricht etwa der Divergenz der I-Bande, θ_{blau} sei der mit dem B-Filter gemessene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

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

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

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

3.4 Weißlichterzeugung (SCG)

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

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

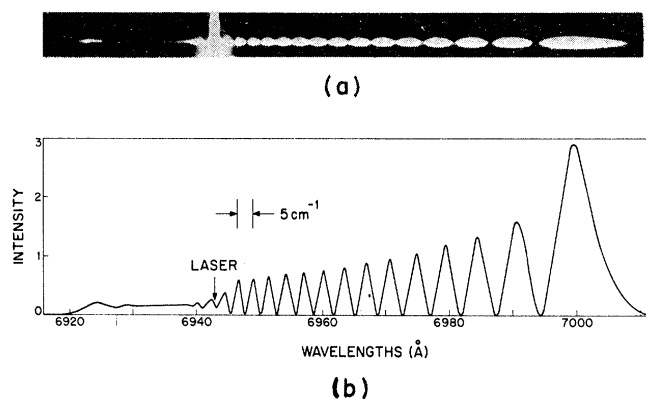


Bild 3-21. Abbildung aus [Gustafson et al., 1969]. (a) Gemessenes Spektrum von 5ps-Pulsen in einer Mischflüssigkeit aus CS₂ und Benzol. (b) Simulation der SPM eines Gauß-Pulses bei einer Relaxationszeit des Kerr-Effekts von 9 ps.

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

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

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

3.4.1 Selbstphasenmodulation

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

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

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

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

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

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

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

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

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

Die Stärke der Frequenzveränderung nach Durchlaufen der Strecke z hängt also vom Gradienten der Pulsintensität ab. Dabei erzeugt die steigende Flanke eine Rotverschiebung, die fallende eine Blauverschiebung (Bild 3-22). Die Fourier-Transformation des resultierenden Wellenpakets ergibt ein Spektrum ähnlich der rechten Seite in Bild 3-21 (b), jedoch spiegelsymmetrisch um ω_0 , das heißt mit einem gleichstarken Anteil auf der Anti-Stokes-Seite. Die maximale spektrale Verbreiterung steigt mit dem Verhältnis der Intensität I_{max} zur Pulslänge τ_p . Nach der Strecke z in einem Medium mit dem Koeffizienten n_2 gilt

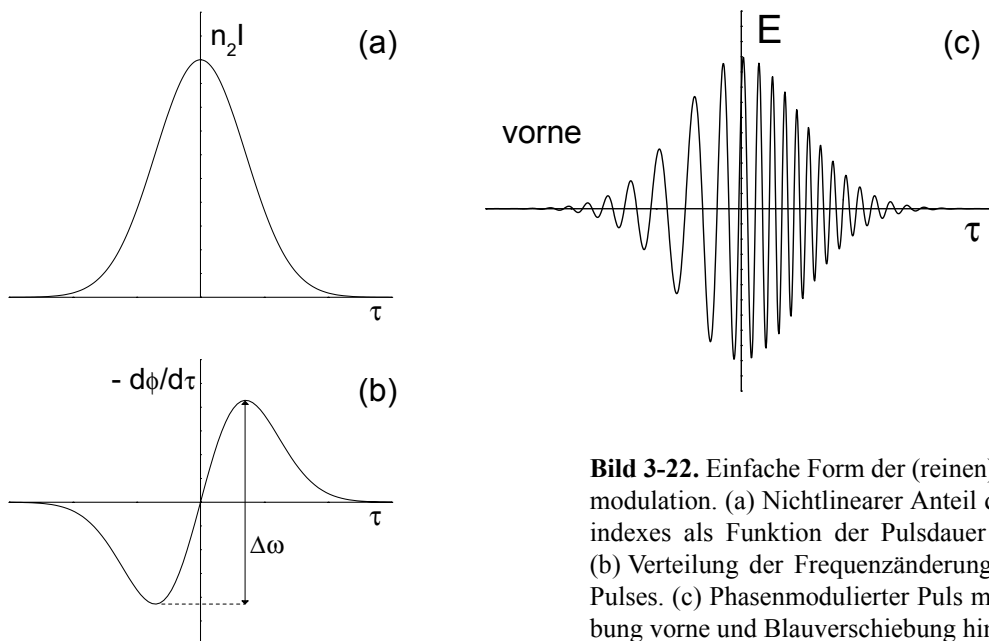


Bild 3-22. Einfache Form der (reinen) Selbstphasenmodulation. (a) Nichtlinearer Anteil des Brechungsindex als Funktion der Pulsdauer (Gauß-Profil). (b) Verteilung der Frequenzänderung innerhalb des Pulses. (c) Phasenmodulierter Puls mit Rotverschiebung vorne und Blauverschiebung hinten.

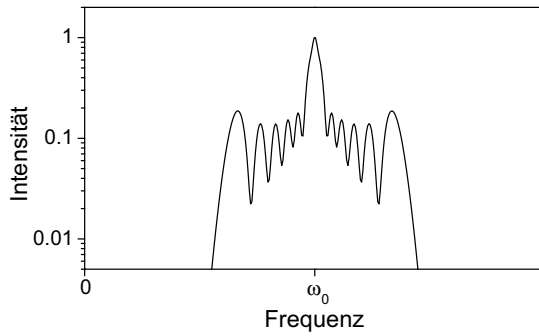


Bild 3-23. SPM-Spektrum eines Pulses mit der zeitlichen Einhüllenden $A(\tau) = \exp[-(\tau/\tau_p)^4]$. Der flache Teil des Intensitätsprofils erzeugt ein Maximum bei der Grundfrequenz.

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

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

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

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

3.4.2 Form und Steuerbarkeit des Terawatt-Weißlichtspektrums

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

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

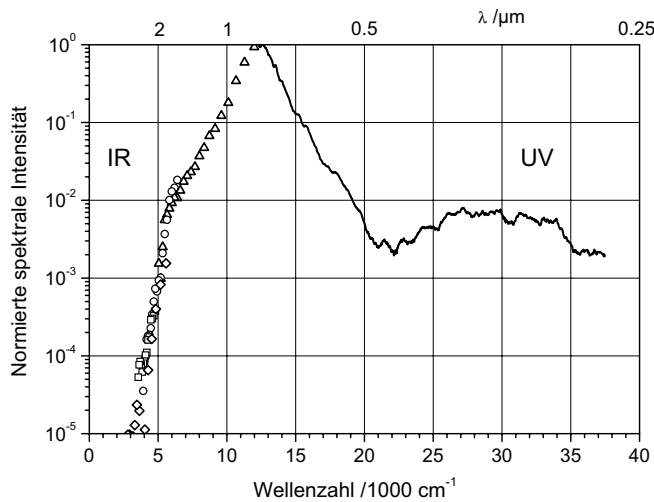


Bild 3-24. TW-Weißlicht 20 m hinter einer 10m-Linse (Spektrum aus Bild 2-31, aber aufgetragen über der Wellenzahl und weiter ins UV, dort stark geglättet zu Rauschfilterung. $\nu_0 = 1/\lambda_0 = 12\,500 \text{ cm}^{-1}$).

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

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

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

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

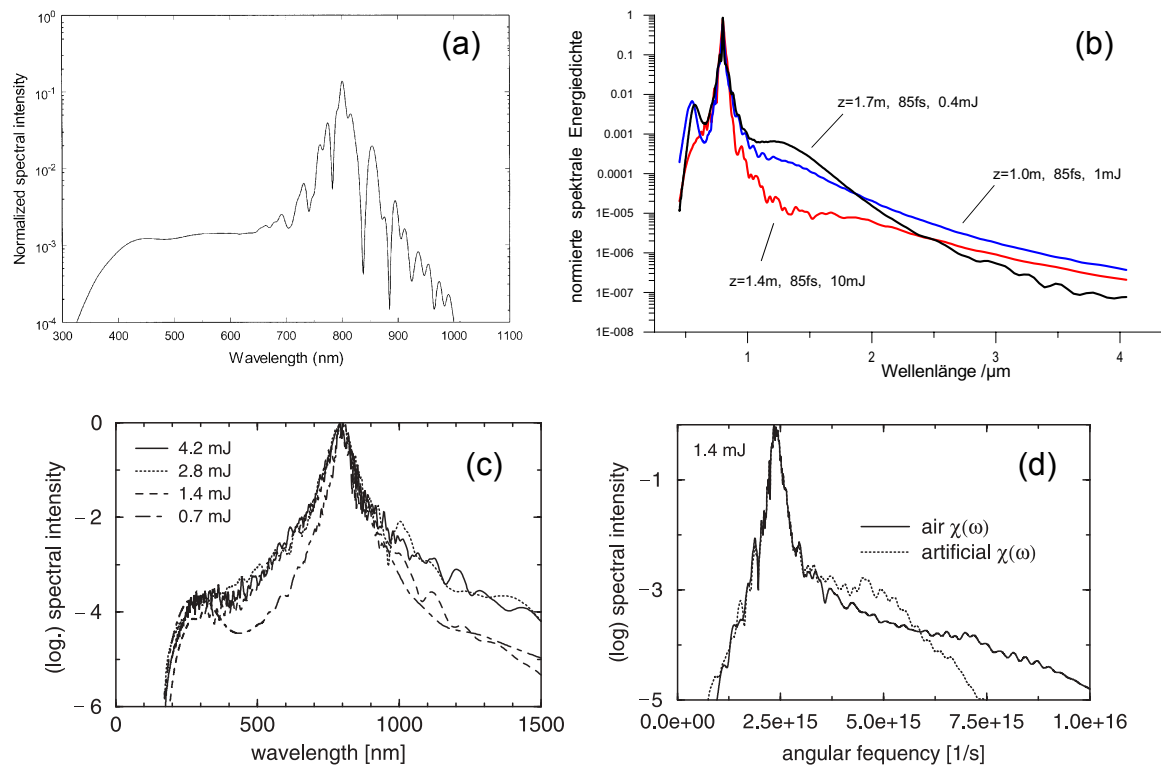


Bild 3-25. Simulierte SCG-Spektren für Luft. (a) Aus [Aközbeck et al., 2001]: 150 fs, $6P_{kr}$, $w_0 = 0,25$ mm, $z = 1,1$ m, mit Korrekturen höherer Ordnung der SVEA (v.a. *self-steepening*). (b) Aus [Skupin, 2001]: vgl. Bild 3-6, $w_0 = 0,7$ mm. (c, d) Aus [Kolesik et al., 2003]: 144 fs, $w_0 = 1$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

In Bild 3-25 sind einige Beispiele für **Simulationen der SCG** in Luft zusammengefasst, die den Terawattmessungen relativ ähnlich sehen, obwohl sie für Einzelfilamente gerechnet sind. In den entsprechenden Textquellen wurden die Spektren (b) und (c,d) ausdrücklich – wenn auch nur grob – mit den Messungen aus Abschnitt 2.4.1 (Bilder 2-30, 2-31, 3-24) verglichen. Typischerweise ist in den Simulationen das Maximum schärfer und der Abfall in der Umgebung von λ_0 stärker als bei den Messungen, wo die Spektren in der logarithmischen Darstellung flacher und fast gerade verlaufen (siehe auch das hochaufgelöste Lidar-Spektrum in Bild 2-12, trotz fehlender Kalibrierung). Die Weißlichtintensität der Messung ist, exemplarisch abgelesen bei 500 nm und 1,5 μm , eine bis zwei Größenordnungen höher als bei den Simulationen, jeweils bezogen auf den Maximalwert bei der Laserwellenlänge. Durch „Abschneiden“ des spitzen Maximums in den berechneten Spektren könnte man also die Übereinstimmung erhöhen. Man kann nur spekulieren, worin der Grund der unterschiedlichen Konversionseffizienz – definiert als $I(\lambda_{\text{SCG}})/I_{\text{max}}(\lambda_0)$ – liegt. Möglicherweise wird das Licht um λ_0 bei realer MF im Photonenreservoir insgesamt stärker verbreitert, oder aber die Abflachung des Maximums geschieht durch einen oder mehrere Effekte, die in den Simulationen nicht berücksichtigt sind. Hier wäre die Vierwellenmischung zu nennen, die in der letzten Zeit kaum mehr in die Diskussion einbezogen wurde.

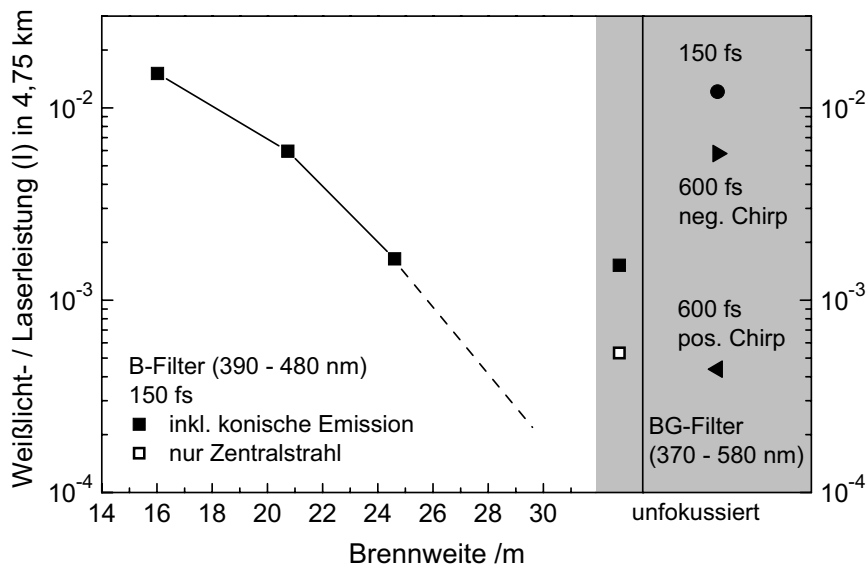


Bild 3-26. Effizienz der Umwandlung von Laserlicht (gemessen mit dem I-Filter) in blaues (B) bzw. grünes (BG) Licht. Linker Kasten: B-Filter, Vergleich für verschiedene Brennweiten und unfokussierten Strahl (grauer Hintergrund). Rechter Kasten: BG-Filter, Vergleich verschiedener Chirpeinstellungen. (Der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

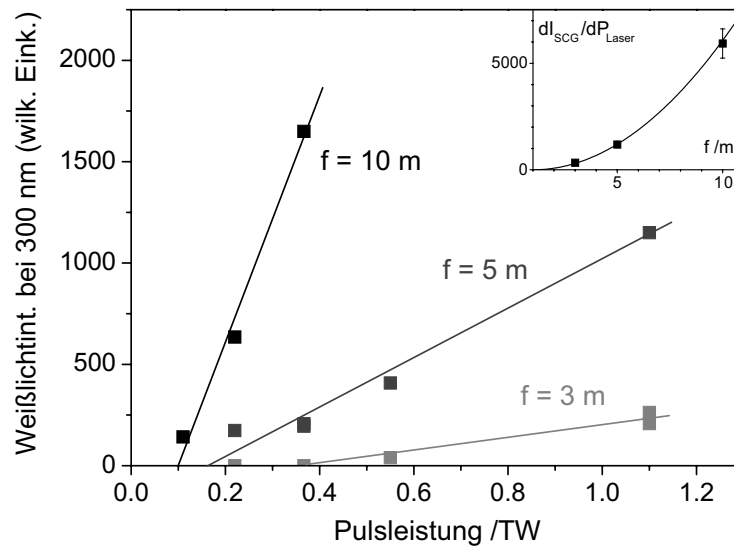


Bild 3-27. Weißlichtintensität bei 300 nm mit verschiedenen Fokussierlinsen und Pulsleistungen (Pulsdauer zwischen 100 fs und 1 ps bei konstant 110 mJ Pulsenergie). Die Spektren sind in Bild 2-39 dargestellt. Der THG-Anteil wurde, wenn bei 300 nm vorhanden, durch Fitten der THG-Linien abgezogen. Das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

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

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

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

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

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

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

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

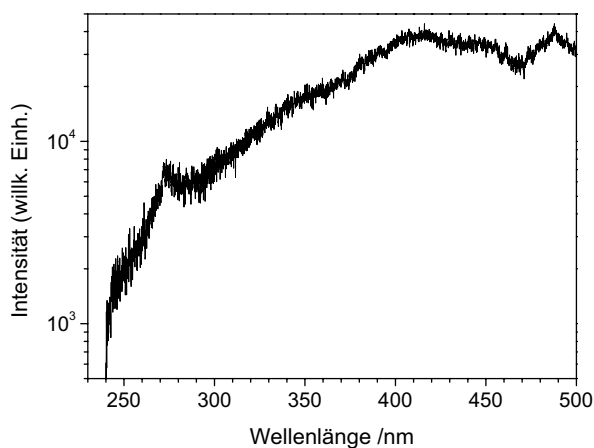


Bild 3-28. Abbruchkante des Superkontinuums im UV. Spektrum wie in Bild 2-40 ($f = 10$ m, $\tau_p = 1$ ps, schwache THG-Linie) logarithmisch dargestellt.

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

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

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

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

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

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

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

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

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

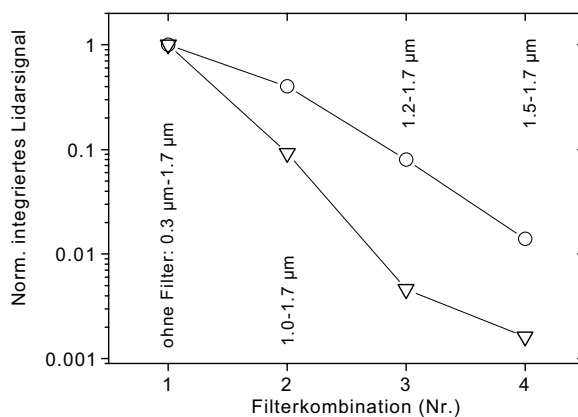


Bild 3-29. Vergleich der (○) IR-Lidar-Signale (vier Filterbanden) mit (▽) simulierten Werten auf Basis des Spektrums aus den Labormessungen (Bild 2-31), beide normiert auf den Wert der Bande Nr. 1 (gesamter Empfindlichkeitsbereich des Detektors). Für die Simulation wurden Standardwerte der Atmosphärentransmission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

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

Fazit

Es hat sich also gezeigt, dass die Form des Weißlichtspektrums steuerbar ist. Obwohl die Abhängigkeit von den verschiedenen Laser- bzw. Pulsparametern sehr komplex zu sein scheint, kann man festhalten, dass die Fokussierung eine entscheidende Rolle spielt. Die Intensität in bestimmten Spektralbereichen, z.B. bei etwa halber oder doppelter Laserwellenlänge λ_0 , kann durch Veränderung der Brennweite der Sendeoptik um bis zu zwei Größenordnungen variieren. Während für eine effektive Erzeugung von IR-Licht aus 800nm-Pulsen der Strahl nicht oder nur schwach fokussiert sein sollte, benötigt man für eine möglichst hohe Intensität im nahen UV Brennweiten im Bereich von 10 m bis 15 m. Bei noch stärkerer Fokussierung sinkt die SCG-Effizienz wieder, da die Länge der Filamente abnimmt.

3.5 Konische Emission und dritte Harmonische

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

3.5.1 Konische Emission von Filamenten

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

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

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

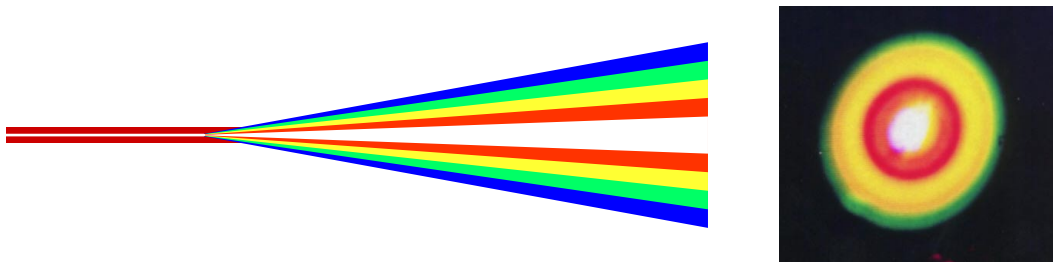


Bild 3-30. Zentraler Weißlichtstrahl und wellenlängenabhängige konische Emission eines einzelnen Filaments. Rechts: Fotografische Abbildung aus [Nibbering et al., 1996], aufgenommen 30 m hinter dem Beginn der Filamentierung eines 150fs-Pulses mit ca. 5 mJ Energie. Der Durchmesser beträgt etwa 10 cm.

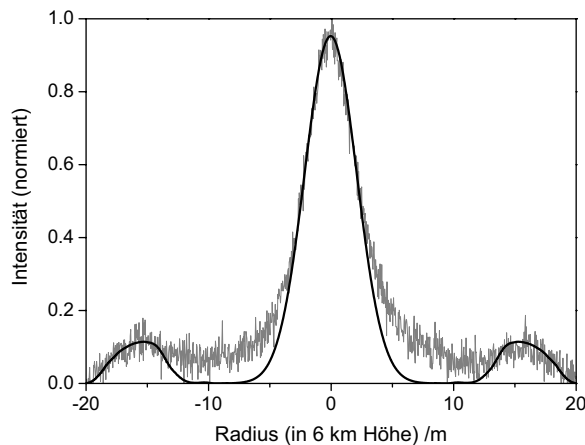


Bild 3-31. Konischen Emission in der B-Filterbande (390 – 480 nm). Grau: Messung (horizontaler Querschnitt durch das Maximum von Bild 3-13 (a), d.h. 150fs-Puls, Filter B, Wolke in 6 km Höhe). Schwarz, außen: angepasste Simulation. Mitte: Gauß-Fit des Zentralstrahls (Divergenz 0,7 mrad).

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

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

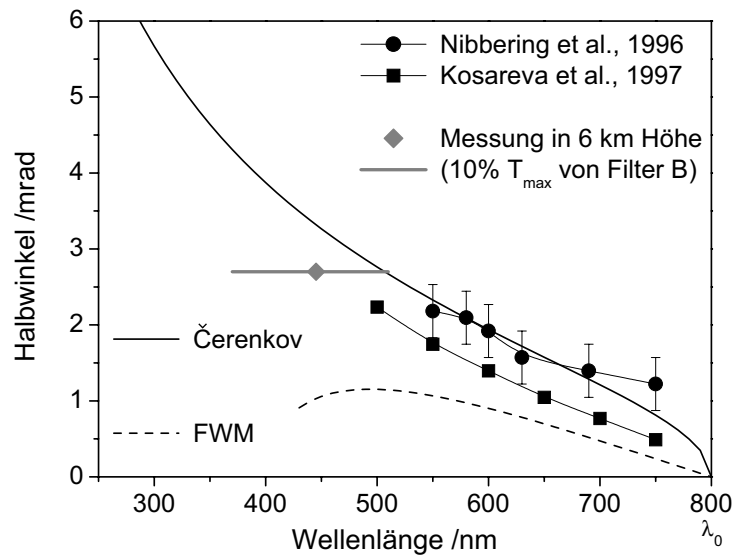


Bild 3-32. Messung des Winkels der konischen Emission an der Thüringer Landessternwarte in 6 km Höhe (grau) im Vergleich mit Literaturdaten sowie berechneten Kurven für den Čerenkov-Effekt bzw. die Phasen Anpassung bei Vierwellenmischung (zwei parallele 800nm-Pumpphotonen), beide für lineare Dispersion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

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

Eine klare **theoretische Deutung** der CE findet sich in der Literatur nicht. Häufig wird sie aber als eine Art **Čerenkov-Strahlung** bezeichnet. Bei diesem in Bild 3-33 schematisch dargestellten Effekt gilt $\cos \theta = c/v$, wobei v die Geschwindigkeit der Strahlungsquelle ist. Setzt man diese in unserem Fall mit der Phasengeschwindigkeit der Laserwellenlänge λ_0 gleich, so ergibt sich die Beziehung

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

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

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

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

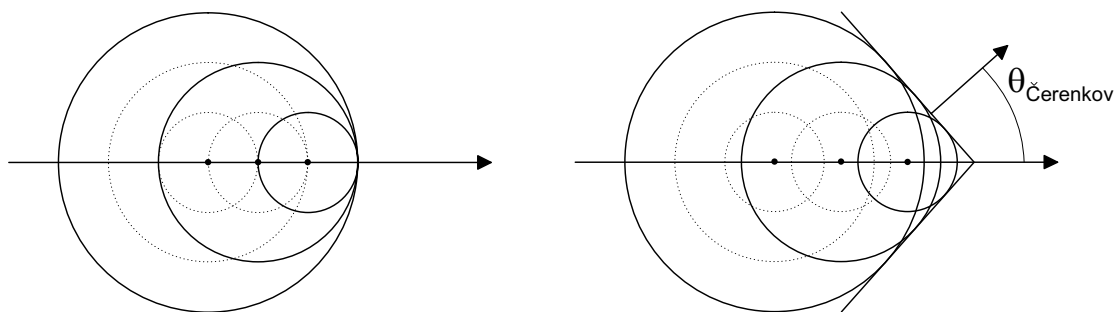


Bild 3-33. Prinzip der Čerenkov-Strahlung. Links: normale Ausbreitung mit $c = v$. Rechts: die Geschwindigkeit der Strahlungsquelle v ist größer als die Phasengeschwindigkeit c . Die Beugung der Wellenfront verursacht einen Strahlungskegel (beim Schall Mach-Kegel genannt).

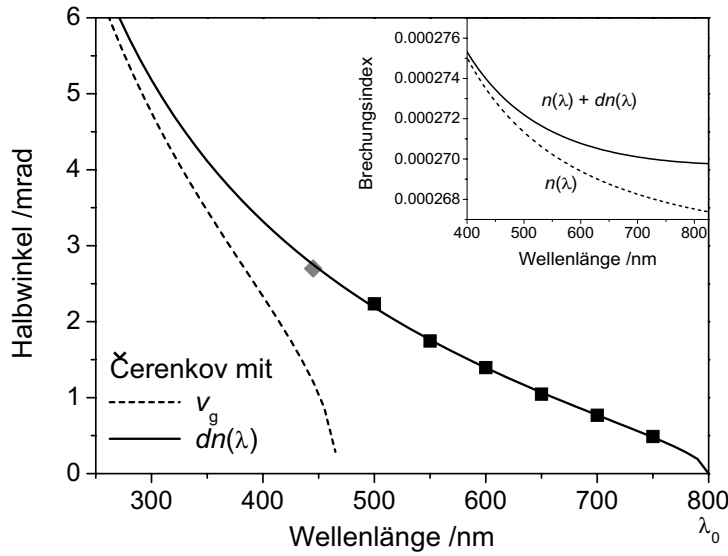


Bild 3-34. Čerenkov-Winkel berechnet mit der Gruppengeschwindigkeit (---) bzw. mit einer wellenlängenabhängigen Korrektur des Brechungsindex (—). Datenpunkte aus Bild 3-32.

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

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

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

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

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

entspricht einer Abflachung der Dispersionskurve in dem betrachteten Spektralbereich. Eine gute Anpassung wird mit der Funktion $dn = 2,4 \cdot 10^{-7} \lambda^{0,5} - 4,5 \cdot 10^{-6}$ erzielt (Bild 3-34 durchgezogene Linie). Der letzte Term ist eine willkürliche Normierung, denn weiterhin gilt, dass ein zusätzlicher konstanter Beitrag zu dn die Funktion $\theta_{\text{Cerenkov}}(\lambda)$ nicht verändert. Man erhält eine ähnlich gute Anpassung auch bei gleichzeitiger Verwendung der Gruppengeschwindigkeit mit $dn = 3,8 \cdot 10^{-12} \lambda^2$. Dabei verschwindet die Ableitung der Dispersionskurve bei λ_0 fast völlig, das heißt, v_g nähert sich $c_{\text{vak}}/n(\lambda_0)$ an. Allerdings bekommt man einen Emissionswinkel $\theta \approx 0,5$ mrad bei $\lambda \rightarrow \lambda_0$, was nur dann den Messungen nicht widerspricht, wenn dort die Intensität der CE gegenüber der des weniger divergenten Zentralstrahls vernachlässigbar ist.

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

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

3.5.2 Erzeugung der dritten Harmonischen (THG) in Luft

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

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

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

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

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

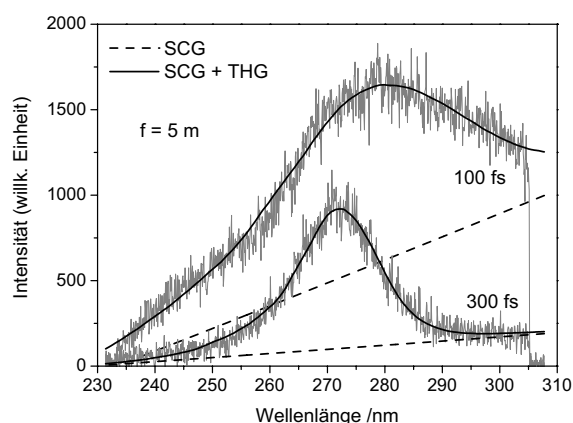


Bild 3-35. Trennung von THG und SCG durch Fit einer Geraden (SCG) und einer angepassten gemessenen Kurve reiner THG. Beispiele zweier Pulslängen bei Fokussierung mit 5m-Linse (aus Bild 2-39). Die Ränder dienen zum Nullabgleich des Detektoruntergrunds (Bereiche der CCD ohne Bildverstärker).

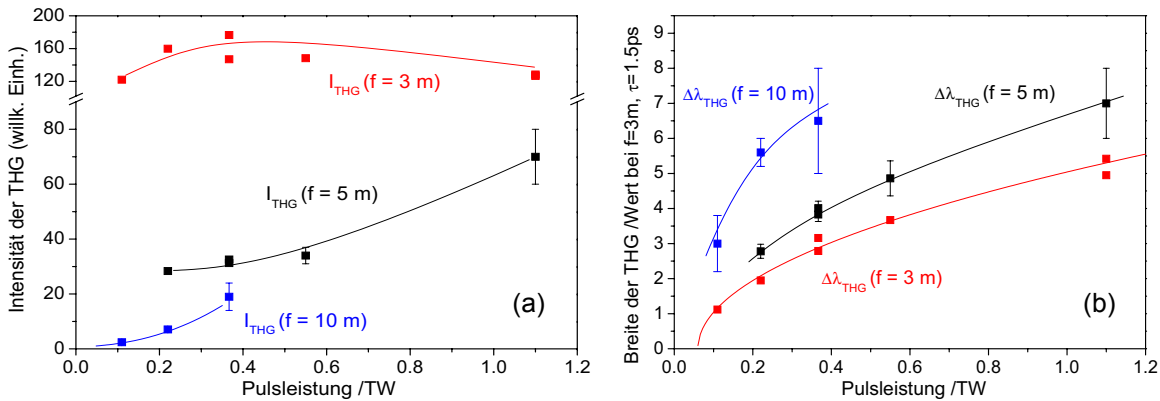


Bild 3-36. (a) Intensität (Fläche) und (b) Breite der THG-Linie für verschiedene Brennweiten der Fokussierlinse und Pulsleistungen (Pulsdauer zwischen 100 fs und 1 ps bei konstant 110 mJ Pulsenergie). Analyse der Spektren aus Bild 2-39.

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

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

der Bandbreite der THG widerspiegelt (Ähnliches gilt für die Verschiebung der Linie). Bei genauerer Überlegung führt dieser Punkt aber zu der Frage, an welchen Abschnitten des Ausbreitungswegs der Pulse die THG stattfindet.

Die Messreihen mit einem 4 cm breitem Loch im Reflektorschirm einerseits und mit vom Strahl selbst durchlöcherten Papierstücken an verschiedenen Positionen andererseits geben Aufschluss über die Spannbreite möglicher **Abstrahlwinkel** und **Entstehungsorte** der THG. Die Messungen wurden mit der 10m-Linse und der Pulslänge 1 ps (0,11 TW) durchgeführt, wobei die THG-Linien relativ schwach, aber nicht zu breit waren (vergleiche Bild 3-36). Die Stärke der Fokussierung ist vergleichbar mit der bei den Lidar-Experimenten, z.B. ca. 20 m Brennweite bei aufgeweitetem Strahl. Bild 3-37 dient zur Veranschaulichung der Ergebnisse, die im Folgenden erläutert werden. Man beachte, dass die Messungen mit dem 4cm-Loch und dem Papier nicht gleichzeitig durchgeführt wurden. Die Papierstücke wurden einzeln und in Zweierkombinationen eingesetzt.

Das Licht, das vom Schirm mit dem 4cm-Loch reflektiert wurde, enthielt die gleiche Menge an dritter Harmonischen wie im Fall des Schirms ohne Loch, während gut die Hälfte des Weißlichts bei 300 nm durch das Loch entwich (siehe Bild 2-45). Ein 5 mm breites Loch bei 12,5 m (Photo des Lochs in Bild 2-43 a) blockte die THG vollständig ab (siehe Bild 2-44). Daraus ergibt sich ein **minimaler** Halbwinkel θ_{THG} von etwa **5 mrad** (Kegel b in Bild 3-37). Ein einzelnes Papier bei 11,5 m (ovales gebranntes Loch, ca. 2 mm × 9 mm) blockte etwa ein Drittel der THG ab. Wegen $\theta_{\text{THG}} \geq 5$ mrad kann man abschätzen, dass die THG etwa zwischen 10 m und 11 m hinter der Linse einsetzte. Unter der

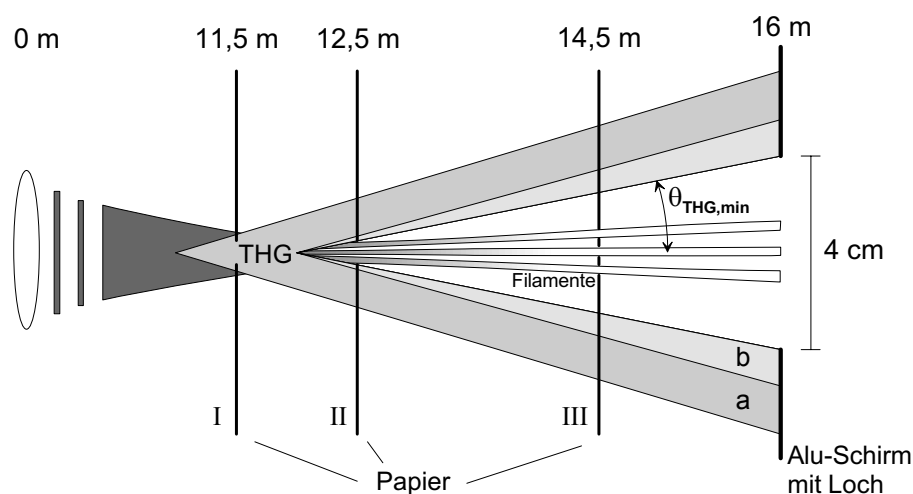


Bild 3-37. Konische Emission der THG in der Region vor dem Brennpunkt eines fokussierten 100mJ-Pulses (Konvergenzwinkel ca. 3 mrad) als ein von der Filamentierung entkoppelter Prozess. (Darstellung der Ergebnisse und Interpretationen zu den Experimenten aus Abschnitt 2.4.3. Siehe Erläuterungen im Text.)

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

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

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

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

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

Im Folgenden wird die Größe der beobachteten Emissionswinkel diskutiert. Berücksichtigt man nur die longitudinale **Phasenanpassung**, folgt aus ihr die Formel

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

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

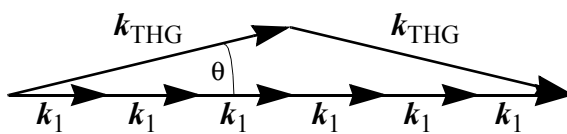


Bild 3-38. THG als $\chi^{(7)}$ -Prozess. Phasenanpassung durch Kompensation der transversalen Komponenten zweier Photonen. Das Ergebnis ist eine konische Emission der dritten Harmonischen. (Nach [Moll et al., 2002].)

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

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

4 Untersuchung der Atmosphäre

Das Ziel des Teramobile-Projekts war und ist die Entwicklung neuartiger Methoden zur Fernerkundung von Substanzen und Materialien, insbesondere von gasförmigen, flüssigen und festen Stoffen, die für die Chemie und Physik der Erdatmosphäre von Bedeutung sind. Die Aktivitäten des Projekts haben damit einen direkten Bezug zur Umweltphysik (in der Deutschen Physikalischen Gesellschaft existiert seit 1998 der Fachverband Umweltphysik). Da es sich bei den zu messenden Substanzen hauptsächlich um Stoffe handelt, die direkt oder indirekt Umweltschäden verursachen oder als Indikatoren für diese dienen, steht speziell die Atmosphärenphysik in enger Beziehung zu Begriffen wie Luftverschmutzung, Zerstörung der Ozonschicht, Klimaveränderung etc.

Das Neuartige am Einsatz von hochintensiven Laserpulsen in der Atmosphärenforschung ist, dass die Luft nicht mehr nur das Objekt der Untersuchung darstellt, sondern gleichzeitig auch zu einem Bestandteil der Messmethoden wird. Denn in der nichtlinearen Wechselwirkung zwischen Luft und Licht liegen die Grundlagen der neuen Methoden, die wir zum Beispiel Femtosekunden-Lidar oder (Femtosekunden-)Weißlicht-Lidar nennen. Dies erklärt, warum es unverzichtbar war und ist, sich eingehend mit den relevanten Bereichen der nichtlinearen Optik zu befassen. So sind einige grundlegende Erkenntnisse gesammelt worden, die zum Teil schon bei den Messkampagnen berücksichtigt wurden, vor allem aber in Zukunft für Experimente in der Atmosphäre genutzt werden können. Teilweise aber sind Messergebnisse aus sich selbst heraus vollständig auswertbar, ohne dass man alle physikalischen Prozesse, die ihnen zugrunde liegen, gänzlich verstehen muss. Dazu gehören Absorptionsspektren, um die es in diesem Kapitel hauptsächlich geht.

Zunächst werden in Abschnitt 4.1 in kurzer Form die Grundlagen und die wichtigsten Arten der Lidar-Methode beschrieben, um dann zur Idee überzuleiten, wie der Einsatz von Terawattpulsen eine neue Dimension des Lidar eröffnet. Konkretisiert wird dies in Abschnitt 4.2 „Absorption durch Gase – fs-Weißlicht-Lidar“ anhand von Ergebnissen der Teramobile-Messkampagnen. Der Schluss des Kapitels ist einigen Aspekten der Wechselwirkung von intensiven bzw. weißen Lichtpulsen mit Aerosolen gewidmet. Für die Erforschung der Luftpartikel besteht ein wachsendes Interesse, da ihre Rolle in der Atmosphärenphysik und -chemie zunehmend als bedeutend eingeschätzt wird, aber noch nicht ausreichend verstanden ist.

4.1 Die Messtechnik Lidar

Schon kurz nach der Erfindung des Lasers entwickelten Fiocco und Smullin [1963] eine Methode, um nach dem Prinzip des Radar die Atmosphäre mit Laserpulsen zu untersuchen. Man nutzt die Tatsache, dass die optische Strahlung von der Luft, d.h. Molekülen und Aerosolen, gestreut wird. Die empfangene Rückstreuung wird als transientes Signal erfasst. Durch Multiplikation der Zeitskala mit der Lichtgeschwindigkeit erhält man die Leistung des Streulichts als Funktion der Entfernung. Diese Methode wurde zunächst Laser-Radar, später Lidar (*Light Detection and Ranging*) genannt. Eine ausführliche Abhandlung zu Lidar findet sich in [Measures, 1984].

Der besondere Vorteil der Lidar-Technik gegenüber anderen (optischen) Methoden zur Luftanalyse ist, dass man einen Laserstrahl in beliebiger Richtung an unzugängliche Orte senden kann, ohne einen Empfänger oder Reflektor am anderen Ende der Messstrecke zu

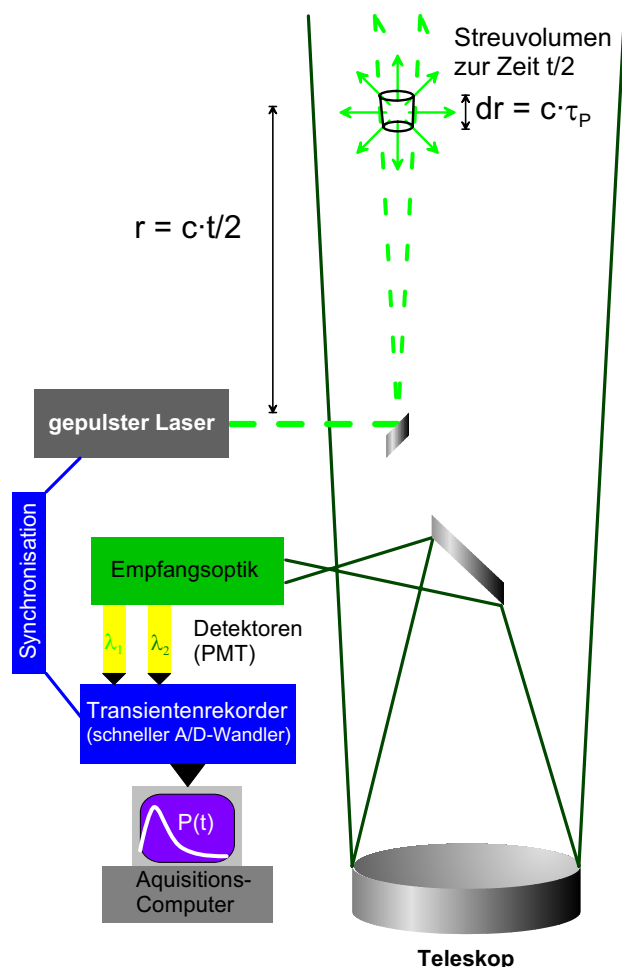


Bild 4-1. Schematische Darstellung eines typischen Lidar-Systems. Es besteht aus einem gepulsten Laser, üblicherweise mit einer Pulslänge von einigen Nanosekunden und einer Repetitionsrate zwischen 10 Hz und 1 kHz, einem Teleskop, einem oder mehreren schnellen Detektoren (Photomultiplier oder -dioden) und einem Analog-Digitalwandler, der mit Auslesezeiten im Bereich von 10^7 bis 10^8 Hz arbeitet (entspricht wenigen Metern Lichtweg).

benötigen. Techniken mit Empfänger oder Reflektor liefern zudem nur integrierte Informationen über die gesamte Strecke. Gemeinsam mit anderen optischen Methoden hat Lidar die positive Eigenschaft, dass die Messung des atmosphärischen Parameters in der natürlichen Umgebung und zu einem konkreten Zeitpunkt stattfindet. So können dynamische Prozesse erfasst werden und es besteht nicht die Gefahr der chemischen oder physikalischen Veränderung einer Luftprobe auf dem Transport zur Messung oder bei dieser selbst.

Da die Durchführung und Auswertung von Lidar-Messungen bis heute das umfangreiche Wissen von auf diesem Gebiet tätigen Forschern erfordert – abgesehen von einfachsten Systemen z.B. zur Bestimmung des Bewölkungszustandes –, sind Routinemessungen zur Luftüberwachung durch Behörden oder private Einrichtungen noch die Ausnahme. Leicht bedienbare, zuverlässige Lidar-Systeme sind erst seit kurzem kommerziell erhältlich (www.elight.de). In der Wissenschaft dagegen konnte Lidar erfolgreich eingesetzt werden und lieferte entscheidende Beiträge zum Verständnis der Mechanismen bedeutender atmosphärischer Phänomene, z.B. der Zerstörung der stratosphärischen Ozonschicht (ca. 20 km Höhe) [Stein et al., 1999] oder verschiedener Smog-Szenarien [Weidauer et al., 1997]. Die Verbesserung und Weiterentwicklung von Lidar-Techniken war stets eng mit den Fortschritten in der Laserphysik verbunden.

4.1.1 Grundlagen

In Bild 4-1 ist das Grundprinzip einer Lidar-Messung dargestellt. Laserpulse mit der Wellenlänge λ und der Pulsdauer τ_p werden parallel zur Sichtachse des Empfangsteleskops ausgesendet. Kontinuierlich streut die Luft einen Teil der Pulsenergie $P_L \cdot t_p$ auf den Teleskopspiegel der Fläche A . Eine mit dem Laser synchronisierte Detektion, die eine bestimmte Effizienz $D(\lambda)$ besitzt, liefert das Signal der empfangenen Leistung

$$P(r, \lambda) = P_L D(\lambda) \frac{C(r)A}{r^2} \frac{c t_p}{2} \beta(r, \lambda) \tau^2(r, \lambda) \quad (4-1)$$

in Abhängigkeit der Entfernung $r = ct/2$ des Luftvolumens, das auf dem Streckenintervall $dr = ct_p/2$ Licht zur Zeit t zurückstreut. Diese Gleichung wird **Lidar-Gleichung** genannt. $C(r)$ ist eine einheitslose Funktion ≤ 1 , die die effektive Teleskopfläche beschreibt (Verdeckungen des Sichtfelds und Grad der Überlappung mit dem Laserstrahl). Sie wird geometrische Kompression genannt und soll normalerweise schnell gegen eins gehen. Da die Rückstreuung im Raumwinkelsegment $d\Omega \leq A/r^2$ als isotrop angesehen werden kann, nimmt das Signal mit $1/r^2$ ab. Dies schränkt die Reichweite von Lidar-Messungen – neben anderen Verlusten – vor allem ein und verlangt eine hohe Dynamik von der Detektion.

Die Größe $\beta(r, \lambda) = N(r)[d\sigma(\lambda)/d\Omega]_{\theta=\pi}$ in Gleichung 4-1 hat die Einheit $(\text{m sr})^{-1}$ und heißt Rückstreuungskoeffizient, wobei N und σ hier für die Anzahldichte bzw. den Streuquerschnitt aller streuenden Teilchen stehen. Für die Transmission von Licht durch die Atmosphäre bis zur Entfernung r gilt

$$\tau(r, \lambda) = \exp\left[-\int_0^r \alpha(r', \lambda) dr'\right]. \quad (4-2)$$

Diese Gleichung entspricht dem Lambert-Beer-Gesetz der Absorption, wobei hier $\alpha(r, \lambda)$ für sämtliche Verluste durch Streuung und Absorption steht und Extinktionskoeffizient genannt wird. Wegen der doppelten Transmission des Lichts auf Hin- und Rückweg zwischen dem Lidar-System und dem Ort r steht τ in Gleichung 4-1 zum Quadrat.

Für α und β gilt gleichermaßen, dass sie sich aus den Anteilen der Moleküle (Gase) und Aerosole zusammensetzen. Die Aufschlüsselung in der Form

$$\begin{aligned} \alpha(r, \lambda) &= \alpha_{\text{mol}}^{(s)}(\lambda) \frac{N_{\text{mol}}(r)}{N_s} + \sum_{\text{Gase}} \sigma_i(\lambda) N_i(r) + \alpha_{\text{aer}}(r, \lambda) \quad \text{und} \\ \beta(r, \lambda) &= \beta_{\text{mol}}^{(s)}(\lambda) \frac{N_{\text{mol}}(r)}{N_s} + \beta_{\text{aer}}(r, \lambda) \end{aligned} \quad (4-3)$$

zeigt den Satz von Parametern, der bei einer Lidar-Messung mit vereinfachter Behandlung der Aerosole und dem Schwerpunkt bei der Absorption durch Spurengase verwendet wird. Der Index s steht für die reine gasförmige Luft bei Standardwerten von Druck und Temperatur (die Moleküldichte N_s folgt aus der idealen Gasgleichung). Der mittlere Term in der oberen Gleichung enthält die Absorptionsquerschnitte $\sigma(\lambda)$ aller (Spuren-)Gase, die im Wellenlängenbereich der Laserstrahlung absorbieren. α_{mol} enthält somit nur die Extinktion

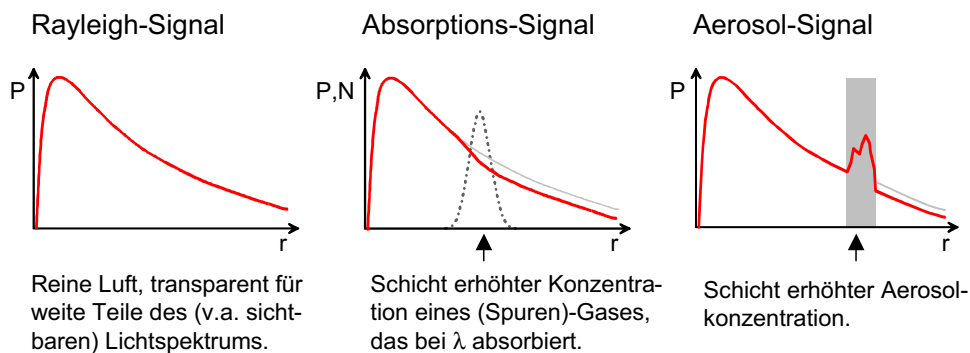


Bild 4-2. Typische Lidar-Signale. Der Anstieg der Signale zeigt den Einfluss der geometr. Kompression $C(r)$. Die Abnahme des Rayleigh-Signals enthält die Rayleigh-Extinktion, wird aber durch $1/r^2$ dominiert.

durch Rayleigh-Streuung. Die ersten Terme in beiden Gleichungen 4-3 werden auch Rayleigh-Extinktion bzw. Rayleigh-Rückstreuung genannt. Die letzten Terme werden als Mie-Extinktion und Mie-Rückstreuung bezeichnet, da die Wirkung der Aerosole in (je nach Art unterschiedlich) guter Näherung mit der Mie-Theorie für sphärische Partikel in der Größenordnung der Lichtwellenlänge [Mie, 1908] beschrieben werden kann.

Bild 4-2 zeigt Beispiele für Signale $P(r)$, die sich mit der Lidar-Gleichung 4-1 beschreiben lassen, für drei idealisierte Fälle: 1.) rein molekulare Luft ohne Aerosole und ohne Absorption bei der Laserwellenlänge (Rayleigh-Lidar), 2.) ein Gas mit einem auf einen bestimmten Entfernungsbereich beschränkten Konzentrationsprofil, das bei λ absorbiert (Absorptions-Lidar), und 3.) eine auf eine bestimmte Schicht (z.B. Wolke) begrenzte Aerosolkonzentration (Aerosol-Lidar).

4.1.2 Differentielles Absorptions-Lidar (DIAL)

Um das Konzentrationsprofil $N(r)$ eines Absorbergases aus einem Signalverlauf wie in Bild 4-2 (mitte) bestimmen zu können, benötigt man vor allem den Absorptionsquerschnitt $\sigma_{\text{gas}}(\lambda)$, muss aber auch die übrigen Parameter der Gleichungen 4-3 kennen. Die Rayleigh-Streukoeffizienten $\alpha^{(s)}$ und $\beta^{(s)}$ sind recht genau bekannt. Druck- und Temperaturprofile der Atmosphäre – und damit $N_{\text{mol}}(r)$ – können durch Extrapolation der Bodenwerte oder mit Hilfe von Wettersondendaten relativ genau abgeschätzt werden. Die Laserwellenlänge sollte wenn möglich so gewählt werden, dass sie keine Absorptionsbanden anderer Gase berührt. Jedoch macht die Unkenntnis über die Wirkung der Aerosole (Streuquerschnitte und Konzentrationen) die Bestimmung der Gaskonzentration zunächst unmöglich.

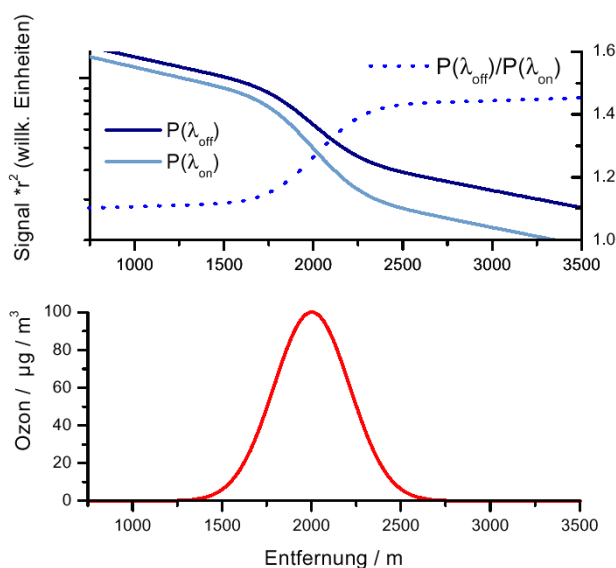


Bild 4-3. Prinzip der DIAL-Methode zur Bestimmung der Konzentration eines Spurengases. Aus Logarithmierung und Differenzierung des Quotienten zweier Signale bei leicht verschiedenen Wellenlängen (···) erhält man das Konzentrationsprofil unten.

Die DIAL-Methode löst dieses Problem, indem man statt einer Laserwellenlänge zwei aussendet (abwechselnd oder mit Signaltrennung in der Detektion), die so weit auseinanderliegen, dass bei der einen das Gas stark absorbiert (λ_{on}), bei der anderen nicht oder wesentlich schwächer (λ_{off}). Andererseits sollen sie so nah beieinander liegen, dass die übrigen atmosphärischen Parameter und Koeffizienten für beide annähernd gleich sind. Bei guter Justage der Strahlen ($C(r)$ gleich) folgt dann aus den Gleichungen 4-1 bis 4-3

$$\ln \frac{P(r, \lambda_{\text{off}})}{P(r, \lambda_{\text{on}})} = \ln \frac{P_L^{\text{off}} D(\lambda_{\text{off}})}{P_L^{\text{on}} D(\lambda_{\text{on}})} + 2 \int_0^r N_{\text{gas}}(r') [\sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{on}}) - \sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{off}})] dr' \quad (4-4)$$

und daraus die DIAL-Gleichung

$$N_{\text{gas}}(r) = \frac{1}{2\Delta\sigma_{\text{gas}}} \frac{d}{dr} \left[\ln \frac{P(r, \lambda_{\text{off}})}{P(r, \lambda_{\text{on}})} \right] \quad \text{mit} \quad \Delta\sigma_{\text{gas}} \equiv \sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{on}}) - \sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{off}}) . \quad (4-5)$$

Bild 4-3 zeigt dieses Verfahren anhand eines stilisierten Beispiels der Absorption durch Ozon, in dessen breiter Absorptionsbande (siehe Bild 4-10) $\sigma_{\text{gas}}(\lambda_{\text{off}})$ kleiner, aber nicht Null ist. DIAL ist größtenteils im nahen UV eingesetzt worden, um Luftschadstoffe, vor allem Ozon sowie SO_2 , NO, NO_2 und wenige aromatische Kohlenwasserstoffe (z.B. Toluol), zu messen. Im IR sind die Absorptionslinien sehr schmal, wodurch eine kleine Ungenauigkeit der Wellenlänge einen großen, schwer kontrollierbaren Fehler verursacht. Als durchstimmbare Laserquellen für λ_{on} und λ_{off} hat man Farbstofflaser, Ti:Sa-ns-Laser (Auswahl aus der breiten Emissionsbande über die Länge der Laserkavität und Frequenzverdreifung) [Stein et al., 1997], Festkörperlaser mit Raman-Zellen [Schoulepnikoff et al., 1997] und optisch parametrischen Oszillatoren (OPO) [Fix et al. 2002] verwendet.

Die DIAL-Technik wurde und wird erfolgreich eingesetzt und ist die Lidar-Technik, die – jeweils optimiert für ein einzelnes Spurengas – bisher am besten für zuverlässige Routine-messungen geeignet ist. Sie birgt aber auch spezifische Fehlerquellen bei der Auswertung der Signale. Die Annahme, dass sich die Wirkung der Aerosole bei beiden Wellenlängen nicht unterscheidet, ist in der Realität nie ganz richtig, vor allem wenn wegen der Form der Absorptionsbanden im UV λ_{on} und λ_{off} einen gewissen Mindestabstand haben müssen. Man versucht dieses Problem durch verbesserte Auswertelgorithmen zu vermindern [Immler, 2003]. Beim DIAL-Inversionsverfahren (Gleichung 4-5) wirken sich Signalschwankungen und Rauschen besonders stark aus. Auch diesem Problem, v.a. der deswegen beschränkten Reichweite, versucht man mit ausgefeilten numerischen Methoden zu begegnen [Stelmaszczyk et al., 2000].

4.1.3 Terawatt-Femtosekunden-Lidar – eine neue Dimension

Ein Terawatt-Femtosekundenlaser liefert einen weißen Laserstrahl. Mit dem Teramobile steht nun ein solcher Laser als mobile Einheit zur Verfügung. Bisher ging bei Lidar und verwandten Techniken der Trend zu immer schmalbandigeren Laserquellen, um die Messgenauigkeit zu erhöhen. Zur Zeit versucht man vor allem den Mangel an geeigneten Laserquellen für einige gewünschte Spektralbereiche (v.a. im IR) zu beheben. Mit dem Weißlicht-Laser ist nun ein großer Schritt in eine neue Richtung getan worden.

Die DOAS-Methode (*Differential Optical Absorption Spectroscopy*) [Platt, 1994] verwendet schon seit einiger Zeit weißes Licht für die Messung von Spurengasen. Dabei setzt man konventionelle Lichtquellen und Empfänger oder Reflektoren ein und analysiert das transmittierte Licht mit Spektrometern. Zuweilen besteht das DOAS-Gerät nur aus dem Empfangsteil, z.B. auf Forschungssatelliten, wenn das Sonnen- oder Mondlicht genutzt wird.

Die Idee des **Femtosekunden-Weißlicht-Lidar** (Abschnitt 4.2) ist es, die Vorteile von DOAS und Lidar zu kombinieren, das heißt breite Absorptionsspektren mit beliebig hoher spektraler Auflösung als Rückstreuung von Orten zu messen, die (bis zur jeweiligen Reichweite) frei wählbar sind. (Einen ähnlichen Ansatz verfolgten Povey et al. [1998], etwa zeitgleich mit den ersten fs-Lidar-Experimenten, mit breitbandigen (ca. 10 nm bis 20 nm) Farbstofflasern im UV und sichtbaren Bereich.) Im Vergleich zu DIAL ergeben sich einige mögliche Verbesserungen. Durch den bloßen Übergang von zwei zu vielen Wellenlängen, z.B. bei Messung mit niedriger Auflösung im UV, kann man den Fehler durch den Aerosoleffekt verringern und gleichzeitig Informationen über die Aerosolverteilung erhalten. Im IR wird aus dem Nachteil der schmalen Absorptionslinien (Fehler durch Schwankung von λ_{on} und λ_{off}) ein Vorteil, da das gemessene Spektrum bei hoher Auflösung gewissermaßen selbstkalibrierend ist und man viele Linien gleichzeitig messen kann. Auch Überlagerungen von Banden verschiedener Gase stellen somit kein Problem mehr dar. Während DIAL-Systeme auf eine oder wenige Substanzen ausgerichtet sind, steckt im fs-Weißlicht-Lidar das Potential zur **gleichzeitigen Erfassung vieler Spurengase**. Dies kann für die Erforschung dynamischer Prozesse in der Atmosphäre von großem Wert sein.

Yu et al. [2001] haben gezeigt, dass die Rückstreuung aus einem Filament deutlich höher ist als bei normaler Rayleigh-Mie-Streuung. Die Deutung dieses Phänomens schließt nicht aus, dass auch der Weißlichtpuls nach dem Ende der Filamente, der weiterhin sehr kurz ist und starke Intensitätsgradienten aufweist, eine erhöhte Rückstreuung erfährt. Dies könnte teilweise die geringere spektrale Pulsenergie des Weißlichts gegenüber monochromatischen Lasern kompensieren.

Etwas vollkommen Neues ist die Idee des **nichtlinearen Aerosol-Lidar** (Abschnitt 4.3.2). Hierbei nutzt man die nichtlineare Wechselwirkung des Lichts mit der Luft nicht nur indirekt, sondern man misst direkt die Emission aus der Wechselwirkung mit Aerosolen, also der in Luft suspendierten flüssigen oder festen Materie. Wie in Laborexperimenten, aber auch schon in ersten Feldversuchen gesehen wurde, trägt diese Strahlung in ihrem Spektrum und in charakteristischen Emissionswinkeln Informationen über die Partikel.

Die Idee SCG für Lidar zu nutzen wurde schon in [Alfano, 1989] formuliert. Zur Zeit existiert aber neben den Publikationen des Teramobile-Projekts – eingeschlossen die Vorarbeiten [Wöste et al., 1997; Rairoux et al., 2000] – nur eine Veröffentlichung einer japanisch-philippinischen Kooperation zu Femtosekunden-Lidar-Messungen [Galvez et al., 2002] (Dreiwellenlängen-Aerosol-Lidar mit Weißlicht aus einer Kryptonzele). Aber auch in anderen Ländern, v.a. Russland und USA, sind Projekte zur Nutzung von Femtosekundenlasern für atmosphärische Fernerkundung geplant oder bereits begonnen worden.

4.2 Absorption durch Gase – fs-Weißlicht-Lidar

Wie in Abschnitt 4.1.3 angekündigt beschäftigt sich dieser Abschnitt mit Lidar-Messungen, bei denen die klassische Laserfernerkundung durch das breite spektrale Kontinuum des Weißlichts von Terawattpulsen erweitert ist. Es werden Auswertemethoden und Ergebnisse zur Absorption durch Atmosphäregase vorgestellt. Eine grundlegende Annahme ist dabei, dass sich das Spektrum des Laserlichts ab einer bestimmten Höhe (im Folgenden SCG-Höhe genannt) nicht weiter durch nichtlineare Effekte verändert, sondern von dort bis zur Messhöhe und auf dem Rückweg zur Detektion nur durch die klassischen Wechselwirkungen mit dem Medium Luft beeinflusst wird. Wegen des gesammelten Wissens über die nichtlineare Ausbreitung der Pulse kann die SCG-Höhe jeweils abgeschätzt werden.

Die Aufteilung in die Abschnitte 4.2.1 und 4.2.2 begründet sich aus den physikalischen und daraus folgenden methodischen Unterschieden zwischen der molekularen Absorption im IR bzw. im UV (beide Arten reichen auch in den sichtbaren Bereich hinein). Bei Messungen im IR ist eine hohe spektrale Auflösung nötig, im UV ist eine niedrigere Auflösung zumeist sinnvoll. Der experimentelle Aufbau des fs-Weißlicht-Lidar entspricht dem des herkömmlichen Lidar (Bild 4-1), nur dass in die Detektion ein Spektrometer und gegebenenfalls ein Vielkanaldetektor integriert ist (siehe auch die Beschreibung des Teramobile-Detektionssystems in Abschnitt 1.3 bzw. Bild 1-9).

4.2.1 Hochaufgelöstes Absorptions-Lidar

In diesem Abschnitt werden Rotations-Schwingungsübergänge von Molekülgasen im IR behandelt. Jedem Übergang entspricht eine Absorptionslinie, die im Spektrum der Luft einzeln oder in Überlagerung mit anderen Linien sichtbar ist. Das jeweilige Gas g besitzt in der Luft eine bestimmte relative Teilchendichte $\tilde{N}_g := N_g/N_{\text{ges}}$, auch Volumenmischungsverhältnis (VMR) genannt. Der wellenlängenabhängige Absorptionsquerschnitt eines Gases ist die Summe aller Übergänge $\sigma(\lambda) = \sum \sigma_i(\lambda)$. Die Funktionen $\sigma_i(\lambda)$ hängen aber von äußeren Parametern ab und müssen berechnet werden. Dazu benötigt man eine Reihe von festen Koeffizienten zu jedem Übergang i . Für die 38 wichtigsten Atmosphärgase findet man die entsprechenden Werte in der HITRAN-Datenbank [Rothman et al., 2003], die über 100.000 Linien enthält. Die Rechnungen erfolgen in Wellenzahlen $\nu = 1/\lambda$.

Die wichtigste Größe eines Übergangs ist die Linienstärke, die in der Form $S = B_{12}h\nu/c$ vom Einstieffizienten der Absorption und der Übergangsenergie abhängt. Sie ist gleichzeitig das Integral des Absorptionsquerschnitts, also die Fläche der Absorptionslinie

$$S = \int_0^\infty \sigma(\nu) d\nu. \quad (4-6)$$

Bezieht man die Größen auf das Ensemble angeregter Moleküle, so hängt S von der Energie E'' des unteren Übergangszustandes und der Temperatur ab. Es gilt [Ehret et al., 1993]

$$S = S_0 \left(\frac{T_0}{T} \right)^{1,5} \exp \left[\frac{E''hc}{k} \left(\frac{1}{T_0} - \frac{1}{T} \right) \right] \quad (4-7)$$

mit $T_0 = 296$, der Planck-Konstanten h , der Boltzmann-Konstanten k und E'' in cm^{-1} . Um aus S die Funktion $\sigma(\nu)$ bestimmen zu können, braucht man weitere Annahmen. Wegen der Unschärferelation hat die Funktion mindestens die natürliche Linienbreite. In der Atmosphäre ist diese aber gegenüber der Doppler- und der Druckverbreiterung (auch Stoßverbreiterung genannt) vernachlässigbar klein. Wegen dieser beiden Effekte ist die Linienform ein Voigt-Profil, das heißt eine Faltung aus einer Gauß- (Doppler) und einer Lorentz-Funktion (Stöße). Bei Drücken über 100 hPa – solche herrschen in den unteren 15 km der Atmosphäre – kann auch die Doppler-Verbreiterung vernachlässigt werden. Dies erspart bei dem im Folgenden beschriebenen Auswertalgorithmus erhebliche Rechenzeit.

Die Linienform ist also ein Lorentz-Profil um ν_0 mit dem Integral S :

$$\sigma(\nu) = \frac{S}{\pi(\nu - \nu_0)^2 + \gamma^2} \quad \text{mit} \quad \gamma = \gamma_0 \frac{p}{p_0} \left(\frac{T_0}{T} \right)^n \quad (4-8)$$

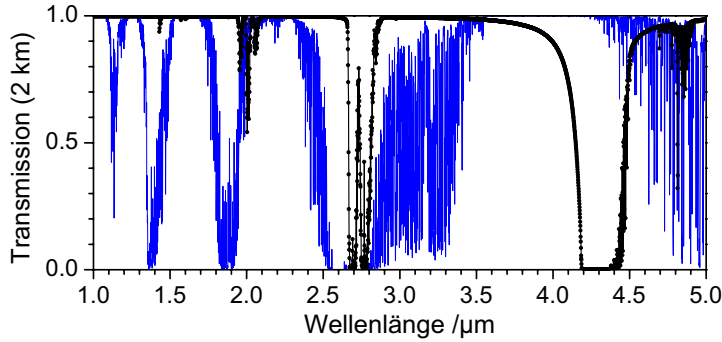


Bild 4-4. Die atmosphärischen „Fenster“. Transmission durch 2km Wasserdampf (—) und CO₂ (—•—) in Standardatmosphäre. Aus HITRAN-Daten berechnet. Auflösung 0,5 nm.

und $p_0 = 1013$ hPa. Der Exponent n der Temperaturabhängigkeit der halben Halbwertsbreite γ_0 ist eine empirische Größe zwischen 0,5 und 1 [Ehret et al., 1993]. Bei γ_0 unterscheidet HITRAN zwischen dem Wert für ein von Luft umgebenes Molekül (γ_{air}) und das reine Gas (γ_{self}). Es kann hier grundsätzlich mit γ_{air} gearbeitet werden, da entweder Spurengase mit geringem VMR gemessen werden oder – im Fall von Sauerstoff – γ_{air} und γ_{self} sich unwesentlich unterscheiden.

HITRAN enthält für jeden einzelnen Übergang den Parametersatz aus ν_0 , S_0 , γ_{air} , E'' und n (der Index i wurde in den obigen Gleichungen weggelassen, gemeint ist aber immer nur ein einzelner Übergang, d.h. eine einzelne Absorptionslinie). Mit diesen Größen kann nun aus den Gleichungen 4-7 und 4-8 der Absorptionsquerschnitt $\sigma_i(\nu)$ bzw. $\sigma_i(\lambda)$ berechnet werden, den jedes Gas bei einer bestimmten Temperatur und einem bestimmten Luftdruck hat. Aus der idealen Gasgleichung errechnet sich die gesamte Teilchendichte $N_{\text{ges}} = p/kT$. Mit dem Lambert-Beer-Gesetz (Gleichung 4-2) erhält man nun die Transmission durch die Luft bis zu einer Entfernung r als

$$\tau(r, \lambda) = \exp \left[- \int_0^r \sum_g \kappa_g(r', \lambda) dr' \right] \quad (4-9)$$

mit den Absorptionskoeffizienten

$$\kappa_g(r, \lambda) = \tilde{N}_g(r) \frac{p(r)}{kT(r)} \sum_i \sigma_{g,i}(\lambda, r), \quad (4-10)$$

wobei der Index g für die einzelnen Gase steht (die im untersuchten Spektralbereich Absorptionslinien besitzen) und i für deren einzelne Absorptionslinien. Die Linienspektren $\sigma_{g,i}$ hängen vom Ort r ab, da sie Funktionen des Drucks und der Temperatur sind. Wäre dies nicht der Fall, könnte man in Gleichung 4-9 eine gemittelte absolute Teilchendichte N_g verwenden und das Integral durch das Produkt $[\sum N_g \sigma_g(\lambda)] \cdot r$ ersetzen. Bild 4-4 zeigt Spektren von Wasserdampf ($\tilde{N} = 0,5\%$) und CO₂ ($\tilde{N} = 3,4 \cdot 10^{-4} = 340$ ppm), die auf diese Weise

für 2 km Atmosphäre bei Standardwerten für Temperatur und Druck (STP: 15°C, 1013 hPa) gerechnet sind. Im dargestellten Bereich des IR enthält die Datenbank 27.300 Wasserdampflinien.

Bei Lidar-Messungen in mehreren Kilometern Höhe ist die Verwendung von gemittelten Druck- und Temperaturwerten auf keinen Fall möglich, da die ungenauen Linienbreiten und Besetzungsverteilungen der Rotations-Schwingungszustände zu große Fehler in den berechneten Transmissionsspektren erzeugen. Daher wurde bei den im Folgenden beschriebenen Auswertungen die Atmosphäre in 100 m hohe Schichten eingeteilt, denen jeweils mittlere Druck- und Temperaturwerte zugeordnet wurden. (Näheres hierzu und weitere Details zur Auswertung der Absorptionsspektren siehe in Anhang B).

Hat man bei einer Lidar-Messung Spektren aus Höhen in gleichmäßigen Abständen von beispielsweise 50 m oder 100 m aufgenommen, kann man sukzessive die Konzentration der Gase in jeder Schicht differentiell bestimmen, ähnlich wie bei DIAL (Gleichung 4-5 in diskretisierter Form $\Delta[\dots]/\Delta r$). Bei den **Messungen an der Thüringer Landessternwarte** (TLS) wurden aber nur Spektren aus einzelnen Höhen über 4 km gemessen (Abschnitt 2.1.4). In einem solchen Fall muss beim Fit der Spektren eine Verteilung des zu messenden Gases auf die Höhenschichten angenommen werden. Außerdem kürzen sich die wellenlängenabhängigen Funktionen der Lidar-Gleichung 4-1 nicht heraus, wenn man die gesamte Transmission bis zu einer Entfernung r untersucht. Berechnet wird zunächst die Transmission $\tau(\lambda)$, gemessen wurde aber in einem Ausschnitt Λ des Spektrums das Signal

$$P_{\Lambda}(\lambda) = P_L(\lambda)D(\Lambda, \lambda)\xi(\Lambda)\tau(\lambda) , \quad (4-11)$$

wobei $P_L(\lambda)$ für das Weißlicht am Beginn der Absorptionsstrecke steht. Die Funktion ξ umfasst alle Streueffekte der Moleküle und Aerosole, bei denen man – vor allem im IR – davon ausgehen kann, dass sie im kleinskaligen Bereich nicht von der Wellenlänge abhängen. Die Detektoreffizienz D des Echelle-Spektrometers hat in jeder Ordnung eine Bogenform, die aber glatt verläuft (siehe Bild 2-12). Die Form des Weißlichts kann dagegen sehr wohl wellig sein (Abschnitt 3.4.2). $P_L(\lambda)$ und D müssen daher beim Fitten bestimmt werden, wofür hier ein spezielles Verfahren entwickelt wurde (siehe Anhang B). Falls ξ doch im gemessenen Spektrum kleinskalig variieren sollte, ist dies nicht von $P_L(\lambda)$ trennbar, es hat aber keine Wirkung auf den Fit, d.h. die Konzentrationsbestimmung der Absorbergase. Diese variable Funktion P_LD , die allgemeiner als $\tau=1$ -Linie bezeichnet werden kann, gibt hier eine Vorstellung von der spektralen Struktur des summierten Weißlichts von 3000 bzw. 6000 Terawattpulsen (siehe Bilder 4-5 und 4-7). (Bei DOAS wird die Funktion zusammen mit breitbandigen Anteilen von $\sigma(\lambda)$ durch Filtern eliminiert.)

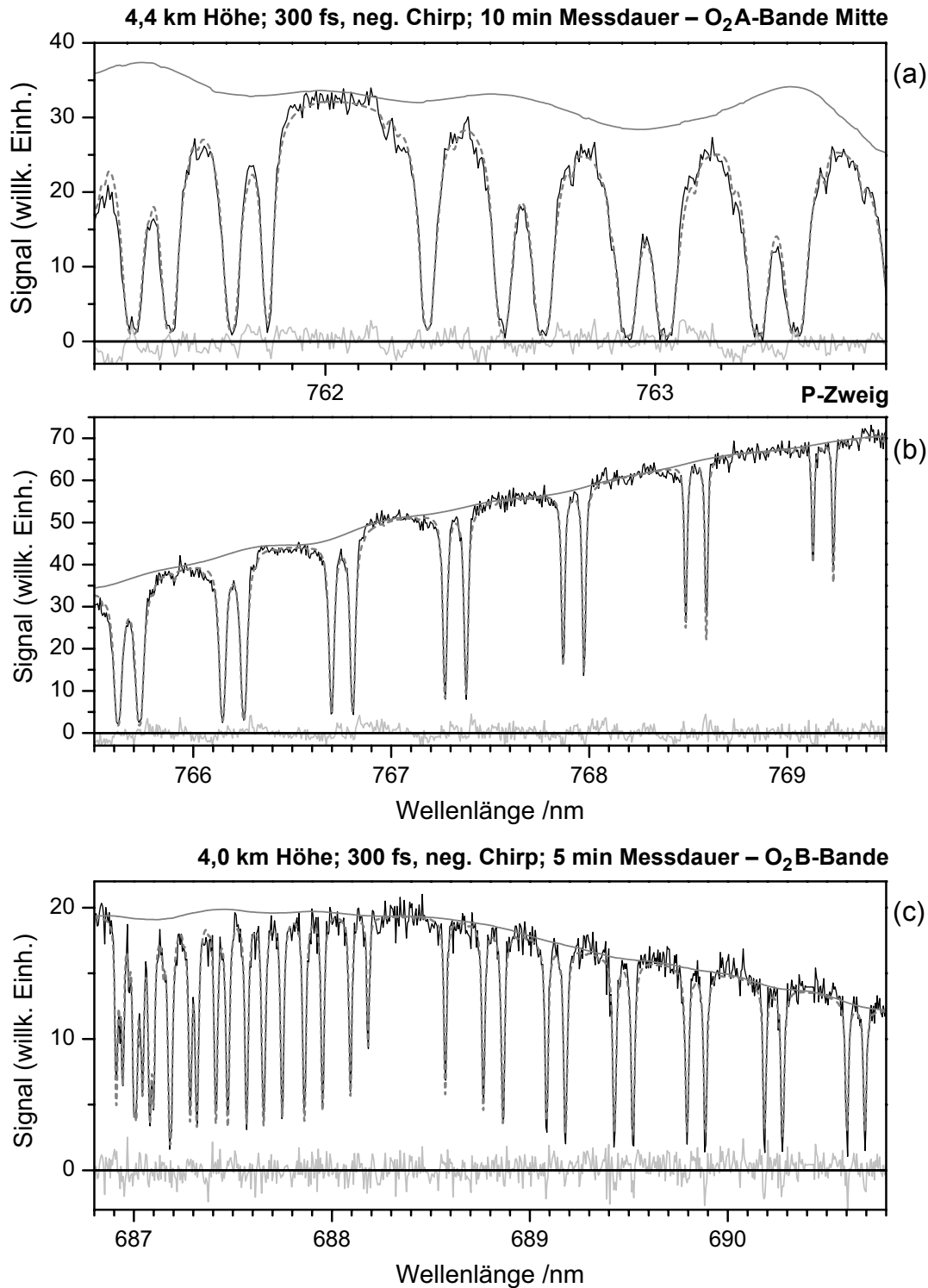


Bild 4-5. Sauerstoffabsorption auf dem Lichtweg bis in 4,4 km bzw. 4,0 km Höhe und zurück, abzüglich der SCG-Höhe. Energie der Laserpulse: 260 mJ (ca. 1 TW Anfangsleistung). (a) und (b) aus der selben Messung im IR-Kanal. (c) Messung im VIS-Kanal. Übergänge: $b^1\Sigma_g^+ \leftarrow X^3\Sigma_g^-$ (magn. Dipolübergang, elektr. dipol-verboden), O₂A: vib. $0 \leftarrow 0$, O₂B: vib. $1 \leftarrow 0$, Doppellinienstruktur wegen Auswahlregeln, keine Q-Zweige. Schwarze Linie: Messung, gestrichelte graue Linie: berechnete Transmission $\times \tau=1$ -Linie (grau), hellgrau um Nulllinie: Residuum. Im jeweiligen Ausschnitt wurde ein Untergrund beim Fitten abgezogen. In (c) ist der dargestellte Fit nur für am R-Zweig (links) durchgeführt worden (Untergrund nicht konstant).

Die Konzentration (VMR) von **Sauerstoff** liegt in jeder Höhe konstant bei 20,9%. Die Auswertung seiner Absorption kann daher zur Bestimmung anderer Parameter bzw. zur Überprüfung von Annahmen dienen. Für den Temperaturverlauf mit der Höhe gilt in der Standardatmosphäre $dT/h = -6,5 \text{ K/km}$, ausgehend vom Bodenwert T_b bei $h = 0$. Die Druckverteilung hängt im Wesentlichen nur vom Wert am Boden ab und zusätzlich leicht von der Temperatur in jeder Höhe (siehe Anhang B). Der Druck ist auf diese Weise genau bekannt, der oben genannte Temperaturverlauf ist aber nur eine grobe Näherung, da vor allem in der unteren Atmosphäre wärmere oder kältere Schichten auftreten können. Daher wurde bei den Fits der Sauerstoffspektren T_b als Variable behandelt.

Bild 4-5 zeigt Fitbeispiele aus zwei Messungen von Rückstreuenspektren aus 4,0 km bzw. 4,4 km Höhe. In diesen Ausschnitten treten nur Linien des Sauerstoffs auf (verbotene Übergänge mit $\sigma_{\max} = 5 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^2$, siehe nähere Angaben in der Bildunterschrift). Erkennbare kleine Linien neben den Hauptlinien gehören zu den selteneren Isotopen $^{16}\text{O}^{18}\text{O}$ und $^{17}\text{O}^{18}\text{O}$, wobei deren Mischungsverhältnis (0,4% bzw. 0,07%) bei HITRAN im Wert der Linienstärke enthalten ist. Die gemessenen Spektren haben eine sehr hohe Auflösung, eine geringe Geräteverbreiterung muss jedoch in die Rechnung eingehen. Die Verbreiterung ist mit ca. 10 pm (volle HWB) nur etwa gleich groß wie die Druckverbreiterung der Linien, trotzdem stellt sie eine kritische Fitgröße dar (Anhang B).

Wegen der Pulslänge von 300 fs mit negativem Chirp bei den in Bild 4-5 dargestellten Messungen wurde bei den Fits zunächst eine SCG-Höhe von 500 m angenommen. Dies lieferte bei allen die Bodentemperatur $T_b = (287 \pm 1) \text{ K}$. Gleichzeitige Fits beider Parameter in den Ausschnitten (a) und (b) liefern tatsächlich eine SCG-Höhe von $(550 \pm 200) \text{ m}$ und die genannte Temperatur. Beim Fit der O_2B -Bande streuen die Werte stärker, vor allem im P-Zweig (rechts). Im Bild ist das Ergebnis des Fits des R-Zweigs dargestellt. Er liefert ebenfalls 287 K bei ca. 400 m SCG-Höhe. Benutzt man die gesamte Bande ist der Fehler groß, obwohl ein großer Fitbereich grundsätzlich eine bessere Statistik liefern sollte. Hier spielt allerdings der Untergrund (Detektoreffekte, Streulicht im Spektrometer) eine Rolle. Er wurde zwar an der TLS routinemäßig abgezogen, allerdings mit ungenügender Genauigkeit. Bei den Fits wurde jeweils der verbleibende Untergrund als konstanter Wert im jeweiligen Fitausschnitt abgezogen. Da dies aber für die gesamte Bande nicht korrekt ist (siehe Anteil der Linien im Residuum von Bild 4-5 c), wird ein sehr breitbandiger Fit fehlerhaft.

Das Ergebnis von T_b ist nicht die tatsächliche Temperatur am Boden, sondern eine Referenz für die Berechnung der Absorption. Die Außentemperatur lag zu Messzeit bei 9°C (282 K). Die Abweichung des ermittelten Werts 287 K kann man sich erklären, wenn man die Ballonsondendaten von 24:00 MEZ in der Messnacht aus Meiningen (ca. 100 km süd-

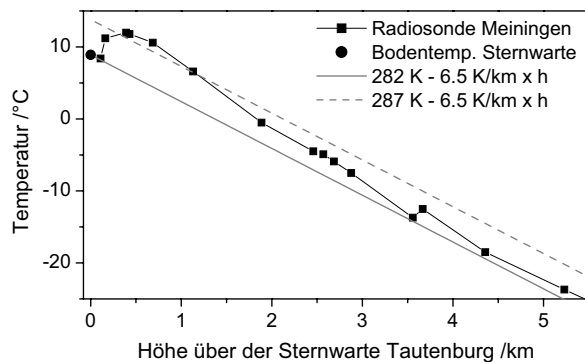


Bild 4-6. Vergleich der Wettersondendaten aus Meiningen (12.03.2002, 24:00 MEZ) mit dem Standardtemperaturverlauf ausgehend von der Außentemperatur während des Experiments (282 K) bzw. der Fitttemperatur 287 K. Die Höhenwerte aus Meiningen (450 m ü. NN.) sind auf die Höhe über der TLS (341 m ü. NN.) umgerechnet.

westlich von Tautenburg) heranzieht (Zeitraum des Experiments 22:00 bis 02:00, der Messungen in Bild 4-5 (a,b) 23:00, (c) 22:15). Der Vergleich in Bild 4-6 soll nur zeigen, dass die ermittelte Temperatur als Referenzwert für einen Standardverlauf realistisch ist, da in der Region während der Messnacht eine Warmluftschicht auftrat (man beachte, dass die unteren 2,5 km der Atmosphäre knapp 70% der Luftmasse der unteren 5 km beinhalten).

Zusammenfassend kann man $T_b = (287 \pm 1)$ K und $h_{SCG} = (550 \pm 100)$ m als Referenzwerte festhalten. Der Höhenwert ist hier – ähnlich wie T_b – ein „technischer Wert“ des Fits und hat als solcher einen geringeren Fehler als der oben genannte. Zur sicheren und genauen Bestimmung der „realen“ SCG-Höhe ist diese Auswertung nicht geeignet, da die Länge des abzuziehenden ersten Stücks des Absorptionswegs von den Annahmen bei den Atmosphären- und Fitparametern abhängt.

Zum Vergleich wurde eine Messung von 01:00 Uhr, bei der die Pulsparameter mit 600 fs und positivem Chirp sehr verschieden waren, entsprechend wie in Bild 4-5 (a,b) ausgewertet. Das Licht wurde bei dieser Messung aus 5,4 km Höhe zurückgestreut. Die Außentemperatur war zwischenzeitlich auf 8°C gesunken. $T_b = 287$ K liefert hier eine SCG-Höhe von (100 ± 100) m, bei $T_b = 286$ K erhält man (250 ± 100) m. Allerdings sind dies nicht Ergebnisse eines absoluten Fits beider Parameter. Versucht man einen solchen, so erhält man wegen verschiedener Fehlerquellen (schwankender Untergrund, schlechteres Signal-zu-Rauschverhältnis als bei den Messungen in Bild 4-5) je nach spektralem Ausschnitt SCG-Höhen zwischen 0 m und 1000 m, wobei die Temperatur aber zum Teil unrealistische Werte annimmt. Eine SCG-Höhe von 100 m bis 200 m bei verlängerten Pulsen mit positivem Chirp ist nach den Ergebnissen aus Abschnitt 3.3.3 sinnvoll.

Bei der Auswertung der **Absorption durch Wasserdampf** wurden nun die Referenzwerte für Temperatur und SCG-Höhe aus der Sauerstoffauswertung verwendet, und zwar jeweils die zur selben Messung gehörenden. In Bild 4-7 sind Beispiele von Fits in verschiedenen

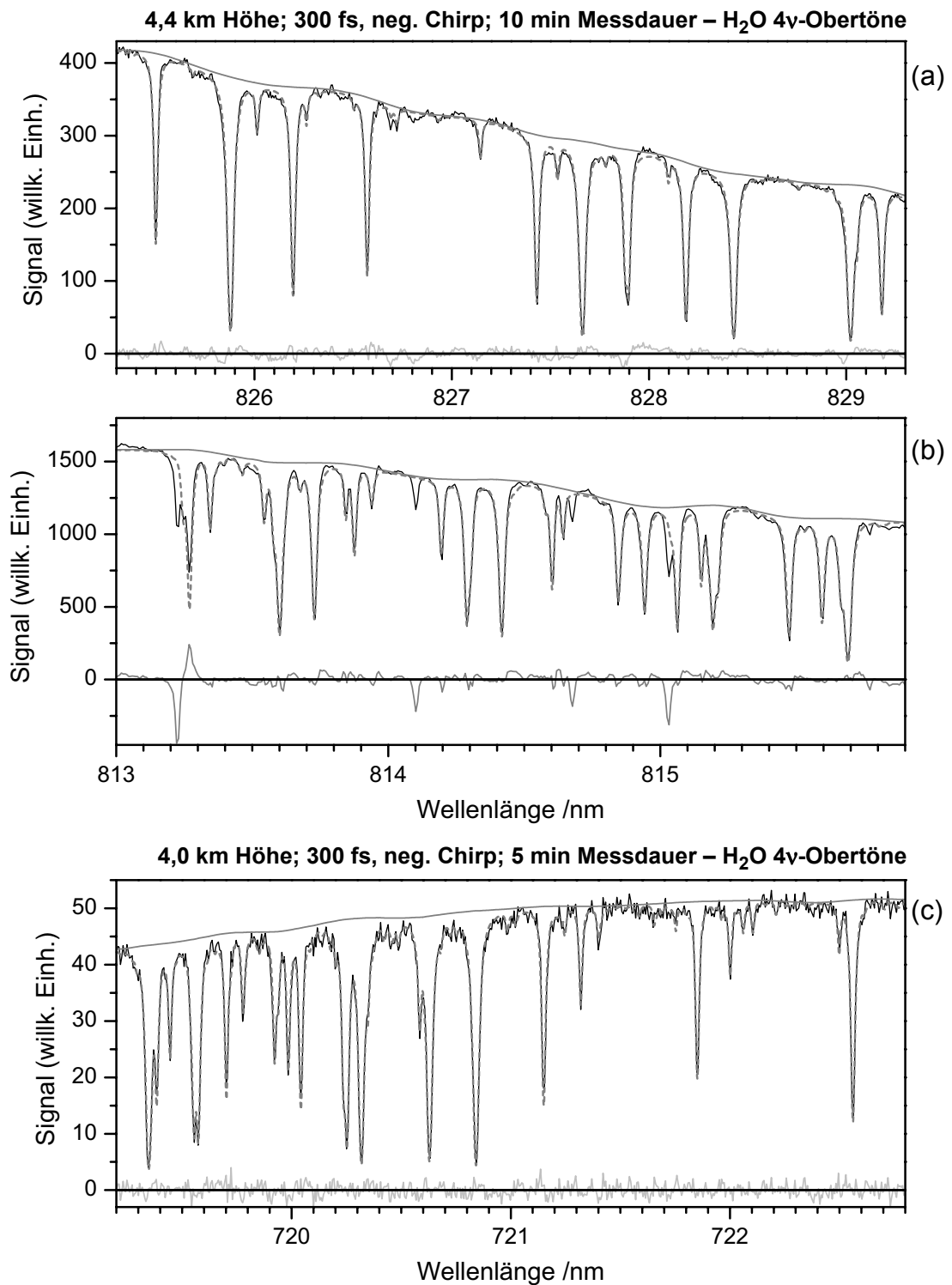


Bild 4-7. Wasserdampfabsorption auf dem Lichtweg bis in 4,4 km bzw. 4,0 km Höhe und zurück, abzüglich der SCG-Höhe. Messungen (a,b) bzw. (c) und Auswertung jeweils analog zu Bild 4-5. Ausschnitte aus größeren Absorptionsbereichen (siehe Übersicht in Bild 2-13). (a,b) Überlagerung der Banden verschiedener Schwingungsanregungen, hauptsächlich $(211) \leftarrow (000)$. (c) Schwingungsanregung $(301) \leftarrow (000)$. Ursache des Unterschieds von ca. 100 nm ist die etwa halb so große Energie der Grundschiwingung ν_2 (Biegung) des H₂O-Moleküls im Vergleich zu den anderen beiden (Streckung der O-H-Bindungen).

spektralen Ausschnitten gezeigt. Die zwei dargestellten Messungen (a,b) und (c) sind dieselben wie in Bild 4-5 (O_2A und H_2O -(211) im IR-Kanal bzw. O_2B und H_2O -(301) im VIS-Kanal). Bei der Variation der Konzentration (VMR) des Wasserdampfs muss ähnlich wie bei Druck und Temperatur eine Vorannahme gemacht werden. Wegen der mit der Höhe abfallenden Temperatur nimmt auch $\tilde{N}_{\text{H}_2\text{O}}$ stark ab (nicht nur der absolute Partialdruck $p_{\text{H}_2\text{O}} = p\tilde{N}_{\text{H}_2\text{O}} = N_{\text{H}_2\text{O}}kT$). Am ehesten konstant ist die relative Luftfeuchtigkeit (r.H.). Daher wurde sie als Fitvariable verwendet, wobei jeweils für alle 100 m hohen Atmosphärenschichten das VMR aus Druck, Temperatur und der Dampfdruckkurve von Wasser berechnet wurde (Anhang B).

Für die SCG-Höhe 550 m und $T_b = 287\text{ K}$ liefern die Fits in Bild 4-7 die relative Luftfeuchte ($49 \pm 3\%$). Der Fehler kommt aus zwei unabhängigen Quellen: der Auswertung in verschiedenen spektralen Ausschnitten der beiden Messungen und der Unsicherheit von h_{SCG} ($\pm 100\text{ m}$ entspricht ca. $\pm 1,2\%$ r.H.). Die Variation der Temperatur um $\pm 1\text{ K}$ führt beim Fit zu $\pm 3,3\%$ r.H. Da sich diese beiden Abweichungen bei der Umrechnung in VMR genau kompensieren, kann man die Temperatur bei der Fehlerabschätzung der VMR (in Bild 4-8 durch Δ und ∇ gekennzeichnet) ausklammern. Das berechnete VMR von Wasserdampf liegt im Mittel etwas über den Wettersondendaten aus Meiningen – dies gilt in gleicher Weise für den absoluten Wasserdampfgehalt, da die Luftdichte (v.a. der Druck) in beiden Fällen annähernd gleich ist. (In 3 km Höhe lag vermutlich eine Wolkenschicht über Meiningen. In Wolken messen Radiosonden häufig fehlerhafte Taupunktwerte.) Bei der relativen Feuchte stimmt das Ergebnis von 49% eher mit dem Mittelwert der Sonde bis ca. 4 km überein (Bild 4-8 b). Dies kann so verstanden werden, dass die r.H. in der Region

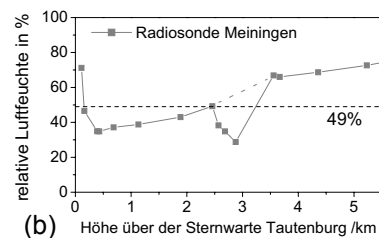
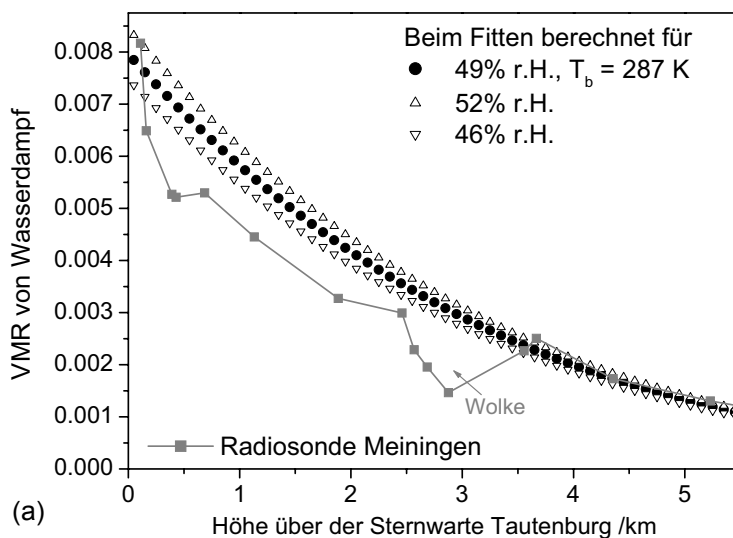


Bild 4-8. Wasserdampfgehalt in der Atmosphäre. Ergebnis der Absorptionsfits bei Annahme einer konstanten relativen Luftfeuchte und Vergleich mit Wettersondendaten. (a) Volumenmischungsverhältnis. (b) Relative Luftfeuchte.

während der Nacht etwa konstant war, die Temperaturen über der Sternwarte aber etwas höher waren als beim Sondenaufstieg in Meiningen (vergleiche Bild 4-6). Dies hat eine größere absolute Feuchte (VMR) zur Folge.

Die 5,4km-Messung (positiver Chirp) liefert im Mittel 50% r.H. Die Tendenz zu etwas höheren Werten als bei Messungen bis 4 km oder 4,4 km passt zu den Sondendaten (Bild 4-8 b). Im Prinzip kann die **lokale Konzentration** zwischen 4,4 km und 5,4 km differentiell bestimmt werden, der Unterschied, der im Bereich des Fehlers liegt, ist aber zu gering. Das Ergebnis bestätigt daher lediglich die Gültigkeit der Annahmen auch für den oberen Kilometer.

Wenn ein reines Wasserabsorptionsspektrum ein geringes Rauschen hat und geringe Auswertefehler auftreten (z.B. Vermeidung des Verbreiterungsfehlers durch sehr hohe Auflösung) kann man im Prinzip auch die Temperatur gleichzeitig mit $N_{\text{H}_2\text{O}}$ fitten, da sie einen Einfluss auf $\sigma(\lambda)$ hat. In der Praxis wird dies aber selten mit großer Genauigkeit möglich sein, da wie gesehen Korrelationen zwischen den Fitparametern auftreten. In der Möglichkeit ein **Referenzgas** (Sauerstoff) mit **bekannter Konzentration** messen zu können liegt also ein großer Vorteil des Weißlicht-Lidar.

Obwohl ein absolut exakter Fit nicht möglich ist, zeigt sich in Bild 4-7 eine bemerkenswerte Übereinstimmung von Messung und Rechnung. Die Spitzen im Residuum bei Fit (b) sind eindeutig Signaturen von Linien. Diese fehlen in HITRAN (bzw. in einem Fall ist die Linienstärke in der Datenbank zu groß). Weitere Linien dieser Art wurden aber im gesamten Messbereich nicht gefunden. Die Linie bei 814,1 nm hat einen maximalen Absorptionsquerschnitt von $4 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$. In der Messung sind aber Linien mit $\sigma \approx 2 \cdot 10^{-24} \text{ cm}^2$ noch deutlich sichtbar. Man bedenke, dass 9 km für Wasserdampf, der nicht in hoher Konzentration präpariert werden kann, eine sehr lange Absorptionsstrecke darstellen. Eine vergleichbare Strecke ist im Labor nur mit viel Aufwand zu realisieren (Mehrfachreflexion).

Wasserdampf spielt in der Atmosphäre eine entscheidende Rolle für das Wetter, den Strahlungshaushalt der Erde (Treibhauseffekt, Klima), aber auch in physikalischen und chemischen Prozessen. An der präzisen Fernerkundung seiner Konzentration besteht durchaus Interesse [Ehret et al., 1993; Wulfmeyer und Bösenberg, 1998]. Bei der Messung mit DIAL gibt es aber neben dem angesprochenen Problem der schmalen Absorptionslinien bei Verwendung monochromatischer Laser eine weitere Schwierigkeit. Eine einzelne Absorptionslinie ist hinsichtlich ihrer Stärke nur für einen bestimmten Mengenbereich des Absorbergases (abhängig von VMR, Luftdruck, d.h. Höhe, und Absorptionsstrecke) geeignet, da sie sich außerhalb davon entweder zu wenig vom Rauschen abhebt

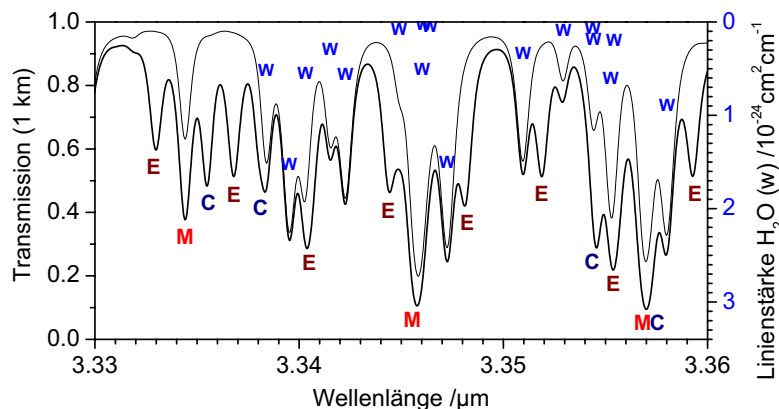


Bild 4-9. Simulierte Weißlicht-Lidar-Messung mit (erhöhtem) Auftreten von Ethan (E, 0,5 ppm), Methan (M, 5 ppm) und Chlorwasserstoff (C, 1 ppm) auf einer Strecke bis $r = 500$ m. Dünne Linie: „saubere“ Luft, 0,3% H₂O (w: Lage und Stärke der Linien $> 2 \cdot 10^{-26}$ cm² cm⁻¹) und 1,7 ppm CH₄. Auflösung 0,5 nm.

oder in Sättigung befindet. Solche Probleme treten beim fs-Weißlicht-Lidar nicht auf. Die Messung muss noch nicht einmal spektral genau kalibriert sein.

Im Laborversuch (Abschnitt 2.4.1) konnte ein weiteres wichtiges Atmosphärgas, Methan (CH₄) bei etwa 1,6 μm gemessen werden. Es ist im Wesentlichen eine technische Herausforderung auf Seiten der Detektion, diese Messung unter realen Bedingungen in der Atmosphäre zu wiederholen. Zur Zeit besteht noch ein Mangel an schnellen Mehrkanal-detektoren für IR-Licht. In naher Zukunft ist aber mit Fortschritten auf diesem Gebiet zu rechnen.

Aus den hier präsentierten Auswertungen kann man folgern, dass es kein Problem darstellt im IR **mehrere Gase gleichzeitig** zu messen, auch wenn ihre Banden überlappen. Unter Umständen ist die Überlappung sogar förderlich, indem sie die Messung vereinfacht und die Genauigkeit erhöht. In Bild 4-9 ist eine simulierte Weißlicht-Lidar-Messung für ein Schadstoffszenario auf einer Strecke bis zu einem 500 m entfernten Punkt dargestellt. Der spektrale Ausschnitt befindet sich am Rand eines der so genannten atmosphärischen Fenster (siehe Bild 4-4). Für das Vergleichsspektrum (dünne Linie), das gewissermaßen die Standardatmosphäre wiedergibt, wurde die bekannte Hintergrundkonzentration von Methan ($1,7 \cdot 10^{-6} = 1,7$ ppm), das in der Rangliste der Treibhausgase gleich nach CO₂ kommt, und 0,3% (VMR) Wasserdampf eingestellt. Beide Spektren beinhalten eine Geräteverbreiterung von 0,5 nm, um die Auflösung eines typischen IR-Spektrometers zu simulieren. Die erhöhte Konzentration der Kohlenwasserstoffe im Fall der Luftverschmutzung könnte eine unsaubere Verbrennung von Treibstoff als Ursache haben, bei der Ethan (C₂H₆) typischerweise mit einem Sechstel der CH₄-Menge auftritt [Measures, 1984]. Ethan

hat im Gegensatz zu Methan keine biologischen Quellen. Es wird daher bei der Förderung fossiler Brennstoffe als Indikator optisch gemessen (Quelle: shell-me.com). Zusätzlich tritt Chlorwasserstoff (HCl) – ein Gas, dem Atmosphärenforscher viel Aufmerksamkeit schenken – mit 1 ppm auf (typisch in einer verschmutzten Atmosphäre [Measures, 1984]). HCl kann in Reaktionsabläufen mit flüchtigen Kohlenwasserstoffen (VOC) wie Ethan eine Rolle spielen [Rudic et al., 2002]. An der Messung der VOC besteht großes Interesse, da sie Mitverursacher der sommerlichen Ozonbelastung sind. Seit einiger Zeit wird versucht sie mit durchstimbaren Lasern im IR zu detektieren [Gardiner et al., 1997].

In diesem Abschnitt wurde demonstriert, dass mit dem Weißlicht-Lidar die Konzentration von Wasserdampf bzw. die mittlere relative Luftfeuchtigkeit (im Rahmen des verwendeten Atmosphärenmodells) mit einem Fehler von ungefähr 6% bestimmt werden konnte. Solch ein Grad der Genauigkeit ist bei Sauerstoff und Wasserdampf sinnvoll und wünschenswert. Wenn es aber darum geht Schadstoffe zu detektieren, d.h. zunächst ihr Vorhandensein (in erhöhter Konzentration), ist auch ein weit größerer Fehler akzeptabel. Grundsätzlich verschlechtern sich die Messbedingungen je weiter man ins IR vordringt, nicht nur aus den genannten technischen Gründen, sondern natürlich auch wegen der abnehmenden Weißlichtintensität und des geringeren Rückstreuoeffizienten β der Luft (gilt für Moleküle, weniger für Aerosol). Daher ist es für die Zukunft eine außerordentlich interessante Aufgabe die **erhöhte Rückstreuung** [Yu et al., 2001] von **weit entfernten Filamenten** nachzuweisen und für Lidar zu nutzen.

4.2.2 Breitbandabsorptions-Lidar

Bei Absorptionsbanden im UV zeigen die Spektren weder einzelne Linien noch liegen Absorptionsdaten in Form einzelner Linien vor. Wie hier im Fall von **Ozon** verwendet man zur Auswertung Absorptionsquerschnittsdaten aus präzisen Labormessungen (Bild 4-10). Die Temperaturabhängigkeit von $\sigma(\lambda)$ ist bei den Bedingungen und der Genauigkeit der Messungen, um die es hier geht, absolut vernachlässigbar. Somit lassen sich aus den dargestellten Daten direkt der Absorptionskoeffizient und die Absorption nach den Gleichungen 4-10 und 4-9 berechnen.

Bei den UV-Lidar-Messungen in Lyon (Abschnitt 2.2) wurde schon beim Betrachten der einzelnen Signale vermutet, dass eine **wellenlängenabhängige Divergenz** des Strahls vorlag (siehe Bild 2-16). Dies ist auch nach den Erkenntnissen aus Abschnitt 3.3.4 zu erwarten, speziell für den Fall, dass man den Strahl zum Zweck einer effizienten Erzeugung von UV-Licht fokussiert (in Lyon $f = 18$ m). Da hierbei die Strahldivergenz die Größenord-

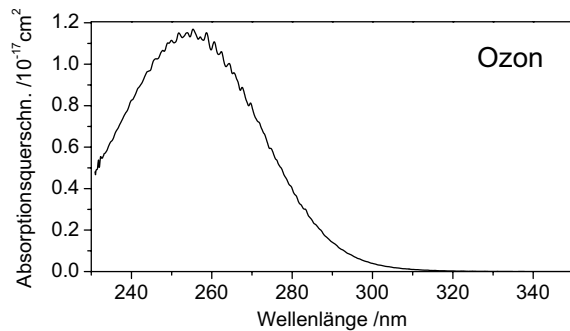


Bild 4-10. Absorptionsquerschnitt von Ozon im UV bei 293 K. Daten aus [Burrows et al., 1999].

nung des Sichtfelds (FOV) des Lidar-Teleskops von $1,7 \times 8,3$ mrad erreicht oder sogar übersteigt und man die Lidar-Signale in geringen Höhen auswerten möchte (die Reichweite ist wegen der starken Absorption und Extinktion ohnehin nicht groß), muss die geometrische Kompression in die Auswertung einbezogen werden.

Ein Fit der geometrischen Kompression der Lidar-Signale auf den unteren 300 m – unter der Annahme von Gauß-Profilen bei jeder Wellenlänge – liefert die in Bild 4-11 dargestellte Divergenzkurve. Die Bodenkonzentration von Ozon wurde hierbei berücksichtigt, hat aber keinen großen Einfluss auf den Fit. Der Strahl ist dabei um 0,8 mrad zur Teleskopachse geneigt (bei dem Abstand zwischen Laser und Teleskop von 80 cm entspricht dies einer Kreuzung der Achsen in 1 km Höhe). An der Wellenlänge, die dem Zentrum der B-Filterbande entspricht, stimmt die Kurve sehr gut mit dem Ergebnis aus Abschnitt 3.3.4 überein (Wert für $f=18$ m in Bild 3-34). Zwischen 300 nm und 450 nm ist ein konstanter Abstand zur Winkelkurve der konischen Emission gegeben, der durch Faltung des Einzel-filamentprofils mit der Divergenz des Filamentbündels bei Fokussierung entsteht (siehe Bilder 3-19 und 3-20). Die Abweichung von diesem Verhalten zwischen 240 nm und

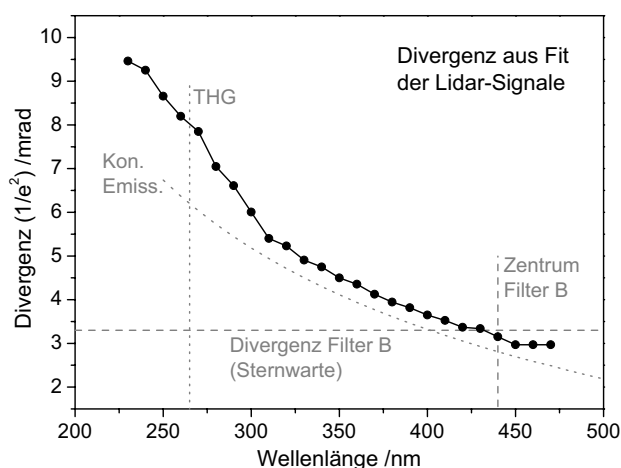


Bild 4-11. Wellenlängenabhängige Divergenz des fokussierten Strahls ($f=18$ m) bestimmt durch Fit der geometrischen Kompression. Zum Vergleich sind der entsprechende Wert aus Bild 3-18 (3,3 mrad) für Filter B (390–480 nm), die CE-Kurve aus Bild 3-34 und die THG-Wellenlänge eingezeichnet.

300 nm könnte ein Anzeichen für die Erzeugung einer rein konischen dritten Harmonischen sein, die in Abschnitt 3.5.2 gezeigt worden ist. Diese würde in der Summe mit dem Weißlicht in diesem Spektralbereich eine Überhöhung der scheinbaren (gaußschen) Divergenz bewirken. Wie realistisch die mit der Annahme gaußförmiger Profile bestimmte spektrale Strahlform ist, bleibt schwer zu beurteilen. Sie muss hier aber in die Auswertung einbezogen werden. Am sinnvollsten wäre es, bei zukünftigen Messungen ihren Einfluss auf die geometrische Kompression und damit die Signale zu reduzieren.

In Bild 4-12 (oben) ist die Situation der geometrischen Kompression bei der UV-Lidar-Messung angedeutet. (Man beachte, dass die relative Bewegung des Strahlprofils, die eine Folge des Neigungswinkels und vor allem der Divergenz selbst ist, sich in dieser Ansicht mit zunehmender Höhe stark verringert. Die schwarzen Ringe entsprechen 600 m, bei 1000 m liegen sie konzentrisch mit dem Spalt.) Man erkennt, dass diese Lage des FOV ungünstig ist, auch wenn die Größe der Ringe etwas täuschen kann (die größte Lichtmenge befindet sich in der Mitte, z.B. entspricht der innere Ring der vollen HWB bei einer Divergenz von 3,4 mrad, also etwa dem Wert für 400 nm). Durch bloßes Drehen des Spektrometers, dessen Spalt in der Fokalebene des Teleskops lag, hätte man die wellenlängenabhängige Variation der geometrischen Kompression und damit die Unsicherheit deutlich verringern können (Bild 4-12 unten). Außerdem wären alle Wellenlängen schneller in das FOV eingetreten.

Die Größe der Divergenz des Strahls – besonders des UV-Anteils –, die geometrische Kompression und die Unsicherheit über die genaue spektrale Verteilung im Strahl verursachen erhebliche Probleme für die Auswertung. Im Prinzip wären die Messungen aus

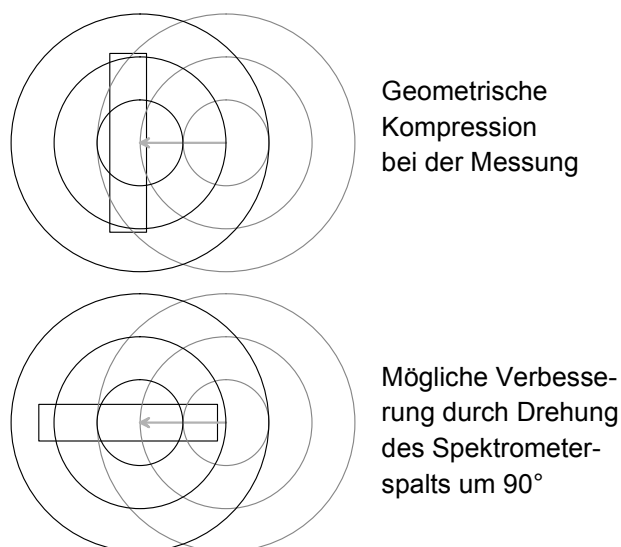


Bild 4-12. Maßstabsgenauer Vergleich des Strahlprofils (Ringe bei 2, 4 und 6 mrad Halbwinkel) mit dem FOV des Teleskops ($1,7 \times 8,3$ mrad, gegeben durch den 2×10 mm großen Spektrometerspalt). Übergang von ca. 150 m zu 600 m Höhe (Strahl 0,8 mrad zum Teleskop geneigt, konzentrische Lage der Ringe mit rechteckigem FOV bei 1000 m).

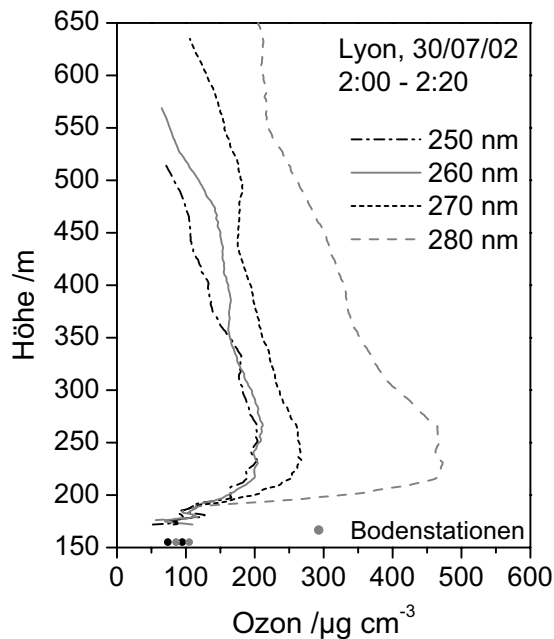


Bild 4-13. Auswertung der Ozonkonzentration aus Lidar-Signalen bei verschiedenen Wellenlängen ohne Aerosolkorrektur. Die jeweilige Reichweite hängt vom Signal-zu-Rauschverhältnis der Lidar-Signale ab (vgl. Bild 2-16). Die Bodenwerte (schwarze und graue Punkte) stammen von zwei Messstationen (COPARLY), die niedrigeren von 2:00 Uhr, die höheren von 3:00 Uhr.

Abschnitt 2.2 durch einen Multi-Fit der Ozonkonzentration (unter Verwendung der bekannten Rayleigh-Größen) aus den Lidar-Signalen aller Wellenlängen auszuwerten, indem die Aerosolparameter gleichzeitig angepasst würden. Dabei wären zuerst Anfangsbedingungen der Aerosolrückstreuung $\beta_{\text{aer}}(h)$ und -extinktion $\alpha_{\text{aer}}(h)$ aus Signalen zu bestimmen, deren Wellenlänge außerhalb der Ozonbande liegt. Der Multi-Fit würde also eine vollständige Berechnung der Transmission bei jeder Wellenlänge beinhalten. Die absolute Intensität der Signale in Relation zueinander spielt dabei keine Rolle. Das heißt, dass spektrale und zeitliche Veränderungen der Laserleistung oder der Detektionseffizienz sich nicht auswirken. (Alternativ könnte eine Multi-DIAL-Auswertung mit mehreren Wellenlängenpaaren durchgeführt werden, wobei gegenüber einer normalen DIAL-Messung die Aerosolkorrektur verbessert werden könnte.) Ein Multi-Fit unter Einbeziehung der Aerosole hat sich hier aber wegen der geschilderten Probleme als bisher nicht durchführbar erwiesen. Daher wird hier eine exemplarische Auswertung einzelner Signale aus der 2:00 Uhr-Messung, die auch für die Darstellungen in Abschnitt 2.2 verwendet wurde, ohne Berücksichtigung des Aerosols gezeigt. Bei den Wellenlängen mit der stärksten Ozonabsorption ist der Fehler aus der Vernachlässigung von α_{aer} klein, dafür ist die Reichweite gering. In den unteren 600 m ist außerdem nicht mit einer großen Variation von β_{aer} zu rechnen, die die Auswertung der Absorption verfälschen würde.

Bild 4-13 zeigt das Ergebnis für vier Wellenlängen bis etwa 600 m. Bei 270 nm kommt möglicherweise die besondere Problematik der geometrischen Kompression in Verbindung

mit der THG zum tragen. Ein Herauslaufen der dritten Harmonischen aus dem FOV (vergleiche Bild 4-12 oben) würde zu einer Überschätzung der Ozonabsorption führen. Bei größeren Wellenlängen erscheint die Ozonkonzentration überhöht, da wegen des kleineren Absorptionsquerschnitts von Ozon die Aerosolextinktion das Ergebnis zunehmend verfälscht. Am ehesten kann man also den Konzentrationsprofilen aus den Signalen bei 250 nm und 260 nm vertrauen, allerdings weiterhin unter dem Vorbehalt eines möglichen Fehlers in der verwendeten geometrischen Kompression.

In der niedrigsten Auswertehöhe stimmen die Ergebnisse gut mit den Werten zweier nahegelegener Stationen des Lyoner Messnetzes COPARLY überein. Die Bodenkonzentration des Ozon war nach einem abendlichen Absinken auf Werte unter $10 \mu\text{g}/\text{cm}^3$ in der Nacht wieder bis fast auf die Spitzenwerte vom Mittag (100 bis $140 \mu\text{g}/\text{cm}^3$) angestiegen. Es ist bekannt, dass ohne Sonneneinstrahlung die Stickoxide aus den Autoabgasen das Ozon – im umgekehrten Prozess zu seiner Erzeugung – wieder abbauen. Das am Tag produzierte Ozon kann aber in höheren Luftschichten gespeichert bleiben. Das Messergebnis in Bild 4-13 deutet darauf hin. Durch Absinken der Luftmassen könnte dann die für nachts in einem Stadtgebiet sehr hohe Konzentration eingetreten sein.

Die Qualität der hier vorgestellten UV-Lidar-Messung ist nicht befriedigend und die Auswertbarkeit entspricht nicht dem Potential des Femtosekunden-Weißlicht-Lidar. Jedoch konnten wertvolle Erfahrungen gesammelt werden, speziell zu den Besonderheiten, die aus der nichtlinearen Ausbreitung der Laserpulse folgen. Es ist klar, dass der Strahl im Sinne einer guten UV-Lichtausbeute fokussiert werden muss. Eine entsprechende Anpassung des Teleskopsichtfelds würde ein deutlich besseres Ergebnis liefern. Schon ein Drehen des Spektrometers hätte eine Verbesserung bedeutet (Bild 4-12 unten). Das FOV sollte jedoch noch weiter vergrößert werden. Dies wäre leicht zu bewerkstelligen, indem man den Spektrometerspalt nicht direkt in die Fokalebene stellt, sondern eine größere Fläche um den Fokus unter Anpassung der f-Zahl auf einen für die spektrale Auflösung ausreichend schmalen Spalt abbildet. Auf diese Weise könnten Weißlicht-Lidar-Signale nicht nur die genaue Ozonkonzentration, sondern gleichzeitig Informationen über die Aerosolverteilung liefern.

4.3 Aerosole

Es existieren zwei Definitionen des Begriffs „Aerosol“. Oft versteht man darunter ein Gemisch aus Gasen und darin suspendierten Partikeln, z.B. Rauch oder Sprays. Hier werden, wie in der Atmosphärenforschung üblich, die Partikel selbst Aerosole genannt. Seitdem man im 19. Jahrhundert erkannt hat, dass Wasserdampf in Luft nur bei starker Übersättigung oder bei Vorhandensein von Partikeln (Kondensationskeimen) kondensiert, kennt man die Bedeutung der Aerosole für die Wolkenbildung und den Niederschlag. Das zunehmend starke Interesse der Atmosphärenforscher an den Aerosolen begründet sich einerseits aus der Erkenntnis, dass diese in vielfacher Weise auf die Strahlungsbilanz und die chemischen Prozesse der Atmosphäre einwirken, andererseits aus dem immer noch lückenhaften Wissen über die Rolle der Aerosole. Nicht zu vergessen ist auch die Bedeutung von Aerosolen als Träger gesundheitsschädlicher Stoffe, die über die Atmung aufgenommen werden.

Eine Schwierigkeit liegt in der Vielfalt der Aerosolarten, ihrer Quellen und Senken. Global sind die wichtigsten festen Aerosolarten aus natürlichen Quellen Seesalz, Mineralstaub, Vulkanasche, Ruß aus Bränden und biogenes Material. Eine um etwa eine Größenordnung geringere Gesamtmenge (~ 1 Tg/Jahr) an Staub und Ruß emittieren die Menschen. Eine ähnliche Menge an Aerosolen entsteht jeweils aus Gasen anthropogener und natürlicher Quellen durch homogene Nukleation. Dabei handelt es sich vor allem um Sulfat und Nitrat. Während ihres Aufenthalts in der Atmosphäre – z.B. bis zur Sedimentation – mischen sich die Aerosole in der Regel mit Wasser oder werden darin gelöst (z.B. entstehen Schwefel- und Salpetersäuretröpfchen, die in der Stratosphäre eine wichtige Rolle spielen). Eine ausführliche Abhandlung zu Aerosolen in der Atmosphäre findet sich in [Immler, 1999].

Da das feuchte Aerosol – außer im Fall von gefrorenen Partikeln – in Form von Tröpfchen vorliegt, wird allgemein bei Lidar ein Streuverhalten gemäß der Mie-Theorie für sphärische Partikel (siehe z.B. in [Bohren und Huffman, 1998]) angenommen. Für sehr kleine Tröpfchen konvergiert die Mie-Streuung gegen die Rayleigh-Streuung. Teilchen mit einigen Mikrometern Radius zeigen eine stark ausgeprägte Winkelabhängigkeit ihrer Streuung, deren genaue Form mit dem Radius, dem Brechungsindex und der Wellenlänge des Lichts variiert. Mit Mehrwellenlängen-Lidar kann man zum Teil Informationen über den Brechungsindex und die Größenverteilung der Aerosole erhalten [Stein et al. 1999]. Über die Depolarisation kann man außerdem flüssige (sphärische) von gefrorenen (kristallisierten) Teilchen unterscheiden. Üblicherweise müssen bei Lidar-Messungen aber Modellannahmen über die Eigenschaften der Aerosole gemacht werden.

Die optischen Eigenschaften der Aerosole sind von entscheidender Bedeutung für den Strahlungshaushalt der Erde. Bei Wasser spielt vor allem die Größenverteilung eine große Rolle. Das heißt, dass nicht nur die Gesamtmenge an kondensiertem H_2O zählt, sondern auch die Größe der Tröpfchen. Da dies in komplexer Wechselbeziehung zur Wärme der Atmosphäre steht, existieren noch viele offene Fragen zur Rolle der Aerosole (einschließlich aller Arten von Wolken) bei der Klimaveränderung.

Im folgenden Abschnitt werden Aspekte der Eigenschaften von Wolken bzw. Hochnebel-schichten, d.h. Streuverhalten und Tröpfchengröße, untersucht, über die aus den Abbildungen des Teramobile-Laserstrahls (Abschnitt 2.1.3) Informationen zu gewinnen sind. Abschnitt 4.3.2 behandelt in kurzer Form erste Ansätze zur Bestimmung der Aerosolsubstanz aus der nichtlinearen Wechselwirkung mit Femtosekundenpulsen.

4.3.1 Multispektrale Messung von Mehrfachstreuung

Bei Lidar geht man – zumindest im Fall überwiegender Rayleigh-Streuung – davon aus, dass ein Photon, das die Detektion erreicht, nur einmal in der Luft gestreut worden ist. Denn wegen der relativ großen mittleren freien Weglänge ist die Wahrscheinlichkeit des Umwegs über ein zweites Streuzentrum innerhalb des Sichtfelds des Teleskops sehr gering (es sei denn, der Winkel der ersten Ablenkung ist sehr klein, was gewissermaßen nicht regi-

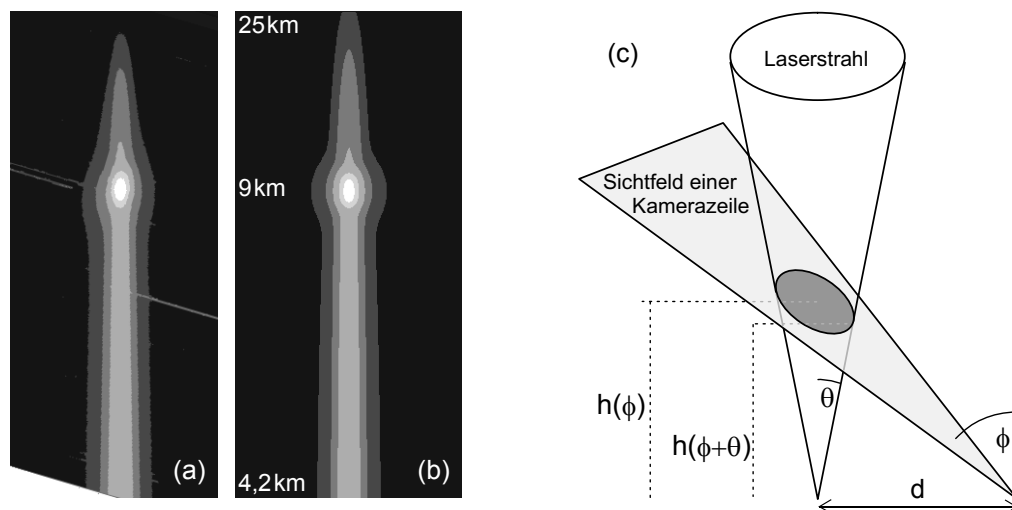


Bild 4-14. Simulation eines Streubildes. (a) Abbildung des Laserstrahls in der I-Filterbande von 4,2 bis 25 km (200 fs, 60 s Belichtung). (b) Berechnetes Bild unter Verwendung der Standardatmosphärendichte und einer homogenen Wolkenschicht in 8,6 bis 9,4 km Höhe mit angepasster Rückstreuintensität (relative Graustufenwerte bei beiden gleich). (c) Prinzip der Berechnung: Verwendung der Beziehung zwischen Blickwinkel ϕ (entspricht Bildachse) und Höhe. Die Lichtmenge auf jedem Bildpunkt folgt aus einer Integration über ein großes Höhenintervall. ϕ und θ sind grundsätzlich kleine Winkel, daher ist $h = d/(\phi+\theta)$.

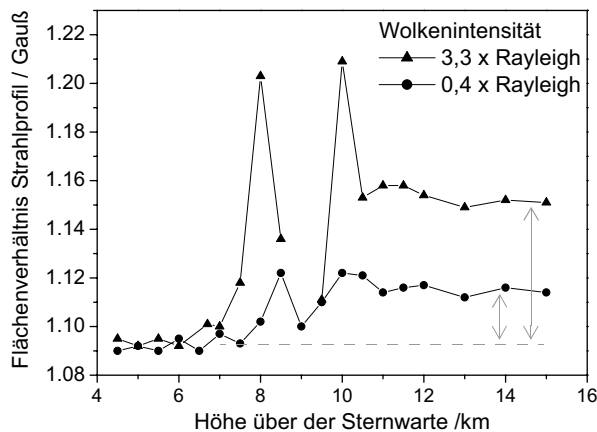


Bild 4-15. Veränderung des Strahlprofils durch Mehrfachstreuung beim Passieren einer Zirruswolke. Zwei Fälle: optisch dickere Wolke (Auswertung von Bild 4-14 (a), Wert am Maximum fehlt wegen Sättigung) und optisch dünnere (gleiche Laserparameter). Dargestellt ist das Verhältnis der Profilfläche zur Fläche einer angepassten Gauß-Kurve. In Nähe der Wolke verfälscht die Überlagerung durch das 2D-Wolkenbild das Ergebnis.

striert wird). In Nebel und Wolken spielt Mehrfachstreuung (MS) aber eine Rolle. Nachweisen kann man diesen Effekt mit *multiple-field-of-view lidar* (MFOV) [Bissonnette und Hutt, 1995; Eloranta, 1998]. Noch besser lässt er sich aber messen, wenn man den Laserstrahl auf einer hochauflösenden Kamera abbildet.

Ein erster Ansatz, um die Abbildungen aus Abschnitt 2.1.3 auf besondere Streueffekte hin zu untersuchen, ist sie zu verstehen, das heißt zu simulieren. Bild 4-14 zeigt am Beispiel einer Messung in der Filterbande um die Laserwellenlänge, mit welcher Genauigkeit man das Strahlbild nachbilden kann, wenn man den Vorgang der Bildaufnahme geometrisch exakt berechnet (Bild 4-14 c). Dabei wurden Standardannahmen über Streuung und Extinktion der Atmosphäre gemacht (ohne Extinktion und Abnahme der Luftdichte wäre die Bildintensität aus geometrischen Gründen über alle Blickwinkel konstant, siehe Anhang A) und die Aerosolschicht (hier **Zirruswolke**) in ihrer Ausdehnung und Streuintensität gefittet. Der leichte Unterschied beim Abklingen der Intensität in großen Höhen liegt vermutlich daran, dass beim Experiment der Strahl nach zwischenzeitlicher Benutzung des fokussierenden Sendeteleskops nicht wieder exakt auf Vertikalität justiert wurde, was einen Höhenfehler erzeugt. (Alle in den vorigen Abschnitten verwendeten Bilder von unfokussierten Strahlen stammten aus Messungen, bei denen nach der Justage nur die Kompressoreinstellung verändert wurde.) Aufgrund der Ähnlichkeit von realem und ohne MS gerechnetem Bild kann man hier nicht eindeutig auf MS der Wolke schließen. Nur direkt über der Wolke scheint das Strahlprofil der Messung etwas breitere Schultern zu haben.

Um dies genauer zu beleuchten, wurden die Strahlprofile in verschiedenen Höhen mit einer Gauß-Kurve verglichen, die mit fester Winkelbreite (Strahldivergenz) jeweils auf das Maximum normiert wurde (siehe als Beispiel Bild 3-16 rechts). Das Verhältnis der Kur-

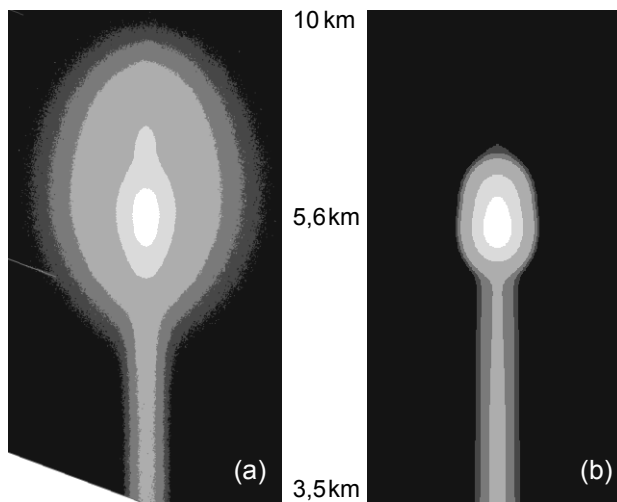


Bild 4-16. Simulation (wie in Bild 4-14) eines Strahls, der in einer Wolke (in (b) homogen zwischen 5,3 und 6 km) weitgehend ausgelöscht wird. (a) Messung mit RG-Filter (840–940nm). Das Anfangsprofil ist eine reine Gaußkurve. Die Graustufenübergänge sind 50%, 10%, 0,8%, 0,4% und 0,2% des Streumaximums.

venflächen ist in Bild 4-15 dargestellt, zum einen für die Abbildung 4-14 (a) (mit einem Rückstreuverhältnis $[\beta_{\text{aer}} + \beta_{\text{mol}}]/\beta_{\text{mol}}$ von 4,3), zum anderen für eine Messung mit einer dünneren Wolke (Rückstreuverhältnis 1,4), die wenige Minuten zuvor bei gleichen Parametern durchgeführt wurde. Da das Flächenverhältnis am Anfang schon deutlich größer als eins ist, muss der Strahl schon eine Wolken- oder Nebelschicht unterhalb von 4 km passiert haben. (Die Schultern des Anfangsprofils wurden bei der Bildsimulation durch Addition einer zweiten breiteren Gaußkurve angepasst.) Der eindeutige Vorher-Nachhereffekt in Bild 4-15 ist ein Nachweis für eine Veränderung des Strahlprofils durch MS im Zirrus.

Betrachtet man nun den Fall einer **Wolke bei 5 km bis 6 km** mit einer viel größeren optischen Dicke (maximales Rückstreuverhältnis von ca. 90), ergibt sich ein völlig anderes Bild. Der Vergleich der Messung mit der Simulation zeigt starke MS im Rückstreuverhalten der Wolke (Bild 4-16). Dieses Ergebnis ist eindeutig, obwohl kein großer Aufwand bei der Nachbildung der vertikalen Ausdehnung und der Struktur der Wolkenschicht betrieben wurde. Entscheidend ist die gleichzeitige Anpassung des Anfangsprofils – hier in guter Näherung eine Gauß-Kurve, was zeigt, dass das Anfangsprofil im obigen Fall wirklich auf Streuung zurückzuführen ist – und des transversalen Halbwerts der Wolkenstreuintensität (Rand der weißen Fläche).

Die Betrachtung der Bilder zeigt deutlich die Spuren der MS, jedoch nur qualitativ. Eine quantitative Analyse wurde in Form des Vorher-Nachhereffekts präsentiert. Diese würde – bei Auswertung mehrerer Winkelintervalle – im Prinzip der bekannten MFOV-Lidar-Methode ähneln. Allerdings ist die Aufnahme von Bildern und deren spätere Auswertung sicherer als die Einteilung des Empfangsteleskops in wenige (z.B. drei bis fünf) Sektoren.

Um nun die Bilder bzw. die aus ihnen gewonnenen Strahlprofile genauer auswerten zu können, muss die Mehrfachstreuung der Wolkentröpfchen simuliert werden. Die hier verwendeten Messungen stammen vom 6. Februar 2002, an dem es mit 12°C recht warm war. Zur nächtlichen Messzeit lagen die Temperaturen noch bei über 5°C. Daher kann man davon ausgehen, dass die Wolken in 5 km bis 6 km Höhe größtenteils flüssig waren. (Radiosondendaten bestätigen, dass die Temperaturen in der Wolkenhöhe etwa bei -20°C bis -25°C lagen; der ungefähre Grenzwert für reine Eiswolken liegt bei -35°C.) Nach der Mie-Theorie zeigt der **winkelabhängige Streuquerschnitt von sphärischen Partikeln**, die etwas größer als die Wellenlänge des Lichts sind, ausgeprägte Strukturen, die vom Verhältnis aus Wellenlänge und Radius sowie dem Brechungsindex abhängen. Ein Algorithmus zur Berechnung der Mie-Streuung findet sich in [Toon und Ackerman, 1981]. Bild 4-17 zeigt Beispiele für das berechnete Streuverhalten von 633nm-Licht an Wassertropfchen. Bei sehr kleinem Radius ähnelt das Bild noch der Rayleigh-Streuung. Bei steigendem Größenparameter $x = 2\pi r/\lambda$ dominiert die Vorwärtsstreuung und die Zahl der Maxima und Minima des Streuquerschnitts nehmen zu.

Unter Verwendung der mittleren freien Weglänge

$$L_{\text{mfw}} = 1/(2\pi N_{\text{aer}} r^2 Q_s) , \quad (4-12)$$

wobei N_{aer} die Anzahldicke der Wolkentröpfchen ist, r der Tröpfchenradius und Q_s die Streueffizienz ($\sigma/\pi r^2$) aus der Mie-Theorie, als konstanter Strecke zwischen den einzelnen Streuvorgängen wurde die Winkelverteilung der **Rückstreuung nter Ordnung** berechnet. L_{mfw} lag je nach Größe der Parameter etwa im Bereich zwischen 10 m und 100 m. Die Begrenzung der Wolkenschicht, die in der untersuchten Messreihe (aus der Bild 4-16 (a) stammt) eine Dicke von etwa 600 m bis 800 m hatte (bekannt aus den begleitenden Lidar-Messungen), wurde vernachlässigt. Wegen des hohen Rücktreuverhältnisses der Wolken

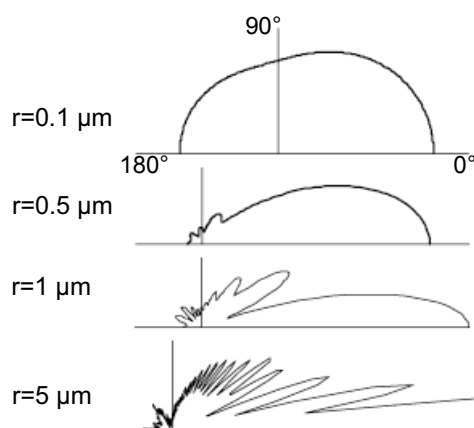


Bild 4-17. Differentieller Streuquerschnitt $d\sigma/d\Omega$ (Mie-Streuung) von Wassertropfen ($n = 1,334$) bei der Wellenlänge 633 nm. Die bestimmende Größe ist der so genannte Größenparameter $x = 2\pi r/\lambda$.

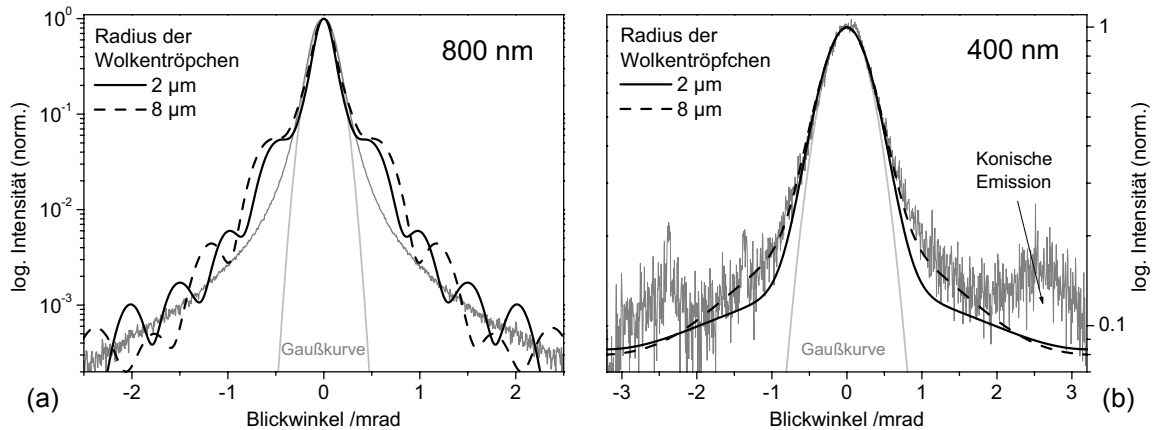


Bild 4-18. Simulierte Mehrfachstreuung für zwei Wolkenparameterpaare – $r = 2 \mu\text{m}$ und $N = 7,6 \cdot 10^8 \text{ m}^{-3}$ sowie $r = 8 \mu\text{m}$ und $N = 2,2 \cdot 10^7 \text{ m}^{-3}$ – und Vergleich mit Schnitten durch Wolkenbilder in der I- ($\sim 800 \text{ nm}$) bzw. B-Filterbände ($\sim 400 \text{ nm}$). Hellgrau: Fits der gaußschen Strahlform unterhalb der Wolke. Die Simulationen in (a) und (b) unterscheiden sich in der Wellenlänge und der wellenlängenspezifischen Breite (Divergenz) des Strahls vor der Streuung in der Wolke. Die Schnitte wurden radial-senkrecht zum Strahl (Anhang A) durch die Streumaxima gelegt, einen Pixel breit bei (a), neun bei (b). Die entsprechenden Höhen sind 5,74 km bei (a) und 5,89 km bei (b). (Die Strahlbilder stammen aus derselben Messreihe wie Bild 4-16 a.)

musste auch die Rayleigh-Streuung nicht berücksichtigt werden. Es hat sich gezeigt, dass eine Berechnung von jeweils mehr als vier Streuereignissen das Ergebnis nur noch unwesentlich beeinflusst, daher wurde die MS in vierter Ordnung simuliert. Andererseits erwies sich die Einbeziehung nur des ersten Streumaximums in Vor- und Rückrichtung, wie z.B. von Bissonnette [1996] vorgeschlagen, als unzureichend, da ein nicht unbedeutender Anteil seitlich gestreut wird.

Bild 4-18 zeigt Schnitte durch Wolkenstreubilder, die mit dem I-Filter ($\lambda \approx 800 \text{ nm}$) und dem B-Filter ($\lambda \approx 400 \text{ nm}$, Zeitabstand ca. 20 min) aufgenommen wurden, sowie Berechnungen der MS mit den gleichen Wertepaaren für r und N_{aer} , wobei jeweils die bestimmte Breite der gaußschen Profile (Divergenz) unterhalb der Wolke berücksichtigt wurde. Zunächst wurden die Parameter zur Anpassung an Profil (a) variiert. Die wellige Form der Simulation ist auf die Vereinfachungen zurückzuführen: die völlig einheitliche Tropfengröße, eine scharfe Wellenlänge und die feste Weglänge zwischen den Streuvorgängen. Zwei gleich gute Fits ergeben sich für $2 \mu\text{m}$ -Tröpfchen mit einer Dichte von $7,6 \cdot 10^8 \text{ m}^{-3}$ und $8 \mu\text{m}$ -Tröpfchen bei $2,2 \cdot 10^7 \text{ m}^{-3}$. In der logarithmischen Darstellung täuscht die Höhe der Abweichung von der Messung bei $0,7 \text{ mrad}$ etwas. Denn sie wird im Sinne einer Oszillation um die reale Kurve durch die Abweichung im oberen Bereich kompensiert. Bei der Anwendung der gleichen Wertepaare auf den Fall des breiteren Strahls bei 400 nm ist die Übereinstimmung zwischen Rechnung und Messung genauer und der Vergleich fällt ein-

deutig zugunsten des Szenarios mit dem Tröpfchenradius $8\text{ }\mu\text{m}$ aus. (Bei der weitaus schwächer belichteten B-Filteraufnahme wurde der Abzug der Hintergrundintensität, der sich auf die Werte im Randbereich des Strahlprofils auswirkt, optimiert. Aus dem Bild, das fast völlig von MS ausgefüllt ist, kann sie nicht absolut exakt bestimmt werden.) Die gute Übereinstimmung in Bild 4-18 (b) bestätigt die frühere Vermutung, dass es sich bei dem Licht zwischen Zentralstrahl und konischer Emission um Mehrfachstreuung handelt (vergleiche Bild 3-31).

Die hier beschriebene Simulation und Auswertung der Mehrfachstreuung befindet sich noch im Erprobungsstadium. Man kann aber feststellen, dass die hochaufgelöste und mehr als 6 mrad breite Abbildung des Strahls erhebliche Vorteile gegenüber einem herkömmlichen MFOV-Lidar bietet. Vor allem aber eröffnet erst die spektrale Breite des Femtosekunden-Weißlicht-Lidar die Möglichkeit, Wolkenparameter eindeutig zu bestimmen.

Die Anzahl und Eigenschaften von Wassertröpfchen in der Atmosphäre messen zu können, wird noch interessanter, wenn man sie selbst erzeugt. In manchen Regionen der Erde ist die Luft oft stark mit Wasserdampf übersättigt, bevor Wolken und Regen entstehen. Die **freien Ladungen** im Plasma von Femtosekunden-Laserfilamenten können als **Kondensationskeime** wirken. Dies wurde im Laborversuch in einer Nebelkammer demonstriert [Wille et al., 2001] (siehe Bild 4-19). Wenn dies auch in der Atmosphäre in entsprechender Höhe gelänge, könnte man Aussagen über das Regenpotential der Luft machen und gegebenenfalls über den Einsatz von regenfördernden Maßnahmen (z.B. Silberjodid-Partikel aus Flugzeugen) entscheiden. Zu dieser Idee ist ein Patent angemeldet worden (DE 101 50 211 C 1, 17.04.2003). Die Nutzung der nichtlinearen Ausbreitung der Femtosekunden-Pulse zur Erzeugung von Luftpartikeln stellt eine Überleitung zum folgenden Abschnitt dar.

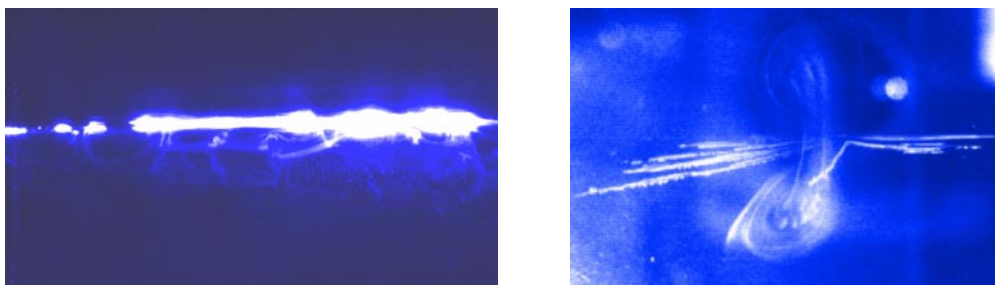


Bild 4-19. Kondensationsstreifen in einer Diffusionsnebelkammer erzeugt durch die Filamentierung von fs-Laserpulsen (wenige Millijoule Energie, leicht fokussiert). Rechts erkennt man mehrere Spuren aufeinanderfolgender Pulse, die durch Luftzug aufgefächert wurden, und eine Art Schockwelle. Sichtbar ist das Streulicht von einer Lampe (800 nm wurde gefiltert). Die Spuren sind viele Zentimeter lang.

4.3.2 Nichtlineares Aerosol-Lidar

Die Erforschung charakteristischer Emissionseigenschaften bei der nichtlinearen Wechselwirkung von Femtosekundenpulsen mit Mikrotröpfchen eröffnet in der Laserfernerkundung neue Möglichkeiten, um weit über das bisherige Maß hinaus Informationen über die Substanz der Aerosole zu erhalten. Seit einigen Jahren werden daher in den Arbeitsgruppen von Prof. L. Wöste (Freie Universität Berlin) und Prof. J.-P. Wolf (Universität Lyon) Laborexperimente an einzelnen Tröpfchen durchgeführt [Kasparian et al., 1997; Zimmer, 2001; Favre et al., 2002; Boutou et al., 2002]. Inhalt dieser Arbeiten ist vor allem die Winkelabhängigkeit der Emission bei der Erzeugung der dritten Harmonischen (THG), der Entstehung von Weißlicht bzw. Plasmalicht (*laser induced breakdown*, LIB) und der Fluoreszenz durch Mehrphotonenanregung (MPEF). Bei diesen Experimenten werden Tröpfchen mit Durchmessern von wenigen zehn Mikrometern periodisch aus einer piezoelektrischen Spritze emittiert. Die Tropfengröße ist einstellbar und stabil und der Ausstoß exakt mit den Laserpulsen synchronisiert, so dass ein immer gleiches Aufeinandertreffen gewährleistet ist. Die verwendeten Ti:Sa-Laser liefern Pulse mit ca. 100 fs Dauer und wenigen Millijoule Energie. Die Intensität am Tropfen wird mit Fokussierlinsen reguliert.

Bild 4-20 (a) zeigt die typischen scharfen Maxima der über die Zeit gemittelten Intensität innerhalb eines Tröpfchens, das mit einem gaußförmigen 100fs-Puls beschossen wird (Berechnung unter Verwendung der Mie-Theorie). Vereinfacht gesagt fokussiert der Tropfen das Licht selbst auf einen Punkt vor seinem hinteren Rand. Werden nun n -Photonenprozesse (wie LIB, MPEF und THG) angeregt, so ist die ortsabhängige Effizienz

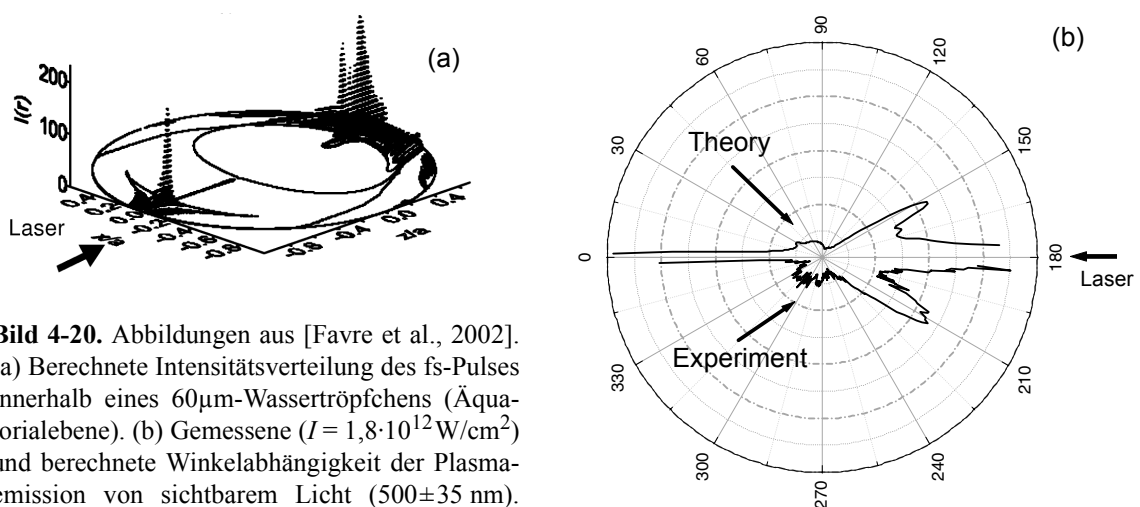


Bild 4-20. Abbildungen aus [Favre et al., 2002]. (a) Berechnete Intensitätsverteilung des fs-Pulses innerhalb eines $60\mu\text{m}$ -Wassertröpfchens (Äquatorialebene). (b) Gemessene ($I = 1,8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$) und berechnete Winkelabhängigkeit der Plasmaemission von sichtbarem Licht ($500 \pm 35 \text{ nm}$). Neben der besonderen Struktur ist eine stark erhöhte Rückstreuung (180°) zu erkennen.

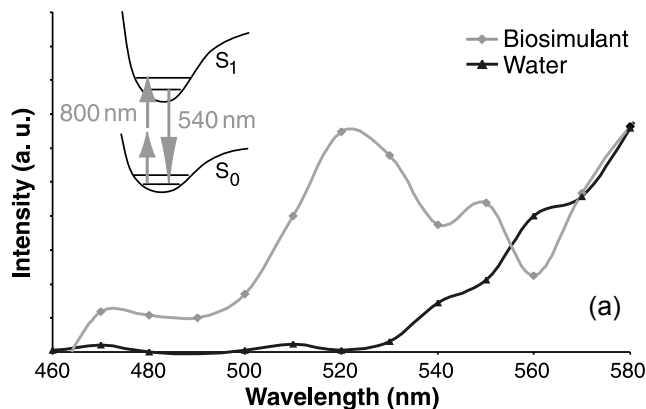
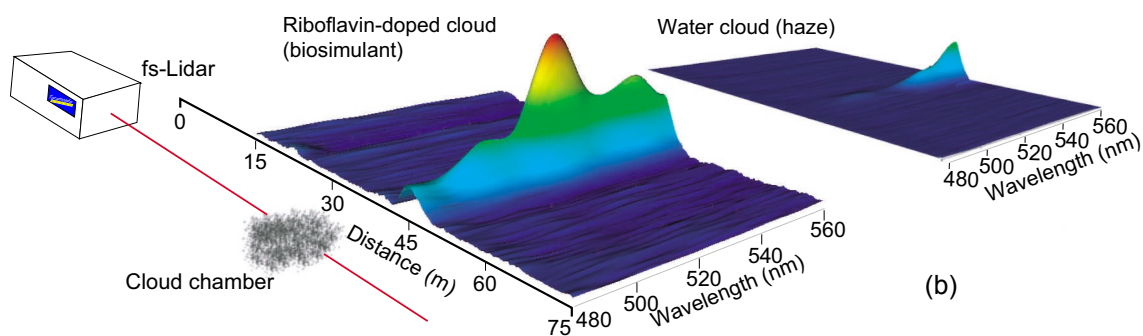


Bild 4-21. Nichtlineare Lidar-Messung von Bioaerosolen. (a) Gemessenes Spektrum der Zwei-Photonenfluoreszenz von Riboflavin im Vergleich zum Wassersignal [Kasparian et al., 2003]. (b) Schematische Darstellung der spektral aufgelösten Lidar-Messung künstlicher Aerosolwolken mit und ohne Riboflavin [Méjean et al., 2004]. (Teramobile-Laser, 400 mJ, 1 ps, negativer Chirp).



proportional zu I^n . Damit ergibt sich eine Struktur mit gegenüber Bild 4-20 (a) noch stark erhöhtem Kontrast und die Emission ist auf Gebiete mit Nanometergröße konzentriert. Im Fall von nicht kohärenten Prozessen mit isotroper Emission zeigt sich in der Winkelabhängigkeit der Fernfeldstrahlung, dass das Licht aufgrund der Strahlenoptik vorzugsweise den Weg nimmt, aus dem es gekommen ist. Diese starke Erhöhung der Rückstreuung – die wiederum für Lidar sehr interessant ist – wurde bei Plasmalicht (LIB, siehe Emission eines Wassertröpfchens in Bild 4-20 b) und MPEF beobachtet. Bei MPEF steigt sie mit der Photonenzahl n des jeweiligen Prozesses und dem Brechungsindex des Tröpfchens. Bei der Plasmaemission hängt die Winkelstruktur vor allem von der Laserintensität ab. Das Maximum bei 150° tritt aber in den meisten Fällen auf.

Beim kohärenten Prozess der THG ist die Rückstreuung weniger stark. Dafür tritt eine charakteristische Winkelstruktur nahe der Vorwärtsrichtung auf, die – im Unterschied zu den nicht kohärenten Prozessen – deutlich vom Verhältnis des Tröpfchendurchmessers zur Wellenlänge (dem aus der Mie-Streuung bekannten Größenparameter) abhängt.

Durch Zugabe verschiedener Substanzen zur Tröpfchenflüssigkeit (üblicherweise Wasser) konnten neben den Winkelabhängigkeiten spektrale Charakteristika gemessen werden. Im Plasmalicht einer Salzlösung konnte die Natrium-D-Linie nachgewiesen werden. MPEF

wurde zum Beispiel an der Aminosäure Tryptophan, einem wichtigen Zellbaustein, mit Drei-Photonenanregung gemessen.

Bei Experimenten mit dem Teramobile am LASIM (Universität Lyon) ist es gelungen Zwei-Photonenfluoreszenz von Riboflavin (Vitamin B2) in einem künstlichen Nebel anzuregen und diese in Rückstreurichtung aus ca. 50 m Entfernung im Laborcontainer zu detektieren [Kasparian et al., 2003; Méjean et al., 2004]. Bild 4-21 zeigt Spektren und eine schematische Darstellung dieser ersten **Messung von Bioaerosolen** mit nichtlinearem Lidar. Die auf wenige Meter entlang des Strahls begrenzte Aerosolwolke bestand aus etwa 1 μm großen Tröpfchen mit 0,02 g/l des wasserlöslichen Vitamins. Das Signal (Spektrum) konnte klar von der Weißlichtrückstreuung einer reinen Wasserwolke unterschieden werden. Frühe Filamentierung – und damit starke Weißlichterzeugung – wurde durch einen großen negativen Chirp (1 ps anfängliche Pulsdauer) verhindert. Bei dieser Anwendung kommt die aus den Labormessungen bekannte erhöhte Rückstreuung voll zum Tragen.

Ein spezieller Vorteil des MPEF-Lidar – für das die hohe Intensität kurzer Pulse benötigt wird – ist eine unter Umständen deutlich höhere **Reichweite** als bei Verwendung einer einzelnen Wellenlänge, bei der Ein-Photonenanregung stattfindet. Bei Tryptophan beispielsweise wäre eine geeignete Laserquelle für eine effektive Ein-Photonenanregung die vierte Harmonische der Nd:YAG-Emission (266 nm). Diese erfährt aber nicht nur eine deutlich höhere Rayleigh-Extinktion als Licht bei 800 nm, sondern wird auch durch das Ozon in der Luft stark absorbiert (siehe 4.2.2).

Zusammenfassung und Ausblick

Ergebnisse

Mit dem Teramobile ist eine einzigartige mobile Forschungseinrichtung geschaffen worden [Wille et al., 2002]. Der Mut zur Initiierung eines solchen Projekts, das vorab einige offene Fragen hinsichtlich der Durchführbarkeit beinhaltete, ist seit der Inbetriebnahme des Laborcontainers durch eine Reihe erfolgreicher Experimente belohnt worden. Anknüpfend an die vorhandenen Erfahrungen in den Bereichen Laser-Materiewechselwirkung und Atmosphärenphysik konnten wichtige Erkenntnisse zur nichtlinearen Ausbreitung von Terawattpulsen über lange Strecken in Luft gesammelt und erste Erfolge bei der Entwicklung von Anwendungen erzielt werden.

Das komplexe Phänomen der Multifilamentierung von Terawattpulsen in Luft ist in groben Zügen im Rahmen des *self-guiding*-Modells verstanden. Im Detail entzieht es sich aber der Erklärung durch vorhandene einfache Theorien – z.B. der Selbstfokussierung oder der Selbstphasenmodulation. Vor allem das Verhalten auf langen Strecken kann bisher nicht in ausreichender Weise theoretisch vorhergesagt werden. Daher wurden im Rahmen dieser Arbeit systematische Messungen durchgeführt, um Erfahrungen über Startpunkt, Länge, Divergenzeigenschaften und das Spektrum der Filamentbündel zu gewinnen, und zwar in Abhängigkeit der steuerbaren Parameter. Zum großen Teil konnten für diese Größen und ihre Steuerbarkeit über die Pulsintensität, den Chirp und die Fokussierung empirische Regeln aufgestellt oder anschauliche Modellvorstellungen entwickelt werden. Der Vergleich mit aktuellen theoretischen Arbeiten – v.a. zur Simulation der Pulsausbreitung mittels numerischer Lösung der nichtlinearen Schrödinger-Gleichung – war hierbei einerseits hilfreich, andererseits zeigt er, dass auf diesem Gebiet mit weiteren Fortschritten zu rechnen ist. Die direkte Zusammenarbeit mit Theoretikern führte zu ersten Erfolgen bei der realistischen Simulation der Multifilamentierung [Bergé et al., 2004]. Die Theorie benötigt aber weiterhin den experimentellen Input, den vor allem das Teramobile erbringen kann.

Zu den konkreten Ergebnissen, die zu Publikationen geführt haben, gehören der Nachweis von Femtosekunden-Weißlicht im IR bis $4\text{ }\mu\text{m}$ [Kasparian et al., 2000], die Erkenntnis aus dem IR-Lidar-Experiment an der Sternwarte, dass die spektrale Intensität im IR bei Feldversuchen gegenüber dem Laborergebnis noch gesteigert werden kann [Méjean et al., 2003] und der Nachweis der Rückstreuung von reinem Weißlicht (blauer Spektralbereich,

$\sim \lambda_0/2$) aus über 15 km Höhe sowie die Beobachtung von nichtlinearer Pulsausbreitung (Anzeichen für Filamente) in bis zu 2 km Höhe in der Atmosphäre [Rodriguez et al., 2004]. Diese Ergebnisse haben für die neuen Anwendungen wie das Weißlicht-Lidar, die Fernerkundung von Bioaerosol und die Lenkung von Gewitterblitzen eine große Bedeutung.

Aus der Kombination von Labormessungen und Feldexperimenten konnten Erkenntnisse über die Erzeugung der dritten Harmonischen (THG) und die konische Emission von kurzwelligem Weißlicht gewonnen werden, besonders hinsichtlich ihrer Richtungseigenschaften innerhalb des Strahls. Bei der THG wurde – entgegen einer anderen Deutung in der Literatur – festgestellt, dass sie unter bestimmten Bedingungen rein konisch und weitgehend von der Filamentierung und der Weißlichterzeugung entkoppelt auftritt. Das Wissen um diese Dinge ist eine notwendige Voraussetzung für die Entwicklung von Anwendungen (im sichtbaren bis UV-Bereich), wie sich bei der Auswertung der Ozon-Lidar-Messungen gezeigt hat. Die Schwierigkeiten, die dabei wegen der für die Lidar-Technik neuen Situation, dass das Laserspektrum innerhalb des Strahls nicht homogen ist, auftraten, stellen eine wichtige Erfahrung dar. Insgesamt konnte unter Einbeziehung der genannten Effekte sowie der wellenlängenabhängigen Divergenz und der Wirkung einer äußeren Fokussierung eine schlüssige Modellvorstellung von der Ausbreitung (leicht) fokussierter, multifilamentierender Terawatt-Laserpuls in Luft entwickelt werden (siehe Bild 3-20).

Hinsichtlich des Nutzens bei der Gewinnung dieser Erkenntnisse haben die Bildaufnahmen des Teramobile-Laserstrahls mit einem astronomischen Teleskop die Erwartungen übertroffen. Auf der Seite der Atmosphärenuntersuchung haben sie Ergebnisse zum Streuverhalten von Wolkenpartikeln geliefert. Die entsprechenden Auswertungen folgten zunächst dem Beispiel klassischer Methoden – wobei sich allerdings ebenfalls die Qualität der hochaufgelösten Abbildungen als besonderer Vorteil erwiesen hat. Es hat sich aber auch gezeigt, dass die Nutzung der spektralen Breite des Weißlichtstrahls die gleichzeitige genaue Bestimmung der Größe und Anzahldichte von Wolkentröpfchen ermöglichen kann. Sein größtes Potential wird das nichtlineare Femtosekunden-Lidar aber bei der Detektion von Aerosolen entfalten, die chemische oder biogene Substanzen enthalten, in denen die intensiven Pulse charakteristische Plasmaemissionen oder Fluoreszenzen anregen. Mit dem Teramobile sind erste erfolgreiche Messungen dieser Art in einem Feldversuch gelungen [Méjean et al., 2004].

An den hochaufgelösten Absorptionsspektren aus den Weißlicht-Lidar-Messungen im IR konnten ohne Probleme *line-by-line*-Auswertungen durchgeführt werden, da hier die nichtlinearen Effekte keinen direkten Einfluss auf das Messergebnis haben. An der Sternwarte bot sich die Möglichkeit, in jeweils einer einzigen Messung einen sehr breiten Ausschnitt

des Spektrums mit hoher Auflösung zu erfassen. Dadurch konnte ein Auswerteverfahren entwickelt werden, bei dem die Absorption durch Sauerstoff als Referenz zur Bestimmung der Temperatur und anderer Parameter dient und daher die Konzentration des Spurengases (in diesem Fall Wasserdampf) präzise bestimmt werden kann. Dies gelang bei einer Messhöhe von bis zu 5 km. Dass Absorptionslinien von Wasserdampf gefunden wurden, die in der – sonst sehr zuverlässigen – HITRAN-Datenbank fehlen, ist ein gutes Beispiel für die Vorteile des Weißlicht-Lidar gegenüber der konventionellen DIAL-Methode. Man kann unabhängig von Vorannahmen und einer exakten Kalibrierung der Apparatur sämtliche Informationen aus den Messdaten ziehen, sogar unerwartete.

Anhand eines berechneten, hypothetischen Schadstoffszenarios wurde gezeigt, wie man mit Weißlicht-Lidar im mittleren IR die Konzentrationen mehrerer Spurengase simultan bestimmen kann. In der Realität müssen dafür auf der Detektionsseite noch die technischen Voraussetzungen geschaffen werden.

Im UV-Bereich ergaben sich bei den breitbandigen Weißlicht-Lidar-Messungen die bereits erwähnten Probleme. Trotzdem konnte – unter dem Vorbehalt noch nicht kontrollierter Fehlerquellen – zum ersten Mal Höhenprofile der Konzentration eines Luftschadstoffs (Ozon) mit dieser neuen Technik gemessen werden. Die aufgetretenen Probleme erwiesen sich als konsistent mit Ergebnissen zu den Grundlagen der Pulsausbreitung (z.B. zur konischen THG) und es wurden Möglichkeiten zur ihrer Vermeidung diskutiert.

In den Hochspannungsexperimenten zeigt sich die Vielseitigkeit und der Vorteil aus der Mobilität des Teramobile-Systems. Ohne aufwendige Vorbereitung konnten Ergebnisse erzielt werden, die sofort eine Spitzenposition im Forschungsbereich der Beeinflussung von Blitzen mit Lasern eingenommen haben. Zum ersten Mal konnten meterlange Megavoltentladungen mit Laserfilamenten sowohl ausgelöst als auch gelenkt werden [Rodriguez et al., 2002].

Die Filamente sind der Schlüssel zu den meisten der neuen Möglichkeiten. Eine (starke) Fokussierung, sei es dass man sie aus Mangel an Laserleistung oder an Platz im Labor benötigt, kann die Filamente in vielen Fällen nicht ersetzen. Die Beiträge des Teramobile-Projekts zur Erforschung der Filamente sind von den Wissenschaftlern, die auf diesem Gebiet aktiv sind, mit Interesse aufgenommen worden. Vor allem aber haben die neuen Möglichkeiten der Anwendung Beachtung gefunden [Kasparian et al., 2003]. Bei ihnen steht das Teramobile weitgehend noch ohne Konkurrenz da.

Ausblick

Das Teramobile-Projekt sollte sich auch zukünftig auf seine besonderen Stärken konzentrieren. Die Untersuchung der Grundlagen der Pulausbreitung ist weiterhin interessant und wichtig, sie sollte aber immer im Dienste der Anwendungen stehen. Die zur Zeit wichtigsten offenen Fragen beziehen sich auf die Eigenschaften des Plasmas bei der Filamentierung. Zum Beispiel soll untersucht werden, ob den Femtosekundenpulsen nachgeschickte Pulse die Lebensdauer des Plasmas erhöhen können. Auch ist noch nicht ausreichend geklärt, wie sich die Plasmaeigenschaften bei der Erzeugung eines dichten Filamentbündels durch leichte Fokussierung von denen bei der freien Multifilamentierung unterscheiden. Diese Fragen spielen für die Blitzlenkung eine große Rolle, während für gewisse Lidar-Anwendungen die Frage entscheidend ist, bis zu welcher maximalen Entfernung Plasma erzeugt werden kann.

Das Prinzip, alle Möglichkeiten auszutesten, immer weiterzugehen und in schneller Folge neue Dinge zu versuchen, hat sich zur Zeit im Teramobile-Projekt durchgesetzt. Dies geht manchmal zulasten der Umsetzung von Verbesserungsmöglichkeiten, die sich aus den bisherigen Erfahrungen ergeben. Das heißt, dass der Nachweis der tatsächlichen Leistungsfähigkeit bestimmter Anwendungen – v.a. im Bereich Lidar – noch zu erbringen ist. Dieser Mangel wird aber durch die Erfolge, die bei den neuen Ansätzen erzielt werden, mehr als kompensiert. Die Fernerkundung von Bioaerosol (Wasser mit Spuren von Riboflavin) ist dafür ein gutes Beispiel.

Vor kurzem sind erste Erfolge der Fernerkundung fester, vor allem metallischer Materialien mittels Plasmaspektroskopie (*remote laser induced spectroscopy*, RLIBS) erzielt worden. Hierbei richtet sich der Blick besonders auf die Möglichkeiten, die die Filamente hinsichtlich der Reichweite der Methode und der Unabhängigkeit von einem präzise positionierten Fokus bieten. Es ist gelungen charakteristische Emissionslinien von Metallen und Salzen aus bis zu 90 m Entfernung zu erzeugen und zu detektieren. Neben den Filamenten steht auch die Bedeutung der Pulslänge im Vordergrund. Zum Beispiel zeigten sich bei Aluminium interessante Unterschiede im Vergleich der molekularen (AlO) und atomaren bzw. ionischen Emission [Rohwetter et al., 2004].

Aktuell ist eine neue Hochspannungsmesskampagne in der Technischen Universität Berlin gestartet worden. Auch Versuche zur Beeinflussung realer Gewitterblitze, die an einer Einrichtung für Blitzforschung stattfinden sollen, sind für die Zukunft geplant.

Anhänge

A Auswertung von Bilddaten der Sternwarte

Koordinatentransformation und Höhenbestimmung

Das Steuerungssystem der Sternwarte gibt die Teleskopposition in Stundenwinkel τ (Winkel auf dem Himmelsäquator ausgehend vom Meridian, d.h. Süden) und Deklination δ (Winkel über dem Himmelsäquator) an. (Beide Werte sind im Header der im Fits-Format gespeicherten 16bit-Bilddaten enthalten.) Dieses Koordinatensystem heißt Äquatorsystem. Für die Bestimmung der Höhe des Laserstrahls, die der Teleskopposition (Blickrichtung) entspricht, werden die Koordinaten zunächst in das Azimutsystem (Horizontalsystem) umgerechnet. Es gilt

$$\sin \eta = \sin \delta \sin \Lambda + \cos \delta \cos \tau \cos \Lambda , \quad (\text{A-1})$$

wobei η der Höhenwinkel über dem Horizont ist und Λ die Polhöhe, d.h. die geographische Breite des Standorts ($50,9801^\circ$ für die Tautenburg). Die Höhe ist nun einfach

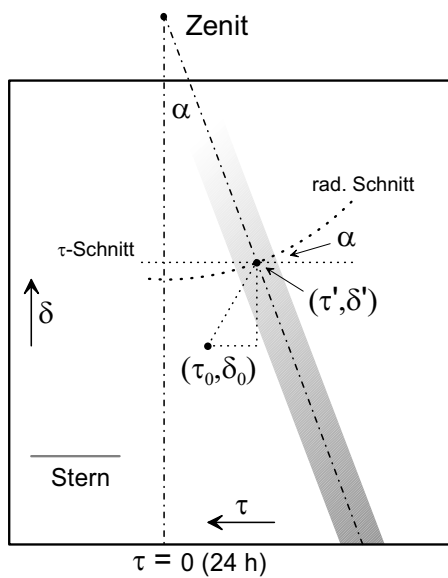
$$h = d \tan \eta = d \cot \phi \approx d / \sin \phi \approx d / \phi \quad (\text{A-2})$$

mit dem Abstand d zwischen Teleskop und Laser (30 m bei der Messkampagne). Beide Näherungen gelten für kleine Winkel $\phi = \pi - \eta$ zwischen der Blickrichtung und der Vertikalen, was für alle Versuche gegeben war. Das heißt, die Höhe war immer groß gegen d , weswegen sie mit dem Abstand $R = d / \sin \phi$ des betrachteten Punkts im Strahl gleichgesetzt werden kann. Der Winkel ϕ wird in den Darstellungen des Experiments anstelle von η verwendet (siehe z.B. Bild 2-3). Er ist auch der Winkel zwischen der Blickrichtung und dem Strahl, wenn dieser vertikal ausgerichtet ist.

Bei den spektroskopischen Messungen (Coudé-Modus) ist mit den obigen Gleichungen die Messhöhe gegeben (dies wurde mit den Lidar-Signalen überprüft), da das Sichtfeld sehr klein ist. Bei den Bildaufnahmen (Schmidt-Modus) stellen sich jedoch die Fragen, welcher Bildpunkt den Teleskopkoordinaten zuzuordnen ist und welcher Höhe ein beliebiger Bildpunkt entspricht (bezüglich des Laserstrahls, denn ein Bildpunkt empfängt sämtliches Licht aus einer Blickrichtung, nicht einer Höhe). Es hat sich gezeigt, dass das Zentrum der Bildfläche nicht exakt den Koordinaten entspricht. Außerdem scheint die Lage des Bildes leicht gegenüber dem Koordinatensystem zu schwanken, wenn das Teleskop bewegt wird (ver-

mutlich mechanisches Spiel), jedoch um einen Punkt, der deutlich von der Bildmitte entfernt ist (vermutlich exzentrische Position der Kamera im Teleskop). (Die Astronomen verwenden zu exakten Positionierung ein Leitstern-Tracking-System.) Um für die entscheidenden Messreihen einen einheitlichen Referenzpunkt zu ermitteln, der im Bild jeweils den Teleskopkoordinaten zugeordnet werden kann, wurden die Wolkenhöhen aus den simultanen Lidar-Messungen als Fixpunkte verwendet. Zusätzlich wurde bei einigen Bildern an mehreren Punkten, durch die die Strahlachse läuft, kontrolliert, ob der Azimutwinkel α (auf dem Horizont) für alle diese gleich ist. Für den Azimut gilt

$$\sin \alpha = \frac{\cos \delta' \sin \tau'}{\sin \phi} . \quad (\text{A-3})$$



δ' und τ' ergeben sich aus den gespeicherten δ_0 und τ_0 (Teleskopkoordinaten = Referenzpunkt) und dem Abstand des jeweiligen Bildpunktes zum Referenzpunkt. Die Bildkoordinaten sind genau nach den Himmelskoordinaten ausgerichtet (die Sternenspuren zeigen die Erddrehung an, also die Richtung der τ -Koordinate). Der Umrechnungsfaktor ist $k = 0,005981$ mrad/Pixel. Der aus der Anpassung resultierende Referenzpunkt hat die Bildkoordinaten 1162 (τ -Achse) und 1010 (δ -Achse). Bei $\alpha = 19,92(2)^\circ$ lag der Fehler in der entscheidenden Messreihe bei ca. ± 4 Pixel für beide Koordinaten. Um

diesen Azimutwinkel α stand das Teramobile nord-östlich, bezogen auf die Nordrichtung aus Sicht des Teleskops. Gleichzeitig ist α der Winkel des Strahls in den Bildern zu deren δ -Achse.

Höhenfehler

Die mögliche Variationsbreite des Azimut, den der Strahl in unterschiedlichen Höhen hat, um $0,04^\circ$ bedeutet bei $d = 30$ m (beginnend bei einer Messhöhe von 2 km) einen Fehler der Strahlrichtung von nicht mehr als $0,01$ mrad. Das heißt, die Konstanz der Azimutwinkel in den Bildern beweist die sehr genaue Justage des Strahls. Unter der Annahme, dass die Verkipfung des Strahls aus der Vertikalen auch in der nicht messbaren Richtung, d.h. parallel zur Verbindungslinie Teleskop-Laser, nicht wesentlich größer war, kann der resultierende

Höhenfehler gegenüber dem aus der Unsicherheit von d ($\pm 0,5$ m) vernachlässigt werden. Aus letzterem erhält man ca. ± 85 m in 5 km Höhe und ± 350 m in 20 km Höhe. Dies gilt für die Messreihen vor Benutzung des Sendeteleskops, aus denen alle wichtigen Ergebnisse abgeleitet wurden, außer denen zur Abhängigkeit von der Fokussierung. Der Richtungsfehler nach Umstellung auf das Sendeteleskop kann mit 0,4 mrad abgeschätzt werden (Auswertung der Bilder des fokussierten Strahls). Dies entspricht nach der Formel

$$dh = h^2 d\phi / d \quad (\text{A-4})$$

Fehlern von 330 m in 5 km Höhe und ca. 5 km in 20 km Höhe.

Bestimmung des Strahlprofils

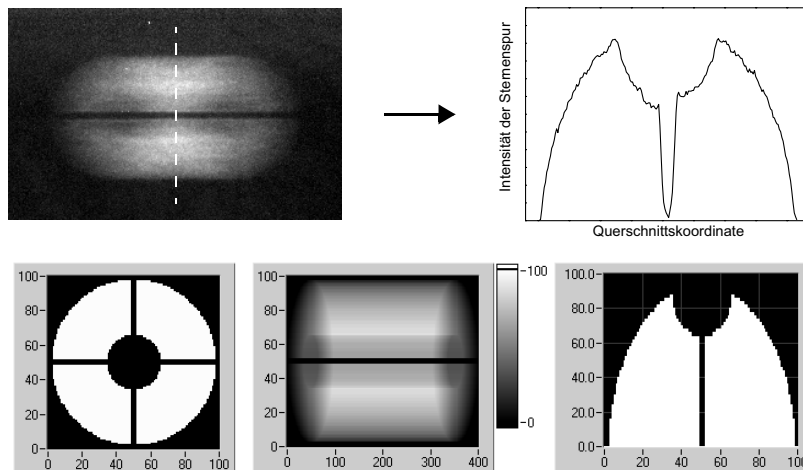
Um einen Schnitt durch den Strahl senkrecht zu dessen Achse zu gewährleisten, wurde in den meisten Fällen die Intensität entlang von Kreisen um den Zenit abgelesen. Alle Punkte auf dieser Linie entsprechen derselben Höhe über dem Kreis mit Radius d um das Teleskop. Bis in mehrere Kilometer Höhe ist der Strahldurchmesser deutlich kleiner als d und damit eine Unterscheidung zwischen dieser gekrümmten Linie und einer geraden durch den Strahl unnötig. Mit dem jeweiligen Abstand des Bildpunkts zum Zenit (in Pixelbreiten) und dem Faktor k wurden die Bogenwinkel der Schnittlänge in Blickwinkel umgerechnet. Bei gleichmäßiger Divergenz des Strahls ab dem Boden (Filamentierung in größerer Höhe) ist die Strahlbreite in Pixelbreiten (d.h. als Blickwinkel) konstant in allen Höhen.

Bei einigen Bildern mit relativ hoher Intensität der Sternenspuren (blaue Filter, lange Belichtung) wurde entlang der τ -Achse geschnitten, um ein Kreuzen dieser Spuren (v.a. problematisch unter spitzem Winkel) zu vermeiden und das Sternenlicht gegebenenfalls als konstanten Untergrund abziehen zu können. Unter Berücksichtigung der Umskalierung mit $\cos\alpha$ war die Übereinstimmung mit senkrecht geschnittenen Profilen sehr gut.

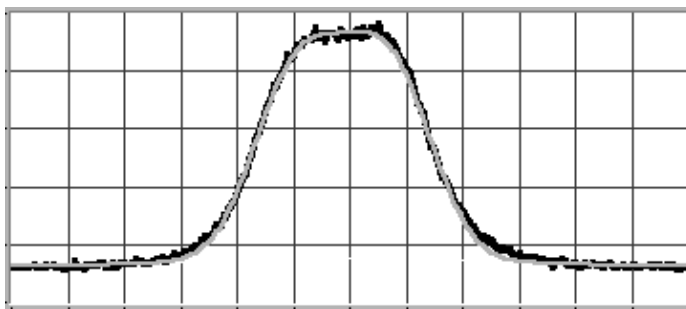
Unschärfe naher Objekte

Die Sternwarte nimmt normalerweise Punkte im Unendlichen scharf auf. Die Kamera kann aber entlang der Teleskopachse verschoben werden (wird benötigt, um die Beugung der Filter zu korrigieren). Der Versuch den Strahl in jeder Höhe scharf zu stellen hat sich aber als unbrauchbar herausgestellt, da dies nur für einen Teilbereich des Bildes möglich ist und man eher Information verliert. Die Unschärfe hat auch in über 4 km Höhe noch einen messbaren Effekt auf die Strahlprofile. Dieser lässt sich in großen Höhen mit einer Gauß-Faltung korrigieren. In geringeren Höhen erkennt man aber die spezielle Form der Verbrei-

terungsfunktion. Sie lässt sich an der Spur eines unscharfen Sterns bei Fokussierung auf ca. 1 km Entfernung ablesen und ist auf die Verdeckung durch die „Spinne“, d.h. die Halterung für Kamera oder Umlenkspiegel im Teleskop, zurückzuführen (siehe Simulation).



Zur Auswertung der Divergenz wurden die berechneten Profile mit der obigen Kurve gefaltet (ohne die Kerbe in der Mitte, da der Strahl nicht wie die Sterne parallel zum „Spinnenarm“ verläuft). Die Breite der Kurve wurde mit geometrischer Optik berechnet. Das folgende Bild zeigt die Anpassung eines Profils aus 2,9 km Höhe (Divergenz 0,17 mrad). Auf diese Weise kann die Strahlform zwischen allen Höhen präzise verglichen werden.



Simulation der Abbildung (Rückstreuung, Extinktion und $1/R^2$ -Effekt)

Um das Signal eines Kamerapixels zu berechnen, muss man entlang einer Linie in der jeweiligen Blickrichtung integrieren. Wegen des kleinen Betrags von ϕ kann man die Höhe h' als Integrationsvariable verwenden ($h(\phi)$ sei dagegen die spezielle Höhe, in der die Blickrichtung die Strahlachse schneidet). Auf den Pixel fällt somit die Lichtleistung

$$P(\phi, \phi_{\perp}) = P_0 k^2 e^{-2(\phi_{\perp}/\theta)^2} \int_0^{\infty} f(h') e^{-2\left(\frac{d}{h'} - \phi\right)^2 / \theta^2} dh' , \quad (\text{A-5})$$

wobei $\phi_{\perp}$ die Komponente der Blickrichtung transversal zum Strahl ist, θ die Strahldivergenz und k^2 die Winkelfläche des Pixels. $f(h)$ ist die Rückstreu-effizienz (bezogen auf P_0) und enthält daher die Luftdichte und die Extinktion. Das Signal ist hier als Funktion von $\phi = d/h$ geschrieben, was der Skala der Bildachse entspricht. Das heißt, bei der Simulation eines bestimmten Höhenbereichs wird in Schritten von ϕ gerechnet.

In Gleichung A-5 kürzen sich im Integral das h'^2 des Luftvolumens $(kh')^2 dh'$ und der Lidar-Gleichung (gleichzusetzen mit $1/R^2$, hier nicht in f enthalten) heraus. Anschaulich dargestellt löschen sich sogar vier h^2 -Effekte aus: die Zunahme der Sichtfläche $(kh')^2$ mit der Intensitätsabnahme des divergenten Strahls und der Lidar-Effekt mit der Zunahme des betrachteten Höhenintervalls nach Gleichung A-4. Wäre f eine Konstante, würde die Leistung, die auf einen Pixel fällt, nach Ausführung des Integrals nicht von ϕ und damit nicht von der Höhe abhängen. Der Strahl hätte nicht nur eine konstante Breite, sondern auch eine konstante Intensität über das ganze Bild.

Entscheidend bei der Simulation ist die Festlegung von $f(h)$, vor allem, wenn die Funktion – neben Eigenschaften der Standardatmosphäre – Parameter einer Wolke enthält. Die Wolkenparameter sind das Höhenintervall (hier vereinfachend ohne Struktur), die Rückstreuintensität (enthält auch die Teilchendichte, ein homogener Wert über das gesamte Höhenintervall wird hier verwendet) und das Extinktions-zu-Rückstreuverhältnis im Vergleich zur (aerosolfreien) Luft ($[\alpha/\beta]_{\text{wolke}}/[\alpha/\beta]_{\text{mol}}$). Aus der Simulation in Bild 4-14 hätte man ohne den Höhenfehler oberhalb der Wolke $[\alpha/\beta]_{\text{wolke}}$ genau bestimmen können. Diese Größe enthält Informationen über die Wolkenpartikel.

B Auswertung von *line-by-line*-Absorptionsspektren

Prinzipiell sind in Abschnitt 4.2.1 alle Gleichungen aufgeführt, die zur Simulation von Absorptionsspektren der Atmosphärgase benötigt werden. Diese Art der Berechnung wird auch *line-by-line* genannt, da im IR die Absorptionsquerschnittsspektren aus den berechneten Linienprofilen jedes einzelnen optischen Übergangs zusammengesetzt werden. In diesem Anhang werden zusätzlich einige Details zur Simulation der Atmosphäre und zum speziellen Fitverfahren für die Weißlicht-Lidar-Messungen beschrieben.

Atmosphärische Parameter und Einteilung der Atmosphäre in Schichten

Die Spektren hängen in zweifacher Weise von Druck und Temperatur ab. Erstens ist die Linienstärke eine Funktion der Temperatur (Gleichung 4-7) und die HWB der Stoßverbreiterung eine Funktion beider Größen (Gleichung 4-8), wobei hier der Einfluss des Drucks weitaus größer ist (p/p_0 variiert stärker als $[T_0/T]^n$). Zweitens ist der Absorptionskoeffizient (Gleichung 4-10) das Produkt aus dem Absorptionsquerschnitt σ und der Teilchendichte N_g des Gases. N_g ist das Produkt aus dem Mischungsverhältnis (VMR) $\tilde{N}_g$ und der Gesamteilchendichte der Luft, die sich nach der idealen Gasgleichung berechnet, also

$$N_g = \tilde{N}_g N_{\text{ges}} = \tilde{N}_g \frac{p}{kT} . \quad (\text{B-1})$$

Üblicherweise wird der Absorptionsquerschnitt bei bestimmten Druck- und Temperaturwerten mit einem festen – oder wie bei Sauerstoff ohnehin konstanten – VMR berechnet.

Der Druckverlauf der Atmosphäre lässt sich aus dem Bodenwert und der barometrischen Höhenformel sehr genau bestimmen. Bis etwa 2 km Höhe liefert diese unter Verwendung der Luftdichte (d.h. Temperatur) am Boden ausreichend genaue Werte. Für größere Höhen muss die Temperatur schrittweise angepasst werden, so dass

$$p(h) = p(h - \Delta h) \exp \left[-\Delta h \frac{Mg}{kT(h)} \right] \quad (\text{B-2})$$

($Mg = 4,807 \cdot 10^{-26}$ kg g ist die Gewichtskraft, die auf ein durchschnittliches Luftmolekül wirkt). Die in 1m-Schritten berechnete $p(h)$ -Kurve stimmt exakt mit der U.S.-Standardatmosphäre (siehe z.B. <http://www.pdas.com/m1.htm>) und den Radiosondendaten aus Meiningen überein. Für $T(h)$ wird die einfache Regel einer Abnahme mit der Atmosphärenhöhe um 6,5 K/km angenommen. In der Regel liefert sie ausgehend vom Bodenwert für die obere Troposphäre (ca. 4 km bis 10 km) recht genaue Werte, darunter können aber

Warm- und Kaltschichten oder lokale Temperaturinversionen auftreten. Eine genauere allgemeine Regel als die lineare Abnahme steht nicht zur Verfügung. Sie wird daher hier als Referenzmodell verwendet. Radiosondendaten sind eine Alternative, falls sie in räumlicher und zeitlicher Nähe aufgenommen wurden.

Vor Beginn des eigentlichen Fits wird nun die Atmosphäre in **100 m hohe Schichten** eingeteilt, denen unter Vorgabe der Boden-(Referenz-)Werte Schichtmittelwerte $T(h_i)$ und $p(h_i)$ (Gleichung B-2) zugeordnet werden, und damit das Absorptionsquerschnittsspektrum jeder Schicht berechnet (Gleichungen 4-7 und 4-8). Beim Fit wird dann das Mischungsverhältnis $\tilde{N}_g(h_i)$ des absorbierenden Gases (ggf. auch mehrerer Gase) variiert und die zweifache Absorption (bzw. Transmission $\tau(\lambda)$) jeder Schicht nach den Gleichungen 4-9 und 4-10 berechnet, wobei die SCG-Höhe auf dem Hinweg des Lichts zu berücksichtigen ist. Schließlich erhält man die Gesamttransmission

$$\tau(h, \lambda) = \prod_{i=1}^m \tau_{\text{hin}}(h_i, \lambda) \tau_{\text{rück}}(h_i, \lambda) \quad \text{mit} \quad m = \text{mod}\left(\frac{h}{100\text{m}}\right) + 1 \quad (\text{B-3})$$

(die Unterscheidung zwischen Hin- und Rückweg betrifft nur den Abzug der SCG-Höhe; $\tau(h_m)$ entspricht einer Strecke ≤ 100 m). Da in dieser Arbeit keine sequentiellen Absorptionsspektren aus vielen unterschiedlichen Höhen ausgewertet werden, muss für das **VMR von Wasserdampf** eine vereinfachende Annahme gemacht werden. Am realistischsten ist eine konstante relative Luftfeuchte rH bis zur Messhöhe ($\leq 5,4$ km). Die Schichtwerte der VMR berechnen sich dann aus der Näherungsformel des Sättigungsdampfdrucks p_d (Magnusformel), so dass

$$\tilde{N}_{\text{H}_2\text{O}} = \frac{rH p_d}{p} \quad \text{mit} \quad p_d = 6,108 \text{ hPa} \cdot 10^{\frac{7,5T}{237,3+T}} \quad (T \text{ in } ^\circ\text{C}). \quad (\text{B-4})$$

Auflösung (Simulation der Geräteverbreiterung)

Da die Messungen nicht voll aufgelöst sind, muss das Spektrum $\tau(h, \lambda)$ verbreitert werden, indem es mit einer Gerätefunktion gefaltet wird. Die Breite der Faltungskurve kann problemlos als Nebenvariable des Fits behandelt werden. Ein Problem, d.h. eine Fehlerquelle, stellt aber die Form der Kurve dar. Bei den Messungen an der TLS war die Auflösung sehr hoch. Als volle HWB der Gerätekurve wurde ca. 10 pm bestimmt (bei einer mittleren Stoßbreite der Absorptionslinien von etwa 15 pm unter Normaldruck). Wegen der hohen Auflösung (wenige Detektorpixel pro Linienbreite) war eine genaue Bestimmung der Kurvenform aus einer Kalibrationsmessung mit Spektrallampen nicht möglich.

Die besten Fitergebnisse (geringstes mittleres Quadrat des Residuums) wurden mit der Gerätekurve des Chromex-Spektrometers erzielt, die in der Form zwischen Gauß und Lorentz liegt. Bei der Auswertung der Luftfeuchte in Abschnitt 4.2.1 liegt der Fehler durch Verwendung von Gauß- bzw. Lorentz-Funktion bei $\pm 1\%$ (0,5 % r.H.) und ist sogar deutlich kleiner als der angegebene Fehler von ca. $\pm 6\%$. Wird ein Spektrometer mit deutlich geringerer Auflösung verwendet, kann die Form der Gerätefunktion allerdings zu einer Hauptfehlerquelle werden. In einem solchen Fall muss (und kann) die tatsächliche Gerätefunktion gemessen werden.

Fitverfahren und Bestimmung der $\tau=1$ -Linie

Um nun das berechnete Spektrum mit der Messung zu vergleichen, muss die Messung normiert bzw. umgekehrt die Simulation mit dem hypothetischen Spektrum multipliziert werden, das man ohne die Absorption (der zu bestimmenden Gase) gemessen hätte und das hier auch $\tau=1$ -Linie genannt wird. Die Form dieses Spektrums, das proportional ist zum Produkt aus Laserspektrum, Detektoreffizienz und übriger Extinktion der Atmosphäre (letztere kann in einem kleinen Ausschnitt des Spektrums als konstant angenommen werden), ist aber zunächst nicht bekannt (und durch einfache Normierungsverfahren, wie an der TLS angewandt, nicht ausreichend gut zu ermitteln). Daher werden hier die beiden Spektren durcheinander geteilt. Der Quotient ist eine stark modulierte Funktion, die bei (noch) falschen Fitparametern mit dem Absorptionsspektrum korreliert ist. Diese Linie wird nun stark geglättet. Danach wird die Differenz der beiden Spektren gebildet, also das momentane Residuum bestimmt. Nun wird dieser Vorgang unter Variation der Fitparameter so lange wiederholt, bis das mittlere Quadrat des Residuums minimiert ist (*least-squares fit*). Es soll dann keine Korrelation mit dem Spektrum mehr aufweisen. Die geglättete Linie ist dann die $\tau=1$ -Linie. Natürlich hängt ihre genaue Form und damit auch das Residuum vom Grad der Glättung ab. Es ist aber leicht zu erkennen, in welchem Bereich der Glättungsbreite das Rauschen gefiltert wird, aber die Flexibilität der $\tau=1$ -Linie noch ausreicht, um den Fit nicht zu verfälschen.

Beim Fit wird zuerst die Wellenlängenskala angepasst (bei den sehr genau kalibrierten Messungen an der TLS entspricht dies der Umrechnung von Vakuumwellenlängen durch Multiplikation mit dem Brechungsindex). Anschließend wird der von der Messung abgezogene Untergrund (konstanter Wert, daher eventuell eine Fehlerquelle) und die Breite der Gerätefunktion gefittet. Bei der Variation der eigentlichen Fitgrößen VMR, Temperatur und/oder SCG-Höhe müssen diese beiden gegebenenfalls nachkorrigiert werden.

Literatur

- [Aközbek et al., 2001] N. Aközbek, M. Scalora, C.M. Bowden und S.L. Chin, *White-light continuum generation and filamentation during the propagation of ultra-short laser pulses in air*, Optics Communications **191**, S. 353 (2001).
- [Aközbek et al., 2002] N. Aközbek, A. Iwasaki, A. Becker, M. Scalora, S. L. Chin und C.M. Bowden, *Third-harmonic generation and self-channeling in air using high-power femtosecond laser pulses*, Physical Review Letters **89**, S. 143901 (2002).
- [Alfano, 1989] R.R. Alfano (Hrsg.), *The Supercontinuum Laser Source*, Springer, Berlin (1989).
- [Alfano und Shapiro, 1970] R.R. Alfano und S.L. Shapiro, a) *Emission in the Region 4000 to 7000 Å Via Four-Photon Coupling in Glass*, b) *Observation of Self-phase Modulation and Small-scale Filaments in Crystals and Glasses*, c) *Direct Distortion of Electronic Clouds of Rare-Gas Atoms in Intense Electric Fields*, Physical Review Letters **24**, S. 584, S. 592 bzw. S. 1217 (1970).
- [Backus et al., 1998] S. Backus, C.G. Durfee III, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn und H. Nathel, *High Power Ultrafast Lasers*, Review of Scientific Instruments **69**, S. 1207 (1998).
- [Ball, 1974] L. M. Ball, *The Laser Lightning Rod System: Thunderstorm Domestication*, Applied Optics **13**, S. 2292 (1974).
- [Bentley et al., 2000] S.J. Bentley, R.W. Boyd, W.E. Butler und A.C. Melissinos, *Measurement of the thermal contribution to the nonlinear refractive index of air at 1064 nm*, Optics Letters **25**, S. 1192 (2000).
- [Bergé et al., 2004] L. Bergé, S. Skupin, F. Federer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J.-P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou und R. Sauerbrey, *Multiple Filamentation of TW laser pulses in air*, angenommen bei Physical Review Letters (März 2004).
- [Bergé und Couairon, 2001] L. Bergé und A. Couairon, *Gas-Induced Solitons*, Physical Review Letters **86**, S. 1003 (2001).
- [Bespalov und Talanov, 1966] V.I. Bespalov und V.I. Talanov, *Filamentary structure of light beams in nonlinear liquids*, JETP Letters **3**, S. 307 (1966).
- [Beyer et al., 1986] M. Beyer, W. Boeck, K. Möller und W. Zaengl, *Hochspannungstechnik: theoretische und praktische Grundlagen für die Anwendung*, S. 100-136, Springer, Berlin (1986).
- [Bissonnette, 1996] L.R. Bissonnette, *Multiple-scattering Lidar equation*, Applied Optics **35**, S. 6449 (1996).
- [Bissonnette und Hutt, 1995] L.R. Bissonnette und L.Hutt, *Multiply scattered aerosol lidar returns: inversion method and comparison with in situ measurements*, Applied Optics **34**, S. 6956 (1995).

- [Bjorkholm und Ashkin, 1974] J.E. Bjorkholm und A.A. Ashkin, *cw Self-Focusing and Self-Trapping of Light in Sodium Vapor*, Physical Review Letters **32**, S. 129 (1974).
- [Bloembergen, 1973] N. Bloembergen, *The influence of electron plasma formation on superbroadening in light filaments*, Optics Communications **8**, S. 285 (1973).
- [Bloembergen und Lallemant, 1966] N. Bloembergen und P. Lallemant, *Complex Intensity-Dependent Index of Refraction, Frequency Broadening of Stimulated Raman Lines, and Stimulated Rayleigh Scattering*, Physical Review Letters **16**, S. 81 (1966).
- [Bohren und Huffman, 1998] C.F. Bohren und D.R. Huffman, *Absorption and Scattering of Light by Small Particles*, Wiley, New York (1998).
- [Bondiou und Gallimberti, 1994] A. Bondiou und I. Gallimberti, *Theoretical modelling of the development of the positive spark in long gaps*, Journal of Physics D **27**, S. 1252 (1994).
- [Boutou et al., 2002] V. Boutou, C. Favre, S.C. Hill, Y.L. Pan, R.K. Chang, J.-P. Wolf, *Backward enhanced emission from multiphoton processes in aerosols*, Applied Physics B **75**, S. 145 (2002).
- [Boyd, 1992] R.W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, Boston (1992).
- [Brabec und Krausz, 2000] T. Brabec und F. Krausz, *Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics*, Review of Modern Physics **72**, S. 545 (2000).
- [Braun et al., 1995] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier und G. Mourou, *Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air*, Optics Letters **20**, S. 73 (1995).
- [Brewer et al., 1968] R.G. Brewer, J.R. Lifshitz, E. Garmire, R.Y. Chiao und C.H. Townes, *Small-Scale Trapped Filaments in Intense Laser Beams*, Physical Review **166**, S. 326 (1968).
- [Brewer und Lee, 1968] R.G. Brewer und C.H. Lee, *Self-Trapping with Picosecond Light Pulses*, Physical Review Letters **21**, S. 267 (1968).
- [Brodeur et al., 1996] A. Brodeur, F.A. Ilkov und S.L. Chin, *Beam Filamentation and the white light continuum divergence*, Optics Communications **129**, S. 193 (1996).
- [Brodeur et al., 1997] A. Brodeur, C.Y. Chien, F.A. Ilkov, S.L. Chin, O.G. Kosareva und V.P. Kandidov, *Moving focus in the propagation of ultrashort laser pulses in air*, Optics Letters **22**, S.304 (1997).
- [Brodeur und Chin, 1998] A. Brodeur und S.L. Chin, *Band-Gap Dependence of the Ultrafast White-Light Continuum*, Physical Review Letters **20**, S. 4406 (1998).
- [Burrows et al., 1999] J.P. Burrows, A. Dehn, B. Deters, S. Himmelmann, A. Richter, S. Voigt und J. Orphal, *Atmospheric Remote-Sensing Reference Data from GOME: 2. Temperature-Dependent Absorption Cross Sections of O₃ in the 231-794 nm Range*, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **61**, S. 509 (1999).
- [Carroll und Zheng, 1998] D. Carroll und X.H. Zheng, *Modelling third harmonic generation from micro-droplets*, Pure Applied Optics **7**, S. L49 (1998).

- [Chin et al., 1999] S.L. Chin, S. Petit, F. Borne und K. Miyazaki, *The white light supercontinuum is indeed an ultrafast white light laser*, Japanese Journal of Applied Physics **38**, S. L126 (1999).
- [Chiao et al., 1964] R.Y. Chiao, E. Garmire und C.H. Townes, *Self-Trapping of Optical Beams*, Physical Review Letters **13**, S. 479 (1964).
- [Chiao und Stoicheff, 1964] R. Chiao und B. P. Stoicheff, *Angular Dependence of Maser-Stimulated Raman Radiation in Calcite*, Physical Review Letters **12**, S. 290 (1964).
- [Chiron et al., 1999] A. Chiron, B. Lamouroux, R. Lange, J.-F. Ripoche, M. Franco, B. Prade, G. Bonnaud, G. Riazuelo und A. Mysyrowicz, *Numerical simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases*, European Physical Journal D **6**, S. 383 (1999).
- [Comtois et al., 2000] D. Comtois, C.Y. Chien, A. Desparois, F. Génin, G. Jarry, T.W. Johnston, J.-C. Kieffer, B. La Fontaine, F. Martin, R. Mawassi, H. Pépin, F.A.M. Rizk, F. Vidal, P. Couture, H.P. Mercure, C. Potvin, A. Bondiou-Clergerie und I. Gallimberti, *Triggering and guiding leader discharges using a plasma channel created by an ultrashort laser pulse*, Applied Physics Letters **76**, S. 819 (2000).
- [Corkum et al., 1986] P.B. Corkum, C. Rolland und T. Srinivasan-Rao, *Supercontinuum Generation in Gases*, Physical Review Letters **57**, S. 2268 (1986).
- [Couairon et al., 2002] A. Couairon, S. Tzortzakis, L. Bergé, M. Franco, B. Prade und A. Mysyrowicz, *Infrared femtosecond light filaments in air: simulations and experiments*, Journal of the Optical Society of America B **19**, S. 1117 (2002).
- [Couairon und Bergé, 2000] A. Couairon und L. Bergé, *Modeling the filamentation of ultra-short pulses in ionizing media*, Physics of Plasmas **7**, S. 193 (2000).
- [Courvoisier et al., 2003] F. Courvoisier, V. Boutou, J. Kasparian, E. Salmon, G. Méjean, J. Yu und J.-P. Wolf, *Ultraintense light filaments transmitted through clouds*, Applied Physics Letters **83**, S. 213 (2003).
- [Duclaux, 1936] Duclaux, J. Phys. Radiat. **7**, S. 361 (1936). Referenz aus: P.S. Argall und R.J. Sica, *LIDAR*, in: J.P. Hornak (Hrsg.), *The Encyclopedia of Imaging Science and Technology*, Wiley, New York, 2002.
- [Eckart et al., 2000] A. Eckart, S. Hippler, A. Glindemann, W. Hackenberg, A. Quirrenbach, P. Kalas, M. Kasper, R.I. Davies, T. Ott, S. Rabien, D. Butler, H.-C. Holstenberg, D. Looze, R.-R. Rohloff, K. Wagner, N. Wilnhammer, D. Hamilton, S.V.W. Beckwith, I. Appenzeller und R. Genzel, *ALFA: The MPIA/MPE Laser Guide Star AO System*, Experimental Astronomy **10**, S. 1, auch S. 5-147 (2000).
- [Edlén, 1966] B. Edlén, *The Refractive Index of Air*, Metrologia **2**, S.71 (1966).
- [Ehret et al., 1993] G. Ehret, C. Kiemle, W. Renger und G. Simmet, *Airborne remote sensing of tropospheric water vapor with a near-infrared differential absorption lidar system*, Applied Optics **32**, S. 4534 (1993).
- [Eloranta, 1998] E.W. Eloranta, *Practical model for the calculation of multily scattered lidar returns*, Applied Optics **37**, S. 2464 (1998).

-
- [Favre et al., 2002] C. Favre, V. Boutou, S.C. Hill, W. Zimmer, M. Krenz, H. Lambrecht, J. Yu, R.K. Chang, L. Woeste und J.-P. Wolf, *White-Light Nanosource with Directional Emission*, Physical Review Letters **89**, S. 035002 (2002).
- [Fibich und Ilan, 2001] G. Fibich und B. Ilan, *Deterministic vectorial effects lead to multiple filamentation*, Optics Letters **26**, S. 840 (2001).
- [Fiocco und Smullin, 1963] G. Fiocco und L.D. Smullin, *Detection of scattering layers in the upper atmosphere by optical radar*, Nature **199**, S. 1275 (1963).
- [Fix et al. 2002] A. Fix, M. Wirth, A. Meister, G. Ehret, M. Pesch und D. Weidauer, *Tunable ultraviolet optical parametric oscillator for differential absorption lidar measurements of tropospheric ozone*, Applied Physics B **75**, S. 153 (2002).
- [Franken et al. 1961] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters und G. Weinreich, *Generation of Optical Harmonics*, Physical Review Letters **7**, S. 118 (1961).
- [Gallimberti, 1979] I. Gallimberti, *The mechanism of the long spark formation*, Journal de Physique **40**, C7, S. 193 (1979).
- [Gardiner et al., 1997] T.D. Gardiner, M.J.T.Milton, F. Molero und P.T. Woods, *Infrared DIAL Measurements with an Injection-Seeded OPO*, in: A. Ansmann et al. (Hrsg.), *Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, S.451, Springer, Berlin (1997).
- [Garmire et al., 1966] E. Garmire, R.Y. Chiao und C.H. Townes, *Dynamics and Characteristics of the Self-Trapping of Intense Light Beams*, Physical Review Letters **16**, S. 347 (1966).
- [Golub et al., 1986] I. Golub, G. Erez und R. Shuker, *Cherenkov Emission Due to Laser-Induced Moving Polarization in Sodium*, Journal of Physics B **19**, S. L115 (1986).
- [Gustafson et al., 1969] T.K. Gustafson, J.P. Taran, H.A. Haus, J.R.Lifsitz und P.L. Kelley, *Self-Modulation, Self-Steepening, and Spectral Development of Light in Small-Scale Trapped Filaments*, Physical Review **177**, S. 306 (1969).
- [Hellwarth et al. 1990] T.W. Hellwarth, D.M. Pennington und M.A. Henesian, *Indices governing optical self-focusing and self-induced changes in the state of polarization of N₂, O₂, H₂, and Ar Gases*, Physical Review A **41**, S.2766 (1990).
- [Hulbert, 1937] Hulbert, Journal of the Optical Society of America **27**, S. 377 (1937).
Referenz aus: P.S. Argall und R.J. Sica, *LIDAR*, in: J.P. Hornak (Hrsg.), *The Encyclopedia of Imaging Science and Technology*, Wiley, New York, 2002.
- [Immler, 1999] F. Immler, *Lidarfernerkundung von troposphärischem Ozon und Aerosol in einer urbanen Umgebung*, Dissertation, Fachbereich Physik, Freie Universität Berlin (1999).
- [Immler, 2003] F. Immler, *A new algorithm for simultaneous ozone and aerosol retrieval from tropospheric DIAL measurements*, Applied Physics B **76**, S. 593 (2003).
- [Kandidov et al., 2003] V.P. Kandidov, O.G. Kosareva, I.S. Golubtsov, W. Liu, A. Becker, N. Aközbek, C.M. Bowden und S. L. Chin, *Self-transformation of a powerful femtosecond laser pulse into a white-light laser pulse in bulk optical media (or super-continuum generation)*, Applied Physics B **77**, S. 149 (2003).

- [Kasparian et al., 1997] J. Kasparian, B. Krämer, J.P. Dewitz, S. Vajda, P. Rairoux, B. Vezin, V. Boutou, T. Leisner, W. Hübner, J.P. Wolf, L. Wöste und K. H. Bennemann, *Angular Dependences of Third Harmonic Generation from Microdroplets*, Physical Review Letters **78**, S. 2952 (1997).
- [Kasparian et al., 2000] J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J.-P. Wolf, Y.-B. André, M. France, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, H. Wille, L. Wöste, *Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere*, Optics Letters **25**, S. 1397 (2000).
- [Kasparian et al., 2000a] J. Kasparian, R. Sauerbrey und S. L. Chin, *The critical laser intensity of self-guided light filaments in air*, Applied Physics B **71**, S. 877 (2000).
- [Kasparian et al., 2003] J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf und L. Wöste, *White-Light Filaments for Atmospheric Analysis*, Science **301**, S.61 (2003).
- [Keldysh, 1965] L.V. Keldysh, *Ionization in the Field of a Strong Electromagnetic Wave*, Soviet Physics JETP **20**, S. 1307 (1965).
- [Kolesik et al., 2003] M. Kolesik, G. Katona, J.V. Moloney und E.M. Wright, *Theory and simulation of supercontinuum generation in transparent bulk media*, Applied Physics B **77**, S. 185 (2003).
- [Koopman und Wilkerson, 1971] D. W. Koopman und T. D. Wilkerson, *Channeling of an Ionizing Electrical Streamer by a Laser Beam*, Journal of Applied Physics **42**, S. 1883 (1971).
- [Kosareva et al., 1997] O.G. Kosareva, V.P. Kandidov, A. Brodeur, C.Y. Chen, S.L. Chin, *Conical emission from laser-plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air*, Optics Letters **22**, S. 1332 (1997).
- [La Fontaine et al., 1999] B. La Fontaine, F. Vidal, Z. Jiang, C.Y. Chien, D. Comtois, A. Desparois, T.W. Johnston, J.-C. Kieffer, H. Pépin und H.P. Mercure, *Filamentation of ultrashort pulse laser beams resulting from their propagation over long distances in air*, Physics of Plasmas **6**, S. 1615 (1999).
- [La Fontaine et al., 2000] B. La Fontaine, D. Comtois, C.Y. Chien, A. Desparois, F. Génin, G. Jarry, T.W. Johnston, J.-C. Kieffer, F. Martin, R. Mawassi, H. Pépin, F.A.M. Rizk, F. Vidal, C. Potvin, P. Couture und H.P. Mercure, *Guiding large-scale spark discharges with ultrashort pulse laser filaments*, Journal of Applied Physics **88**, S. 610 (2000).
- [Loy und Chen, 1969] M.M.T. Loy und Y.R. Shen, *Small-Scale Filaments in Liquids and Tracks of Moving Foci*, Physical Review Letters **22**, S. 994 (1969).
- [Luther et al., 1994] G.G Luther, A.C. Newell, J.V. Moloney und E.M. Wright, *Short-pulse conical emission and spectral broadening in normally dispersive media*, Optics Letters **19**, S. 789 (1994).
- [Maiman, 1960] T. H. Maiman, *Stimulated Optical Radiation in Ruby*, Nature **187**, S. 493 (1960).

-
- [Marburger, 1975] J. H. Marburger, *Self-focusing: Theory*, Progress in Quantum Electronics **4**, S. 35 (1975).
- [Max et al., 1994] C.E. Max, K. Avicola, J.M. Brase, H.W. Friedman, H.D. Bissinger, J. Duff, D.T. Gavel, J.A. Horton, R. Kiefer, J.R. Morris, S.S. Olivier, R.W. Presta, D.A. Rapp, J.T. Salmon und K.E. Waltjen, *Design, layout, and early results of a feasibility experiment for sodium-layer laser-guide-star adaptive optics*, Journal of the Optical Society of America A **11**, S. 813 (1994).
- [Measures, 1984] R.M. Measures, *Laser Remote Sensing*, Wiley, New York (1984).
- [Méjean et al., 2003] G. Méjean, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, J.-P. Wolf, R. Bourayou, R. Sauerbrey, M. Rodriguez, L. Wöste, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Eislöffel, A. Scholz und A.P. Hatzes, *Towards a supercontinuum-based infrared Lidar*, Applied Physics B **77**, S. 357 (2003).
- [Méjean et al., 2004] G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, S. Frey, E. Salmon und J.-P. Wolf, *Remote Detection and Identification of Biological Aerosols using a Femtosecond Terawatt Lidar System*, angenommen bei Applied Physics B (Feb. 2004).
- [Mie, 1908] G.Mie, *Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen*. Annalen der Physik (4) **25**, S. 377 (1908).
- [Mikalauskas et al., 2002] D. Mikalauskas, A. Dubietis und R. Danielus, *Observation of light filaments induced in air by visible picosecond laser pulses*, Applied Physics B **75**, S. 899 (2002).
- [Miki et al., 1993] M. Miki, Y. Aihara und T. Shindo, *Developement of long gap discharges guided by a pulsed CO₂ laser*, Journal of Physics D **26**, S. 1244 (1993).
- [Miki und Wada, 1996] M. Miki und A. Wada, *Guiding of electrical discharges under atmospheric air by ultraviolet laser-produced plasma channel*, Journal of Applied Physics **80**, S. 3208 (1996).
- [Mlejnek et al., 1998] M. Mlejnek, E.M. Wright und J.V. Moloney, *Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air*, Optics Letters **23**, S. 382 (1998).
- [Mlejnek et al., 1999] M. Mlejnek, M. Kolesik, J. V. Moloney und E. M. Wright, *Optically Turbulent Femtosecond Light Guide in Air*, Physical Review Letters **83**, S. 2938 (1999).
- [Moll et al., 2002] K.D. Moll, D. Homoelle, A.L. Gaeta und R.W. Boyd, *Conical Harmonic Generation in Isotropic Materials*, Physical Review Letters **88**, S. 153901 (2002).
- [Morris, 1994] J.R. Morris, *Efficient excitation of a mesospheric sodium laser guide star by intermediate-duration pulses*, Journal of the Optical Society of America A **11**, S. 832 (1994).
- [Nibbering et al., 1996] E.T.J. Nibbering, P.F. Curley, G. Grillon, B.S. Prade, M.A. Franco, F. Salin und A. Mysyrowicz, *Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air*, Optics Letters **21**, S. 62 (1996).

- [Nibbering et al., 1997] E. Nibbering, G. Grillon, M. Franco, B. Prade und A. Mysyrowicz, *Determination of the inertial contribution to the nonlinear refractive index of air, N_2 and O_2 by use of unfocused high-intensity femtosecond laser pulses*, Journal of the Optical Society of America B **14**, S. 650 (1997).
- [Nishioka et al., 1995] H. Nishioka, W. Odajima, K. Ueda und H. Takuma, *Ultrabroadband flat continuum generation in multichannel propagation of terrawatt Ti:sapphire laser pulses*, Optics Letters **20**, S. 2505 (1995).
- [Pennington et al., 1989] D.M. Pennington, M.A. Hennesian und R.W. Hellwarth, *Nonlinear index of air at $1.053 \mu\text{m}$* , Physical Review A **39**, S. 3003 (1989).
- [Pépin et al., 2001] H. Pépin, D. Comptois, F. Vidal, C.Y. Chien, A. Desparois, T.W. Johnston, J.C. Kieffer, B.L. Fontaine, F. Martin, F.A.M. Rizk, C. Potvin, P. Couture, H.P. Mercure, A. Bondiou-Clergerie, P. Lalande und I. Gallimberti, *Triggering and guiding high-voltage large-scale leader discharges with sub-joule ultrashort laser pulses*, Physics of Plasmas **8**, S. 2532 (2001).
- [Platt, 1994] U. Platt, *Differential optical absorption spectroscopy (DOAS)*, in: M.W. Sigrist (Hrsg.), *Air Monitoring by Spectroscopic Techniques*, Chemical Analysis **127**, Wiley-Interscience (1994).
- [Povey et al., 1998] I.M. Povey, A. M. South, A. t'kint de Roodenbeke, C. Hill, R.A. Freshwater und R.L. Jones, *A broadband lidar for the measurement of tropospheric constituent profiles from the ground*, Journal of Geophysical Research **103**, S. 3369 (1998).
- [Proulx et al., 2000] A. Proulx, A. Talebpour, S. Petit und S.L. Chin, *Fast pulsed electric field created from the self-generated filament of a femtosecond Ti:Sapphire laser pulse in air*, Optics Communications **174**, S. 305 (2000).
- [Rairoux et al., 2000] P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wedekind, H. Wille und L. Wöste, *Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses*, Applied Physics B **71**, S. 573 (2000).
- [Rakov et al., 1998] V.A. Rakov, M.A. Uman, K.J. Rambo, M.I. Fernandez, R.J. Fisher, G.H. Schnetzer, R. Thottappillil, A. Eybert-Berard, J.P. Berlandis, P. Lalande, A. Bonamy, P. Laroche und A. Bondiou-Clergerie, *New Insights into Lightning Processes Gained from Triggered-Lightning Experiments in Florida and Alabama*, Journal of Geophysical Research **103**, S. 14117 (1998).
- [Rambo et al., 2001] P. Rambo, J. Schwarz und J.-C. Diels, *High-voltage electrical discharges induced by an ultrashort-pulse UV laser system*, Journal of Optics A **3**, S. 146 (2001).
- [Ranka et al., 1996] J.K. Ranka, R.W. Schirmer und A.L. Gaeta, *Observation of Pulse Splitting in Nonlinear Dispersive Media*, Physical Review Letters **77**, S. 3783 (1996).
- [Rodriguez, 1998] M. Rodriguez, *Femtosekunden-Weißlicht-Lidar: Ortsaufgelöste Absorptionsspektroskopie in der Atmosphäre*, Diplomarbeit, Fachbereich Physik, Freie Universität Berlin (1998).

- [Rodriguez et al., 2002] M. Rodriguez, R. Sauerbrey, H. Wille, L. Wöste, T. Fujii, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, L. Klingbeil, K. Rethmeier, W. Kalkner, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu und J.P. Wolf, *Triggering and guiding megavolt discharges by use of laser-induced ionized filaments*, Optics Letters **27**, S. 772 (2002).
- [Rodriguez et al., 2004] M. Rodriguez, R. Bourayou, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, A. Scholz, B. Stecklum, J. Eislöffel, U. Laux, A. P. Hatzes, R. Sauerbrey, L. Wöste und J.-P. Wolf, *Kilometer-range non-linear propagation of fs laser pulses*, Physical Review E **69**, S. 036607 (2004).
- [Rohwetter et al., 2004] Ph. Rohwetter, J. Yu, G. Méjean, K. Stelmaszczyk, E. Salmon, J. Kasparian, J.-P. Wolf und L. Wöste, *Remote LIBS with ultra-short pulses*, angenommen im Journal of Analytical Atomic Spectrometry (2004).
- [Rothman et al., 2003] L.S. Rothman et al., *The HITRAN molecular spectroscopic database: edition of 2000 including updates through 2001*, Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer **82**, S. 5 (2003). <http://www.hitran.com>.
- [Rudic et al., 2002] S. Rudic, C. Murray, D. Ascenzi, H. Anderson, J.N. Harvey und A.J. Orr-Ewing, *The dynamics of formation of HCl products from the reaction of Cl atoms with methanol, ethanol, and dimethyl ether*, Journal of Chemical Physics **117**, S. 5692 (2002).
- [Sacchi et al., 1968] C.A. Sacchi, C.H. Townes und J.R. Lifshitz, *Anti-Stokes Generation in Trapped Filaments of Light*, Physical Review **174**, S. 439 (1968).
- [Schillinger und Sauerbrey, 1999] H. Schillinger und R. Sauerbrey, *Electrical conductivity of long plasma channels in air generated by self-guided femtosecond laser pulses*, Applied Physics B **68**, S. 753 (1999).
- [Schmidt, 1931] B. Schmidt, *Ein lichtstarkes komafreies Spiegelsystem*, Central-Zeitung für Optik und Mechanik **52**, Heft 2 (1931).
- [Schoulepnikoff et al., 1997] L. Schoulepnikoff, V. Simeonov, H. van den Bergh, B. Calpini, D. Jeker und V. Mitev, *Characterization of Raman cell-based transmitters for UV DIAL applications*, in: A. Ansmann et al. (Hrsg.), *Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, S.387, Springer, Berlin (1997).
- [Schwarz et al., 2000] J. Schwarz, P. Rambo, J.-C. Diels, M. Kolesik, E.M. Wright und J.V. Moloney, *Ultraviolet filamentation in air*, Optics Communications **180**, S. 383 (2000).
- [Shen, 1984] Y.R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, New York (1984).
- [Shimada et al., 1998] Y. Shimada, S. Uchida, H. Yasuda, S. Motokoshi, C. Yamanaka, Z. Kawasaki, T. Yamanaka, Y. Ishikubo und M. Adachi, *Laser-triggered lightning*, Proceedings of the SPIE **3423**, S. 258 (1998).
- [Shimoji et al., 1989] Y. Shimoji, A.T. Fay, R.S.F. Chang und N. Djeu, *Direct measurement of the nonlinear refractive index of air*, Journal of the Optical Society of America **6**, S. 1994 (1989).
- [Skupin, 2001] S. Skupin, *Simulation der Ausbreitung hochenergetischer Lichtpulse in Gasen*, Diplomarbeit, Physikalisch-Astronomische Fakultät der Friedrich-Schiller-Universität Jena (2001).

- [Skupin et al., 2002] S. Skupin, U. Peschel, Ch. Etrich, L. Leine, D. Michaelis und F. Lederer, *Intense pulses in air: breakup of rotational symmetry*, Optics Letters **27**, S. 1812 (2002).
- [Smith et al., 1977] W. Lee Smith, P. Liu und N. Bloembergen, *Superbroadening in H_2O and D_2O by self-focused picosecond pulses from a YAG: Nd laser*, Physical Review A **15**, S. 2396 (1977).
- [Sprangle et al. 2002] P. Sprangle, J.R. Peñano und B. Hafizi, *Propagation of intense short laser pulses in the atmosphere*, Physical Review E **66**, S. 046418 (2002).
- [Stein et al., 1997] B. Stein, F. Immler, B. Mielke, P. Rairoux, C. Wedekind, H. Wille und L. Wöste, *A Solid State Tunable Ozone Lidar*, in: A. Ansmann et al. (Hrsg.), *Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, S.391, Springer, Berlin (1997).
- [Stein et al., 1999] B. Stein, C. Wedekind, H. Wille, F. Immler, M. Müller, L. Wöste, M. del Guasta, M. Morandi, L. Stefanutti, A. Antonelli, P. Agostini, V. Rizi, G. Readelli, V. Mitev, R. Matthey, R. Kivi und E. Kyrö, *Optical classification, existence temperatures and coexistence of different PSC types*, Journal of Geophysical Research **104**, S. 23983 (1999).
- [Stelmaszczyk et al., 2000] K. Stelmaszczyk, A. Czyzewski, A. Szymanski, A. Pietruczuk, S. Chudzynski, K. Ernst und T. Stacewicz, *New method of elaboration of the lidar signal*, Applied Physics B **70**, S.295 (2000).
- [Stingl et al., 1995] A. Stingl, M. Lenzner, C. Spielmann, F. Krausz und R. Szipocs, *Sub 10-fs mirror-dispersion-controlled Ti:Sa laser*, Optic Letters **20**, S. 602 (1995).
- [Strickland und Corkum, 1994] D. Strickland und P.B. Corkum, *Resistance of short pulses to self-focusing*, Journal of the Optical Society of America B **11**, S.492 (1994).
- [Strickland und Mourou, 1985] D. Strickland und G. Mourou, *Compression of amplified chirped pulses*, Optics Communications **56**, S. 219 (1985).
- [Talepour et al., 1999] A. Talebpour, S. Petit und S.L. Chin, *Re-focusing during the propagation of a focused femtosecond Ti:Sapphire laser pulse in air*, Optics Communications **171**, S. 285 (1999).
- [Toon und Ackerman, 1981] O.B. Toon und T.P. Ackerman, *Algorithms for the calculation of scattering by stratified spheres*, Applied Optics **20**, S. 3657 (1981).
- [Tzortzakis et al., 1999] S. Tzortzakis, M.A. Franco, Y.-B. André, A. Chiron, B. Lamouroux, B.S. Prade und A. Mysyrowicz, *Formation of a conducting channel in air by self-guided femtosecond laser pulses*, Physical Review E **60**, S. R3505 (1999).
- [Tzortzakis et al., 2001] S. Tzortzakis, L. Bergé, A. Couairon, M. Franco, B. Prade und A. Mysyrowicz, *Breakup and fusion of self-guided femtosecond light pulses in air*, Physical Review Letters **86**, S. 5470 (2001).
- [Tzortzakis et al., 2002] S. Tzortzakis, G. Méchain, G. Patalano, Y.-B. André, B. Prade, M. Franco, A. Mysyrowicz, J.-M. Munier, G. Gheudin, G. Beaudin und P. Encrenaz, *Coherent subterahertz radiation from femtosecond infrared filaments in air*, Optics Letters **27**, S. 1944 (2002).

-
- [von Zahn et al., 2000] U. von Zahn, G. von Cossart, J. Fiedler, K.H. Fricke, G. Nelke, G. Baumgarten, D. Rees, A. Hauchcorne und K. Adolfsen, *The ALOMAR Rayleigh/Mie/Raman lidar: Objectives, configuration and performance*, Annales Geophysicae **18**, S. 815 (2000).
- [Wang et al., 1989] Q.Z. Wang, P.P. Ho und R.R. Alfano, *Spercontinuum Generation in Condensed Matter*, in: [Alfano, 1989], S. 33.
- [Weidauer et al., 1997] D. Weidauer, P. Rairoux, M. Ulbricht, J.P. Wolf und L. Wöste, *Ozone, VOC, NO₂ and Aerosol Monitoring in Urban and Industrial Areas Using a Mobile DIAL System*, in: A. Ansmann et al. (Hrsg.), *Advances in Atmospheric Remote Sensing with Lidar*, S. 423, Springer, Berlin (1997).
- [Wille et al., 2001] H. Wille, J. C. Luderer, M. Krenz, M. Rodriguez und L. Wöste, *Water droplet formation in a cloud chamber induced by ultra short laser Pulses*, in: CLEO 2001, Postconference Technical Digest, S. 409 (2001).
- [Wille et al., 2002] H. Wille, M. Rodriguez, J. Kasparian, D. Mondelain, J. Yu, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.P. Wolf und L. Wöste, *Teramobile: a mobile femtosecond-terawatt laser and detection system*, European Physical Journal - Applied Physics **20**, S. 183 (2002).
- [Wöste et al., 1997] L. Wöste, C. Wedekind, H. Wille, P.Rairoux, B. Stein, S. Nikolov, Ch. Werner, S. Niedermeyer, F. Ronneberger, H. Schillinger und R. Sauerbrey, *Femtosecond Atmospheric Lamp*, Laser und Optoelektronik **29**, S. 51 (1997).
- [Wulfmeyer und Bösenberg, 1998] V. Wulfmeyer und J Bösenberg, *Ground-Based Differential Absorption Lidar for Water-Vapor Profiling: Assessment of Accuracy, Resolution, and Meteorological Applications*, Applied Optics **37**, S. 3825, auch S. 3845 (1998).
- [Xu et al., 1997] L. Xu, G. Tempea, A. Poppe, M. Lenzner, Ch. Spielmann, F. Krausz, A. Stingl und K. Ferencz, *High-power sub-10-fs Ti:sapphire oscillators*, Applied Physics B **65**, S. 151 (1997).
- [Yu et al., 2001] J. Yu, D. Mondelain, G. Ange, R. Volk, S. Niedermeier, J.-P. Wolf, J. Kasparian und R. Sauerbrey, *Backward supercontinuum emission from a filament generated by ultrashort laser pulses in air*, Optics Letters **26**, S. 533 (2001).
- [Yu et al., 2003] J. Yu, D. Mondelain, J. Kasparian, E. Salmon, S. Geffroy, C. Favre, V. Boutou und J. P. Wolf, *Sonographic probing of laser filaments in air*, Applied Optics **42**, S. 20 (2003).
- [Zhao et al., 1995] X.M. Zhao, J.-C. Diels, C.Y. Wang und J.M. Elizondo, *Femtosecond ultraviolet laser pulse induced lightning discharges in gases*, IEEE Journal of Quantum Electronics **31**, S. 599 (1995).
- [Zimmer, 2001] W. Zimmer, *Nichtlineare optische Effekte bei der Wechselwirkung von-Femtosekundenlaserpulsen mit Mikrotropfen*, Dissertation, Fachbereich Physik, Freie Universität Berlin (2001).
- [Zürl und Graener, 1998] R. Zürl und H. Graener, *High-harmonic generation of mid-IR pulses in simple liquids*, Applied Physics B **66**, S. 213 (1998).

Liste eigener Publikationen

Zeitschriftenartikel

- M. Rodriguez, R. Bourayou, G. Méjean, J. Kasparian, J. Yu, E. Salmon, A. Scholz, B. Stecklum, J. Eislöffel, U. Laux, A.P. Hatzes, R. Sauerbrey, L. Wöste und J.-P. Wolf, *Kilometer-range non-linear propagation of fs laser pulses*, Physical Review E **69**, S. 036607 (2004).
- L. Bergé, S. Skupin, F. Federer, G. Méjean, J. Yu, J. Kasparian, E. Salmon, J.-P. Wolf, M. Rodriguez, L. Wöste, R. Bourayou und R. Sauerbrey, *Multiple Filamentation of TW laser pulses in air*, angenommen bei Physical Review Letters (März 2004).
- G. Méjean, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu, J.-P. Wolf, R. Bourayou, R. Sauerbrey, M. Rodriguez, L. Wöste, H. Lehmann, B. Stecklum, U. Laux, J. Eislöffel, A. Scholz und A.P. Hatzes, *Towards a supercontinuum-based infrared Lidar*, Applied Physics B **77**, S. 357 (2003).
- J. Kasparian, M. Rodriguez, G. Méjean, J. Yu, E. Salmon, H. Wille, R. Bourayou, S. Frey, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.-P. Wolf und L. Wöste, *White-Light Filaments for Atmospheric Analysis*, Science **301**, S.61 (2003).
- M. Rodriguez, R. Sauerbrey, H. Wille, L. Wöste, T. Fujii, Y.-B. André, A. Mysyrowicz, L. Klingbeil, K. Rethmeier, W. Kalkner, J. Kasparian, E. Salmon, J. Yu und J.P. Wolf, *Triggering and guiding megavolt discharges by use of laser-induced ionized filaments*, Optics Letters **27**, S. 772 (2002).
- H. Wille, M. Rodriguez, J. Kasparian, D. Mondelain, J. Yu, A. Mysyrowicz, R. Sauerbrey, J.P. Wolf und L. Wöste, *Teramobile: a mobile femtosecond-terawatt laser and detection system*, European Physical Journal - Applied Physics **20**, S. 183 (2002).
- J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J.-P. Wolf, Y.-B. André, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz, S. Tzortzakis, M. Rodriguez, H. Wille und L. Wöste, *Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere*, Optics Letters **25**, S. 1397 (2000).
- P. Rairoux, H. Schillinger, S. Niedermeier, M. Rodriguez, F. Ronneberger, R. Sauerbrey, B. Stein, D. Waite, C. Wedekind, H. Wille und L. Wöste, *Remote sensing of the atmosphere using ultrashort laser pulses*, Applied Physics B **71**, S. 573 (2000).

Buchbeiträge

- W. Zimmer, M. Rodriguez und L. Wöste, *Application Perspectives of Intense Laser Pulses in Atmospheric Diagnostics*, in: P. Hering, J.P. Lay, S. Stry (Hrsg.), *Laser in Environmental and Life Sciences - Modern Analytical Methods*, Springer, Berlin, S. 19-33 (Nov. 2003, © 2004).
- L. Wöste, C. Wedekind, H. Wille, P. Rairoux, M. Rodriguez, B. Stein, R. Sauerbrey, H. Schillinger, F. Ronneberger und S. Niedermaier, *Femtosecond Lidar*, in: T. Elsaesser, J.G. Fujimoto, D.A. Wiersma, W. Zinth (Hrsg.), *Ultrafast Phenomena XI*, Springer Series in Chemical Physics 63, S. 118-120 (1998).

Konferenzartikel (Auswahl)

- M. Rodriguez, R. Bourayou, J. Kasparian, G. Méjean, A. Mysyrowicz, E. Salmon, R. Sauerbrey, H. Wille, L. Wöste, J.-P. Wolf, J. Yu und W. Zimmer, *Femtosecond LIDAR: new perspectives of atmospheric remote sensing*, LAT Moskau 2002, Proceedings of SPIE **5149**, Laser Applications in Medicine, Biology, and Environmental Science, S. 135-146 (2003).
- J.-P. Wolf, R. Bourayou, V. Boutou, C. Favre, J. Kasparian, G. Mejean, D. Mondelain, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, E. Salmon, R. Sauerbrey, H. Wille, L. Wöste, J. Yu, *Teramobile: a nonlinear femtosecond terawatt lidar*, in: L.R. Bissonnette, G. Roy, G. Vallee (Hrsg.), 21th ILRC, Quebec, Reviewed and Revised Papers, S. 47 (2002).
- H. Wille, J. C. Luderer, M. Krenz, M. Rodriguez und L. Wöste, *Water droplet formation in a cloud chamber induced by ultra short laser Pulses*, in: CLEO 2001, Baltimore, Optical Society of America, Postconference Technical Digest, S. 409 (2001).