

**Erzeugung optischer Durchbrüche
bei hoher numerischer Apertur:
Numerische Simulationen zur Submikrometer-
Manipulation transparenter Materialien und
biologischer Zellen mit ultrakurzen Laserpulsen**

Von der Fakultät Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

zur Erlangung des Grades
Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.
genehmigte Dissertation

von
Dipl.-Phys. Cord L. Arnold
geboren am 12.12.1977 in Hannover

2007

Referent: Prof. Dr. Wolfgang Ertmer

Korreferent: Prof. Dr. Uwe Morgner

Tag der Promotion: 11.12.2007

Zusammenfassung

Durch ultrakurze Laserpulse ist es möglich, im Inneren transparenter Materialien Modifikationen mit hoher Genauigkeit herbeizuführen. Am Ort des Fokus wird durch nichtlineare Ionisationsprozesse, Multiphotonen- und Kaskadenionisation, ein dichtes Elektronen-Loch-Plasma erzeugt. Wird in Form des Plasmas eine ausreichende Energiedichte im Fokus deponiert, die eine nachhaltige Veränderung des Materials zur Folge hat, wird von der Erzeugung eines optischen Durchbruchs gesprochen. Dies hat weitreichende Anwendung in der Mikro- und Nanostrukturierung sowie in der refraktiven Chirurgie des Auges und der Biophotonik gefunden.

In Verbindung mit der hohen Intensität, die zur Erzeugung eines optischen Durchbruchs notwendig ist, treten eine Vielzahl zusätzlicher nichtlinearer Effekte auf. So steht die Erzeugung des optischen Durchbruchs in Konkurrenz zu nichtlinearen Ausbreitungseffekten, wie Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung. Diese wirken sich nachteilig auf Anwendungen aus, da die Präzision und die Reproduzierbarkeit der erzielten Manipulationen verringert werden. Es ist bekannt, dass der Einfluss der nichtlinearen Begleiteffekte bei starker Fokussierung geringer wird. Daher werden experimentell vermehrt Mikroskopobjektive eingesetzt, um ultrakurze Pulse unter hoher numerischer Apertur zu fokussieren; mit dem Ziel, die Präzision zu erhöhen, die Pulsenergie zu verringern und Begleiteffekte zu reduzieren.

Theoretisch hingegen ist das Induzieren des optischen Durchbruchs bei hoher numerischer Apertur bisher kaum untersucht. Im Rahmen dieser Arbeit geschieht dies erstmals in Form eines ganzheitlichen Modells unter Berücksichtigung der nichtlinearen Ausbreitung, der Plasmaerzeugung und der Wechselwirkung mit dem erzeugten Plasma. Im Mittelpunkt steht die Fragestellung, ob bei starker Fokussierung die Erzeugung des optischen Durchbruchs ohne den Einfluss nichtlinearer Nebeneffekte erzielt werden kann. Ohne Anwenden der sonst üblichen skalaren und paraxialen Näherungen wird eine nichtlineare Propagationsgleichung entwickelt, die durch Berücksichtigen von nichtparaxialen und vektoriellen Effekten speziell für Fokussierung unter hoher numerischer Apertur geeignet ist. Die vorgestellte Gleichung stellt eine Verallgemeinerung üblicher, in der Vergangenheit benutzter, nichtlinearer Schrödinger-Gleichungen dar. Die nichtlineare Ionisation des Materials wird mit Hilfe des kürzlich vorgeschlagenen MRE-Modells (Multiple Rate Equation Model) beschrieben. Es ist das erste mathematisch einfache Modell, das die Dynamik im Leitungsband bei der nichtlinearen Ionisation mit ultrakurzen Pulsen erfasst, wie es bisher nur sehr viel komplexere kinetische Modellierungen vermochten. Um aussagekräftige Ergebnisse zu erhalten, wurden möglichst realistische Fokusfelder als Ausgangspunkt der Modellierungen mit Hilfe von nichtparaxialer und vektorieller Beugungstheorie berechnet.

Unter Benutzung des eingeführten Modells wurde die nichtlineare Wechselwirkung im Bereich mittlerer bis hoher numerischer Apertur modelliert. Um als experimentellen Bezug besonders die Bedingungen, wie sie bei der Zellchirurgie vorgefunden werden, numerisch nachzuempfinden, wurde Wasser als Modellmedium für biologisches Weichgewebe und Zytoplasma angenommen. Die zur Manipulation des Materials führenden thermischen und mechanischen Effekte sind die direkte Folge der im Plasma deponierten Energie. Daher sind die Form, die Größe und die Dichte der erzeugten Durchbruchplasmen von besonderem Interesse. Die Modellierungen zeigen, dass für eine numerische Apertur $NA < 0,9$ die Erzeugung des optischen Durchbruchs erheblich von Plasmadefokussierung beeinflusst ist, was zu verhältnismäßig großen und stark verzerrten Plasmaverteilungen führt, die eine Manipulation höchster Präzision nicht begünstigen. Wird die numerische Apertur dagegen größer gewählt $NA \geq 0,9$, kann der optische Durchbruch unbeeinflusst von unerwünschten Nebeneffekten erzielt werden. Die von der Zellchirurgie bekannte Schneidgenauigkeit im Submikrometerbereich, sowie die Minimalinvasivität kann numerisch bestätigt werden.

Schlagnworte: Optischer Durchbruch, Ultrakurze Laserpulse, Nichtlineare Propagation, Nichtparaxiale und Vektorielle Optik

Abstract

The use of ultrashort laser pulses enables to generate high precision material modification within the bulk of transparent media. At the focus a dense electron-hole plasma is generated by nonlinear ionization, namely multiphoton and avalanche ionization. If the energy density deposited in the focus by means of the generated plasma is sufficient to induce a modification to the material, optical breakdown is said to occur. Ultrashort pulses recently found extensive application in micro- and nano-structuring as well as in refractive surgery of the eye and in biophotonics.

Due to high laser intensity needed to induce optical breakdown, nonlinear plasma formation is generally accompanied by a number of additional nonlinear effects like self-focusing, filamentation and plasma defocusing. These side effects are of parasitic nature to applications utilizing nonlinear plasma formation, seriously limiting achievable precision and reproducibility. Experimentally it is a well known fact that the intensity of parasitic effects decreases as focusing increases. Thus, applications of ultrashort pulses have recently evolved towards tight focusing using high numerical aperture microscope objectives, to reduce pulse energy, enhance precision, and limit nonlinear side effects.

However, from the theoretical and numerical point of view generation of optical breakdown at high numerical aperture focusing was barely studied. This is the first time to investigate nonlinear interaction of ultrashort laser pulses at tight focusing conditions using a comprehensive numerical model, taking into account nonlinear propagation, plasma generation as well as the pulse's interaction with the self-generated plasma. The objective is to investigate if tight focusing enables to generate optical breakdown, unaffected by parasitic side effects. Without implementing the widely used scalar and paraxial approximations a nonlinear propagation equation is derived especially suited to meet the conditions of high numerical aperture focusing by taking into account nonparaxial and vectorial effects. The equation derived is shown to be a generalization of common nonlinear Schrödinger equations used in the past. Nonlinear ionization is numerically treated using the multiple rate equation model introduced recently. It is the first model of nonlinear ionization to combine the complexity of kinetic approaches with the mathematical simplicity of rate equations. The electric field at the focus used as initial conditions for the numerical simulations is most important at tight focusing. Hence, nonparaxial and vectorial diffraction theory was used to calculate initial focal fields.

The theoretical model derived was used to numerically study the interaction of ultrashort laser pulses with transparent media in the domain of high numerical aperture focusing. Concentrating on parameters usually found in applications of cell surgery, water is used as a model substance for biological soft tissue and cellular constituents. The thermal as well as the mechanical effects resulting in the desired manipulation of the material are the consequence of the energy deposited in the focal region by means of the breakdown plasma. Hence, the shape, the size, and the density of generated breakdown plasmas are of particular interest. As the numerical simulations show, generation of optical breakdown is strongly influenced by plasma defocusing for focusing conditions of numerical aperture $NA < 0.9$, resulting in spatially distorted breakdown plasmas of expanded size not suited for material manipulation of highest precision. For focusing conditions of numerical aperture $NA \geq 0.9$ on the other hand generation of optical breakdown was found to be unaffected by distortive side effects. The extraordinary sub micrometer precision of intracellular minimum invasive dissection is numerically demonstrated.

Keywords: Optical Breakdown, Ultrashort Laser Pulses, Nonlinear Propagation, Nonparaxial and Vectorial Optics

Inhaltsverzeichnis

| | |
|--|------------|
| Zusammenfassung | iii |
| Abstract | v |
| 1 Einleitung | 1 |
| 1.1 Erzeugung optischer Durchbrüche | 3 |
| 1.2 Nichtlineare Begleiteffekte bei der Erzeugung optischer Durchbrüche | 6 |
| 1.3 Ziel der Arbeit | 8 |
| 2 Nichtlineare Propagation ultrakurzer Laserpulse bei hoher numerischer Apertur | 11 |
| 2.1 Allgemeine Aspekte der Selbstfokussierung | 11 |
| 2.2 Vektortheorie der Selbstfokussierung | 20 |
| 2.2.1 Reduzieren der Polarisationsrichtungen | 26 |
| 2.2.2 Nichtparaxiale Darstellung | 29 |
| 2.2.3 Das fundamentale Beugungslimit und die paraxiale Näherung | 32 |
| 2.2.4 Nichtparaxiale, vektorielle Propagationsgleichung | 36 |
| 2.3 Zweidimensionale nichtlineare Propagation | 41 |
| 2.4 Propagationsgleichung für ultrakurze Laserpulse bei hoher NA | 49 |
| 3 Nichtlineare Ionisation von Dielektrika | 53 |
| 3.1 Optische Eigenschaften ionisierter Dielektrika | 53 |
| 3.2 Keldysh-Theorie der nichtlinearen Photoionisation | 57 |
| 3.3 MRE - Modell | 62 |
| 4 Vektorielle, nichtparaxiale Beugung | 69 |
| 5 Modellierung von Durchbruchplasmen bei hoher numerischer Apertur | 83 |
| 6 Diskussion und Ausblick | 95 |
| Literaturverzeichnis | 101 |
| A Lebenslauf und Bildungsweg | 113 |
| B Liste der Publikationen | 115 |

C Danksagung

117

1 Einleitung

Die Möglichkeit, transparente Materialien durch fokussierte ultrakurze Laserpulse bearbeiten zu können, hat in den vergangenen Jahren eine Vielzahl potentieller und bereits etablierter Anwendungen hervor gebracht. Dazu zählt die Mikro- und Nanostrukturierung sowohl von Oberflächen [Kor04], als auch des Inneren transparenter Materialien, beispielsweise zur Erzeugung von Wellenleitern [Ose03] oder mikrofluidischen Elementen [Lai06]. Durch Zweiphotonen-Polymerisation ist es möglich, komplexe dreidimensionale Strukturen mit Details im Submikrometerbereich zu erzeugen [Ser04]. Des Weiteren werden ultrakurze Laserpulse in der refraktiven Chirurgie des Auges bereits kommerziell zum Schneiden des sogenannten Flaps beim LASIK-Verfahren als Alternative zum Mikrokeratom eingesetzt [Lub00, Hei03, Juh99]; eine potentielle Anwendung bei der Behandlung der Altersweitsichtigkeit ist vielversprechend [Rip07]. Im Bereich der Biophotonik und dort besonders auf dem Gebiet der Multiphotonen-Mikroskopie und Zellchirurgie hat sich der Einsatz ultrakurzer Laserpulse als höchst geeignetes Instrument sowohl bei der Bildgebung als auch bei der Manipulation von biologischen Zellen und Mikroorganismen herausgestellt [Kön01, Yan04, Chu06]. Gezieltes Ausschalten einzelner Organellen oder Strukturen innerhalb von Zellen oder Organismen liefert Erkenntnisse über die Zellteilung, die embryonale Entwicklung [Sup05] oder die mechanische Integrität [Max05]. Auch am geöffneten Rattenschädel wurde das Verfahren bereits angewendet [Nis06], wobei durch gezielte Laserschüsse Schlaganfälle im Gehirn ausgelöst wurden. Der dadurch veränderte Blutfluss konnte wiederum durch Multiphotonen-Mikroskopie dynamisch sichtbar gemacht werden. Die kurzzeitige Permeabilisierung der Zellmembran durch gezielte Laserschüsse hat sich als schonende und höchst selektive Methode der Transfektion, dem Einbringen von Plasmiden oder anderer Substanzen in die Zelle, erwiesen [Tir02, Ste06, Bau07].

Alle beschriebenen Anwendungen basieren auf einer nichtlinearen intensitätsabhängigen Wechselwirkung der ultrakurzen Pulse mit dem jeweiligen Material. Dies ist im Fall der Zweiphotonen-Polymerisation das auf den Fokus begrenzte, nichtlinear initiierte, chemische Aushärten eines Polymerharzes und bei der Multiphotonen-Mikroskopie die nichtlineare Fluoreszenzanregung

von Farbstoffen, mit denen die Proben versehen sind. Bei den restlichen Anwendungen ist die Manipulierbarkeit der Materialien durch nichtlineare Ionisationsprozesse bedingt, die zur Erzeugung eines energiereichen Elektronen-Loch-Plasmas im Inneren des Materials führen. Wird dabei eine bestimmte Energiedichte erreicht, die ausreicht, das Material nachhaltig zu verändern, wird vom optischen Durchbruch gesprochen. Für Gläser beispielsweise kann diese Veränderung entweder das lokale Aufschmelzen sein, wie es beim Erzeugen von Wellenleitern ausgenutzt wird oder ein lokales Splintern des Materials, was zur Erzeugung von Hohlräumen führt [Sud02]. In wässrigen Medien wie biologischem Gewebe kommt es zum Expandieren einer Kavitationsblase, die das umliegende Gewebe zerreit. Dieser Prozess wird als Photodisruption bezeichnet.

Entscheidend fr die Erzeugung eines optischen Durchbruchs und die dadurch bedingte Manipulierbarkeit im Inneren eines Materials ist die Generierung eines ausreichend dichten Plasmas durch nichtlineare Ionisation. Jede Modifikation des Materials, ob thermisch oder mechanisch, ist direkte Folge des erzeugten Plasmas. Das Verstndnis der rumlichen und zeitlichen Ablufe bei der nichtlinearen Ionisation ist deswegen ausschlaggebend fr das Verstndnis der Anwendung. Da zur nichtlinearen Erzeugung eines Plasmas in einem transparenten Material hohe Intensitten notwendig sind, ist die Erzeugung eines optischen Durchbruchs nicht unabhngig von weiteren nichtlinearen Effekten zu erzielen. Dies sind besonders die Selbstfokussierung, die eine ganze Klasse weiterer Effekte bedingt, und die Streifenbildung, die Folge der Wechselwirkung des Pulses mit dem selbst erzeugten Plasma ist. Beide Effekte wirken sich unvorteilhaft auf die Anwendung aus, weil die Erzeugung des Plasmas gestrt wird. Dies fhrt zur Vergrerung und zur Verzerrung der erzeugten Plasmen, die im optimalen Fall mglichst klein und symmetrisch sein sollten, und hat eine deutliche Limitierung der erzielbaren Przision zur Folge. Diese Arbeit widmet sich der theoretischen sowie numerischen Untersuchung der bei der Plasmaerzeugung auftretenden nichtlinearen Effekte. Dabei steht die Fragestellung im Vordergrund, ob Mglichkeiten bestehen, die unerwnschten Nebeneffekte zu unterdrcken und somit Anwendungen hchster erreichbarer Przision zu begnstigen. Experimentell ist bekannt, dass der Einfluss der Nebeneffekte bei strkerem Fokussieren abnimmt. Deswegen erfolgen die hier durchgefhrten Untersuchungen fr den Fall hoher numerischer Apertur. Unter diesen Bedingungen ist bisher keine ganzheitliche Untersuchung des optischen Durchbruchs unter Bercksichtigung von sowohl der Plasmaerzeugung als auch der nichtlinearen Propagation erfolgt. Das dazu notwendige theoretische Modell wird im Rahmen der Arbeit entwickelt und numerisch umgesetzt.

1.1 Erzeugung optischer Durchbrüche

Bei der nichtlinearen Ionisation transparenter Materialien werden zunächst durch Multiphotonen- oder Tunnelionisation Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband überführt. Diese stark intensitätsabhängigen Prozesse setzen für Femtosekundenpulse bei einer Intensität von $10^{12} - 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ ein. Diese Intensität kann mit ultrakurzen Pulsen durch die sowohl räumliche wie zeitliche Fokussierung problemlos erreicht werden. Die Elektronen im Leitungsband sind formal als quasi-frei anzusehen, werden aber im Laufe dieser Arbeit der Einfachheit halber als frei bezeichnet. Obwohl das Vorhandensein von Valenz- und Leitungsbändern bei transparenten Medien formal nur für Dielektrika gegeben ist, findet das Konzept auch bei anderen Materialien weitläufige Anwendung. Flüssiges Wasser beispielsweise, das in dieser Arbeit als Modellmedium für biologisches Weichgewebe und Zellen benutzt wird, kann in guter Näherung als amorpher Halbleiter mit einer Bandlücke von $\Delta = 6,5 \text{ eV}$ verstanden werden [Wil76, Sac91]. Diese liegt deutlich niedriger als die Ionisierungsenergie des H_2O -Moleküls von $12,6 \text{ eV}$. Dass im Fall von flüssigem Wasser anstatt eines Leitungsbandes ein Exzitonband vorliegt, hat auf die ohnehin phänomenologische Beschreibung der nichtlinearen Ionisation keinen Einfluss. Sobald die ersten freien Elektronen durch Multiphotonen-Ionisation erzeugt worden sind, wird zusätzlich Energie aus dem Laserfeld in das Plasma durch Absorption inverser Bremsstrahlung eingekoppelt. Es handelt sich um einen linearen Effekt; unter Einbeziehung von Atomen oder Molekülen des ionisierten Materials als Stoßpartner zur Gewährleistung der Energie- und Impulserhaltung, werden Photonen aus dem Laserfeld absorbiert, wobei die Photonenenergie in kinetische Energie der freien Elektronen umgewandelt wird. Überschreitet die kinetische Energie eines freien Elektrons nach mehreren solchen Absorptionsvorgängen eine gewisse kritische Energie, kann durch Stoßionisation eines Atoms oder Moleküls ein weiteres Elektron ins Leitungsband überführt werden. Daraus resultieren zwei freie Elektronen am Boden des Leitungsbandes, die wiederum Energie aus dem Feld absorbieren können, um durch Stoßionisation weitere freie Elektronen zu erzeugen. Die kritische Energie für Stoßionisation ist nicht notwendigerweise dieselbe wie die Bandlücke Δ des Materials [Kel60, Kai00]. Die Kombination aus Einfangen inverser Bremsstrahlung und darauf folgender Stoßionisation wird als Kaskadenionisation bezeichnet. Kaskadenionisation führt zu einer exponentiellen Vervielfachung der Dichte freier Elektronen. Deswegen ist Kaskadenionisation der vorherrschende Effekt bei der nichtlinearen Ionisation von Dielektrika und transparenten Flüssigkeiten bis zu einer Pulsdauer von etwa 100 fs . Für kürzere Pulse beginnt die Multiphotonen-Ionisation über die Initialisierung des Ionisationsprozesses hinaus an Bedeutung. Die relative Bedeutung von Multiphotonen- und Kaskadenionisation ist ein kontrovers disku-

tierter Aspekt bei der Erzeugung optischer Durchbrüche mit ultrakurzen Pulsen, genauso wie die zum Induzieren eines optischen Durchbruchs notwendige Dichte freier Elektronen. Diese ist im Laufe der Jahre zwischen 10^{18} cm^{-3} [Blo74] und der vollständigen Ionisation des Materials ($10^{22} - 10^{23} \text{ cm}^{-3}$) [Jog04] angegeben worden, meist jedoch mit 10^{21} cm^{-3} [Vog05]. Die letzte Angabe entspricht in etwa einer Energiedichte von $1,8 \frac{\text{kJ}}{\text{cm}^3}$ im Plasma. Wird angenommen, dass die gesamte im Plasma gespeicherte Energie zur Erwärmung des Fokusvolumens beiträgt, ist dies weniger als die Verdampfungsenthalpie des Wassers. Dies ist jedoch kein Widerspruch zur Erzeugung einer Kavitationsblase, weil, wie später gezeigt wird, bei Erzeugung des optischen Durchbruchs mit ultrakurzen Pulsen, das Fokusvolumen nicht erhitzt und verdampft, sondern die Kavitationsblase durch thermoelastisch induzierte Spannungen erzeugt wird [Vog05].

Die Erzeugung eines optischen Durchbruchs und die darauf folgende Schädigung oder Manipulation des Materials ist kein ausschließliches Phänomen ultrakurze Pulse, sondern bereits seit Verfügbarkeit der ersten gütegeschalteten Laser bekannt [Chi64, Giu64, Bud66, Blo74]. Zwischen dem optischen Durchbruch bei relativ langen Pulsen im Nanosekundenbereich und Pulslängen im Femtosekundenbereich bestehen jedoch erhebliche Unterschiede. So folgen auf den optischen Durchbruch bei Nanosekundenpulsen äußert heftige mechanischen Effekte, wie akustische Stoßwellen mit hoher Druckamplitude und Kavitationsblasen mit großem Durchmesser [Vog99]. Venugopalan et al. berichten beispielsweise von experimentell gemessenen Kavitationsblasendurchmessern in Wasser von $300 \mu\text{m}$ bei 1064 nm Anregungswellenlänge, bzw. $90 \mu\text{m}$ bei 532 nm , an der Schwelle zum optischen Durchbruch bei einer Pulsdauer von 6 ns [Ven02]. Obwohl die Experimente bei einer numerischen Apertur $\text{NA} = 0,9$ durchgeführt wurden, also die Energie räumlich sehr begrenzt deponiert wurde, wäre beispielsweise Zellchirurgie bei diesen Bedingungen nicht möglich. Andererseits wird von der Zellchirurgie mit Femtosekundenpulsen berichtet, dass die mechanischen Effekte beim optischen Durchbruch zwar die Dissektion des Materials bewirken, jedoch räumlich äußerst begrenzt sind. So berichten Heisterkamp et al. von einer Genauigkeit der Dissektion von ca. 240 nm [Hei05b] und zeigen, dass beim Durchtrennen von Mikrotubuli im Inneren einer Zelle die benachbarten Mikrotubuli nicht beschädigt werden, obwohl diese nur etwa $1 - 2 \mu\text{m}$ entfernt sind [Hei05a]. Da die Schnitte im Einzelpulsregime durchgeführt wurden, wobei die Dissektion auf der Erzeugung einer Kavitationsblase beruht [Vog05], muss deren Größe also im Submikrometerbereich liegen. Des Weiteren muss die Amplitude der abgestrahlten Stoßwelle, die im Abstand weniger Mikrometer noch nicht deutlich gedämpft ist, gering sein.

Die Erzeugung einer Kavitationsblase ist die Folge der Deponierung von Energie im Fokus durch nichtlineare Ionisation. Die eingebrachte Energie ist im Plasma in Form von potentieller und

kinetischer Energie der freien Elektronen gespeichert. Der entscheidende Unterschied zwischen der Erzeugung eines optischen Durchbruchs im Nanosekunden- und Femtosekundenbereich liegt in der Dauer der eingestrahnten Pulse im Vergleich zur charakteristischen Abkühl- und Rekombinationszeit des Plasmas. Die im Plasma gespeicherte Energie wird durch Stöße, sowie durch nicht strahlende Rekombination innerhalb einiger 10 Pikosekunden an die Atome, Moleküle oder Ionen im Fokus abgegeben [Sar06]. Ein Teil der erzeugten freien Elektronen wird nach dem Abkühlen im Wasser hydratisiert. Darauf weisen eine Reihe von zeitaufgelösten Absorptionsmessungen hin [Nik83, Pep92, Lia05, Ell06, Min07]. Die gelösten Zustände sind mit einer Lebensdauer > 500 ps relativ langlebig und durch ein Absorptionsmaximum bei 720 nm eindeutig als hydratisierte Elektronen zu identifizieren [Nik83, Pep92].

Nachdem das Plasma, das zum optischen Durchbruch führt, von einem Femtosekundenpuls erzeugt wurde, ist das Fokusvolumen nach etwa 20–40 ps thermalisiert [Vog05]. Diese Zeitspanne ist deutlich kürzer als eine akustische Welle benötigt, um von der Mitte des Fokus zur Peripherie zu propagieren. Dadurch kann keine akustische Relaxation des Fokusvolumens eintreten. Die thermoelastischen Spannungen sind im Fokus eingeschlossen und führen zu einem maximalen Druckanstieg [Vog03]. Wenn daraufhin die Stoßwelle nach außen abgestrahlt wird, wirkt gleichzeitig aus Gründen der Impulserhaltung eine Zugspannung nach innen [Pal99]. Die Zugbelastung, die in der Mitte des optischen Fokus fokussiert wird, führt dazu, dass das Wasser unter der wirkenden Zugspannung mechanisch aufgerissen wird [Vog05]. Dieser Prozess wird als Kavitation bezeichnet [Bre95]. Bei der Induzierung des optischen Durchbruchs mit Femtosekundenpulsen können also Kavitationsblasen bei Kombinationen aus Temperatur und Druck, die nicht zum eigentlichen Verdampfen des Fokusvolumens führen, erzeugt werden [Vog05]. Dadurch reicht zum Induzieren des optischen Durchbruchs eine geringe Energiedichte des Plasmas von weniger als $1 \frac{\text{kJ}}{\text{cm}^3}$ aus. Des Weiteren findet für Femtosekundenpulse keine Erwärmung des Fokusvolumens während der Erzeugung des Plasmas statt, weil die Pulsdauer viel kürzer als die Thermalisierungszeit ist. Für die Erzeugung des optischen Durchbruchs mit Nanosekundenpulsen ist dies nicht der Fall. Während das Plasma generiert wird, stellt sich ein Gleichgewicht zwischen Erzeugung freier Elektronen, Rekombination und Thermalisierung ein [Noa99]. Die Energiedichte im Fokus erreicht $30 - 40 \frac{\text{kJ}}{\text{cm}^3}$ [Vog99], das Fokusvolumen heizt sich um mehrere Tausend Grad Celsius auf und Stoßwellen von maximalen Drücken > 1 GPa am Rand des expandierenden Plasmas werden abgestrahlt [Ven02]. Die auf den durch Nanosekundenpulse erzeugten optischen Durchbruch folgenden mechanischen Effekte sind von solcher Heftigkeit, dass an einen Einsatz für hochpräzise Anwendungen kaum zu denken ist. Dies steht in krassem Gegensatz zum durch

Femtosekundenpulse erzeugten optischen Durchbruch. Wie Anwendungen beispielsweise in der Zellchirurgie zeigen, ist es möglich, Dissektionen mit Genauigkeiten deutlich unterhalb $1\ \mu\text{m}$ durchzuführen [Hei05b]. Dies wurde ebenfalls theoretisch gezeigt [Vog05, Arn07]. Experimentell konnten durch Streuung eines Probestrahls an erzeugten Kavitationsblasen maximale Durchmesser der aufschwingenden Kavitationsblase von etwa $230\ \text{nm}$ bei Fokussierung unter einer numerischen Apertur von $\text{NA} = 0,9$, einer Pulslänge von $315\ \text{fs}$ und einer Wellenlänge von $520\ \text{nm}$ nachgewiesen werden [Lin07].

1.2 Nichtlineare Begleiteffekte bei der Erzeugung optischer Durchbrüche

Zusätzlich zur Erzeugung eines optischen Durchbruchs offenbart die Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit transparenten Materialien eine große Anzahl weiterer nichtlinearer Effekte, wie Selbstfokussierung, Selbstphasenmodulation, Filamentierung und Superkontinuumserzeugung. Die tatsächliche Art und Weise der Wechselwirkung hängt von vielen Parametern wie der Leistung, der Intensität, der Pulslänge und der Fokussierung ab. Dabei steht besonders die Erzeugung eines optischen Durchbruchs in Konkurrenz zu nichtlinearen Ausbreitungseffekten. Bei schwacher räumlicher Fokussierung treten mit hoher Wahrscheinlichkeit Filamentierung und Superkontinuumserzeugung [Ilk93, Ngu03, Liu03, Ash06] anstatt eines optischen Durchbruchs auf. Des Weiteren kann ein optischer Durchbruch von Streifenbildung begleitet sein, was die Folge einer geringen erzeugten Dichte freier Elektronen nicht unmittelbar im Fokus ist [Arn05, Sud02]. Filamentierung und Streifenbildung verursachen die Erzeugung einer nicht vernachlässigbaren Dichte freier Elektronen außerhalb des Fokus und vergrößern dadurch die Wechselwirkungszone. Deswegen haben sie einen störenden Charakter auf Anwendungen, deren Ziel es ist, eine möglichst präzise und reproduzierbare Manipulation des Materials durch die Erzeugung eines optischen Durchbruchs zu erzielen [Sud01, Sud02, Hei02]. Filamentierung und Superkontinuumserzeugung werden durch Selbstfokussierung getrieben [Cou07]. Der Einfluss der Selbstfokussierung hängt von der Pulsspitzenleistung ab. Wird die sogenannte kritische Leistung für Selbstfokussierung P_{crit} überschritten, ist die Propagation nichtlinear dominiert [Mar75]. Die Erzeugung eines optischen Durchbruchs dagegen hängt von der im Fokus erreichten Intensität beziehungsweise Fluenz ab. Je stärker die Pulse im Material fokussiert werden, desto kleiner ist der Fokus und desto weniger Pulsenergie ist zur Erzeugung eines optischen Durchbruchs notwendig. So nimmt der Einfluss der Selbstfokussierung, die die Propagation bei geringer numerischer Apertur

dominiert, mit zunehmendem Fokussierungswinkel graduell ab. Schaffer et al. konnten bei der Erzeugung von optischen Durchbrüchen in Glas einen Einfluss der Selbstfokussierung bis zu einer numerischen Apertur $NA = 0,9$ nachweisen [Sch01]. Während also Filamentierung und Superkontinuumserzeugung nur bei geringer Fokussierung auftreten, die unattraktiv für präzise Anwendungen ist, wurde die Streifenbildung als begleitender Effekt auch bei höherer numerischer Apertur beobachtet [Sud01, Sud02, Hei02, Arn05, Cou05, Mer06, Bur07].

Die streifenförmigen Materialveränderungen, die zusätzlich zu den gewünschten Modifikationen auftreten, resultieren daraus, dass das Plasma im Fokus asymmetrisch entlang der Ausbreitungsrichtung erzeugt wird. Laserseitig wird ein dichtes Plasma, dessen Energiedichte zum Induzieren eines optischen Durchbruchs ausreicht, erzeugt; daran schließt sich ein länglicher Bereich geringer Plasmadichte an [Arn05]. Die Dichte dieser streifenartigen Plasmastrukturen reicht nicht zum Induzieren eines optischen Durchbruchs aus, wohl aber zu einer anderweitigen Veränderung des Materials, die bei Glas thermisch bedingt [Sud01, Sud02] und bei biologischem Material höchstwahrscheinlich chemisch bedingt ist [Vog05]. Der Grund für das Auftreten der Streifen ist die zeitlich asymmetrischen Wechselwirkung des Pulses mit dem selbst erzeugten Plasma [Arn05]. Während der vorderen Pulshälfte werden freie Elektronen hauptsächlich durch Multiphotonen-Ionisation erzeugt; die Dichte des Plasmas bleibt gering und Plasmadefokussierung ist kaum ausgeprägt. In der hinteren Pulshälfte wird dagegen die Dichte freier Elektronen durch Kaskadenionisation schnell vervielfacht; dies führt sowohl zu starker Absorption, sowie zu ausgeprägter Plasmadefokussierung. Während die hintere Pulshälfte also nach Erzeugung des Durchbruchplasmas bereits defokussiert ist und divergiert, propagiert die vordere Pulshälfte fast ungestört weiter. Da die Pulslänge allerdings effektiv nur noch etwa halb so lang ist wie zuvor, wird nur eine geringe Dichte freier Elektronen erzeugt. Dies hat die streifenförmigen Bereiche geringer Plasmadichte und damit auch die streifenförmigen Materialveränderungen zur Folge [Arn05]. Die zeitlich asymmetrische Wechselwirkung mit dem selbst erzeugten Plasma im Fokus deformiert drastisch das raum-zeitliche Pulsprofil und hat starken Einfluss auf die Dichte, die Größe und die Form des erzeugten Plasmas und dadurch auch auf die gewünschte Manipulation des Materials [Arn05]. Die geschilderten nichtlinearen Nebeneffekte wirken sich auf Anwendungen, bei denen die Plasmaerzeugung durch fokussierte ultrakurze Pulse gezielt zur Manipulation im Inneren transparenter Materialien eingesetzt wird, nachteilig in Bezug auf die erzielbare Präzision der Bearbeitung aus [Hei02, Sch04a]. Daher haben sich moderne Anwendungen ultrakurzer Laserpulse innerhalb der letzten Jahre vermehrt in Richtung starker Fokussierung unter Einsatz von Mikroskopobjektiven hoher numerischer Apertur entwickelt. Dies

geschieht mit dem Ziel die notwendige Pulsenergie zu senken, die Größe der Modifikationen zu reduzieren, die Präzision zu erhöhen und nichtlineare Nebeneffekte zu minimieren. Beispiele sind die zu Anfang genannten Anwendungen aus den Bereichen der Mikro- und Nanostrukturierung sowie der Multiphotonen-Mikroskopie und Zellchirurgie [Kön01, Yan04, Max05, Hei05b, Chu06].

1.3 Ziel der Arbeit

Ziel dieser Arbeit ist ein besseres theoretisches Verständnis und die numerische Simulation der nichtlinearen Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit transparenten Materialien bei Fokussierung unter hoher numerischer Apertur. Von besonderem Interesse ist dabei, in wie weit die zuvor beschriebenen nichtlinearen Nebeneffekte auch bei hoher numerischer Apertur die Propagation und die Erzeugung des Plasmas beeinträchtigen. Da die Streifenbildung nicht unmittelbar abhängig von der Leistung oder der Fokussierung zu sein scheint, sondern eine Folge der zeitlich asymmetrischen Wechselwirkung des Pulses mit dem selbst erzeugten Plasma ist, bleibt zu klären, inwiefern bei hoher numerischer Apertur das Erzeugen von nicht deformierten, symmetrischen Durchbruchplasmen möglich ist. Des Weiteren ist zu untersuchen, welche Präzision bei einer gegebenen Fokussierung zu erreichen ist und mit welchen Nebeneffekten dabei zu rechnen ist. Während der Bereich hoher numerischer Apertur experimentell wegen des Angebots an Mikroskopobjektiven unterschiedlichster Hersteller leicht zugänglich ist, ist die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen bei starker Fokussierung bislang kaum verstanden. Analytische Theorien wie beispielsweise der Formalismus des Gaußschen Strahls sind nur im Rahmen der skalaren und paraxialen Näherungen gültig [Sie86]. Die Wellengleichung wird durch Einführen dieser Näherungen zwar erheblich vereinfacht, aber wird gleichzeitig ihre Gültigkeit auf kleine Fokussierungswinkel und einen vernachlässigbaren Vektorcharakter des elektrischen Feldes eingeschränkt. Diese beiden Voraussetzungen sind bei der Propagation elektromagnetischer Felder bei hoher numerischer Apertur nicht gegeben. Der Fokussierungshalbwinkel kann bei maximaler numerischer Apertur bis zu 90° betragen und der Vektorcharakter des Feldes äußert sich durch den Effekt der Depolarisation. Dieser bewirkt, dass ein beispielsweise anfänglich linear in x -Richtung polarisiertes Feld nach der Fokussierung sowohl in y -Richtung als auch in Ausbreitungsrichtung polarisierte Anteile enthält [Gu00]. Derselbe Effekt bewirkt auch, dass ein Strahl, der vor der Fokussierung eine perfekte Kreissymmetrie um die optische Achse aufweist, bei hoher numerischer Apertur im Fokus eine ausgeprägte xy -Asymmetrie zeigt [Ric59, Qua00, Cho02]. Eine Reihe von Autoren hat verschiedene Propagationsformalismen ähnlich dem Gaußschen

Strahl für starke Fokussierung vorgeschlagen [Lax75, Agr79, Dav79, Agr83, Wün92]. Bisher existiert jedoch keine analytisch geschlossene Form. Des Weiteren sind lineare Wellengleichungen unter Berücksichtigung von Nichtparaxialität und Vektoreffekten vorgeschlagen worden [Cro97, Fu02, Lu03]. Es existiert eine Vielzahl von Veröffentlichungen zur numerischen Simulation der Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit transparenten Materialien bei schwacher Fokussierung [Fen97, Liu03, Arn05, Dub06, Cou07]. Zwar sind vereinzelt Aspekte, die bei hoher numerischer Apertur eine Rolle spielen, wie die Nichtparaxialität und der Vektorcharakter des Feldes in verschiedenen Ansätzen bereits berücksichtigt worden, allerdings nicht mit dem Ziel den optischen Durchbruch bei starker Fokussierung zu untersuchen, sondern vielmehr um die nichtlineare Strahlpropagation bei starker Selbstfokussierung, wenn die skalare und paraxiale Theorie versagt, zu beschreiben [Fei88, Akh93, Fib01b, Kol02].

Bei hoher numerischer Apertur ist die nichtlineare Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit transparenten Materialien bisher nicht untersucht worden. Dies soll im Rahmen dieser Arbeit geschehen. Dazu wird in Kapitel 2 ausgehend von der vektoriellen Helmholtz-Gleichung unter Berücksichtigung von Nichtparaxialität, Vektoreffekten, dem vektoriellen Kerr-Effekt und nichtlinearer Ionisation eine nichtlineare Schrödinger-Gleichung hergeleitet, die auch bei hoher numerischer Apertur gültig ist. Es wird gezeigt, dass die wichtigsten in der Vergangenheit benutzten Propagationsgleichungen wie die NLSE (Nonlinear Schrödinger Equation) [Chi64, Kel65b], die NEE (Nonlinear Envelope Equation) [Bra97] und die UPPE (Unidirectional Pulse Propagation Equation) [Kol02, Kol04] als Grenzfälle dieser Gleichung erhalten werden können. Anhand der dazu notwendigen Näherungen werden die physikalischen Limitationen der bisher bekannten Gleichungen im Gegensatz zur neu entwickelten diskutiert. Um die Neuerungen der vorgestellten Gleichung einordnen zu helfen, beginnt Kapitel 2 zunächst mit einem Überblick der wichtigsten Aspekte der nichtlinearen Propagation ultrakurzer Pulse.

Simultan zur numerischen Integration der Propagationsgleichung muss ein Modell zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisation des Mediums gelöst werden. Dazu wird in Kapitel 3 das von Rethfeld vorgeschlagene MRE-Modell (Multiple Rate Equation Model) [Ret04, Ret06, Ret07] eingeführt und für die Berechnung der Dichte erzeugter freier Elektronen in dieser Arbeit modifiziert. Im Gegensatz zum häufig benutzten Drude-Modell zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisation [DeM69, Blo74, Ken95, Stu95] berücksichtigt das MRE-Modell die zeitliche Dynamik der Energieverteilung im Leitungsband. Dies ist besonders für erzeugende Pulse kürzer als 10 ps von großer Bedeutung, weil sich im Leitungsband kein statisches Gleichgewicht einstellt [Ret04]. Die Erzeugung initialer freier Elektronen durch Multiphotonen- und Tunnelionisation

wird durch Auswerten der vollständigen Keldysh-Theorie der nichtlinearen Photoionisation berechnet [Kel65a]. Im MRE-Modell werden die formal kontinuierlichen Energiezustände im Leitungsband durch diskrete Niveaus, im Abstand der Photonenenergie approximiert. Durch Vergleich mit einem vollständigen kinetischen Modell [Kai00] wurde gezeigt, dass dieses Vorgehen die wesentliche Dynamik im Leitungsband erfasst [Ret04]. Das MRE-Modell verbindet damit die Komplexität kinetischer Modelle mit der einfachen Mathematik von Ratengleichungen.

Die Simulation der nichtlinearen Wechselwirkung kann nur dann realistische Ergebnisse liefern, wenn geeignete Anfangsbedingungen verwendet werden. Die Anfangsbedingungen in Form transversaler Feldverteilungen in der Fokusebene werden im Rahmen dieser Arbeit unter Berücksichtigung der bei hoher numerischer Apertur auftretenden Effekte berechnet. Dazu wird ein nichtparaxiales Fresnel-Kirchhoff-Beugungsintegral benutzt [Eng04]. Dieses wird vektoriell erweitert, um die Feldverteilung im Fokus für alle drei Polarisationsrichtungen zu erhalten. Die so berechneten Anfangsbedingungen werden durch Vergleich mit der skalaren und vektoriellen Debye-Theorie [Wol59, Ric59, Sta86, Gu00] verifiziert. Ein Überblick zu Beugungsphänomenen bei hoher numerischer Apertur und zur Berechnung der Anfangsbedingungen wird in Kapitel 4 gegeben.

Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Modellierungen konzentrieren sich auf Wasser als Modellmedium für biologische Zellen und Weichgewebe. Es werden numerisch Bedingungen nachempfunden, wie sie bei Anwendungen ultrakurzer Pulse in der Zellchirurgie vorgefunden werden. Dabei ist das hier vorgestellte Modell für den Fall geeignet, dass die erzielte Dissektion als Einzelpulsereignis oder als Summe von Einzelpulsereignissen eintritt, wie es experimentell bei Repetitionsraten im kHz-Bereich der Fall ist. In Kapitel 5 wird basierend auf dem entwickelten Modell die Erzeugung des optischen Durchbruchs im Bereich mittlerer bis hoher numerischer Apertur ($0,5 \leq NA \leq 1,2$) dargestellt. Anhand der Größe, der Dichte, der Form und der Energie generierter Plasmen wird die experimentell erzielbare Präzision sowie die Beeinflussung durch unerwünschte Nebeneffekte in Abhängigkeit der numerischen Apertur untersucht.

In Kapitel 6 folgt eine abschließende Diskussion der Ergebnisse sowie ein Ausblick.

2 Nichtlineare Propagation ultrakurzer Laserpulse bei hoher numerischer Apertur

Seit über vierzig Jahren motivieren nichtlineare Ausbreitungsphänomene, aber besonders die Selbstfokussierung eine Vielzahl experimenteller [She75] und theoretischer Untersuchungen [Mar75]. Die zur Beschreibung der Selbstfokussierung am häufigsten verwendete nichtlineare Schrödinger-Gleichung (NLSE) beschäftigt ihrer interessanten Eigenschaften wegen zudem die Mathematik [Sul99]. Mit Aufkommen der ultrakurzen Laserpulse seit Mitte der achtziger Jahre ist zusätzlich die Filamentierung als empfindliches Gleichgewicht zwischen Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung, vermittelt durch nichtlineare Ionisation, vermehrt in das experimentelle und theoretische Interesse gerückt [Cou07].

Nichtlineare Phänomene sind bisher kaum unter Bedingungen starker Fokussierung untersucht worden. Dieses Kapitel widmet sich ausgehend von der Vektor-Helmholtz-Gleichung unter Berücksichtigung nichtparaxialer und vektorieller Effekte der Entwicklung einer nichtlinearen Propagationsgleichung zur Beschreibung der Ausbreitung ultrakurzer Pulse, die besonders für den Fall der Fokussierung unter hoher numerischer Apertur geeignet ist. Die entwickelte Gleichung stellt eine Verallgemeinerung üblicher in der Vergangenheit benutzter Propagationsgleichungen dar. Zur Einordnung der Neuerungen der eingeführten Gleichung im Vergleich zur klassischen Theorie werden hier zunächst die wesentlichen Aspekte der Selbstfokussierung zusammengefasst.

2.1 Allgemeine Aspekte der Selbstfokussierung

Selbstfokussierung wird durch den sogenannten Kerr-Effekt, einen Effekt dritter Ordnung in der Entwicklung der Polarisierung für hohe Intensitäten, hervorgerufen. In der anschaulichsten Darstellung kann der Kerr-Effekt als intensitätsabhängiger Brechungsindex verstanden werden. Die Intensitätsabhängigkeit resultiert aus einer nichtlinearen Auslenkung der gebundenen Elektronen im Medium; dies wird gemeinhin als der instantane Kerr-Effekt bezeichnet. Die

Intensitätsabhängigkeit kann auch Folge der Ausrichtung polarer Moleküle in Flüssigkeiten oder Gasen sein. Bei einer Einstellzeit im niedrigen Pikosekundenbereich für Gase und Piko- bis Nanosekundenbereich für Flüssigkeiten müssen die beiden letzten Effekte für ultrakurze Pulse jedoch keine Berücksichtigung finden. Der Brechungsindex in einem isotropen Medium mit dem linearen Brechungsindex n_0 lautet [Mar75]:

$$(2.1) \quad n = n_0 + n_2 I$$

Dabei ist n_2 der sogenannte nichtlineare Brechungsindex und I die Intensität der einfallenden Strahlung. Ein Medium dessen Brechungsindex sich durch (2.1) nähern lässt, wird gemeinhin als Kerr-Medium bezeichnet. Der nichtlineare Brechungsindex hat in fast allen Festkörpern und Flüssigkeiten etwa dieselbe Größenordnung $n_2 \approx 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$. Eine Ausnahme bildet die Klasse der Schwermetalloxidgläser (Heavy-Metal Oxide Glasses), bei denen der nichtlineare Brechungsindex ein bis zwei Größenordnungen größer sein kann [Sol94, Sie05].

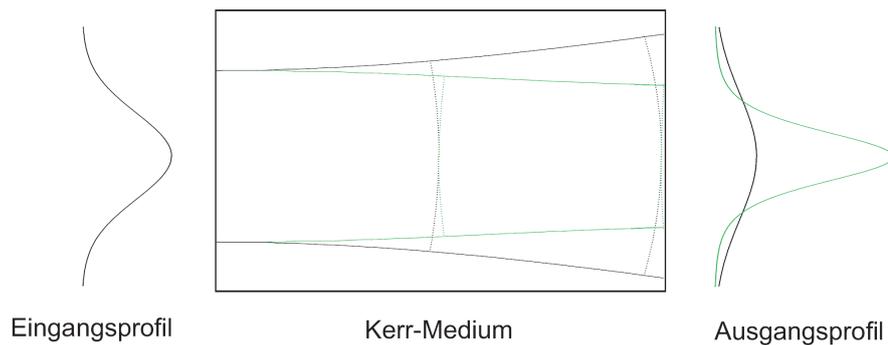


Abbildung 2.1: Der intensitätsabhängige Brechungsindex bewirkt für einen intensiven Strahl Selbstfokussierung, bei geringer Leistung ist die Ausbreitung im Kerr-Medium linear.

Tritt ein intensiver Laserstrahl in ein Kerr-Medium ein, wird aufgrund der Intensitätsabhängigkeit des Brechungsindex die optische Dichte auf der Strahlachse größer sein als am Rand; die Wellenfront krümmt sich in Ausbreitungsrichtung. Dies hat den gleichen Effekt wie eine fokussierende Linse; der Strahl fokussiert sich selbst (siehe Abb. 2.1). Selbstfokussierung wird im einfachsten Fall durch die nichtlineare Schrödinger-Gleichung NLSE beschrieben [Fib06]:

$$(2.2) \quad i\partial_z A(x, y, z) + \Delta A + |A|^2 A = 0, \quad \Delta = \partial_x^2 + \partial_y^2$$

Gleichung (2.2) ist in dimensionsloser Form geschrieben; dabei ist $A(x, y, z)$ die komplexwertige

Einhüllende des elektrischen Feldes, der Laplace Operator Δ beschreibt die Diffraktion und die kubische Nichtlinearität verursacht Selbstfokussierung. Es handelt sich um ein Anfangswertproblem. Ein bekanntes Transversalfeld $A(x, y, z_0)$ an der Stelle z_0 reicht als Anfangsbedingung aus, um numerisch das Feld $A(x, y, z_0 + z)$ zu erhalten. Die nichtlineare Schrödinger-Gleichung (2.2) beinhaltet nur die stärksten Effekte, es handelt sich um eine Näherung erster Ordnung. Sie wird aus der vektoriellen Helmholtzgleichung unter Anwenden der skalaren und der paraxialen Näherung hergeleitet. Dadurch berücksichtigt Gleichung (2.2) weder den vektoriellen Charakter des elektrischen Feldes, noch ist sie für starke Fokussierungswinkel geeignet. In Abschnitt 2.2 wird gezeigt, wie sich aus der Helmholtzgleichung eine vektorielle und nichtparaxiale Propagationsgleichung herleiten lässt. Die NLSE (2.2) lässt sich als skalarer und paraxialer Grenzfall dieser Gleichung erhalten.

Trotz der offensichtlichen Einschränkungen bei der Herleitung von Gleichung (2.2) beschreibt sie die Dynamik eines sich selbst fokussierenden Laserstrahles in guter Näherung. Überschreitet die Leistung P des propagierenden Feldes allerdings eine kritische Leistung P_{crit} , hat dies katastrophales Selbstfokussieren zur Folge. Damit tritt ein Strahlkollaps nicht beim Erreichen einer bestimmten Intensität oder beim Unterschreiten eines Strahldurchmessers ein, sondern zwangsläufig beim Überschreiten der kritischen Leistung P_{crit} . Kelley war der erste, der dies erkannte [Kel65b]. Dabei ist die Leistung als das Integral der Intensität über die Transversalrichtungen gegeben:

$$(2.3) \quad P = \int_{-\infty}^{\infty} |A|^2 dx dy$$

Die Leistung ist die wichtigste Erhaltungsgröße der NLSE ($\partial_z P(z) = 0$). Das katastrophale Selbstfokussieren ist ihre größte Limitation und definiert die Gültigkeit der NLSE auf den Bereich vor dem Auftreten des Strahlkollapses. Sobald der Strahldurchmesser die Größenordnung der Wellenlänge erreicht, wird die Propagation von Gleichung (2.2) nicht mehr richtig beschrieben. Dies wird in Abschnitt 2.2 genauer erläutert. Der Kollaps der gesamten Leistung in einen Punkt ist darüber hinaus natürlich unphysikalisch. Über die Jahre wurden eine Vielzahl von Effekten und Erweiterungen der NLSE gefunden, die den Strahlkollaps auffangen können. Dazu gehören das Berücksichtigen der Nichtparaxialität [Fei88, Akh93, Sot93, Fib96], positive Dispersion [Fib95, Ran96, Fib97, Fib03], eine sättigbare Nichtlinearität [Fib99, Akö00] und Vektoreffekte [Chi95, Mil95, Cro97, Cia00, dIF00, Fib01a, Fib01b, Cia02, Kol02, Mat03, Kol04]. Beim Selbstfokussieren ultrakurzer Laserpulse kommt darüber hinaus die nichtlineare Ionisation als möglicher Effekt zum Auffangen des Kollapses in Frage. Meist wird die Schwelle zur nichtlinearen Erzeugung

eines Plasmas lange vor den obigen Effekten erreicht; der Kollaps wird dann durch Plasmade-fokussierung [Mon92, Fen97, Mle98, Mle99, Gae00, Bec01, Liu02b, Cou03, Gae03, Arn05] und nichtlineare Absorption [Pol01] abgefangen.

Die NLSE ist ein Grenzfall einer ganzen Klasse nichtlinearer Gleichungen, die abhängig von ihrer Dimensionalität d und der Ordnung p der Nichtlinearität entweder kollabierende oder nicht kollabierende Lösungen hervor bringen.

$$(2.4) \quad i\partial_z A(x_1, \dots, x_d) + \Delta A + |A|^{p-1} A = 0, \quad \Delta = \partial_{x_1}^2 + \dots + \partial_{x_d}^2$$

Für $(p-1)d > 4$ wird vom super-kritischen Fall gesprochen; bei Überschreiten der kritischen Leistung tritt definitiv ein Strahlkollaps ein. Dies ist beispielsweise für die nichtlineare Propagation ultrakurzer Pulse in einem Kerr-Medium mit anomaler Dispersion gegeben, wenn die Transversalrichtungen x und y zusammen mit der Zeitrichtung die Dimensionalität $d = 3$ ergeben. Für $(p-1)d < 4$ wird vom sub-kritischen Fall gesprochen. So ist die zu geringe Dimensionalität der Grund dafür, dass in optischen Fasern weder für positive noch für negative Dispersion singuläre Lösungen auftreten, genauso wenig wie in Streifenwellenleitern. Die NLSE (2.2) bildet mit $(p-1)d = 4$ genau den kritischen Grenzfall zwischen beiden Regimen. Der Kollaps ist deswegen extrem empfindlich gegen kleine Störungen. Dies ist der Grund dafür, dass kleine Veränderungen, wie das Berücksichtigen von Nichtparaxialität oder Vektoreffekten, den Kollaps verhindern können [Fib99].

Die kritische Leistung P_{crit} ist gegeben als [Fib00]:

$$(2.5) \quad P_{crit} = N_{cr} \frac{\lambda^2}{4\pi n_0 n_2}$$

Dabei ist λ die Wellenlänge der einfallenden Strahlung. Der Faktor N_{cr} ist abhängig vom Transversalprofil des Feldes beim Eintritt ins Kerr-Medium und nimmt mit 1,86 den niedrigsten Wert für das sogenannte R-Profil an. Dieses auch Townes-Soliton genannte Transversalprofil wurde erstmals 1964 von Chiao et al. [Chi64] beschrieben (siehe Abb. 2.2). Es ist das Profil niedrigster Ordnung einer ganzen Klasse von stationären Lösungen der NLSE. Das R-Profil ist das einzige Transversalprofil, das bei $N_{cr} = 1,86$ kollabiert, alle anderen Transversalprofile weisen höhere Werte auf. Allgemein kann gesagt werden, dass die kritische Leistung für ein gegebenes Profil umso geringer ist, je ähnlicher es dem R-Profil ist. Für ein Gauß-Profil ist die kritische Leistung etwa 2% größer ($N_{cr} = 1.89$) [Fib00]. Für Ringprofile dagegen, beispielsweise Gauß-Laguerre-Moden ($p = 0, m \neq 0$), auch optische Strudel genannt, wie sie durch spirale

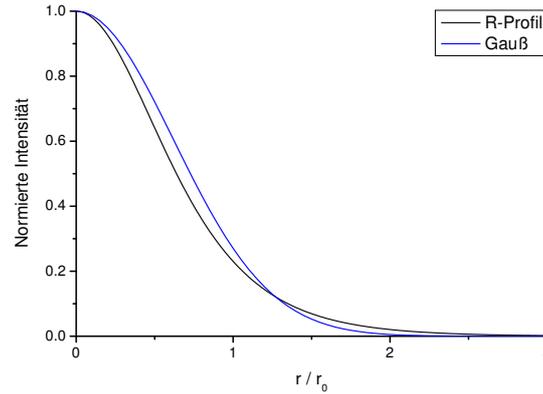


Abbildung 2.2: Das R-Profil im Vergleich zu einem Gauß-Profil der gleichen Intensität und Leistung.

Phasenplatten oder SPMs (Spatial Light Modulator) erzeugt werden können, kann die kritische Leistung ein Vielfaches der des R-Profils betragen [Vuo06].

Eine interessante Eigenschaft des Strahlkollapses ist es, dass fast unabhängig vom Eingangsprofil das Profil beim Kollaps jeweils dasselbe, nämlich ein moduliertes R-Profil ist. Dies gilt auch für elliptische und verrauschte Eingangsprofile. Dabei beträgt die Leistung, die in Form eines selbstähnlichen R-Profils kollabiert, nur die kritische Leistung des R-Profils selbst. Die zusätzliche Leistung, die beispielsweise die kritische Leistung des Gauß-Profils von der des R-Profils unterscheidet, kollabiert nicht, sondern wird transversal abgestrahlt. Die einzige Ausnahme besteht für Hohlkernfasern, in denen die kritische Leistung für alle Profile gleich ist, weil keine Strahlung seitlich austreten kann [Fib00]. Das universelle Verhalten des Kollapses in Form eines selbstähnlichen R-Profils wurde auch experimentell verifiziert [Mol03, Gro06].

Abweichungen des Kollapsprofils vom selbstähnlichen R-Profil wurden für supergauß-förmige Eingangsprofile bei deutlichem Überschreiten der kritischen Leistung $P > 5P_{crit}$ [Mol03, Ber03] und bei Ringprofilen [Vuo06] beobachtet. Das selbstähnliche Profil, das in diesen Fällen beim Kollaps angenommen wird, ist ringförmig und wurde kürzlich von Fibich et al. theoretisch beschrieben [Fib05b, Fib07]. Im Gegensatz zum R-Profil ist allerdings das selbstähnliche Ringprofil instabil gegen azimuthale Störungen, weswegen experimentell immer ein schnelles Aufbrechen des kollabierenden Ringes in einen Ring von Filamenten beobachtet wurde [Gro06]. Jedes einzelne dieser Filamente kollabiert wieder in Form des selbstähnlichen R-Profils mit jeweils dessen kritischer Leistung. Dass sich Ringprofile bei Überschreiten der kritischen Leistung generell instabil verhalten und zum Aufbrechen neigen wurde von Feit und Fleck bereits 1988 gezeigt

[Fei88].

Das Aufbrechen in mehrere Filamente bei deutlichem Überschreiten der kritischen Leistung ist experimentell seit den sechziger Jahren bekannt. Es gibt mehrere Ursachen für diesen auch als multiples Filamentieren bezeichneten Effekt. Es ist zunächst zu unterscheiden, ob das multiple Filamentieren vor oder nach dem eigentlichen Kollaps auftritt. Es existiert eine zweite Schwelle von ca. $P_{th}^{(2)} > 100P_{crit}$ [Fib06], für die sich Instabilitäten beim Kollaps derart aufschwingen, dass der Strahl bereits vor dem Kollaps in mehrere Filamente zerbricht [Fib05a]. Experimentell kann allerdings auch unterhalb der zweiten Schwelle $P_{th}^{(2)}$ multiples Filamentieren beobachtet werden [Dub04b]. Wird der Kollaps durch einen der physikalisch immer vorhandenen limitierenden Prozess, wie die Erzeugung freier Elektronen oder eine sättigbare Nichtlinearität, abgefangen, treten Ringstrukturen im Transversalprofil auf [Daw69]. Wie bereits zuvor beschrieben wurde, sind Ringprofile generell instabil bei Überschreiten ihrer kritischen Leistung. Ein die Symmetrie brechender Effekt wie statistisches Rauschen oder ein astigmatischer Strahl führen dann zum Aufbrechen des Strahles. Auf Grund dessen kann multiples Filamentieren nach einem abgefangenen Kollaps des gesamten Strahles auch bei deutlich geringerer Leistung als $P_{th}^{(2)}$ beobachtet werden [Dub04b]. Die Reproduzierbarkeit von Filamentstrukturen ist im Experiment von Puls zu Puls normalerweise sehr gut, weswegen leichte Asymmetrien im Eingangsprofil des Pulses wahrscheinlicher sind als Auslöser zum Aufbrechen des Ringes als statistisches Rauschen [Fib04].

Die Diskussion der Eigenschaften der NLSE erfolgte bisher in zeitunabhängiger Form, also für cw-Strahlen. Tatsächlich ist jedoch der Einfluss der Kerr-Nichtlinearität für cw-Strahlen nur in den aller seltensten Fällen spürbar. Für Wasser als Kerr-Medium beispielsweise ist mit $n_2 \approx 2 \times 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$ die kritische Leistung von etwa 3,4 MW mit ungepulster Strahlung kaum zu erreichen. Die einfachste Modifikation der NLSE zur Beschreibung von Laserpulsen lautet:

$$(2.6) \quad i\partial_z A(x, y, z, t) + \Delta A - sk''\partial_t^2 A + |A|^2 A = 0$$

Dabei ist s eine positive Konstante, die die Dimensionslosigkeit der Gleichung sicherstellt und k'' die Dispersion zweiter Ordnung, die aus der Entwicklung der Wellenzahl k im Frequenzraum um die Trägerfrequenz ω_0 erhalten wird:

$$(2.7) \quad k = k_0 + \frac{1}{v_g}(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}k''(\omega - \omega_0)^2 + \dots$$

Das Koordinatensystem, in dem Gleichung (2.6) beschrieben ist, bewegt sich mit der Geschwindigkeit v_g des Pulsschwerpunktes. Die Wechselwirkung der Kerr-Nichtlinearität mit dem zeitlichen

Verlauf beziehungsweise dem Frequenzspektrum der gepulsten Strahlung offenbart ein zusätzliches breites Spektrum an Effekten. Wie von der nichtlinearen Propagation kurzer Pulse in Fasern bekannt [Agr01], bewirkt die zeitliche Modulation des Brechungsindex eine Verbreiterung des Pulsspektrums durch Selbstphasenmodulation. Dabei werden an der vorderen Pulsflanke rotverschobene Frequenzen erzeugt und an der hinteren Pulsflanke blauverschobene, jeweils relativ zur Trägerfrequenz ω_0 gesehen. Zwischen räumlicher Selbstfokussierung, ihrem zeitlichen

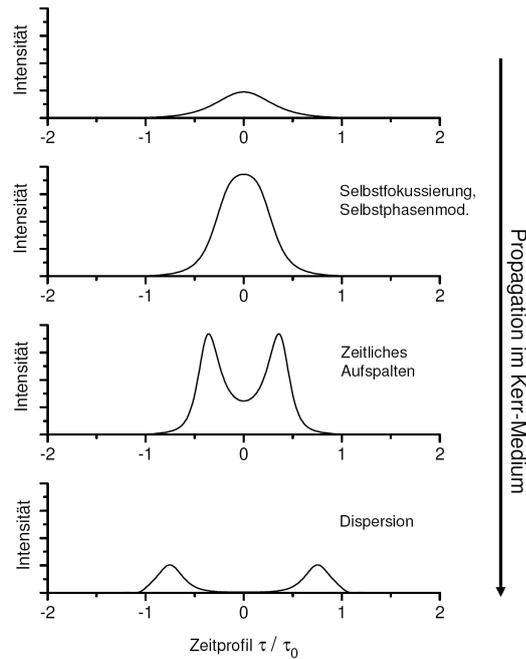


Abbildung 2.3: Pulse Splitting als Folge der komplizierten Wechselwirkung von räumlicher Selbstfokussierung, Selbstphasenmodulation und positiver Dispersion.

Synonym der Selbstphasenmodulation und der Dispersion besteht eine komplexe Wechselwirkung, wenn die Pulsspitzenleistung ausreichend hoch ist [Che92, Rot92a, Lut94a]. Bei Überschreiten der kritischen Leistung P_{crit} beginnt sich der Puls räumlich aufgrund der Selbstfokussierung einzuschnüren. Dies bedingt gleichzeitig ein zeitliches Verkürzen des Pulses, weil sich die Pulsmitte stärker selbst fokussiert als die Flanken. Getrieben durch die räumliche und zeitliche Einschnürung bewirkt Selbstphasenmodulation eine starke Verbreiterung des Spektrums. Die positive Dispersion verursacht anschließend ein Zerreißen der Pulsmitte; der Puls wird zeitlich gespalten in einen blauverschobenen und einen rotverschobenen Puls. Das Auffangen des Kollaps durch zeitliches Aufspalten wird als Pulse Splitting bezeichnet [Che92, Rot92a] (siehe Abb. 2.3). Experimentell konnte der Effekt 1996 von Ranka und Gaeta erstmals nachgewiesen werden [Ran96]. Die beiden resultierenden Pulse fokussieren sich nach dem Aufspalten weiter. Obwohl

es in einigen Veröffentlichungen berichtet wird, tritt zumindest numerisch kein weiteres Spalten der Pulse für die NLSE nach der ersten Spaltung auf. Dies konnte durch numerischen Lösen von Gleichung (2.6) auf adaptiven Gittern gezeigt werden, die auch bei starkem Einschnüren eine ausreichende Diskretisierung gewährleisten [Ger01, Fib03]. Im Rahmen von Gleichung (2.6) wird der Kollaps der gespaltenen Pulse durch positive Dispersion abgefangen. Für anomale Dispersion in Gleichung (2.6) ($k'' < 0$) wird der Kollaps dagegen nicht abgefangen; die Gleichung ist super-kritisch.

Da experimentell ein mehrfaches Spalten bei positiver Dispersion beobachtet wurde [Ran96, Did98], ist anzunehmen, dass beim Einschnüren physikalische Effekte, wie die Wechselwirkung mit dem erzeugten Plasma, eine bedeutende Rolle spielen, die von Gleichung (2.6) nicht beschrieben werden. Berücksichtigen der nichtlinearen Ionisation und der Wechselwirkung mit dem erzeugten Plasma in Gleichung (2.6) fängt den Kollaps auch bei anomaler Dispersion ab. Die starke Verbreiterung des Spektrums, die bei positiver Dispersion zum zeitlichen Aufspalten des Pulses führt, wird mit dem Effekt der Superkontinuumserzeugung in Verbindung gebracht [Zoz99, Gae00, Dub03]. Beim Aufspalten werden aus der Pulsmitte darüber hinaus Ringstrukturen nach außen abgestrahlt. Dieser als Conical Emission bekannte Effekt ist ebenfalls charakteristisch für Superkontinuumserzeugung [Lut94b, Dub03]. Bei diesen extremen experimentellen Bedingungen ist die nichtlineare Ionisation des Mediums nicht zu vermeiden. So tritt in Verbindung mit Superkontinuumserzeugung auch fast immer Filamentierung auf oder in Verbindung mit Filamentierung immer Superkontinuumserzeugung [Bro98, Dub03, Kol03]. Das Gleichgewicht zwischen Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung ermöglicht eine große Länge der erzeugten Filamente, die viele Rayleigh-Längen betragen kann. Durch die Fokussierungs-Defokussierungs-Oszillationen erfolgt Conical Emission meist mehrmals [Kos97] (siehe Abb. 2.4).

Bei der NLSE (2.6) handelt es sich um die einfachste Beschreibung der nichtlinearen Propagation eines Laserpulses in einem Kerr-Medium. Bei der Herleitung wurden die skalare sowie die paraxiale Näherung angewandt. Die NLSE stellt dann eine gute Näherung dar, wenn der Strahldurchmesser in der Taille groß gegen die Wellenlänge ist. Dies ist gegeben, wenn der Fokussierungswinkel, bzw. die numerische Apertur, unter der die Strahlung fokussiert wird, klein ist. Kollabiert der Strahl, weil die kritische Leistung überschritten ist, ist die NLSE nur solange gültig, wie der Strahldurchmesser als groß gegen die Wellenlänge anzusehen ist. Die NLSE erzeugt im Fall des Kollaps eine Singularität, was eindeutig unphysikalisch ist. Soll die Strahlung unter großem Fokussierungswinkel, beispielsweise unter Benutzung von Mikroskopobjektiven in das

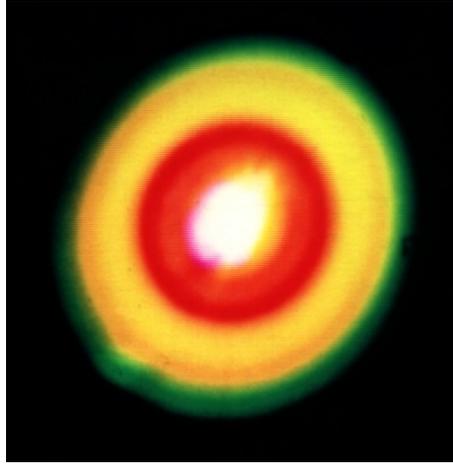


Abbildung 2.4: Conical Emission erzeugt durch Filamentierung in Luft [Nib96]. In der Mitte ist das Superkontinuum aus dem Inneren des Filamentes zu erkennen.

nichtlineare Medium fokussiert werden, ist die NLSE ebenfalls nicht zur Beschreibung geeignet. Zunächst können leicht Strahldurchmesser in der Größenordnung der Wellenlänge erreicht werden, was eine nichtparaxiale Beschreibung der Propagation notwendig macht. Darüber hinaus ist die lineare Polarisierung der Strahlung nicht gewährleistet, selbst wenn dies vor Eintritt in die Fokussieroptik gegeben war. Der als Depolarisation bekannte Effekt (siehe Kap. 4) verursacht, dass beim Fokussieren ein Teil der Leistung in die orthogonale transversale Polarisationsrichtung und in die longitudinale Polarisationsrichtung übertragen wird [Gu00]. Demnach darf bei Fokussierung mit hoher NA der Vektorcharakter des elektrischen Feldes nicht vernachlässigt werden. Eine Reihe von Autoren hat in der Vergangenheit nichtlineare Propagationsgleichungen unter Berücksichtigung von Nichtparaxialität [Fei88, Akh93, Sot93, Fib96] und Vektoreffekten vorgestellt [Chi95, Mil95, Cro97, Cia00, dlF00, Fib01a, Fib01b, Cia02, Kol02, Mat03, Kol04]. Diese Arbeiten waren meist mit dem Ziel verbunden, die nichtlineare Propagation auch nach dem Kollaps weiter zu verfolgen, ohne dazu zweifelhafte Annahmen wie eine sättigbare Nichtlinearität vornehmen zu müssen. Obwohl alle Modelle direkt oder über die vektorielle Helmholtzgleichung abgeleitet sind, unterscheiden sie sich im Falle des Kollapses und speziell nach Abfangen des Kollapses erheblich voneinander. Dies liegt daran, dass meist noch einige zusätzliche Annahmen getroffen werden und die zusätzlichen Effekte störungstheoretisch genähert werden. Es existiert keine einheitliche Theorie der vektoriellen und nichtparaxialen Selbstfokussierung. Das größte Problem dabei ist die Kopplung mit dem entgegengesetzt propagierenden Feld. Im Moment des Kollapses tritt erhebliche Rückstreuung auf, die in keinem der Modelle berücksichtigt ist.

Im Rahmen dieser Arbeit wird ebenfalls eine nichtparaxiale und vektorielle Propagationsglei-

chung hergeleitet. Im Gegensatz zu obigen Veröffentlichungen soll diese besonders für den Fall starker Fokussierung und verhältnismäßig niedriger Leistung im Vergleich zur kritischen Leistung angepasst sein. Zwar soll die Propagation von Pulsen, die bis auf das Beugungslimit fokussiert werden, beschrieben werden, aber die bei solch starker Fokussierung zum Induzieren eines optischen Durchbruchs notwendige Pulsenergie ist so gering, dass die zugehörige Pulsspitzenleistung vergleichbar klein gegen die kritische Leistung ist. Deswegen wird bei der Herleitung großer Wert auf eine exakte Beschreibung der Nichtparaxialität gelegt, weil dies ein linearer Effekt ist und somit nicht mit der Leistung skaliert. In vielen Modellen ist die Nichtparaxialität nur als Entwicklung erster Ordnung enthalten [Chi95, Cro97, Cia00, dIF00, Fib01a, Fib01b, Cia02]. In Abschnitt 2.2.2 wird gezeigt, dass dies die Gültigkeit der jeweiligen Gleichung nur unerheblich über die paraxiale Näherung hinaus erweitert.

2.2 Vektortheorie der Selbstfokussierung

Im Gegensatz zur skalaren und paraxialen nichtlinearen Schrödinger-Gleichung, die im vorherigen Abschnitt beschrieben wurde, soll hier nun eine nichtlineare Wellengleichung entwickelt werden, die dazu geeignet ist nichtlineare Laserstrahl- und Laserpulspropagation auch bei hoher numerischer Apertur zu beschreiben. Vektorielle und nichtparaxiale Effekte dürfen in diesem Fall nicht bei der Herleitung vernachlässigt werden. Die Herleitung soll zunächst sehr allgemein erfolgen. Das Ziel ist ein System von Wellengleichungen für alle drei Polarisationsrichtungen unter Annahme einer zunächst beliebigen nichtlinearen Polarisation \vec{P}_{NL} . Diese wird im späteren Verlauf entweder durch den vektoriellen Kerr-Effekt oder zusätzlich durch die nichtlineare Änderung der Dielektrizitätsfunktion des Mediums, die aus der Erzeugung freier Elektronen resultiert, gegeben sein. Die induzierte Polarisation des Mediums lässt sich als Summe der linearen und nichtlinearen Polarisierungen $\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL}$ schreiben. Die lineare Polarisation lautet $\vec{P}_L = \varepsilon_0 \chi_1(\omega) \vec{E}$, wobei $\chi_1(\omega)$ die lineare Suszeptibilität ist. Die Frequenzabhängigkeit der Suszeptibilität bestimmt die dispersiven Eigenschaften des Mediums. Es folgt die lineare Dielektrizitätsfunktion $\varepsilon(\omega) = 1 + \chi_1(\omega)$ und daraus der lineare Brechungsindex des Mediums zu $n(\omega) = \sqrt{\varepsilon(\omega)}$. Für transparente Materialien, wie sie hier in Betracht gezogen werden, sind sowohl die lineare Suszeptibilität sowie der lineare Brechungsindex rein reelle Größen.

Die vektorielle Helmholtz-Gleichung für ein isotropes Medium und eine allgemeine nichtlineare Polarisation folgt direkt aus den Maxwell Gleichungen:

$$(2.8) \quad \nabla^2 \vec{E}(x, y, z) - \nabla \left(\nabla \vec{E}(x, y, z) \right) + k^2 \vec{E}(x, y, z) + \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\vec{P}_{NL}(x, y, z)}{\varepsilon_0} = 0$$

Dabei ist \vec{E} das elektrische Feld, $k = \frac{\omega}{c}n$ die Wellenzahl, $\nabla = (\partial_x, \partial_y, \partial_z)$ der Nabla-Operator und $\nabla^2 = \partial_x^2 + \partial_y^2 + \partial_z^2$ der Laplace-Operator. Aus $\nabla \vec{D} = 0$ für ein quellenfreies Feld, wobei die dielektrische Verschiebung $\vec{D} = \varepsilon_0 \vec{E} + \vec{P}$ ist, folgt $\nabla \vec{E} = \frac{-1}{\varepsilon_0 n^2} \nabla \vec{P}_{NL}$. Somit lautet die vektorielle Helmholtzgleichung:

$$(2.9) \quad \nabla^2 \vec{E}(x, y, z) + \frac{1}{\varepsilon_0 n^2} \nabla \left(\nabla \vec{P}_{NL}(x, y, z) \right) + k^2 \vec{E}(x, y, z) + \frac{\omega^2}{c^2} \frac{\vec{P}_{NL}(x, y, z)}{\varepsilon_0} = 0$$

Die Herleitung von Gleichung (2.9) unterscheidet sich bereits deutlich von üblichen nichtlinearen Schrödinger-Gleichungen, bei deren Entwicklung normalerweise die Nabla-Nabla-Kopplung vernachlässigt wird. Obwohl wie später zu sehen sein wird, die vektoriellen Effekte meist klein sind, folgt mit der nichtlinearen Diffraction der stärkste Vektoreffekt der Kerr-Nichtlinearität aus der Nabla-Nabla-Kopplung [Boa00, Mar00, Mal01]. Gleichung (2.9) kann sowohl im Frequenzraum als auch im Normalraum dargestellt werden, wobei im Normalraum das elektrische Feld und die Polarisation zeitabhängig sind ($\vec{E} = \vec{E}(x, y, z, t)$, $\vec{P}_{NL} = \vec{P}_{NL}(x, y, z, t)$), wie es notwendig ist, wenn zeitlich veränderliche Felder wie ultrakurze Pulse beschrieben werden sollen. Durch eine zeitliche Fouriertransformation können die Felder und damit die Gleichung in den Frequenzraum transformiert werden ($\vec{E}(x, y, z, t) \xrightarrow{\mathcal{F}} \vec{E}(x, y, z, \omega)$, $\vec{P}_{NL}(x, y, z, t) \xrightarrow{\mathcal{F}} \vec{P}_{NL}(x, y, z, \omega)$). Eine besondere Bedeutung kommt dabei der Wellenzahl k zu, die abhängig vom jeweiligen Darstellungsraum unterschiedlich repräsentiert wird. So gilt im Frequenzraum die bekannte Abhängigkeit $k(\omega) = \frac{\omega}{c}n(\omega)$. Dies kann umgeschrieben werden und dann durch eine inverse Fouriertransformation in den Normalraum zurück transformiert werden. Unter der Annahme $n(\omega) \approx n_0 = n(\omega_0)$ und unter Benutzung von $(\omega - \omega_0) \xrightarrow{\mathcal{F}^{-1}} i\partial_t$ folgt:

$$(2.10) \quad \begin{aligned} k(\omega) &= \frac{\omega}{c}n(\omega) \\ \iff k(\omega) &= \frac{n(\omega)}{c}(\omega_0 + (\omega - \omega_0)) \\ &\Rightarrow k(\omega) = \frac{n_0}{c}\omega_0 \left(1 + \frac{\omega - \omega_0}{\omega_0} \right) \\ \iff k(\omega) &= k_0 \left(1 + \frac{\omega - \omega_0}{\omega_0} \right) \\ &\Rightarrow k(\omega) \xrightarrow{\mathcal{F}^{-1}} k_0 \left(1 + \frac{i\partial_t}{\omega_0} \right) \end{aligned}$$

Tabelle 2.1: Wert des Parameters γ in Abhängigkeit der Ursache des Kerr-Effektes [Boy92].

| Mechanismus | |
|---------------------------|------------------------|
| Elektrostriktion | $\gamma = 0$ |
| Nichtresonante Elektronen | $\gamma = \frac{1}{2}$ |
| Molekulare Ausrichtung | $\gamma = 3$ |

Dabei ist $k_0 = \frac{\omega_0}{c}n(\omega_0)$ die Wellenzahl bei der Winkelfrequenz ω_0 . Dies ist üblicherweise die zentrale Winkelfrequenz der Pulse, die mit Gleichung (2.9) beschrieben werden; sie kann aber auch beliebig gewählt werden. Es handelt sich lediglich um eine Referenzfrequenz, relativ zu der andere Frequenzen ausgedrückt werden.

Als Ursachen der im Medium induzierten nichtlinearen Polarisation sollen nun der vektorielle Kerr-Effekt und die Existenz erzeugter freier Elektronen durch nichtlineare Ionisation angenommen werden. Die Kerr-Nichtlinearität hat die folgende Form [Mak64, Mak65, She84, Boy92]:

$$\begin{aligned}
 \vec{P}_{Kerr}(\vec{E}) &= \frac{c\varepsilon_0^2 n^2 n_2}{1+\gamma} \left[(\vec{E}\vec{E}^*) \vec{E} + \gamma (\vec{E}\vec{E}) \vec{E}^* \right] \\
 (2.11) \quad &= \frac{c\varepsilon_0^2 n^2 n_2}{1+\gamma} \left[|\vec{E}|^2 \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \\ E_z \end{pmatrix} + \gamma \begin{pmatrix} |E_x|^2 E_x + E_y^2 E_x^* + E_z^2 E_x^* \\ E_x^2 E_y^* + |E_y|^2 E_y + E_z^2 E_y^* \\ E_x^2 E_z^* + E_y^2 E_z^* + |E_z|^2 E_z \end{pmatrix} \right]
 \end{aligned}$$

Der Parameter γ kann je nach Ursache der nichtlinear induzierten Polarisation unterschiedliche Werte annehmen (siehe Tab. 2.1). Für ultrakurze Laserpulse ist in erster Linie die nichtlineare Auslenkung nichtresonanter Elektronen von Bedeutung und γ nimmt den Wert $\gamma = \frac{1}{2}$ an. Die Einstellzeit dieses Effektes liegt unter einer Femtosekunde und kann als instantan angenommen werden. Die phänomenologische Größe des nichtlinearen Brechungsindex n_2 beinhaltet noch einen weiteren Anteil, der aus der Bewegung der Kerne resultiert. Die optisch induzierte Störung der Elektronenwolken verursacht Molekülschwingungen, was eine zusätzliche Zeit- bzw. Frequenzabhängigkeit des nichtlinearen Brechungsindex zur Folge hat [Sto89]. Die Einstellzeit ist etwas länger als für den elektronischen Anteil. Im Rahmen dieser Arbeit wird nicht zwischen den beiden Effekten unterschieden. Bei üblichen Pulslängen von 150 fs (FWHM) sind beide Effekte vollständig ausgeprägt. Der nichtlineare Brechungsindex n_2 ist meist nicht genau bekannt, genau wie seine eben beschriebene Zeitabhängigkeit oder seine Dispersion. Im Rahmen dieser Arbeit wird für Wasser als nichtlineares Medium $n_2 = 2 \times 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$ benutzt [Liu03]. Unter Benutzung

von $\gamma = \frac{1}{2}$ folgt für \vec{P}_{Kerr} :

$$(2.12) \quad \begin{pmatrix} (P_{Kerr})_x \\ (P_{Kerr})_y \\ (P_{Kerr})_z \end{pmatrix} = c\varepsilon_0^2 n^2 n_2 \begin{pmatrix} |E_x|^2 E_x + \frac{2}{3} (|E_y|^2 + |E_z|^2) E_x + \frac{1}{3} (E_y^2 + E_z^2) E_x^* \\ |E_y|^2 E_y + \frac{2}{3} (|E_x|^2 + |E_z|^2) E_y + \frac{1}{3} (E_x^2 + E_z^2) E_y^* \\ |E_z|^2 E_z + \frac{2}{3} (|E_x|^2 + |E_y|^2) E_z + \frac{1}{3} (E_x^2 + E_y^2) E_z^* \end{pmatrix}$$

Die durch erzeugte freie Elektronen induzierte nichtlineare Polarisation \vec{P}_{fe} kann mit Hilfe des Drude-Modells [DeM69, Ken95, Stu95] und des MRE-Modells [Ret04, Ret06, Ret07] zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisation ausgedrückt werden. Kapitel 3 befasst sich detailliert mit der Theorie zur nichtlinearen Erzeugung freier Elektronen in dielektrischen Materialien. Zunächst soll der Ansatz $\vec{P}_{fe} = \varepsilon_0 \chi_{fe}(\rho, \omega) \vec{E}$ genügen; dabei ist $\chi_{fe}(\rho, \omega)$ die nichtlineare Suszeptibilität, die von einer erzeugten Dichte ρ freier Elektronen hervorgerufen wird. Sie ist komplexwertig, da die Wechselwirkung mit dem Plasma sowohl refraktive als auch Absorptionseffekte beinhaltet. Für ein dichtes erzeugtes Plasma beschreibt die Suszeptibilität $\chi_{fe}(\rho, \omega)$ eine deutliche Absenkung des Brechungsindex des Materials, was den einleitend beschriebenen Effekt der Plasmadefokussierung zur Folge hat. Die starke Absorption des Plasmas auf Grund von Kaskadenionisation wird vom Imaginärteil der Suszeptibilität beschrieben.

Zur besseren numerischen Handhabbarkeit soll Gleichung (2.9) dimensionslos gemacht werden. Außerdem wird eine Einhüllende $\vec{A}(x, y, z)$ eingeführt, die schnelle Oszillationen in Ausbreitungsrichtung z filtert. Die folgenden Normierungen und Substitutionen werden eingeführt:

$$(2.13) \quad \begin{aligned} \vec{E} &= \frac{1}{k_0 x_0 \sqrt{c\varepsilon_0 n_2}} \vec{A} e^{ik_0 z}, & \tilde{x} &= \frac{x}{x_0}, & \tilde{y} &= \frac{y}{x_0}, \\ \tilde{\nabla}_T^2 &= \partial_{\tilde{x}}^2 + \partial_{\tilde{y}}^2, & \tilde{z} &= \frac{z}{2L_{Df}}, & L_{Df} &= k_0 x_0^2, & f &= \frac{1}{k_0 x_0}, \\ \tilde{P}_{Kerr} &= \frac{2}{3} \left[(\vec{A} \vec{A}^*) \vec{A} + \frac{1}{2} (\vec{A} \vec{A}) \vec{A}^* \right], & \tilde{P}_{fe} &= \frac{1}{f^2} \frac{\chi_{fe}}{n_0^2} \vec{A}, & \tilde{P}_{NL} &= \tilde{P}_{Kerr} + \tilde{P}_{fe} \end{aligned}$$

Die Transversalrichtungen x und y sind in x_0 skaliert, welches mit dem Radius des Transversalprofils $\vec{E}_0(x, y)$ im Fokus verknüpft ist. Werden bei einer numerischen Simulation einfache Anfangsbedingungen wie beispielsweise Gauß-Strahlen benutzt, kann x_0 natürlich direkt als $(1/e)$ - oder $(1/e^2)$ -Radius des Transversalprofils gewählt werden. Werden dagegen, wie in dieser Arbeit geschehen, die Anfangsbedingungen durch numerisches Auswerten von Beugungsintegralen erhalten, muss x_0 jeweils entsprechend angepasst werden. Die z -Richtung ist in Diffraktionslängen $L_{Df} = k_0 x_0^2$ skaliert, wobei L_{Df} genau dann die Rayleigh-Länge ist, wenn x_0 der $(1/e)$ -Radius des zugehörigen Gauß-Profiles ist. Der Parameter $f = \frac{1}{k_0 x_0}$ wird als kleiner Parame-

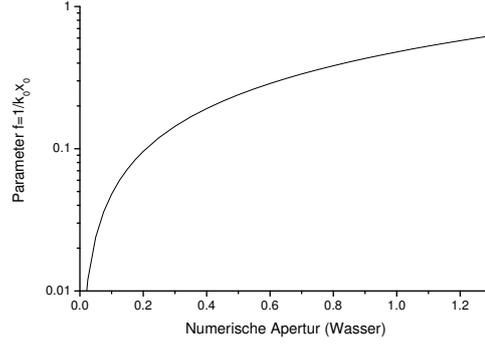


Abbildung 2.5: Parameter $f = \frac{1}{k_0 x_0}$ als Funktion der numerischen Apertur in Wasser.

ter eingeführt. Er wird später als Entwicklungsparameter eingesetzt, um gewisse Näherungen einzuführen. Er kann schnell mit der numerischen Apertur in Verbindung gebracht werden, wenn benutzt wird, dass der Durchmesser (FWHM) eines Strahlenbündels im Fokus als $d \approx \frac{\lambda}{2NA}$ gegeben ist; mit $d \approx 2x_0$ folgt dann $f \approx \frac{2NA}{\pi n_0}$. Der Parameter f als Funktion der numerischen Apertur ist in Abbildung (2.5) dargestellt. Für geringe NA gilt also $f \ll 1$ und für hohe NA bei beugungsbegrenzter Fokussierung gilt $f < 1$. Die Benutzung des Parameters f , um Störungen der Wellengleichung in Ordnungen zu entwickeln, ist eine gängige Methode in der Optik und wird vielfach zur Lösung sowohl linearer als auch nichtlinearer Probleme eingesetzt [Chi95, Cro97, Cia00, dIF00, Fib01b, Cia02, Fu02, Lu03].

Aus Gleichung (2.9) unter Benutzung der Substitutionen (2.13) folgen die nichtlinearen Wellengleichungen für die einzelnen Polarisationsrichtungen:

$$\begin{aligned}
 \partial_z A_x = & \underbrace{i\tilde{\nabla}_T^2 A_x}_{\text{Diffraktion}} + \underbrace{ix_0^2(k^2 - k_0^2)A_x}_{\text{Dispersion}} + \underbrace{i\frac{f^2}{4}\partial_z^2 A_x}_{\text{Nichtparaxialität}} + \underbrace{i\frac{k^2}{k_0^2}(\tilde{P}_{NL})_x}_{\text{Nichtlinearität}} \\
 & + \underbrace{if^2\partial_x^2(\tilde{P}_{NL})_x}_{\text{Nichtlineare Diffraktion}} + \underbrace{if^2\partial_x\partial_{\tilde{y}}(\tilde{P}_{NL})_y + i\frac{f^3}{2}\partial_x\partial_z(\tilde{P}_{NL})_z - f\partial_x(\tilde{P}_{NL})_z}_{\text{Vektorkopplungen}}
 \end{aligned}
 \tag{2.14a}$$

$$\begin{aligned}
 \partial_z A_y = & i\tilde{\nabla}_T^2 A_y + ix_0^2(k^2 - k_0^2)A_y + i\frac{f^2}{4}\partial_z^2 A_y + i\frac{k^2}{k_0^2}(\tilde{P}_{NL})_y \\
 & + if^2\partial_x\partial_{\tilde{y}}(\tilde{P}_{NL})_x + if^2\partial_{\tilde{y}}^2(\tilde{P}_{NL})_y + i\frac{f^3}{2}\partial_{\tilde{y}}\partial_z(\tilde{P}_{NL})_z - f\partial_{\tilde{y}}(\tilde{P}_{NL})_z
 \end{aligned}
 \tag{2.14b}$$

$$\begin{aligned}
 \partial_z A_z = & i\tilde{\nabla}_T^2 A_z + ix_0^2(k^2 - k_0^2)A_z + i\frac{f^2}{4}\partial_z^2 A_z - f\left(\partial_x(\tilde{P}_{NL})_x + \partial_{\tilde{y}}(\tilde{P}_{NL})_y\right) \\
 & - f^2\partial_z(\tilde{P}_{NL})_z + i\frac{f^3}{2}\left(\partial_x\partial_z(\tilde{P}_{NL})_x + \partial_{\tilde{y}}\partial_z(\tilde{P}_{NL})_y\right) + i\frac{f^4}{4}\partial_z^2(\tilde{P}_{NL})_z
 \end{aligned}
 \tag{2.14c}$$

Aus der Struktur der Gleichungen für die Amplitude A_x , A_y und A_z ist schnell zu erkennen, dass die Transversalfelder A_x und A_y gleichartig sind. Am Beispiel von A_x sind die üblichen Bezeichnungen für die einzelnen Terme angegeben. Die Diffraktion oder Beugung beschreibt die Entwicklung der Transversalfelder bei rein linearer Propagation. Der Dispersionsterm setzt die Ausbreitungsgeschwindigkeit einer bestimmten Frequenzkomponente $A(\omega)$ in Relation zur Ausbreitungsgeschwindigkeit des Pulsschwerpunktes. Die Dispersion verursacht die Zunahme der Pulsdauer sowohl in Medien mit positiver (normaler) Dispersion, als auch in solchen mit negativer (anomaler) Dispersion, sofern der Puls nicht negativ, bzw. positiv gechirpt ins Medium eintritt. Von positiver Dispersion wird gesprochen, wenn $k'' = \frac{d^2 k(\omega)}{d\omega^2} |_{\omega=\omega_0} > 0$ gilt. Negative Dispersion liegt vor, wenn $k'' < 0$ ist. In Wechselwirkung mit der Nichtlinearität kann die Dispersion noch eine Reihe weiterer Effekte hervorrufen, wie die Existenz zeitlicher Solitonen in optischen Fasern mit anomaler Dispersion [Agr01] oder Pulse Splitting als Folge der Wechselwirkung von Selbstfokussierung, Selbstphasenmodulation und positiver Dispersion [Che92, Rot92a, Rot92b, Lut94a, Fib95, Ran96, Did98]. Die Nichtlinearität selbst verursacht räumliches Selbstfokussieren, sowie eine zeitliche Verbreiterung des Spektrums durch Selbstphasenmodulation.

Wie bereits erwähnt wurde, ist f als kleiner Parameter in die Gleichungen (2.14a, 2.14b, 2.14c) eingeführt worden. Alle zuvor geschilderten Terme haben die Ordnung $O(0)$ und sind damit hauptsächlich für die von den Gleichungen gezeigte Dynamik verantwortlich. Unter gewissen Umständen können allerdings Terme höherer Ordnung ebenfalls beitragen. Dies ist entweder dann der Fall, wenn der räumliche Strahlquerschnitt klein, also die numerische Apertur der Fokussieroptik groß ist; dann nähert sich der Parameter f langsam dem Wert 1 an, oder wenn die nichtlineare Polarisation groß ist, was einer hohen Pulsspitzenleistung oder einem dichten erzeugten Plasma entspricht. In beiden Fällen können Terme der Ordnung $O(f^2)$ oder höher deutlich zur Dynamik der Gleichungen (2.14a, 2.14b, 2.14c) beitragen. Dabei unterscheidet sich der als "Nichtparaxialität" bezeichnete Term in Gleichung (2.14a) von den beiden anderen Termen höherer Ordnung insofern, dass die Nichtparaxialität ein rein linearer Effekt ist, ihr Einfluss also lediglich vom Parameter f abhängt. Deswegen wird eine hohe Nichtparaxialität in dieser Arbeit auch gleichbedeutend mit einem großen f -Parameter verstanden und häufig äquivalent verwendet. Die Nichtparaxialität ist kein Vektoreffekt und trägt nicht zur Kopplung der Polarisationsrichtungen bei. Sie muss immer dann berücksichtigt werden, wenn der Strahldurchmesser klein, also die numerische Apertur hoch ist. Die Nichtparaxialität hat sich im Rahmen dieser Arbeit als wichtigste Modifikation im Vergleich zu gewöhnlichen Wellengleichungen herausgestellt und wird deswegen im Folgenden noch ausführlich diskutiert. Wird die Nichtparaxialität vernachlässigt,

wird dies als paraxiale Näherung bezeichnet. Eine derart veränderte Wellengleichung ist nur noch zur Beschreibung von Laserstrahlen geeignet, die weder zu stark divergieren, noch konvergieren, also nur kleine Winkel mit der optischen Achse einschließen. Beispielsweise ist der gesamte als Gaußsche Optik bezeichnete Formalismus nur im Rahmen der paraxialen Näherung gültig und sollte deswegen nicht oberhalb einer numerischen Apertur $NA = 0,5$ verwendet werden. Dies wird später noch genauer untersucht. Die als "Nichtlineare Diffraktion" und als "Vektorkopplung" bezeichneten Terme in Gleichung (2.14a) hängen sowohl vom f -Parameter als auch von der nichtlinearen Polarisation ab und erlangen entweder bei hoher Nichtparaxialität oder bei hoher Pulsspitzenleistung Bedeutung.

Bei der Struktur der Gleichungen (2.14a, 2.14b, 2.14c) bleibt noch zu erwähnen, dass sich Gleichung (2.14c) für die Amplitude in Ausbreitungs-, also die z -Richtung, von den beiden Transversalrichtungen unterscheidet. Zwar sind die linearen Terme, also Diffraktion, Dispersion und Nichtparaxialität, gleich, doch fehlt beispielsweise die für Selbstfokussierung verantwortliche Nichtlinearität. Dies ist jedoch dadurch zu verstehen, dass in z -Richtung gar keine Selbstfokussierung stattfinden kann, weil diese Polarisationsrichtung bereits senkrecht zur Ausbreitungsrichtung propagiert. Schnüren sich dagegen die x - und y -Polarisationsrichtungen durch Selbstfokussieren ein, wird dabei immer mehr Leistung in die z -Polarisationsrichtung übertragen. Gerade dieser Effekt wird durch die Vektorkopplungen in den Gleichungen (2.14a, 2.14b, 2.14c) beschrieben. Ist der Einfluss der nichtlinearen Polarisation klein, also die Leistung gering, tritt keine Kopplung zwischen den Polarisationsrichtungen auf und es wird keine Leistung ausgetauscht.

2.2.1 Reduzieren der Polarisationsrichtungen

Es gibt mehrere Gründe das System von nichtlinear gekoppelten Gleichungen (2.14a, 2.14b, 2.14c) zu reduzieren, bevor eine numerische Integration angestrebt wird. Dies betrifft besonders die letzte Gleichung für die in Propagationsrichtung polarisierte Amplitude A_z , da nichtlineare Terme mit Ableitungen in z -Richtung darin enthalten sind. Dies erschwert die numerische Behandlung erheblich, da übliche Verfahren zum Lösen von Anfangswertproblemen nicht angewendet werden können. In Bezug auf die Nichtparaxialität trifft dies allerdings für alle drei Gleichungen zu. Die zweifache Ableitung in z -Richtung verhindert ebenfalls zunächst ein Lösen als Anfangswertproblem. Im weiteren Verlauf dieses Kapitels wird jedoch gezeigt, wie in Bezug auf die Nichtparaxialität aus dem Randwertproblem wieder ein Anfangswertproblem gemacht werden kann. Zunächst soll allerdings das System an Gleichungen (2.14a, 2.14b, 2.14c) durch Annahme geeigneter Bedingungen vereinfacht werden.

Im vorigen Abschnitt wurde diskutiert, dass die Wellengleichungen für die x - und y -Komponente die gleiche Struktur aufweisen. Deswegen reicht es aus, das Eingangsfeld als hauptsächlich linear x -polarisiert anzunehmen. Fibich et al. haben gezeigt, dass für die y - und die z -Polarisation dann die folgenden Relationen gelten [Fib01b]:

$$(2.15) \quad \begin{aligned} A_x &= O(0) \\ A_y &= O(f^2) \\ A_z &= O(f) \end{aligned}$$

Die genauen Zusammenhänge zwischen den Feldkomponenten werden im späteren Verlauf noch beleuchtet. Die Relationen (2.15) werden ebenfalls von den durch vektorielle und nichtparaxiale Beugungsintegrale berechneten Anfangsbedingungen gestützt (siehe Kapitel 4). Wird beispielsweise eine linear in x -Richtung polarisierte ebene Welle durch ein Mikroskopobjektiv mit $NA = 1,2$ in Wasser fokussiert, so sind nur ca. 1.1 % der gesamten Leistung im Fokus in y -Richtung polarisiert, in z -Richtung dagegen 20.4 % der Leistung. Dieser als Depolarisation bezeichnete Effekt, dass bei starkem Fokussieren Leistung in andere Polarisationsrichtungen übertragen wird, wird ebenfalls in Kapitel 4 genauer untersucht. Die Relationen (2.15) zeigen, dass es ausreicht, nur eine transversale Polarisationsrichtung zu berücksichtigen; das sei hier willkürlich die x -Richtung. Darüber hinaus kann A_z aus A_x approximiert werden, wie später noch gezeigt wird. Daher muss auch die Differentialgleichung für A_z nicht explizit gelöst werden. Das Differentialgleichungssystem (2.14a, 2.14b, 2.14c) kann also auf die Differentialgleichung für die x -Polarisation reduziert werden:

$$(2.16) \quad \begin{aligned} \partial_z A_x &= i\tilde{\nabla}_T^2 A_x + ix_0^2(k^2 - k_0^2)A_x + i\frac{f^2}{4}\partial_z^2 A_x + i\frac{k^2}{k_0^2}(\tilde{P}_{NI})_x \\ &+ if^2\partial_x^2(\tilde{P}_{NI})_x + if^2\partial_x\partial_y(\tilde{P}_{NI})_y + i\frac{f^3}{2}\partial_x\partial_z(\tilde{P}_{NI})_z - f\partial_x(\tilde{P}_{NI})_z \end{aligned}$$

Terme der Ordnungen höher als $O(f^2)$ brauchen in Gleichung (2.16) keine Beachtung zu finden, da durch das Vernachlässigen der y -Polarisationsrichtung die Genauigkeit bereits festgelegt ist. Soll eine Genauigkeit größer als $O(f^2)$ erzielt werden, müssen alle drei Gleichungen mit den zuvor beschriebenen numerischen Einschränkungen integriert werden. Unter Benutzung der Relationen (2.15) kann abgeschätzt werden, welche Größe die einzelnen Terme der nichtlinearen

Polarisationen $(P_{NL})_i$ haben:

$$\begin{aligned}
 (2.17a) \quad (\tilde{P}_{NL})_x &= \underbrace{|A_x|^2 A_x}_{O(0)} + \underbrace{\frac{2}{3}|A_y|^2 A_x}_{O(f^4)} + \underbrace{\frac{2}{3}|A_z|^2 A_x}_{O(f^2)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_y^2 A_x^*}_{O(f^4)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_z^2 A_x^*}_{O(f^2)} + \underbrace{\frac{1}{f^2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_x}_{O(0)} \\
 \Rightarrow (\tilde{P}_{NL})_x &= \underbrace{|A_x|^2 A_x}_{O(0)} + \underbrace{\frac{2}{3}|A_z|^2 A_x}_{O(f^2)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_z^2 A_x^*}_{O(f^2)} + \underbrace{\frac{1}{f^2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_x}_{O(0)} + O(f^4)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 (2.17b) \quad (\tilde{P}_{NL})_y &= \underbrace{|A_y|^2 A_y}_{O(f^6)} + \underbrace{\frac{2}{3}|A_x|^2 A_y}_{O(f^2)} + \underbrace{\frac{2}{3}|A_z|^2 A_y}_{O(f^4)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_x^2 A_y^*}_{O(f^2)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_z^2 A_y^*}_{O(f^4)} + \underbrace{\frac{1}{f^2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_y}_{O(f^2)} \\
 \Rightarrow (P_{NL})_y &= \underbrace{\frac{2}{3}|A_x|^2 A_y}_{O(f^2)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_x^2 A_y^*}_{O(f^2)} + \underbrace{\frac{1}{f^2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_y}_{O(f^2)} + O(f^4)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 (2.17c) \quad (\tilde{P}_{NL})_z &= \underbrace{|A_z|^2 A_z}_{O(f^3)} + \underbrace{\frac{2}{3}|A_x|^2 A_z}_{O(f)} + \underbrace{\frac{2}{3}|A_y|^2 A_z}_{O(f^5)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_x^2 A_z^*}_{O(f)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_y^2 A_z^*}_{O(f^5)} + \underbrace{\frac{1}{f^2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_z}_{O(f)} \\
 \Rightarrow (P_{NL})_z &= \underbrace{\frac{2}{3}|A_x|^2 A_z}_{O(f)} + \underbrace{\frac{1}{3}A_x^2 A_z^*}_{O(f)} + \underbrace{\frac{1}{f^2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_z}_{O(f)} + O(f^3)
 \end{aligned}$$

Die Ausdrücke für die nichtlinearen Polarisationen $(P_{NL})_i$ (2.17a, 2.17b, 2.17c) werden nun in Gleichung (2.16) eingesetzt. Dabei werden alle Ordnungen höher $O(f^2)$ vernachlässigt. Daraus folgt eine nichtlineare Wellengleichung für die x -Komponente des elektrischen Feldes unter Berücksichtigung von vektoriellen und nichtparaxialen Effekten bis einschließlich der Ordnung $O(f^2)$:

$$\begin{aligned}
 (2.18) \quad \partial_z A_x &= i\tilde{\nabla}_T^2 A_x + ix_0^2(k^2 - k_0^2)A_x + i\frac{f^2}{4}\partial_z^2 A_x + i\frac{k^2}{k_0^2} \left(|A_x|^2 A_x + \frac{1}{f^2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_x \right) \\
 &+ i\frac{k^2}{k_0^2} \left(\frac{2}{3}|A_z|^2 A_x + \frac{1}{3}A_z^2 A_x^* \right) + if^2\partial_x^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) A_x \\
 &- f\partial_x \left(\frac{2}{3}|A_x|^2 A_z + \frac{1}{3}A_x^2 A_z^* + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_z \right) + O(f^4)
 \end{aligned}$$

Wie zuvor schon erwähnt wurde, steht einem einfachen numerischen Integrieren von Gleichung (2.18) als Anfangswertproblem noch die in der Nichtparaxialität enthaltene zweifache Ableitung in z -Richtung entgegen. Möglichkeiten die Nichtparaxialität zu berücksichtigen und die Integration trotzdem als Anfangswertproblem durchzuführen werden im nächsten Abschnitt diskutiert.

2.2.2 Nichtparaxiale Darstellung

Die übliche Methode die Nichtparaxialität bei der numerischen Integration von Gleichung (2.18) zu berücksichtigen, ist es, die zweite Ableitung in Ausbreitungs- also z -Richtung durch Ableitungen in die Transversalrichtungen zu ersetzen [Chi95, Boa00, Mar00, Fib01b, Mal01]. Dabei kann die Gleichung in immer höhere Ordnungen von f entwickelt werden. Die Methode ist allerdings relativ aufwendig. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine Möglichkeit gefunden, die Nichtparaxialität wesentlich eleganter zu berücksichtigen. Die einzelnen Ordnungen der eben erwähnten Störungsrechnung lassen sich der Entwicklung der hier erhaltenen nichtparaxialen Gleichung zuordnen. Die hier gezeigte Methode liefert eine nichtparaxiale Gleichung in geschlossener Form, im Gegensatz zu einer Gleichung, die nur als Entwicklung bis zu einer bestimmten Ordnung vorliegt. Da die Nichtparaxialität selbst ein Effekt der Ordnung $O(f^2)$ ist, sollen andere Terme dieser Ordnung nicht zu ihrer Bestimmung berücksichtigt werden. Die Vernachlässigten Terme sind natürlich genau die Terme, die die Vektoreffekte beschreiben; sie können später wieder hinzugefügt werden. Gleichung (2.18) ohne Vektoreffekte lautet dann:

$$(2.19) \quad \partial_z A_x = i\tilde{\nabla}_T^2 A_x + ix_0^2(k^2 - k_0^2)A_x + i\frac{f^2}{4}\partial_z^2 A_x + i\frac{k^2}{k_0^2}\left(|A_x|^2 + \frac{1}{f^2}\frac{\chi_{fe}}{n^2}\right)A_x$$

Es soll eine Darstellung von Gleichung (2.19) gefunden werden, die keine zweite Ableitung in z -Richtung enthält. Dazu wird zunächst nach dem Propagations-Operator ∂_z zusammengefasst:

$$(2.20) \quad \iff \left(\partial_z + \frac{2i}{f^2}\right)^2 A_x + 4k_0^2 x_0^4 \left(k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2} + k^2 \left(f^2 |A_x|^2 + \frac{\chi_{fe}}{n^2}\right)\right) A_x = 0$$

Es werden die beiden Operatoren P und Q eingeführt, so dass folgt:

$$(2.21) \quad P = \partial_z + \frac{2i}{f^2}, \quad Q = 2k_0 x_0^2 \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2} + k^2 \left(f^2 |A_x|^2 + \frac{\chi_{fe}}{n^2}\right)}$$

$$(2.22) \quad \iff (P^2 + Q^2) A_x = 0$$

Der letzte Ausdruck kann auch wie folgt geschrieben werden:

$$(2.23) \quad ((P + iQ)(P - iQ) - i[P, Q]) A_x = 0$$

Dabei ist $[P, Q] = PQ - QP$ der Kommutator. Für moderates Selbstfokussieren und erzeugte Plasmen unterkritischer Dichte ($\rho < \rho_{crit}$) kann der Kommutator vernachlässigt werden. Die kritische Dichte freier Elektronen ρ_{crit} , bei der ein erzeugtes Plasma stark reflektierend und

undurchdringlich wird, wird in Kapitel 3 detailliert diskutiert. Es ist wichtig zu erwähnen, dass die kritische Plasmadichte ρ_{crit} größer ist, als die mit dem Auftreten eines optischen Durchbruchs assoziierte Plasmadichte $\rho_{Bd} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. So kann der optische Durchbruch erzielt werden, ohne dass bedeutende Rückreflexion auftritt. Für den Fall vernachlässigbarer nichtlinearer Kopplung, wird Gleichung (2.23) in Form unabhängiger, entgegengesetzt propagierender Wellen geschrieben:

$$(2.24) \quad PA_x = \pm iQA_x$$

Unter willkürlicher Festlegung auf die Ausbreitungsrichtung in positive z -Richtung ist der Ausdruck für den Propagations-Operator $\partial_{\tilde{z}}$ gefunden:

$$(2.25) \quad \Rightarrow \partial_{\tilde{z}}A_x = 2iL_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2} + k^2 \left(f^2 |A_x|^2 + \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right)} \right) A_x$$

Gleichung (2.25) ist die unidirektionale, nichtlineare und nichtparaxiale Propagationsgleichung für das linear in x -Richtung polarisierte Feld A_x . Die zuvor vernachlässigten Vektoreffekte können natürlich wieder hinzugefügt werden, um die Gleichung noch um den Vektorcharakter des Feldes zu erweitern. Zunächst soll allerdings Gleichung (2.25) etwas genauer untersucht werden. Auch Gleichung (2.25) kann nicht direkt numerisch integriert werden. Da die Wurzel sowohl lineare als auch nichtlineare Terme enthält, können weder im Frequenz- noch im Normalraum angesiedelte numerische Integrationsmethoden angewendet werden. Während der unter der Wurzel eingeschlossene Laplace-Operator im Normalraum nicht ausgeführt werden kann, können andererseits die nichtlinearen Terme nicht zusammen mit den linearen in den Frequenzraum transformiert werden. Um Gleichung (2.25) numerisch handhabbar zu machen, muss die Wurzel entwickelt werden.

Um trotz dieser Schwierigkeit die Bedeutung der Nichtparaxialität zu erkennen, soll für einen Moment lediglich mit der linearen Gleichung gearbeitet werden, also die Nichtlinearitäten in Gleichung (2.25) vernachlässigt werden. Es folgt die unidirektionale, nichtparaxiale Propagationsgleichung für die Amplitude A_x :

$$(2.26) \quad \Rightarrow \partial_{\tilde{z}}A_x = 2iL_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}} \right) A_x$$

Gleichung (2.26) ist im Frequenzraum direkt und exakt integrierbar. Unter Benutzung der Transformationen $\partial_{\tilde{x}}/x_0 \xrightarrow{\mathcal{F}} ik_x$ und $\partial_{\tilde{y}}/x_0 \xrightarrow{\mathcal{F}} ik_y$ kann die Wurzel durch eine dreidimensionale Fouriertransformation, die beide Transversalrichtungen und die Zeitrichtung beinhaltet

$A(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z}, t) \xrightarrow{\mathcal{F}} A(k_x, k_y, z, \omega)$, in den Frequenzraum überführt werden:

$$(2.27) \quad \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}} \xrightarrow{\mathcal{F}} \sqrt{k^2 - k_x^2 - k_y^2} = K(k_x, k_y)$$

Dabei sind k_x und k_y die transversalen Wellenzahlen. Die Darstellung der Wurzel $K(k_x, k_y)$ im Frequenzraum ist als K-Operator oder "Spherical Wave Operator" bekannt [Kol02, Rot92b, Kol04, Eng04]. Mithilfe des K-Operators lässt sich das Feld A_x im Frequenzraum exakt von einer Stelle \tilde{z}_0 über beliebig weite Strecken \tilde{z} nach $\tilde{z}_0 + \tilde{z}$ propagieren.

$$(2.28) \quad A_x(k_x, k_y, \tilde{z}_0 + \tilde{z}, \omega) = \exp(\tilde{z} 2i L_{Df} (-k_0 + K(k_x, k_y))) A_x(k_x, k_y, \tilde{z}_0, \omega)$$

$$(2.29) \quad \iff A_x(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z}_0 + \tilde{z}, t) = \mathcal{F}^{-1} \exp(\tilde{z} 2i L_{Df} (-k_0 + K(k_x, k_y))) \mathcal{F} A_x(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z}_0, t)$$

Gleichung (2.26) beschreibt die lineare nichtparaxiale Propagation auch bei hoher numerischer Apertur exakt.

Aus der vektoriellen Helmholtz-Gleichung (2.8) ist einfach zu erkennen, dass im linearen Fall Gleichung (2.26) für alle drei Polarisationsrichtungen A_i gilt.

$$(2.30) \quad \partial_z A_i = 2i L_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}} \right) A_i$$

Dieser Sachverhalt wird in Kapitel 4 benutzt, um das elektrische Feld in der Nähe des Fokus eines Mikroskopobjektives hoher NA für alle Polarisationsrichtungen zu berechnen. Aus Gleichung (2.30) kann darüber hinaus unter Benutzung von $\nabla \vec{E} = 0$, was im linearen Fall aus $\nabla \vec{D} = 0$ folgt, die Abhängigkeit der z -Polarisation von den x - und y -Polarisationsrichtungen hergeleitet werden. Aus $\nabla \vec{E} = 0$ folgt nach Einsetzen der Ersetzungen (2.13):

$$(2.31) \quad \partial_z A_z = -2i L_{Df} k_0 A_z - \frac{2L_{Df}}{x_0} \tilde{\nabla}_T \vec{A}_T$$

Dabei ist $\tilde{\nabla}_T = (\partial_{\tilde{x}}, \partial_{\tilde{y}}, 0)$ der transversale Nabla-Operator und $\vec{A}_T = (A_x, A_y, 0)$ das Transversalfeld. Jetzt kann für $\partial_z A_z$ aus (2.30) eingesetzt werden.

$$(2.32) \quad \begin{aligned} 2i L_{Df} \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}} A_z &= -\frac{2L_{Df}}{x_0} \tilde{\nabla}_T \vec{A}_T \\ \iff A_z &= \frac{i}{\sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}}} \frac{1}{x_0} \tilde{\nabla}_T \vec{A}_T \end{aligned}$$

Ausdruck (2.32) für die Abhängigkeit des in z -Richtung polarisierten Feldes A_z vom Transversalfeld \vec{A}_T kann im Normalraum nicht ausgewertet werden. Deswegen wird häufig der paraxiale Ausdruck $A_z = if\partial_{\bar{x}}A_x$ benutzt [Chi95, Mar00, Boa00, Fib01b, Mal01], der erhalten wird, wenn die Näherung $\sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}} \approx k_0$ benutzt wird und das in y -Richtung polarisierte Feld A_y vernachlässigt wird.

Andererseits ist der vollständige, nichtparaxiale Ausdruck für die z -Amplitude im Frequenzraum leicht zu berechnen:

$$(2.33) \quad A_z(k_x, k_y, z, \omega) = \frac{1}{\sqrt{1 - \frac{k_T^2}{k^2}}} \frac{1}{x_0 k} \vec{k}_T \vec{A}_T(k_x, k_y, z, \omega)$$

Im Rahmen dieser Arbeit wird deswegen stets Gleichung (2.33) zur Berechnung des z -Feldes benutzt. Anhand des Faktors $\frac{1}{x_0 k}$ auf der rechten Seite ist leicht zu erkennen, dass A_z die Ordnung $O(f)$ hat, wie es in (2.15) postuliert wurde.

2.2.3 Das fundamentale Beugungslimit und die paraxiale Näherung

Dieser Abschnitt soll allgemein die Gültigkeit der paraxialen Näherung und die Notwendigkeit der nichtparaxialen Beschreibung der Propagation in Relation zur numerischen Apertur setzen. Fundamentale Theorien in der Optik wie der Formalismus Gaußscher Strahlen oder die Fresnel- und Fraunhoferbeugung sind im Rahmen der paraxialen Näherung formuliert. Die jetzt folgende Analyse soll nur für den linearen Fall diskutiert werden, ist aber für nichtlineare Propagation genauso gültig. Für die lineare Propagation einer Feldkomponente A_i im Frequenzraum gilt:

$$(2.34) \quad \begin{aligned} \partial_z A_i(k_x, k_y, z, \omega) &= 2iL_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k^2 - k_T^2} \right) A_i(k_x, k_y, z, \omega) \\ \iff \partial_z A_i(k_x, k_y, z, \omega) &= 2iL_{Df} \left(-k_0 + K(k_x, k_y) \right) A_i(k_x, k_y, z, \omega) \end{aligned}$$

Dabei ist $k_T = \sqrt{k_x^2 + k_y^2}$ die transversale Wellenzahl. Der K-Operator stellt im Frequenzraum lediglich einen geometrischen Faktor dar. Dieser ergibt sich daraus, dass der Wellenzahlvektor $\vec{k} = (k_x, k_y, k_z)$ im Frequenzraum eine Kugel aufspannt mit dem Radius $k = \frac{\omega}{c}n(\omega)$. Es gilt $\vec{k}\vec{k} = k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 = k^2$ und $k_z = \sqrt{k^2 - k_x^2 - k_y^2}$. Damit ist der K-Operator also nichts anderes als die Wellenzahl in Ausbreitungsrichtung. Dadurch dass die Wurzel für $k_T^2 > k^2$ imaginär wird, verkörpert der K-Operator das fundamentale Beugungslimit. Transversale Raumfrequenzen, die größer sind als die Wellenzahl k der propagierenden Strahlung, können nur stark gedämpft propagieren. Solche evaneszenten Felder breiten sich deswegen kaum aus, sondern werden

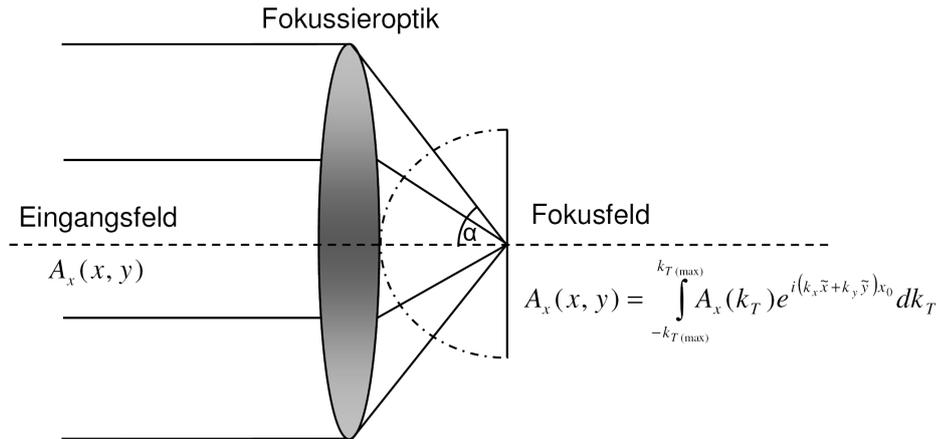


Abbildung 2.6: Das durch eine fokussierende Optik erzeugte transversale Fokusfeld ist eine Interferenz der transversalen Raumfrequenzen k_T . Die höchste Raumfrequenz ist durch die numerische Apertur gegeben $k_{T(\max)} = \text{NA} \frac{k}{n}$.

exponentiell gedämpft.

In der geometrischen Sichtweise wird klar, dass transversale Frequenzen mit $k_T^2 > k^2$ nicht reell existieren dürfen, weil sie außerhalb der Kugel mit Radius k^2 liegen. So entspricht die maximale Raumfrequenz $k_T = k$ einer Welle, die senkrecht zur Ausbreitungsrichtung propagiert. Durch lineare Effekte wie Fokussieren oder Defokussieren ist es nicht möglich, höhere Raumfrequenzen zu erzeugen. Das allgemeine Verständnis des Beugungslimits als Grenze für die Fokussierbarkeit von Strahlung folgt direkt aus dem K-Operator. Das Feld im Fokus ist eine Interferenz aller transversalen Raumfrequenzen $0 \leq k_T \leq k$. Durch Interferenz dieses Spektrums können keine Strukturen, deren Durchmesser schmäler ist als $d \approx \frac{\lambda}{2n}$ erzeugt werden. Allgemeiner, unter Einbeziehen der numerischen Apertur, unter der die Strahlung fokussiert wird, lautet der Zusammenhang $d \approx \frac{\lambda}{2\text{NA}}$. An diesem Ausdruck lässt sich sogleich die Beziehung zwischen der NA und der maximalen Raumfrequenz ablesen; sie lautet $k_{T(\max)} = \sin(\alpha)k = \text{NA} \frac{k}{n}$. Dabei ist α der Fokussierungshalbwinkel und $\text{NA} = \sin(\alpha)n$. Die geschilderten Zusammenhänge sind in Abbildung (2.6) verdeutlicht.

Die paraxiale Näherung ist ein sehr wichtiges Konstrukt in der Optik. Sie kann aus (2.34) als die Entwicklung erster Ordnung des K-Operators erhalten werden:

$$(2.35) \quad \begin{aligned} \partial_z A_i(k_x, k_y, z, \omega) &= 2iL_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k^2 - k_T^2} \right) A_i(k_x, k_y, z, \omega) \\ \Rightarrow \partial_z A_i(k_x, k_y, z, \omega) &= 2iL_{Df} (k - k_0) A_i(k_x, k_y, z, \omega) - iL_{Df} \frac{k_T^2}{k} A_i(k_x, k_y, z, \omega) \end{aligned}$$

$$(2.36) \quad \Leftrightarrow \partial_z A_i(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z}, t) = 2iL_{Df} (k - k_0) A_i(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z}, t) - iL_{Df} \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2 k} A_i(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z}, t)$$

Die paraxiale Näherung besteht also darin, den sphärischen Wellenpropagator $k\sqrt{1 - k_T^2/k^2}$ durch einen parabolischen Propagator $k - \frac{1}{2}k_T^2/k$ zu ersetzen. Diese Näherung kann natürlich nur für kleine Wellenzahlen $k_T \ll k$ gültig sein. Abbildung (2.7) zeigt den Wert des K-Operator

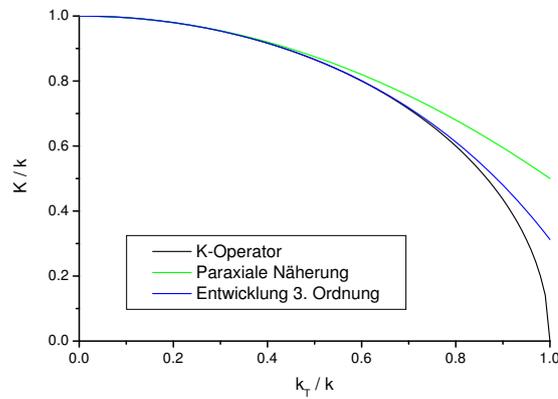


Abbildung 2.7: Auswerten des K-Operators im Frequenzraum im Vergleich zur paraxialen Näherung und einer Entwicklung bis zur dritten Ordnung.

im Frequenzraum im Vergleich zur paraxialen Näherung. Für $\frac{k_T}{k} > \frac{1}{2}$ ist die Abweichung zwischen dem K-Operator und der paraxialen Näherung deutlich erkennbar. Dies entspricht einem Fokussierungshalbwinkel $\alpha < 30^\circ$ als obere Grenze der Gültigkeit der paraxialen Näherung. Das ist eine numerische Apertur $NA = 0,5$ in Luft bzw. $NA \approx 0,66$ in Wasser, die nicht überschritten werden sollte, wenn paraxiale Theorien angewendet werden. Ein übliches Vorgehen bei der numerischen Beschreibung der Nichtparaxialität ist es, den K-Operator in höhere Ordnungen zu entwickeln [Chi95, dlF00, Cia00, Fib01b, Fu02]. Obwohl die blaue Kurve in Abbildung (2.7) eine Entwicklung des K-Operators bis zur dritten Ordnung darstellt, ist die Abweichung für hohe Wellenzahlen sehr deutlich ausgeprägt. Ein weiterer Nachteil der Entwicklung des K-Operators ist es, dass die Absorption für evaneszente Wellen verloren geht, wenn diese im numerischen Modell nicht synthetisch berücksichtigt wird. Im Rahmen dieser Arbeit wurde der K-Operator

nicht entwickelt, sondern stets exakt im Frequenzraum ausgewertet. Das garantiert eine exakte Beschreibung der linearen Propagation auch bei hoher numerischer Apertur. Als Beispiel ist in

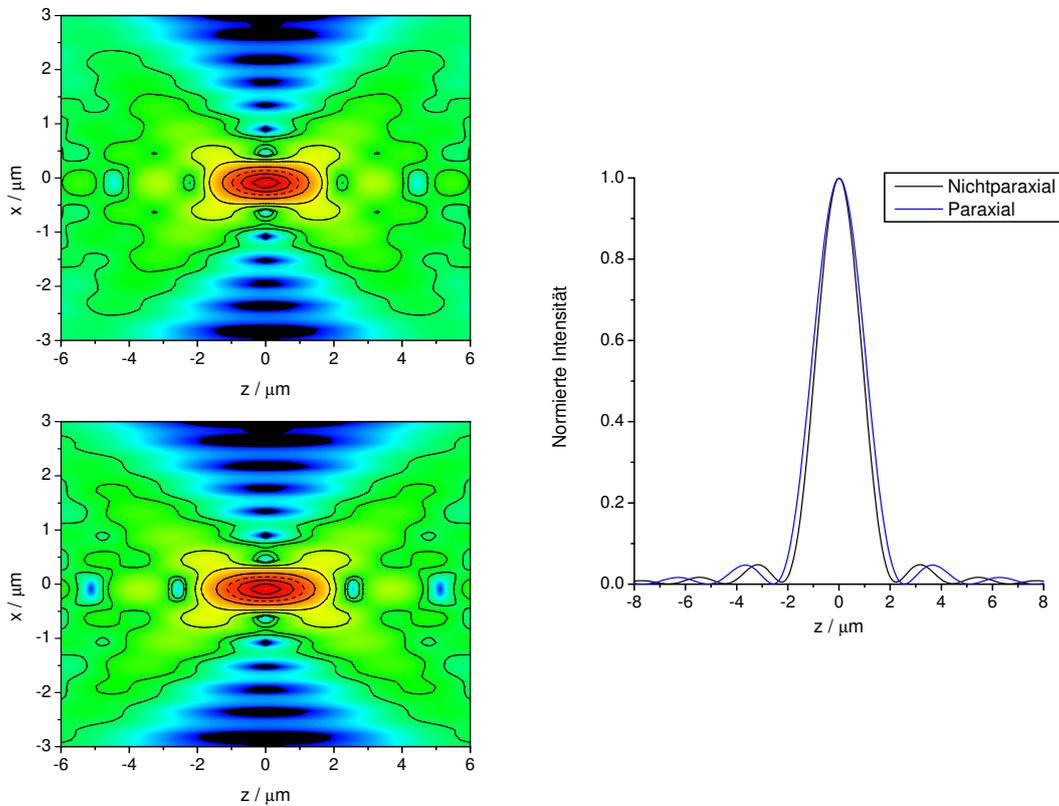


Abbildung 2.8: Das fokale Intensitätsprofil einer ebenen Welle fokussiert durch ein Objektiv der $NA = 0,9$ in Wasser, dargestellt in der xz -Ebene, berechnet exakt nichtparaxial (oben) und in der paraxialen Näherung (unten). Die rechte Seite zeigt die normierte Intensität auf der optischen Achse im Vergleich. Die Isokonturlinien befinden sich bei $I = (5 \times 10^{-3}; 1 \times 10^{-2}; 5 \times 10^{-2}; 0,1; 0,3; 0,5; 0,7; 0,9) I_0$.

Abbildung (2.8) das fokale Intensitätsprofil einer ebenen Welle, die mit einem Objektiv bei einer numerischen Apertur $NA = 0,9$ in Wasser fokussiert wurde, in der xz -Ebene gezeigt. Dabei ist das obere Profil vollständig nichtparaxial berechnet und im Vergleich dazu das untere im Rahmen der paraxialen Näherung. Die Profile wurden erzeugt, indem mit Hilfe eines nichtparaxialen Beugungsintegrals (siehe Kapitel 4) das Transversalfeld in der Fokusebene $z = 0$ berechnet wurde. Dann wurde unter Benutzung des K-Operators das Feld in $\pm z$ -Richtung verschoben. Auf der rechten Seite ist jeweils die normierte Intensität auf der optischen Achse im Vergleich gezeigt. Es ist deutlich zu erkennen, dass trotz der kurzen Strecke die Propagation unter Benutzung der paraxialen Näherung sichtlich von der exakten Beschreibung abweicht. Zusätzlich ist zu bedenken, dass das Feld im Ursprung nichtparaxial berechnet wurde und die paraxiale Theorie

erst danach angewendet wurde. Sonst wäre die Abweichung noch gravierender.

2.2.4 Nichtparaxiale, vektorielle Propagationsgleichung

Gleichung (2.25) ist in sehr allgemeiner Form hergeleitet worden. Sie verbindet in exakter Weise die Nichtparaxialität mit der Nichtlinearität. In diesem Abschnitt soll gezeigt werden, dass sich Gleichung (2.25) in die verschiedenen anerkannten nichtlinearen Schrödinger-Gleichungen einordnen lässt. Am Beispiel der drei wichtigsten Gleichungen, die in den letzten rund vierzig Jahren zur Beschreibung der nichtlinearen Propagation von Laserstrahlen und Laserpulsen benutzt worden sind, soll gezeigt werden, dass alle als Grenzfall von Gleichung (2.25) hergeleitet werden können.

Mit der NLSE (Nonlinear Schrödinger Equation) soll mit der einfachsten und gebräuchlichsten Gleichung begonnen werden. Die NLSE kann aus Gleichung (2.25) erhalten werden, indem die darin enthaltene Wurzel bis zur ersten Ordnung entwickelt wird:

$$(2.37) \quad \begin{aligned} \partial_z A_x &= 2iL_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2} + k^2 f^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right)} \right) A_x \\ \Rightarrow \partial_z A_x &\approx 2iL_{Df}(k - k_0)A_x + i\frac{k_0}{k}\tilde{\nabla}_T^2 A_x + i\frac{k}{k_0} \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) A_x \end{aligned}$$

Wird nun für die Wellenzahlen vor dem Laplace-Operator und vor der Nichtlinearität die Zeitabhängigkeit vernachlässigt ($k = k_0$) und die verbliebene Wellenzahl im Frequenzraum zu $k \approx k_0 + k'(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2!}k''(\omega - \omega_0)^2$ entwickelt und unter Benutzung von $(\omega - \omega_0) \xrightarrow{\mathcal{F}^{-1}} i\partial_t$ zurück in den Zeitraum transformiert, folgt mit $k' = v_g^{-1}$, wobei v_g die Gruppengeschwindigkeit ist, die NLSE:

$$(2.38) \quad \Rightarrow \partial_z A_x = -2L_{Df}v_g^{-1}\partial_t A_x - iL_{Df}k''\partial_t^2 A_x + i\tilde{\nabla}_T^2 A_x + i \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) A_x$$

Die NLSE wurde in der Vergangenheit für eine Vielzahl von theoretischen und numerischen Untersuchungen benutzt [Che92, Rot92a, Rot92b, Lut94a, Ran96, Fen97, Chi99, Tzo01b, Sud02, Liu02a, Liu03, Dub04a]. Grundlegende Ergebnisse der Selbstfokussierungstheorie, wie der nichtlineare Kollaps oder die kritische Leistung, basieren auf ihr. Da bis auf die Dispersion zweiter Ordnung sämtliche Zeit- bzw. Frequenzabhängigkeiten bei der Herleitung vernachlässigt worden sind, ist Gleichung (2.38) nicht zur Beschreibung von ultrakurzen Pulsen mit Pulsdauern von weniger als 100 fs (FWHM) geeignet [Rot92b, Bra97, Ran98]. Gleichung (2.38) ist paraxial und nicht für hohe numerischer Apertur geeignet. Außerdem kann Gleichung (2.38) nicht zur Beschreibung

von Phänomenen benutzt werden, bei denen eine starke Verbreiterung des Eingangsspektrums stattfindet, wie bei Superkontinuumserzeugung, Filamentierung und Pulse-Splitting. Die NLSE ist nur gültig, wenn die Breite des beschriebenen Frequenzspektrums klein im Vergleich zur Trägerfrequenz ist ($\Delta_\omega \ll \omega$).

Die NEE (Nonlinear Envelope Equation) stellt eine Erweiterung der NLSE auf den Fall sehr kurzer Pulse beziehungsweise sehr breiter Spektren dar [Bra97]. Ihre Gültigkeit reicht herab bis zur Beschreibung der kürzesten erzielbaren Pulse von nur einer optischen Schwingung. Die NEE kann erhalten werden, wenn in Gleichung (2.37) für die Wellenzahl k vor dem Laplace-Operator und vor der Nichtlinearität jeweils die Zeitabhängigkeit (2.10) berücksichtigt wird. Die verbliebene Wellenzahl wird im Frequenzraum in beliebig hohe Ordnung entwickelt $k(\omega) = k_0 + v_g^{-1}(\omega - \omega_0) + \sum_{n=2}^{\infty} \partial_\omega^n k(\omega)|_{\omega=\omega_0} (\omega - \omega_0)^n$ und in den Normalraum zurück transformiert. Die NEE lautet dann:

$$(2.39) \quad \begin{aligned} \Rightarrow \partial_z A_x = & -2L_{Df} v_g^{-1} \partial_t A_x - 2iL_{Df} \sum_{n=2}^{\infty} \partial_\omega^n k(\omega)|_{\omega=\omega_0} (i\partial_t)^n A_x \\ & + i \left(1 + \frac{i\partial_t}{\omega_0}\right)^{-1} \tilde{\nabla}_T^2 A_x + i \left(1 + \frac{i\partial_t}{\omega_0}\right) \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2}\right) A_x \end{aligned}$$

Gleichung (2.39) unterscheidet sich von der NLSE zunächst dadurch, dass die Dispersion bis in beliebig hohe Ordnung berücksichtigt ist, also die Ausbreitungsgeschwindigkeit eines breiten Spektrums gut beschrieben wird. Des Weiteren enthält (2.39) zusätzliche zeitliche Ableitungen vor dem Laplace-Operator und vor der Nichtlinearität. Diese als "Space-Time Focusing" und "Nonlinear Shock" bekannten Terme berücksichtigen die Frequenzabhängigkeit dieser Terme. So beschreibt "Space-Time Focusing", dass hohe Frequenzen räumlich weniger schnell divergieren als niedrige Frequenzen. Dies ist die bekannte Wellenlängenabhängigkeit der Beugung. Der Schock-Term beschreibt die Frequenzabhängigkeit der Nichtlinearität. Bei hoher Pulsintensität bewegt sich das Maximum des Pulses wegen des Kerr-Effektes langsamer als die hintere Flanke, die dann auf das Zentrum aufläuft [DeM67]. Dadurch bildet sich eine scharfe Kante an der hinteren Flanke des Pulses. Dort ist die Intensität höher als an der vorderen Flanke, weswegen der hintere Teil stärker selbst fokussiert wird. Ebenfalls durch die steile hintere Flanke werden durch Selbstphasenmodulation hauptsächlich blauverschobene Frequenzen erzeugt [Rot92b]. Der Schock-Term verursacht darüber hinaus unsymmetrisches Pulse Splitting [Fib97, Ran98], sowie ein Superkontinuum mit ausgeprägter, blauverschobener Flanke [Gae00]. Die meisten Modelle zur numerischen Beschreibung von Selbstfokussierung und Filamentierung ultrakurzer Pulse in Gasen [Tzo01a, Tzo01c], Flüssigkeiten [Dub06] und Festkörpern [Cou05] benutzen Gleichung

(2.39) in dieser oder leicht modifizierter Art und Weise. Gleichung (2.39) ist genauso wie die NLSE paraxial und deswegen ebenfalls nicht zur Beschreibung von Propagation bei hoher numerischer Apertur geeignet.

Kolesik hat 2002 die UPPE (Unidirectional Pulse Propagation Equation) vorgeschlagen [Kol02, Kol04]. Sie beinhaltet dieselben Zeit- bzw. Frequenzabhängigkeiten wie die NEE, ist aber grundsätzlich nichtparaxial. Die NLSE und NEE lassen sich ebenfalls als Grenzfall der UPPE erhalten [Kol04]. Diese kann wiederum als Grenzfall von Gleichung (2.25) für die Annahme, dass die linearen Terme unter der Wurzel groß gegen die nichtlinearen Terme sind, erhalten werden:

$$k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2} \gg k^2 f^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right)$$

Diese Annahme ist an zwei Bedingungen geknüpft: Entweder sie gilt nur für mittlere Wellenzahlen, also bei nicht zu hoher numerischer Apertur oder aber die Nichtlinearität ist gering. In Bezug auf reine Selbstfokussierung bedeutet dies, dass die Leistung klein gegen die kritische Leistung sein muss. Unter diesen Annahmen lässt sich in Gleichung (2.25) der lineare Teil aus der Wurzel ausklammern, so dass folgt:

$$\partial_z A_x = 2iL_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}} \sqrt{\frac{1 + k^2 f^2 |A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2}}{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}}} \right) A_x$$

Die verbleibende nichtlineare Wurzel wird nun bis zur ersten Ordnung entwickelt:

$$(2.40) \quad \partial_z A_x = 2iL_{Df} (-k_0 + K(x, y)) + i \frac{k^2}{k_0 K(x, y)} \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) A_x$$

Dabei ist $K(x, y) = \sqrt{k^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}}$ die Normalraumdarstellung des K-Operators. Der K-Operator kann zwar nur im Frequenzraum ausgeführt werden, dies stellt jedoch keine Einschränkung dar. Die Nichtlinearität kann in den Frequenzraum überführt werden, dort der K-Operator angewendet werden und anschließend die Nichtlinearität zurück transformiert werden:

$$(2.41) \quad \frac{k^2}{k_0 K(x, y)} \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) A_x = \mathcal{F}^{-1} \frac{k^2}{k_0 K(k_x, k_y)} \mathcal{F} \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) A_x$$

Wie zuvor bereits erwähnt, ist die UPPE (2.40) nur für moderate Wellenzahlen oder geringe Leistung im Vergleich zur kritischen Leistung gültig. Dies ist einfach am letzten Ausdruck für die Nichtlinearität im Frequenzraum zu erkennen. Für hohe Wellenzahlen geht der K-Operator gegen Null ($K(k_x, k_y) \rightarrow 0$ für $k_T \rightarrow k$) Da der K-Operator im Nenner steht, kommt es zu

einer unphysikalischen Verstärkung der hohen Frequenzen. Für diesen Fall schlägt Kolesik die t -propagierte Version der UPPE vor [Kol02, Kol04]. Anstatt die Gleichung in z -Richtung zu propagieren, wird stattdessen in Zeitrichtung propagiert. Dies ist allerdings generell aufwendiger, sowohl in Bezug auf die Programmierung der Numerik, als auch in Bezug auf die erzielbare Geschwindigkeit. Im Rahmen dieser Arbeit wurden ausschließlich z -propagierte Gleichungen benutzt.

In Form von Gleichung (2.25) wurde in dieser Arbeit eine Propagationsgleichung entwickelt, die in exakter Weise die Nichtparaxialität mit der Nichtlinearität verbindet. Wie in Abschnitt (2.2.2) bereits geschildert wurde, ist Gleichung (2.25) allerdings nicht direkt numerisch integrierbar. Dies ist darin begründet, dass die enthaltene Wurzel sowohl lineare als auch nichtlineare Terme enthält und ihr Wert deswegen weder im Normal- noch im Frequenzraum ausgewertet werden kann. Um Gleichung (2.25) numerisch handhabbar zu machen, muss die Wurzel, wie bei den Herleitungen der vorhergehenden Gleichungen gezeigt wurde, ebenfalls entwickelt werden. Dabei muss besonders darauf geachtet werden, die Nichtparaxialität, die bei hoher numerischer Apertur für die lineare Propagation unabdingbar ist, zu erhalten. Zur besseren Übersichtlichkeit werden die Substitutionen T für den transversal wirkenden Teil der Wurzel und N für den nichtlinearen Teil der Wurzel eingeführt.

$$(2.42) \quad T = \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{k^2 x_0^2}, \quad N = f^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right)$$

Die Entwicklung von Gleichung (2.25) in beliebig hohe Ordnung lautet dann:

$$(2.43) \quad \begin{aligned} \partial_{\bar{z}} A_x &= 2i L_{Df} \left(-k_0 + k \sqrt{1 + T + N} \right) A_x \\ \iff \partial_{\bar{z}} A_x &= 2i L_{Df} \left(-k_0 + k \sum_{n=0}^{\infty} \binom{1/2}{n} (T + N)^n \right) A_x \end{aligned}$$

Die Entwicklung soll nun so zusammengefasst werden, dass die Wurzeldarstellung der Nichtparaxialität wie im linearen Fall (siehe Gleichung 2.26) erhalten bleibt. Dies führt zu einer Darstellung, in der jeweils eine aus linearen und eine aus nichtlinearen Termen bestehende Wurzel

auf die Amplitude A_x wirkt, sowie eine unendliche Summe von linear-nichtlinearen Mischtermen:

$$\begin{aligned}
&\Rightarrow \partial_z A_x = 2iL_{Df} \left[-k_0 + k \sum_{n=0}^{\infty} \binom{1/2}{n} (T^n + N^n + (T+N)^n - T^n - N^n) \right] A_x \\
&\Leftrightarrow \partial_z A_x = 2iL_{Df} \left[-k_0 + k \sum_{n=0}^{\infty} \binom{1/2}{n} T^n + k \sum_{n=1}^{\infty} \binom{1/2}{n} N^n \right] A_x \\
&\quad + 2iL_{Df} k \sum_{n=2}^{\infty} \binom{1/2}{n} ((T+N)^n - T^n - N^n) A_x \\
(2.44) \quad &\Leftrightarrow \partial_z A_x = 2iL_{Df} \left(-k_0 + k\sqrt{1+T} \right) + 2iL_{Df} k \left(-1 + \sqrt{1+N} \right) A_x \\
&\quad + 2iL_{Df} k \sum_{n=2}^{\infty} \binom{1/2}{n} ((T+N)^n - T^n - N^n) A_x
\end{aligned}$$

Die unendliche Summe der linear-nichtlinearen Mischterme kann nicht weiter vereinfacht werden. Da die Ordnung der zur Herleitung der Nichtparaxialität vernachlässigten Vektorterme $O(f^2)$ war, wäre es nicht sinnvoll für die linear-nichtlinearen Mischterme eine höhere Ordnung zu berücksichtigen. Die Summe wird in Folge dessen nach dem ersten Glied abgebrochen. Des Weiteren werden die Vektorterme, die beim Übergang von Gleichung (2.18) zu Gleichung (2.19) vernachlässigt wurden, wieder hinzugefügt. Es folgt die unidirektionale Propagationsgleichung für die x -Komponente des elektrischen Feldes unter Berücksichtigung der Nichtparaxialität und der vektoriellen Kopplung zwischen Longitudinal- und Transversalrichtung:

$$\begin{aligned}
(2.45) \quad \partial_z A_x &= 2iL_{Df} \left(-k_0 + k\sqrt{1 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{k^2 x_0^2}} \right) A_x \\
&\quad + 2iL_{Df} k \left(-1 + \sqrt{1 + f^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right)} \right) A_x \\
&\quad - i \frac{f^2 k_0}{4 k} \left[\tilde{\nabla}_T^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) + \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) \tilde{\nabla}_T^2 \right] A_x \\
&\quad + i \frac{k^2}{k_0^2} \left(\frac{2}{3} |A_z|^2 A_x + \frac{1}{3} A_z^2 A_x^* \right) + i f^2 \partial_x^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) A_x \\
&\quad - f \partial_x \left(\frac{2}{3} |A_x|^2 A_z + \frac{1}{3} A_x^2 A_z^* + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_z \right) + O(f^4)
\end{aligned}$$

An Gleichung (2.45) ist besonders hervorzuheben, dass durch Erhalt des K-Operators die lineare Propagation formal exakt beschrieben wird. Gleichung (2.45) ist dadurch besonders für den Fall hoher numerischer Apertur und moderater Leistung gegenüber der kritischen Leistung für Selbstfokussierung geeignet. Damit steht Gleichung (2.45) im krassen Gegensatz zu den

meisten bisherigen Ansätzen [Chi95, Cro97, Cia00, dlF00, Fib01a, Fib01b, Cia02, Mat03], bei denen zwar ähnliche Störungsentwicklungen durchgeführt worden sind, aber die Nichtparaxialität jeweils nur als Entwicklung bis zur Ordnung $O(f^2)$ berücksichtigt wurde. In Abschnitt (2.2.2) wurde gezeigt, dass dies kaum über die Gültigkeit der paraxialen Näherung hinaus geht. Der Erhalt des K-Operators in Gleichung (2.45) ist der Kernpunkt zur exakten Beschreibung der Propagation auch bei hoher numerischer Apertur. Außerdem bleibt die natürliche Beschränkung der transversalen Wellenzahlen dadurch erhalten, was dem fundamentalen Beugungslimit entspricht (siehe Abschnitt 2.2.2).

2.3 Zweidimensionale nichtlineare Propagation

In diesem Abschnitt sollen einige grundlegende Tests zur Anwendbarkeit und Stabilität von Gleichung (2.45) beschrieben werden, sowie die typische numerische Umsetzung der Integration einer nichtlinearen partiellen Differentialgleichung. Des Weiteren sollen verschiedene Vereinfachungen von Gleichung (2.45) auf ihre Anwendbarkeit in bestimmten Parameterbereichen untersucht werden. Die Berechnungen in diesem Abschnitt erfolgen zweidimensional unter Vernachlässigung der Zeitrichtung, also für cw-Strahlen. Dadurch kann die numerische Integration unter sehr extremen Bedingungen getestet werden, was wichtige Aufschlüsse über die notwendige Diskretisierung und die Schrittweitenkriterien gibt. Die vollständige dreidimensionale Integration ist für solche grundlegenden Test zu zeitintensiv. Die dreidimensionale Integration wird in Abschnitt 2.4 diskutiert. Für die zweidimensionale Beschreibung von Gleichung (2.45) wird $k = k_0$ gesetzt. Außerdem wird die nichtlineare Polarisierung, induziert durch die Ionisation des Mediums, vernachlässigt, weil es sich dabei um einen zeitlichen Effekt handelt.

Zur numerischen Integration ist es üblich, sich eines Split-Step-Verfahrens [Agr01] zu bedienen. Dazu wird der Propagations-Operator in einen linearen und einen nichtlinearen Teil zerlegt. Dies soll an einem einfachen Beispiel verdeutlicht werden.

Auf eine Amplitude ψ wirke ein Operator, der sich in einen linearen Teil L und einen nichtlinearen Teil N zerlegen lässt:

$$(2.46) \quad \partial_z \psi(z) = (L + N(z))\psi(z)$$

Die direkte Integration für eine Schrittweite h lautet:

$$(2.47) \quad \psi(z+h) = \exp \left[hL + h \int_z^{z+h} N(z) dz \right] \psi(z)$$

Die Operatoren L und N kommutieren normalerweise nicht und können nicht gemeinsam ausgeführt werden:

$$(2.48) \quad \psi(z+h) = \exp [hL] \exp \left[h \int_z^{z+h} N(z) dz \right] \psi(z)$$

Diese Integrationsmethode ist auf Grund der Baker-Hausdorf-Relation [Coh77] mit einem Fehler in der Größenordnung $h^2 [L, N]$ behaftet. Die Genauigkeit der Integration kann gesteigert werden, indem der nichtlineare Schritt zwischen zwei linearen Halbschritten eingebettet wird:

$$(2.49) \quad \psi(z+h) = \exp \left[\frac{h}{2} L \right] \exp \left[h \int_z^{z+h} N(z) dz \right] \exp \left[\frac{h}{2} L \right] \psi(z)$$

Diese Methode ist als symmetrisches Split-Step-Verfahren in der numerischen Strahlpropagation üblich [Fle76].

Im Vergleich zu dem einfachen Beispiel (2.46) kann für Gleichung (2.45) der nichtlineare Operator nicht ausgeklammert werden. Deswegen wird die Gleichung aufgeteilt in einen linearen Operator L , der auf die Amplitude A_x wirkt und einen nichtlinearen Teil der Gleichung. Der lineare Operator in Normal- und Frequenzraumdarstellung lautet:

$$(2.50) \quad \begin{aligned} L(\tilde{x}, \tilde{y}) &= 2iL_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k_0^2 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{x_0^2}} \right) \\ \iff L(k_x, k_y) &= 2iL_{Df} \left(-k_0 + \sqrt{k_0^2 - k_T^2} \right) \end{aligned}$$

Der lineare Operator kann in der Frequenzraumdarstellung exakt angewendet werden. Für den nichtlinearen Teil von Gleichung (2.45) sollen nun drei Anteile unterschieden werden, die jeweils

die einzelnen nichtparaxialen und vektoriellen Effekte enthalten.

$$\begin{aligned}
 N_{NP} &= \underbrace{2iL_D f k_0 \left(-1 + \sqrt{1 + f^2 |A_x|^2} \right) A_x - i \frac{f^2}{4} \left[\tilde{\nabla}_T^2 |A_x|^2 + |A_x|^2 \tilde{\nabla}_T^2 \right] A_x}_{\text{Selbstfokussierung und nichtparaxiale Korrektur, } O(0)} \\
 (2.51) \quad N_{NDF} &= \underbrace{if^2 \partial_{\tilde{x}}^2 |A_x|^2 A_x}_{\text{Nichtlineare Diffraktion, } O(f^2)} \\
 N_{VK} &= \underbrace{i \left(\frac{2}{3} |A_z|^2 A_x + \frac{1}{3} A_z^2 A_x^* \right) - f \partial_{\tilde{x}} \left(\frac{2}{3} |A_x|^2 A_z + \frac{1}{3} A_x^2 A_z^* \right)}_{\text{Transversale-longitudinale Vektorkopplung, } O(f^2)}
 \end{aligned}$$

Die gesamte Nichtlinearität lautet dann $N = N_{NP} + N_{NDF} + N_{VK}$. Unter Anwendung der symmetrischen Split-Step-Methode kann die Integration folgendermaßen ausgeführt werden:

$$(2.52) \quad A_x(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z} + h) = \mathcal{F}^{-1} \exp \left[\frac{h}{2} L(k_x, k_y) \right] \mathcal{F} \mathcal{RK}(hN) \mathcal{F}^{-1} \exp \left[\frac{h}{2} L(k_x, k_y) \right] \mathcal{F} A(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z})$$

Die Operatoren wirken von rechts nach links nacheinander auf die Amplitude A_x . Dabei steht \mathcal{RK} für das Runge-Kutta-Verfahren [Pre86], das hier zur expliziten Integration des nichtlinearen Teils benutzt wird. Die transversalen Ableitungen, die bei der Berechnung der Nichtlinearität ausgewertet werden müssen, werden ebenfalls im Frequenzraum ausgeführt. Die Berechnung einer Ableitung im Frequenzraum als $\partial_{\tilde{x}} A(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z}) = \mathcal{F}^{-1} i x_0 k_x \mathcal{F} A(\tilde{x}, \tilde{y}, \tilde{z})$ liefert automatisch eine Genauigkeit der Ordnung $O(n)$, wobei n die Anzahl der Diskretisierungspunkte in x -Richtung ist. Dies ist deutlich genauer als beispielsweise die Finite-Differenzen-Methode zur Berechnung der Ableitungen im Ortsraum zu benutzen [Boy99]. Die Amplitude des Feldes in z -Richtung A_z kann in jedem Schritt durch den Zusammenhang (2.33) berechnet werden.

Die Integrationsmethode (2.52) muss zwei wichtige Stabilitätskriterien in Bezug auf die Schrittweite h erfüllen. Diese muss so gewählt werden, dass die Split-Step-Bedingung gewährleistet ist, also die Differentialgleichung alternierend als ausschließlich linear, bzw. ausschließlich nichtlinear gelöst werden kann. Des Weiteren muss h so gewählt werden, dass die Integration des nichtlinearen Teils durch die Runge-Kutta-Methode stabil ist. Es zeigt sich, dass die Split-Step-Bedingung deutlich restriktiver ist als die Stabilitätsbedingung des Runge-Kutta-Algorithmus. Die adaptive Schrittweitenkontrolle muss deswegen nur die Einhaltung der Split-Step-Bedingung gewährleisten. Eine übliche Methode dies sicher zu stellen ist es, die Schrittweite an eine konstante nichtlineare Phasenänderung zu koppeln [Sin03].

$$(2.53) \quad \exp(i\Delta_{\phi_{NL}}) = \exp(ih |A_x|^2) \Rightarrow \Delta_{\phi_{NL}} > h |A_x|^2$$

Die Schrittweite wird im Laufe der numerischen Integration dynamisch durch dieses Kriterium angepasst. So ist sicher gestellt, dass in Bereichen hoher Intensität, wenn beispielsweise ein Kollaps abgefangen wird, die Schrittweite ausreichend gering ist und andererseits in Bereichen geringer Intensität, wenn die lineare Propagation dominiert, keine unnötig kleinen Schritte durchgeführt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit werden für die Berechnung der transversalen Ableitungen ausschließlich spektrale Methoden verwendet. Mit dieser Wahl sind sowohl Vorteile wie auch Nachteile verknüpft. Einer der offensichtlichen Vorteile ist es, dass die lineare Propagation im Frequenzraum exakt beschrieben wird. Der K-Operator hat keine exakt auswertbare Darstellung im Normalraum und muss deswegen im Frequenzraum ausgewertet werden. Des Weiteren können beliebige transversale Ableitungen mit einer Genauigkeit der Ordnung $O(n)$ berechnet werden. Als Nachteil kann aufgefasst werden, dass eine zweidimensionale Fouriertransformation, wie sie hier notwendig ist, bzw. eine dreidimensionale, wie sie bei Hinzunahme der Zeitabhängigkeit notwendig wird, viel Rechenleistung pro Schritt in Anspruch nimmt. Das Integrationsverfahren (2.52) beinhaltet bereits vier solcher Transformationen; es ist zu bedenken, dass zusätzlich in einem Runge-Kutta-Schritt die lokale Steigung viermal für einen Runge-Kutta vierter Ordnung und zweimal für einen Runge-Kutta zweiter Ordnung ausgewertet werden muss. Jede Berechnung der lokalen Steigung beinhaltet mehrere zwei-, beziehungsweise dreidimensionale Fouriertransformationen. Ein weiterer Nachteil ist es, dass in Verbindung mit spektralen Methoden keine nicht-äquidistanten Diskretisierungsgitter benutzt werden können und auch keine Methoden, die das Gitter adaptiv lokal verändern (Grid Refinement). Es ist jedoch fraglich, ob trotz der schnelleren Berechenbarkeit der Ableitungen im Normalraum, die gesamte Integration schneller durchführbar ist. Soll eine ähnliche Genauigkeit wie für die exakte Integration im Frequenzraum erreicht werden, muss ein implizites Verfahren wie beispielsweise Crank-Nicholson [Pre86] angewendet werden. Dies erfordert eine weitere Zerlegung der Transversalrichtung in x - und y -Teilschritte, was die Split-Step Bedingung verschärft. Darüber hinaus sind 5- oder 7-Punkt finite Differenzen Operatoren für eine ausreichende Genauigkeit der transversalen Ableitung notwendig. Werden alle Vor- und Nachteile gegeneinander abgewogen, überwiegt klar die exakte lineare Propagation der Gleichung im Frequenzraum sowie die spektrale Berechnung der Ableitungen mit hoher Genauigkeit. Darüber hinaus ist die Zerlegung in Raumfrequenzen und optische Frequenzen nicht rein numerisch begründet, sondern auch physikalisch manifestiert. Des Weiteren liegt mit dem Programmpaket FFTW eine Bibliothek äußerst leistungsfähiger FFT-Routinen vor, die ständig aktualisiert wird [Fri05].

Die notwendige räumliche Diskretisierung in x - und y -Richtung kann schnell durch einfache physikalische Überlegungen gefunden werden. Die höchste Raumfrequenz in beispielsweise x -Richtung ist gegeben durch den Abstand Δ_x zweier Diskretisierungspunkte ($k_{x(max)} = \frac{2\pi}{2\Delta_x}$). Die höchste anfänglich physikalisch im System enthaltene Raumfrequenz ist, wie in Abschnitt 2.2.3 gezeigt wurde, durch die numerische Apertur bestimmt. Sie lautet $k_{T(phys,max)} = NA \frac{k}{n}$, wobei k die Wellenzahl der Strahlung ist und n der Brechungsindex. Eine Diskretisierung in x - und y -Richtung muss nun derart gewählt werden, dass die numerisch beschriebenen Raumfrequenzen $k_{x(max)}, k_{y(max)}$ größer sind als die physikalisch zu erwartende maximale Raumfrequenz. Entwickelt sich ein System eher linear, mit einer relativen Leistung $\tilde{P} = \frac{P}{P_{crit}} \ll 1$, ist die maximale Raumfrequenz wie eben gezeigt durch die numerische Apertur bestimmt. Entwickelt sich ein System dagegen nichtlinear und kollabiert beispielsweise, muss sichergestellt sein, dass die maximale numerisch beschriebene Raumfrequenz größer als die Wellenzahl k der Strahlung ist. Dies ist die größte transversale Raumfrequenz, die nicht als evaneszente Welle propagiert. Alle transversalen Wellenzahlen $k_x, k_y > k$, die durch die Nichtlinearität erzeugt werden, können nur evaneszent propagieren. Es hat sich gezeigt, dass ein numerisches Überdiskretisieren der maximalen physikalischen Raumfrequenz um den Faktor vier ausreichend ist.

Abbildung (2.9) zeigt die nichtlineare Entwicklung eines Gauß-Strahls in einem Kerr-Medium oberhalb der kritischen Leistung für Selbstfokussierung ($\tilde{P} = \frac{P}{P_{crit}} = 3$) beschrieben durch Gleichung (2.45) unter Benutzung des Integrationsverfahrens (2.52). Obwohl Gleichung (2.45) speziell für den Fall geringer Leistung entwickelt wurde, ist diese auch für ($\tilde{P} > 1$) anwendbar. Die in Abbildung (2.9) gezeigten Berechnungen wurden zum Test der Schrittweiten-Kriterien und der Diskretisierungen unter extremen nichtlinearen Bedingungen durchgeführt. Des Weiteren wurden unterschiedliche Beschreibungen der Nichtlinearität (2.51) berücksichtigt und die Fokussierung in Form des f -Parameter variiert. Wie bereits eingehend diskutiert wurde, ist die NLSE (2.2) (in Abb. (2.9) gestrichelt eingezeichnet) nicht geeignet, die Propagation über den Kollaps hinaus zu beschreiben. Die normierte Intensität auf der Strahlachse strebt einer Singularität entgegen, wie in Abbildung (2.9) für alle vier f -Parameter zu erkennen ist. Die drei anderen Intensitätsverläufe in jedem der Graphen in Abbildung (2.9) wurden berechnet unter Berücksichtigung der Nichtparaxialität (rot), der Nichtparaxialität und der nichtlinearen Diffraktion (grün) sowie zusätzlich noch der transversalen-longitudinalen Vektorkopplung (blau). Wie deutlich zu erkennen ist, sind alle drei Beschreibungen der nichtlinearen Wechselwirkung basierend auf Gleichung (2.45) in der Lage den Kollaps abzufangen. Die nichtlineare Entwicklung hängt dabei stark vom jeweiligen Wert des f -Parameters ab. Je größer sein Wert, desto schneller wird der Kollaps abgefangen

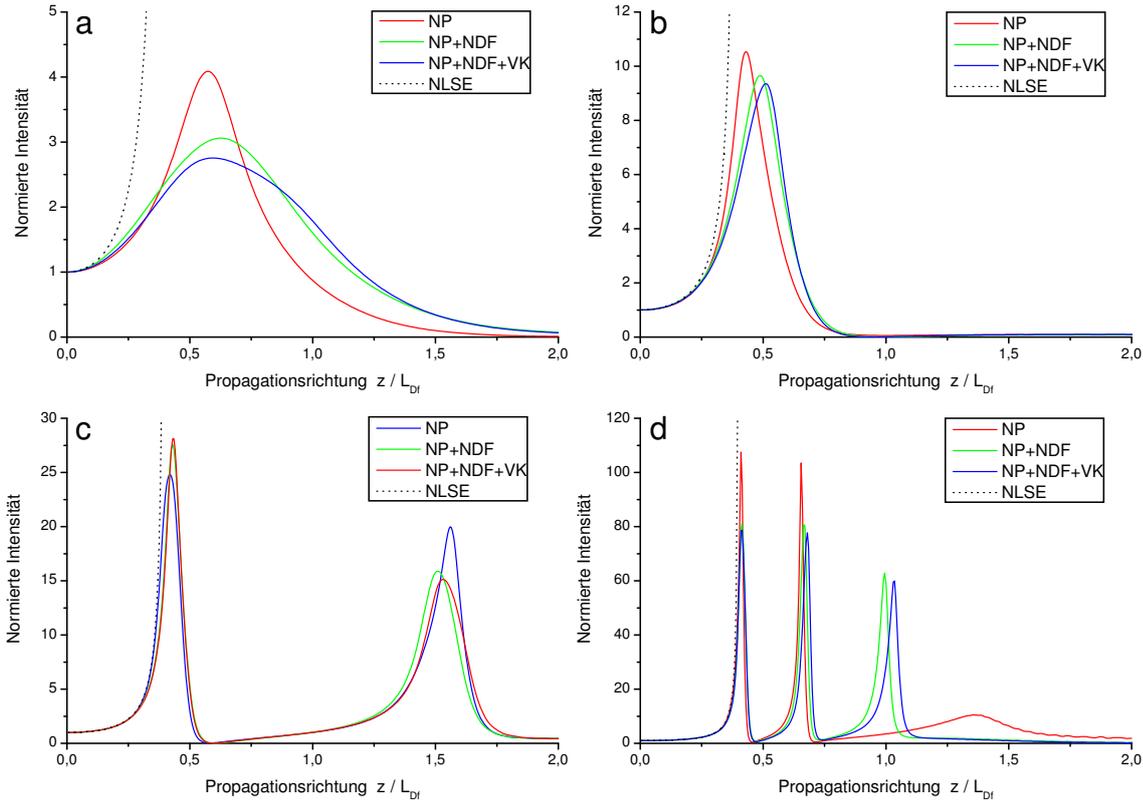


Abbildung 2.9: Vergleich unterschiedlicher Beschreibungen der Nichtlinearität (2.51) am Beispiel der Propagation eines Gauß-Strahles, der in der Taille bei $z = 0$ in ein Kerr-Medium eintritt, für verschiedene Werte des f -Parameters. Dargestellt ist jeweils die normierte Intensität auf der Strahlachse. Bei der Berechnung der roten Kurve wurde nur die Nichtparaxialität (NP) berücksichtigt, bei der grünen Kurve Nichtparaxialität und nichtlineare Diffraktion (NP+NDF) und bei der blauen Kurve wurde zusätzlich noch die Vektorkopplung berücksichtigt (NP+NDF+VK). Gestrichelt ist die Integration der NLSE (2.2) dargestellt. Die relative Leistung ist jeweils $\hat{P} = \frac{P}{P_{crit}} = 3$; der f -Parameter hat die Werte a) $f = 0.2$, b) $f = 0.1$, c) $f = 0.05$, d) $f = 0.025$.

und desto geringer ist die maximal erreichte normierte Intensität. Dies ist dadurch zu verstehen, dass der Kollaps abgefangen wird, wenn der Strahldurchmesser in etwa der Wellenlänge der Strahlung entspricht. Das geschieht umso schneller, je kleiner der Strahl von Beginn an ist. Da der f -Parameter mit der numerischen Apertur skaliert ($f \approx \frac{2NA}{\pi n}$), ist dies natürlich für den größten Wert ($f = 0.2 \Leftrightarrow NA \approx 0.42$) am schnellsten der Fall. Des Weiteren wirkt sich die unterschiedliche Beschreibung der Nichtlinearität für den größten f -Parameter am stärksten aus. Dies ist nicht verwunderlich, da sich die Gleichungen nur in der Ordnung $O(f^2)$ unterscheiden. Nach dem Abfangen des Kollaps gilt dies nur noch bedingt. Da die NLSE, wie in Abschnitt (2.1) beschrieben, in Abhängigkeit der Dimensionalität und der kubischen Nichtlinearität gerade den kritischen Grenzfall bildet, kann das Berücksichtigen kleiner Terme im Moment des Kollaps die

nichtlineare Entwicklung deutlich verändern [Fib06]. Daher ist beispielsweise im letzten Bild für die ausschließlich nichtparaxiale Beschreibung die dritte Oszillation kaum ausgeprägt.

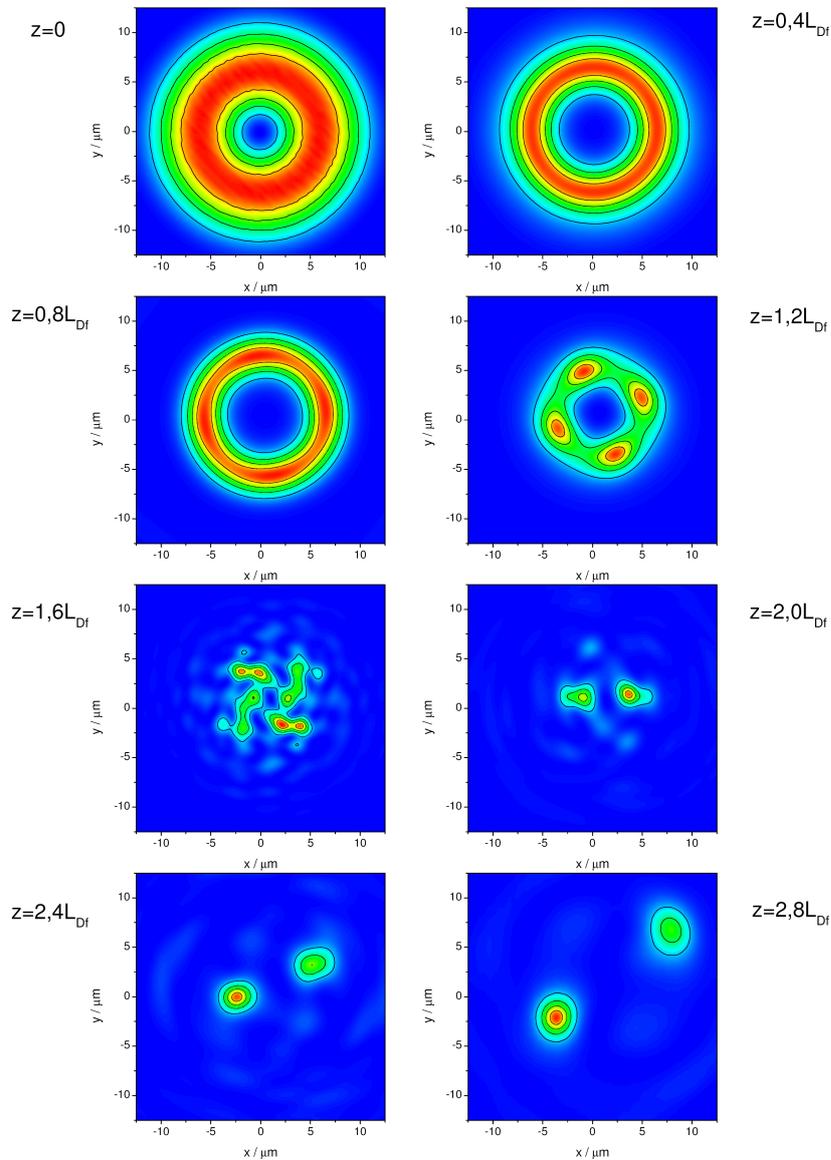


Abbildung 2.10: Nichtlineare Propagation eines optischen Strudels mit Raumladung $m = 1$ bei $NA = 0.05$. Die Anfangsbedingungen wurden erzeugt durch Annahmen einer spiralen Phasenmodulation in der Apertur der Fokussieroptik, bevor das Fokussfeld beugungstheoretisch berechnet wurde (siehe Kap. 4). Die Leistung beträgt $P = 2P_{crit}$ des Ringprofils [Vuo06].

Abbildung (2.10) zeigt die nichtlineare Propagation eines sog. optischen Strudels beschrieben durch Gleichung (2.45) mit $P = 2P_{crit}$. Neben der Ringstruktur ist die Besonderheit dieser Profile die sich um die Strahlachse windende Phase [Vuo06]. In Abschnitt (2.1) wurde bereits diskutiert, dass Ringprofile oberhalb ihrer kritischen Leistung instabil sind. Nach einer kurzen Selbstfokussierungsphase als Ring, bricht dieser auf. In Abbildung (2.10) wird das Aufbrechen

durch leichte Asymmetrien, die aus der Berechnung des Fokusfeldes resultieren und aus der Symmetriebrechung, die aus der Berücksichtigung der Vektoreffekte Gleichung (2.45) resultiert, induziert. Ein Kollaps ohne Aufbrechen des Ringes kann nur bei kreissymmetrischer Berechnung der Selbstfokussierung beobachtet werden [Vuo06]. Experimentell dagegen sind Ringprofile oberhalb ihre kritischen Leistung immer instabil. Dadurch das Gleichung (2.45) keine Singularität bei Überschreiten der kritischen Leistung erzeugt, kann die nichtlineare Entwicklung über den Kollaps hinaus verfolgt werden.

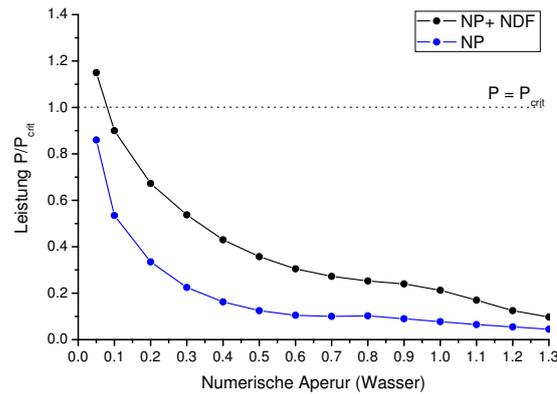


Abbildung 2.11: Für Kombinationen aus numerischer Apertur und relativer Leistung $\tilde{P} = \frac{P}{P_{crit}}$, die unterhalb der schwarzen beziehungsweise der blauen Kurve liegen, genügt es bei der Berechnung der nichtlinearen Propagation mit Gleichung (2.45) nur die Nichtparaxialität und die nichtlineare Diffraktion (schwarze Kurve) beziehungsweise nur die Nichtparaxialität (blaue Kurve) zu berücksichtigen. Nur für Kombinationen aus numerischer Apertur und relativer Leistung, die über der schwarzen Kurve liegen, ist es notwendig die gesamte Nichtlinearität (2.51) zu berücksichtigen.

Wie zuvor bereits diskutiert wurde, ist die numerische Auswertung der Nichtlinearität (2.51) sehr aufwendig. Dies gilt besonders in Bezug auf die Beschreibung von Laserpulsen, wenn drei- statt zweidimensionale Fouriertransformationen pro Schritt ausgeführt werden müssen. Des Weiteren muss die Nichtlinearität mehrmals in einem Schritt ausgewertet werden. Die unterschiedlichen Beschreibungen der Nichtlinearität (2.51) unterscheiden sich in ihrer Gültigkeit lediglich in der Ordnung $O(f^2)$; der numerische Aufwand dagegen Ausdruck (2.51) vollständig auszuwerten ist viel größer, als beispielsweise nur die Nichtparaxialität zu berücksichtigen. In Abhängigkeit des Wertes des f-Parameters beziehungsweise der numerischen Apertur und der relativen Leistung existiert ein Parameterbereich, in dem die unterschiedlichen Beschreibungen der Nichtlinearität (2.51) sehr ähnliche Dynamik erzeugen. Dies ist in Abbildung (2.11) dargestellt. So ist es für Kombinationen aus numerischer Apertur und relativer Leistung, die in Abbildung (2.11) unterhalb der schwarzen Linie liegen, in sehr guter Näherung möglich, unter Benutzung von

nur der Nichtparaxialität und der nichtlinearen Diffraktion $N_{NP} + N_{NDF}$ zur Beschreibung der Nichtlinearität bei der numerischen Integration von Gleichung (2.45) die gleiche Dynamik zu erhalten, als wäre die vollständige Nichtlinearität $N_{NP} + N_{NDF} + N_{VK}$ berücksichtigt worden. Das gleiche gilt für Kombinationen aus numerischer Apertur und relativer Leistung, die in Abbildung (2.11) unterhalb der blauen Linie liegen, wenn ausschließlich die Nichtparaxialität N_{NP} berücksichtigt wird. Wegen des enormen Rechenaufwandes im (3+1)-dimensionalen Fall, wenn zwei Transversalrichtungen, eine Zeitrichtung und die Ausbreitungsrichtung beachtet werden müssen, soll nur die im jeweiligen Parameterbereich notwendige Nichtlinearität berücksichtigt werden.

2.4 Propagationsgleichung für ultrakurze Laserpulse bei hoher NA

In diesem Abschnitt soll eine geeignete Form von Gleichung (2.45) gefunden werden, um die nichtlineare Propagation ultrakurzer Pulse bei hoher numerischer Apertur in einem dielektrischen Kerr-Medium zu beschreiben. Es sollen numerisch Bedingungen nachgestellt werden, wie sie bei modernen Anwendungen in der Mikro- und Nano-Bearbeitung von Materialien, der Nano-Chirurgie an biologischen Zellen oder der Flap-Erzeugung beim LASIK-Verfahren vorgefunden werden. In diesen Anwendungen werden Mikroskopobjektive hoher NA eingesetzt, um die Pulse räumlich in die Größenordnung des Beugungslimits zu fokussieren. Die Pulsenergie, um bei solch starker Fokussierung ein dichtes Elektronen-Loch-Plasma oder einen optischen Durchbruch zu erzeugen, ist normalerweise gering. In biologischen Proben wurden beispielsweise Schwellenergien weniger Nanojoule bei einer numerischen Apertur $NA = 1.4$ des Mikroskopobjektives, mit dem die ultrakurzen Pulse in die Probe fokussiert wurden, gefunden [Hei05b]. Die Pulsspitzenleistung liegt in diesem Beispiel unter einem Prozent der kritischen Leistung für Selbstfokussierung. Im vorherigen Abschnitt (2.3) wurde gezeigt, dass in Abhängigkeit der numerischen Apertur und der relativen Leistung ein Bereich gefunden werden kann, in dem es nicht notwendig ist, das vollständige Modell in Form von Gleichung (2.45) numerisch zu integrieren (siehe Abb. 2.11). So existiert für eine gegebene numerische Apertur, unter der ein Puls in ein Kerr-Medium fokussiert wird, eine maximale relative Leistung, unterhalb derer es ausreicht nur ein vereinfachtes Modell unter Berücksichtigung von Nichtparaxialität und nichtlinearer Diffraktion zu lösen. Die nichtlineare Diffraktion erfordert keine zusätzlichen Fouriertransformationen bei der numerischen Auswertung im Vergleich zu dem Ansatz, bei dem nur die Nichtparaxialität berücksichtigt wird. Es ist jedoch zu bedenken, dass es durch die nichtlineare Polarisation, die aus der Erzeugung

des Elektronen-Loch-Plasmas resultiert, zusätzlich zum Kerr-Effekt ebenfalls zu einer Kopplung der transversalen und longitudinalen Polarisationsrichtungen kommen kann. Im Falle eines dichten Plasmas, wie es zur Erzeugung eines optischen Durchbruch benötigt wird, ist diese Kopplung viel stärker als die durch den Kerr-Effekt hervorgerufene und darf deswegen auf keinen Fall vernachlässigt werden. Die nichtlineare Schrödinger-Gleichung, die im Rahmen dieser Arbeit zur Beschreibung der Propagation ultrakurzer Pulse bei hoher numerischer Apertur unter Berücksichtigung des vektoriellen Kerr-Effektes und nichtlinearer Ionisation des Mediums benutzt wurde, lautet:

$$\begin{aligned}
(2.54) \quad \partial_z A_x = & 2iL_{Df} \left(-k_0 + k \sqrt{1 + \frac{\tilde{\nabla}_T^2}{k^2 x_0^2}} \right) A_x - \frac{L_{Df}}{v_g} \partial_t A_x \\
& + 2iL_{Df} k \left(-1 + \sqrt{1 + f^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right)} \right) A_x \\
& - i \frac{f^2 k_0}{4 k} \left[\tilde{\nabla}_T^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) + \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) \tilde{\nabla}_T^2 \right] A_x \\
& + i f^2 \partial_{\tilde{x}}^2 \left(|A_x|^2 + f^{-2} \frac{\chi_{fe}}{n^2} \right) A_x - f^{-1} \partial_{\tilde{x}} \frac{\chi_{fe}}{n^2} A_z + O(f^4)
\end{aligned}$$

Im linearen Operator wurde im Vergleich zu (2.45) ein Term hinzugefügt, der dafür sorgt, dass der Pulsschwerpunkt, der sich mit der Gruppengeschwindigkeit $v_g(\omega_0)$ bewegt, im Koordinatensystem stationär ist. Gleichung (2.54) wird folglich in einem mitbewegten Koordinatensystem gelöst, dass sich mit dem Schwerpunkt des Pulses bewegt. Die Gruppengeschwindigkeit $v_g(\omega_0)$ muss aus den Dispersionsdaten des jeweiligen Materials bestimmt werden (siehe Abb. 2.12).

Gleichung (2.54) wird mit der zuvor beschriebenen Split-Step Methode (2.52) integriert. Die adaptive Schrittweitenanpassung (2.53) erfordert zusätzlich zur Kontrolle der durch den Kerr-Effekt verursachten Änderung der nichtlinearen Phase ebenfalls eine Kontrolle der durch die Existenz freier Elektronen verursachten nichtlinearen Phasenänderung. Wird durch nichtlineare Ionisation ein dichtes Plasma erzeugt, hat dies eine deutliche Absenkung des Brechungsindex des Materials zur Folge. Die Dadurch verursachte Änderung der nichtlinearen Phase ist viel größer als die durch den Kerr-Effekt verursachte Änderung. Die komplexwertige Suszeptibilität $\chi_{fe}(\rho, \omega)$, die die Wechselwirkung des Pulses mit dem selbst erzeugten Plasma vermittelt, wird in Kapitel 3 entwickelt und diskutiert.

Die Anfangsbedingungen zur numerischen Integration von Gleichung (2.54) werden in Form von transversalen Feldverteilungen in der Fokusebene mit Hilfe eines vektoriellen und nichtparaxialen Beugungsintegrals berechnet, das in Kapitel 4 genauer erläutert wird. Für die Berechnung der

Zeit- beziehungsweise Frequenzabhängigkeit von Gleichung (2.54) muss noch die Wellenzahl $k = 2\pi \frac{\omega}{c} n(\omega)$ für alle Frequenzen des beschriebenen Spektrums bekannt sein. Dann kann die Wellenzahl k entweder im Frequenzraum in eine Taylorreihe entwickelt werden oder aber exakt angewendet werden. In dieser Arbeit wird k stets exakt angewendet. Dies ist besonders elegant für die Frequenzraumdarstellung des K-Operators; dieser berücksichtigt dann im Frequenzraum in exakter Weise die Diffraktion, die Dispersion sowie den Effekt des Space-Time-Focusings. Dies ist numerisch nicht aufwendiger als eine Entwicklung der Wellenzahl. Dadurch ist der Code prinzipiell auch für Szenarien geeignet, bei denen das Eingangsspektrum bereits sehr breit ist oder durch Effekte wie Filamentierung oder Superkontinuumserzeugung das Spektrum während der Ausbreitung stark verbreitert wird. Für Wasser ist der Brechungsindex in einem sehr weiten Wellenlängenbereich genau bekannt [Int97] (siehe Abb. 2.12). Daraus kann die Wellenzahl k ebenfalls im gesamten benötigten Bereich berechnet werden. Für andere Materialien wie beispielsweise Gläser ist der Brechungsindex ebenfalls leicht in Form von Sellmeier-Koeffizienten verfügbar.

Bei der numerischen Integration von Gleichung (2.54) wird im Rahmen dieser Arbeit bei der Berechnung der Nichtlinearität generell die Zeit- bzw. Frequenzabhängigkeit vernachlässigt ($k = k_0$). Dies ist äquivalent zum Vernachlässigen des Shock-Terms in Gleichung (2.39) und für Pulse mit Pulsdauer oberhalb von 100 fs in guter Näherung gerechtfertigt. Dieser Schritt wurde zur Geschwindigkeitsoptimierung getroffen, da die Berücksichtigung der Zeitabhängigkeit zusätzliche Fouriertransformationen pro Schritt erfordert, ohne bei den berücksichtigten Pulsdauern einen wesentlichen Einfluss zu haben.

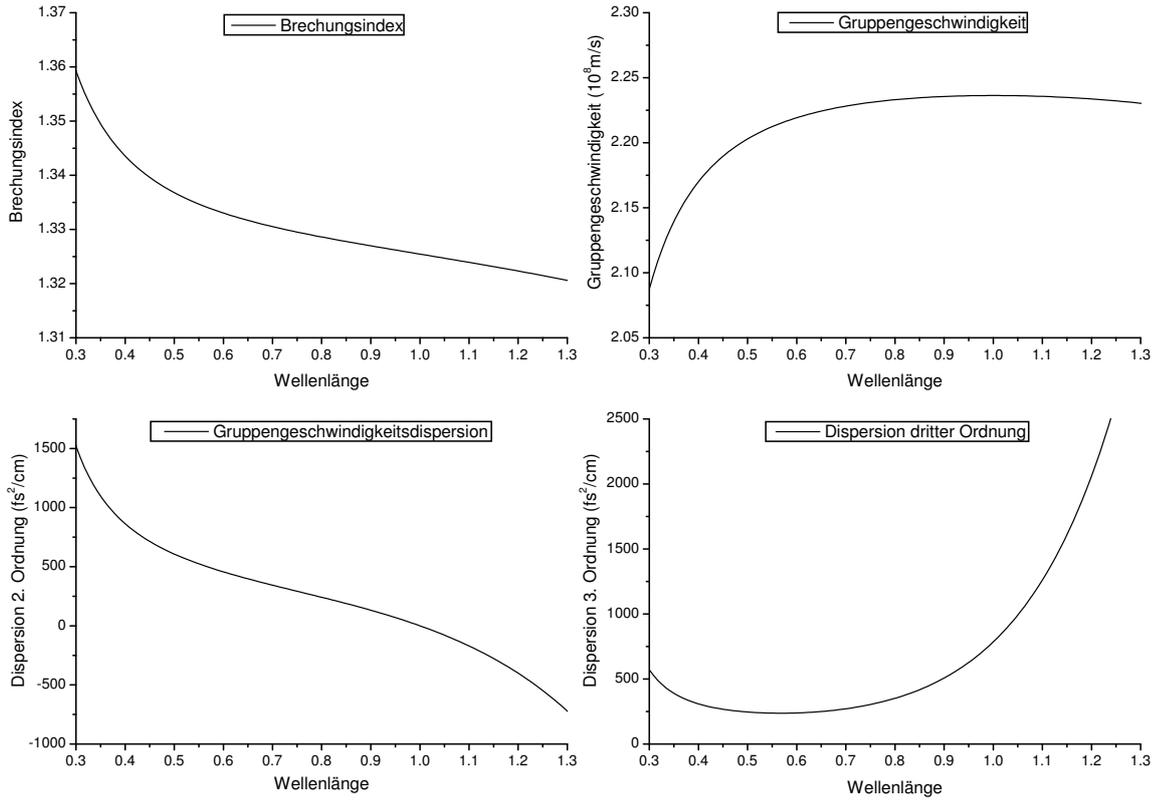


Abbildung 2.12: Die Dispersion von Wasser; berechnet nach [Int97]. Aus genauer Kenntnis des Brechungsindex von Wasser kann entweder die Dispersion bis in hohe Ordnung genau berechnet werden oder aber die Wellenzahl kann im Frequenzraum exakt angewendet werden, wie im Rahmen dieser Arbeit geschehen.

3 Nichtlineare Ionisation von Dielektrika

Wie in Kapitel 1 bereits beschrieben wurde, können durch Fokussierung ultrakurzer Laserpulse problemlos Intensitäten erreicht werden, die zum Initialisieren nichtlinearer Ionisationsprozesse im Inneren transparenter Materialien ausreichen. Dies hat die Erzeugung eines Elektronen-Loch-Plasmas an der Stelle des Fokus zur Folge. Ist die Dichte und damit die im Plasma deponierte Energie ausreichend groß, um das Material nachhaltig zu verändern, wird von der Erzeugung eines optischen Durchbruchs gesprochen. Die nichtlinearen Ionisationsprozesse und deren theoretische Darstellung, die zur Erzeugung des Plasmas führen, sollen in diesem Kapitel beschrieben werden. Des Weiteren soll die nichtlineare Antwort des ionisierten Materials in Form einer Suszeptibilität, die in Kapitel 2 bisher nur als $\chi_{fe}(\rho, \omega)$ eingeführt wurde, hergeleitet werden. Diese beschreibt die Wechselwirkung der fokussierten Pulse mit dem transparenten Material in Form von Absorption und einer Verringerung des Brechungsindex auf Grund nichtlinearer Ionisation und der Existenz erzeugter freier Elektronen. Aus der Absenkung des Brechungsindex resultiert Plasmadefokussierung, die wiederum den auch bei hoher numerischer Apertur auftretenden, unerwünschten Begleiteffekt der Streifenbildung verursacht [Arn05]. Es ist ebenfalls Plasmadefokussierung, die bei hoher Pulsleistung und schwacher Fokussierung im Wechselspiel mit Selbstfokussierung zu Filamentierung führt [Cou07].

3.1 Optische Eigenschaften ionisierter Dielektrika

In diesem Abschnitt soll die Suszeptibilität $\chi_{fe}(\rho, \omega)$ eines teilweise ionisierten Dielektrikums, sowie ihr Beitrag zur Dielektrizitätsfunktion und zur Polarisation des Mediums eingeführt werden. Dazu wird die Bewegung eines freien Elektrons unter dem gemeinsamen Einfluss des periodischen Potentials im Material und des eingestrahlt Laserfeldes untersucht. Die durch das periodische Potential bedingten Kräfte werden durch Annahme einer effektiven Masse m^* des freien Elektrons berücksichtigt und des Weiteren wird eine Dämpfung bedingt durch Elektron-Phonon-Streuung mit einer charakteristischen Zeitkonstante τ_P angenommen. Diese auch als Stoßzeit bekannte

phänomenologische Größe gibt den mittleren zeitlichen Abstand zwischen Stoßvorgängen der freien Elektronen mit Atomen oder Molekülen des Materials an. Die Bewegungsgleichung eines Elektrons im Leitungsband bei Einstrahlung eines zeitlich periodischen elektrischen Feldes lautet [Kop86]:

$$(3.1) \quad m^* \frac{d^2 x}{dt^2} + m^* \frac{1}{\tau_P} \frac{dx}{dt} = -e E_0 e^{-i\omega t}$$

Mit der stationären Lösung:

$$(3.2) \quad x = \frac{e}{m^*} \frac{1}{\omega(\omega + i\frac{1}{\tau_P})} E$$

Durch Multiplizieren mit der Ladung e und der Dichte ρ der Elektronen im Leitungsband folgt für die Suszeptibilität:

$$(3.3) \quad \chi_e = -\frac{\rho e^2}{\varepsilon_0 m^*} \frac{1}{\omega(\omega + i\frac{1}{\tau_P})}$$

Nun kann die dielektrische Funktion des Mediums aufgeschrieben werden:

$$(3.4) \quad \varepsilon = 1 + \chi_{el} + \chi_e = \varepsilon_{el} + \chi_e$$

Dabei ist ε_{el} der Beitrag der quasi-gebundenen Elektronen des Hintergrundmaterials mit dem Brechungsindex $n_{el}(\omega) = \sqrt{\varepsilon_{el}(\omega)}$, der beispielsweise die Dispersion des Medium beinhaltet. Die dielektrische Funktion des Mediums kann in Real- und Imaginärteil aufgeteilt werden, was den refraktiven, bzw. absorbierenden Eigenschaften des Materials entspricht. Dabei ist ε_{el} rein reell, da das Hintergrundmaterial als vollkommen transparent angenommen wird. Die dielektrische Funktion eines ionisierten transparenten Dielektrikums lautet dann:

$$(3.5) \quad \varepsilon = \varepsilon_{el} \left(1 - \frac{\rho e^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_{el} m^*} \frac{\tau_P^2}{1 + \omega^2 \tau_{Stoss}^2} + i \frac{\rho e^2}{\varepsilon_0 \varepsilon_{el} m^*} \frac{\tau_P}{\omega(1 + \omega^2 \tau_P^2)} \right)$$

Für große Stoßzeit ($\omega \tau_P \gg 1$) kann der Imaginärteil in Gleichung (3.5) vernachlässigt werden. Es folgt die reelle Dielektrizitätsfunktion:

$$(3.6) \quad \varepsilon = \varepsilon_{el} \left(1 - \frac{\omega_P^2}{\omega^2} \right)$$

Dabei wurde die sogenannte Plasmafrequenz $\omega_P = \sqrt{\frac{\rho e^2}{\epsilon_0 n_{el}^2 m^*}}$ eingeführt. Erreicht die Plasmafrequenz ω_P den Wert der eingestrahnten optischen Frequenz ω wird von einem kritischen Plasma gesprochen; die dielektrische Funktion (3.6) hat den Wert Null. Daraus leitet sich die Definition der kritische Plasmadichte $\rho_{crit} = \frac{\epsilon_0 n_{el}^2 m^*}{e^2} \omega^2$ ab. Wird die kritische Plasmadichte ρ_{crit} überschritten, ist das Plasma stark reflektierend und undurchdringlich; das ionisierte Material zeigt einen metallischen Charakter. Für das im Rahmen dieser Arbeit als Modellmedium in Betracht gezogene Wasser und die benutzte Wellenlänge $\lambda = 780$ nm beträgt die kritische Dichte eines erzeugten Plasmas $\rho_{crit} = 1,62 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ und ist damit größer als die zum Induzieren eines optischen Durchbruchs angenommene Dichte $\rho_{Bd} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. An dieser Stelle ist zu erwähnen, dass ein unidirektionales Propagationsmodell, wie es in Kapitel 2 entwickelt wurde, im Fall der Überschreitung der kritischen Plasmadichte nicht gültig ist. Die Reflexion am überkritischen Plasma hätte starkes Überkoppeln in das entgegengesetzt propagierende Feld zur Folge, was bei der Herleitung der unidirektionalen Propagationsgleichung vernachlässigt wurde.

Das zuvor geschilderte Bild großer Stoßzeit ist gut geeignet, die Plasmafrequenz und die kritische Plasmadichte einzuführen; für den Fall ionisierter Dielektrika ist die Stoßzeit τ_P jedoch normalerweise so klein, dass die Vereinfachung der Dielektrizitätsfunktion wie in Gleichung (3.6) nicht gilt. Der in Gleichung (3.5) zunächst vernachlässigte Imaginärteil verursacht die Absorption einfallender Strahlung, was als Intrabandübergang im Leitungsband oder als Beschleunigung von Leitungselektronen verstanden werden kann und gemeinhin als Absorption inverser Bremsstrahlung bezeichnet wird. Das Berücksichtigen des Imaginärteils ist daher essentiell zur Beschreibung der Kaskadenionisation in einem transparenten Material. Im Folgenden soll kurz geschildert werden, wie aus dem einfachen Ansatz der dielektrischen Funktion (3.5) das Drude-Modell der nichtlinearen Ionisation erhalten wird. Dazu wird eine Ratengleichung entwickelt werden, die die Erzeugung freier Elektronen durch Kaskadenionisation beschreibt. Die Ratengleichung muss mit der dielektrischen Funktion (3.5) derart gekoppelt sein, dass die Rate der Erzeugung zusätzlicher freier Elektronen energetisch mit der Absorption aus dem eingestrahnten Feld übereinstimmt. Dazu wird zunächst der Realteil n_e und Imaginärteil κ_e des Brechungsindex $n = n_{el} + n_e + i\kappa_e = \sqrt{\epsilon}$ im ionisierten Dielektrikum gesucht. Unter der Annahme $n^2 \approx n_{el}^2 + 2n_{el}n_e + i2n_{el}\kappa_e$ folgt:

$$(3.7) \quad n_e(\omega) = \frac{-n_{el}(\omega)}{2} \frac{\omega_P^2 \tau_P^2}{1 + \omega^2 \tau_P^2}$$

$$(3.8) \quad \kappa_e(\omega) = \frac{n_{el}(\omega)}{2} \frac{\omega_P^2 \tau_P}{\omega(1 + \omega^2 \tau_P^2)}$$

Aus dem Imaginärteil des Brechungsindex kann unter Benutzung des Lambert-Beer'schen Gesetzes die Rate der Erzeugung freier Elektronen bestimmt werden. Dabei wird angenommen, dass die aus dem Feld auf einer infinitesimalen Strecke ∂_z absorbierte Energie gleich der ins Plasma in Form freier Elektronen eingebrachten Energie im zugehörigen Zeitintervall ist. Es ist zu beachten, dass zum Überführen eines Elektrons vom Valenz- ins Leitungsband durch Stoßionisation eine gewisse Energie in Form kinetischer Energie des stoßenden freien Elektrons aufgebracht werden muss. Diese als kritische Energie für Stoßionisation ε_{crit} bekannte Größe ist größer als die Bandlücke Δ des Materials und wird in Abschnitt 3.4 bei Einführung des MRE-Modells genauer erläutert.

$$\begin{aligned}
 (3.9) \quad & -\varepsilon_{crit} \frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{\partial I}{\partial z} = -2 \frac{\omega}{c} \kappa_e I \\
 & \Leftrightarrow \frac{\partial \rho}{\partial t} = \frac{n_0(\omega)}{\varepsilon_{crit} c} \frac{\omega_P^2 \tau_P}{1 + \omega^2 \tau_P^2} I \\
 & \Leftrightarrow \frac{\partial \rho}{\partial t} = \eta \rho I
 \end{aligned}$$

Dabei wurde $\eta = \frac{\sigma}{\varepsilon_{crit}}$ eingeführt, wobei $\sigma = \frac{n_0(\omega)}{c} \frac{e^2}{\varepsilon_0 n_0^2(\omega) m^*} \frac{\tau_P}{1 + \omega^2 \tau_P^2}$ als Stoßquerschnitt für das Einfangen inverser Bremsstrahlung bezeichnet wird [Fei74]. Der obige Ansatz beruht auf der rigorosen Annahme, dass die Absorption einer Energiemenge ε_{crit} aus dem Feld zwangsläufig zur Erzeugung eines zusätzlichen freien Elektrons durch Stoßionisation führt. Alternativ zu ε_{crit} kann bei der Herleitung von (3.9) auch $K\hbar\omega$ angenommen werden, wobei K die kleinste ganze Zahl ist, für die $K\hbar\omega > \varepsilon_{crit}$ gilt. Damit ist gewährleistet, dass nur ganzzahlige Photonen aus dem Feld absorbiert werden. Die Rate für Kaskadenionisation $\eta\rho I$ ist proportional zur Dichte ρ bereits im Leitungsband befindlicher freier Elektronen und zur Intensität der einfallenden Strahlung. Die Kaskadenionisation führt zum exponentiellen Anstieg der Dichte freier Elektronen. Im Fall von ultrakurzen Pulsen ist eine gewisse Dichte von Startelektronen im Leitungsband notwendig damit durch Kaskadenionisation der optische Durchbruch erreicht werden kann. Die Dichte an Startelektronen liegt im Bereich von $10^{18} - 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ und muss durch andere Ionisationsmechanismen bereitgestellt werden. Dies geschieht durch nichtlineare Photoionisation, die je nach zu überwindender Bandlücke oder Ionisationsenergie entweder in Form von Multiphotonen- oder Tunnelionisation erfolgen kann. Die dazugehörige Rate ist in Gleichung (3.9) nicht enthalten. Unter Einbeziehung von nichtlinearer Photoionisation mit der Rate W_{PI} lautet die Ratengleichung für die Erzeugung freier Elektronen schließlich:

$$(3.10) \quad \frac{\partial \rho}{\partial t} = W_{PI}(I) + \eta \rho I$$

Gleichung (3.10) wird Drude-Modell der nichtlinearen Ionisation genannt und stellt den einfachsten Ansatz zur zeitabhängigen Berechnung der Dichte freier Elektronen dar. Das Drude-Modell wurde in der Vergangenheit in einer Vielzahl von Untersuchungen zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisation von Gasen [DeM69, Fei74, Cou07], Flüssigkeiten [Ken95, Fen97, Noa99, Liu03, Arn05] und Festkörpern [Yab72, Blo74, Stu95, Sud02, Jia03, Pen05, Cou05] benutzt.

Die Rate für nichtlineare Photoionisation W_{PI} wird in dieser Arbeit durch Auswerten der Keldysh-Theorie [Kel65a] berechnet. Dies wird im nächsten Abschnitt 3.2 erläutert. Für den Fall, dass mit der Ratengleichung (3.10) die nichtlineare Ionisation durch längerer Pulse im Pikosekunden- oder Nanosekundenbereich beschrieben werden soll, müssen noch Terme zur Beschreibung der Diffusion von Ladungsträgern aus dem Fokusvolumen, sowie der Rekombination mit ionisierten Atomen und Molekülen berücksichtigt werden [Noa99].

Die durch nichtlineare Photoionisation bedingte Absorption hat ebenfalls Einfluss auf die Suszeptibilität des Materials. Der entsprechende Beitrag kann durch umgekehrtes Vorgehen wie bei der Herleitung von Gleichung (3.9) erhalten werden. Die Suszeptibilität $\chi_{fe}(\rho, \omega)$ des Materials bedingt durch Existenz und Erzeugung freier Elektronen lautet also:

$$(3.11) \quad \chi_{fe}(\rho, \omega) = -n^2 \frac{\omega_P^2 \tau_P^2}{1 + \omega^2 \tau_P^2} + in^2 \frac{\omega_P^2 \tau_P}{\omega(1 + \omega^2 \tau_P^2)} + in \frac{\Delta c}{\omega} \frac{W_{PI}}{I}$$

Auf Grund der Benutzung des im Vergleich zum Drude-Modell aufwendigeren MRE-Modells zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisation, das in Abschnitt 3.3 eingeführt wird, erhält der durch Kaskadenionisation bedingte Imaginärteil in Gleichung (3.11) noch einen korrigierenden Vorfaktor. Dieser ist dadurch verursacht, dass die Kaskadenionisation im MRE-Modell als mehrstufiger Prozess beschrieben wird (siehe Abschnitt 3.3).

3.2 Keldysh-Theorie der nichtlinearen Photoionisation

In diesem Abschnitt soll die Berechnung der Rate W_{PI} für nichtlineare Photoionisation auf Grund der Auswertung der vollständigen Keldysh-Theorie [Kel65a] erläutert werden. Keldysh hat Ausdrücke für die nichtlineare Photoionisation von Atomen sowie Festkörpern mit großer Bandlücke formuliert. Die Theorie ist dann gültig, wenn die zu überwindende Bandlücke deutlich größer als die Energie der eingestrahlenen Photonen ist ($\Delta \gg \hbar\omega$). Für die in dieser Arbeit meist benutzte Wellenlänge $\lambda = 780 \text{ nm}$ ist dies in guter Näherung gegeben; es handelt sich um einen Prozess fünfter Ordnung, wenn für die Bandlücke des als Modellmedium gewählten

Wassers $\Delta = 6,5 \text{ eV}$ angenommen wird [Wil76]. Es wurde der gebräuchlichste Wert für die Bandlücke von Wasser angenommen; in der Literatur sind zusätzlich Werte im Bereich von $5,8 - 9 \text{ eV}$ beschrieben [Fan02]. Nichtlineare Photoionisation unterteilt sich in Multiphotonen- und Tunnelionisation. Welcher der beiden Prozesse dominant ist, ist abhängig von der Frequenz des eingestrahnten Feldes, der zu überwindenden Bandlücke und der Feldstärke. Keldysh hat den Parameter γ eingeführt, um die unterschiedlichen Bereiche voneinander zu unterscheiden [Kel65a]:

$$(3.12) \quad \gamma = \frac{\omega}{eE} \sqrt{m' \Delta} = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m' \Delta c \epsilon_0 n}{2I}}$$

Dabei ist m' die reduzierte Masse, e die Elementarladung des Elektrons und E die Feldstärke des eingestrahnten Laserfeldes. Zur Umformung wurde die Intensität als $I = \frac{1}{2} c \epsilon_0 n |E|^2$ eingeführt, wobei c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum ist und n der Brechungsindex des Materials. Für einen Wert des Keldysh-Parameters $\gamma \gg 1$ tritt reine Multiphotonen-Ionisation auf, während für $\gamma \ll 1$ reine Tunnelionisation vorliegt. Abbildung (3.1) zeigt für $\lambda = 780 \text{ nm}$ den Wert des Keldysh-Parameters aufgetragen gegen die Intensität. Die typische Durchbruchintensität für Materialien mit großer Bandlücke von einige eV bei Einstrahlung ultrakurzer Pulse liegt im Bereich von $I_{Bd} = 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$, was einem Wert des Keldysh-Parameters $\gamma \approx 1$ entspricht, der sich weder dem Multiphotonen- noch dem Tunnelregime zuordnen lässt. Obwohl Keldysh Näherungsformeln für beide Bereiche entwickelt hat, ist es für $\gamma \approx 1$ notwendig, den vollständigen Ausdruck für die Ionisationswahrscheinlichkeit auszuwerten.

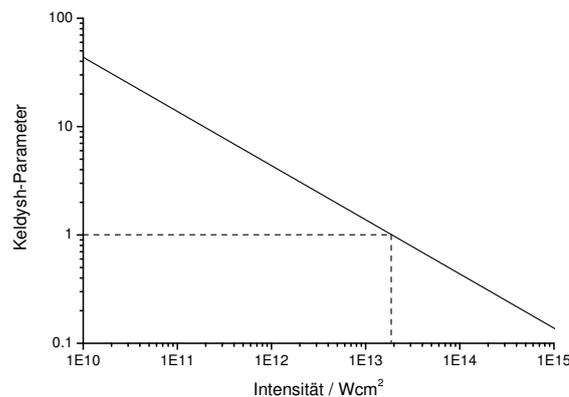


Abbildung 3.1: Der Wert des Keldysh-Parameters γ aufgetragen gegen die Intensität bei einer Wellenlänge $\lambda = 780 \text{ nm}$.

Der Ausdruck für die Rate W_{PI} für nichtlineare Photoionisation in Abhängigkeit der optischen Frequenz ω , dem Keldysh-Parameter γ und der zu überwindenden Bandlücke Δ lautet [Kel65a]:

$$(3.13) \quad W_{PI} = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{\omega m'}{\hbar \gamma \Gamma} \right)^{\frac{3}{2}} Q\left(\gamma, \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar \omega}\right) \exp\left(-\left\langle \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar \omega} + 1 \right\rangle \Xi\right)$$

Dabei ist $Q(\gamma, x)$ eine unendliche Summe:

$$(3.14) \quad Q(\gamma, x) = \sqrt{\frac{\pi}{2K(\Gamma)}} \sum_{n=0}^{\infty} \exp(-\Xi n) \phi\left(\sqrt{\beta(\zeta + n)}\right)$$

Keldysh hat eine effektive Bandlücke $\tilde{\Delta}$ eingeführt, die berücksichtigt, dass die Energie, die aufgebracht werden muss, um ein Elektron vom Valenzband ins Leitungsband zu überführen, abhängig von der eingestrahlten Intensität ist. Zur nichtlinearen Ionisation muss demnach nicht nur die Bandlücke überwunden werden, sondern zusätzlich muss die Schwingungsenergie eines freien Elektrons im Leitungsband aufgebracht werden. Der Ausdruck für die effektive Bandlücke lautet:

$$(3.15) \quad \tilde{\Delta} = \frac{2}{\pi} \Delta \frac{1}{\gamma \Gamma} E(\Gamma)$$

Dabei sind $\Gamma = 1/\sqrt{1 + \gamma^2}$, $\beta = \pi^2/2K(\Gamma)E(\Gamma)$, $\zeta = 2\langle x + 1 \rangle - 2x$, $\Xi = \pi(K(\gamma\Gamma) - E(\gamma\Gamma))/E(\Gamma)$ und $\langle x \rangle$ steht für den ganzzahligen Teil der Zahl x . Des Weiteren bezeichnen K und E die vollständigen elliptischen Integrale der ersten und zweiten Art und $\phi(z)$ bezeichnet das Dawson Integral [Bro99]:

$$(3.16) \quad \phi(z) = e^{-z^2} \int_0^z e^{y^2} dy$$

Das Berechnen der Rate für nichtlineare Ionisation (3.13) in Abhängigkeit von γ ist numerisch zu aufwendig, um dies in jedem Schritt auszuführen. Besonders das Auswerten der unendliche Summe $Q(\gamma, x)$ erfordert das Berücksichtigen vieler Glieder, bevor der Wert konvergiert. Deswegen wird die Keldysh-Rate als Funktion von γ tabelliert im Programm benutzt.

Abbildung (3.2) verdeutlicht, warum es notwendig ist, Keldyshs gesamten Ausdruck zur Berechnung der nichtlinearen Ionisation zu verwenden. Im Vergleich zur vollständigen Keldysh-Theorie sind zusätzlich die von Keldysh angegebenen Ausdrücke für reine Multiphotonen- sowie für reine Tunnelionisation eingezeichnet des Weiteren ein noch stärker vereinfachter Ausdruck für Multiphotonen-Ionisation nach Kennedy [Ken95]. Bei allen im Rahmen dieser Arbeit durchge-

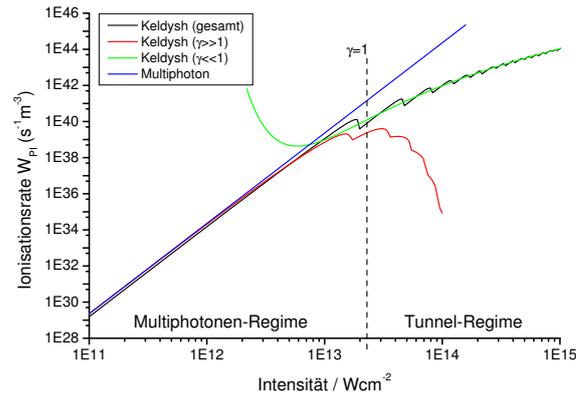


Abbildung 3.2: Die Rate für nichtlineare Photoionisation durch Auswerten der vollständigen Keldysh-Theorie (schwarz) im Vergleich zu den von Keldysh vorgeschlagenen Vereinfachungen für das Multiphotonen-Regime ($\gamma \gg 1$) (rot), das Tunnelregime ($\gamma \ll 1$) (blau) sowie eine noch weitergehende Vereinfachung für Multiphotonen-Ionisation (blau) [Ken95].

fürten Berechnungen zur Durchbruchschwelle liegen die maximal erreichten Intensitäten exakt in dem Bereich, in dem beide von Keldysh eingeführten Näherung deutlich versagen.

In Abbildung (3.2) ist deutlich zu erkennen, wie sich der Verlauf der Rate W_{PI} für nichtlineare Photoionisation mit der Intensität ändert. Im Multiphotonen-Regime ist die Rate proportional zur Ordnung K des Multiphotonen-Prozesses $W_{PI} \sim I^K$, also der Anzahl K notwendiger Photonen zum Überwinden der Bandlücke. Im Tunnelregime dagegen ist die Rate lediglich proportional zur Feldstärke des eingestrahlten Feldes $W_{PI} \sim I^{1/2}$. Bei steigender Intensität tritt an bestimmten Stellen immer wieder ein kurzes Einbrechen der Ionisationsrate auf. Dies ist darin bedingt, dass die von Keldysh benutzte effektive Bandlücke die zusätzliche Schwingungsenergie des freien Elektrons im Feld berücksichtigt. Bei steigender Intensität kann dies dazu führen, dass die Ordnung des Prozesses erhöht wird, also mehr Photonen zum Überwinden der Bandlücke benötigt werden. Jedes Mal, wenn die Stufe zu einem Prozess höherer Ordnung überschritten wurde, sinkt die Ionisationsrate kurzzeitig ab.

Abbildung (3.3) zeigt die Raten der nichtlinearen Photoionisation für alle in dieser Arbeit berücksichtigten Wellenlängen. Für geringe Intensität sind wegen der unterschiedlichen Ordnung der Multiphotonen-Prozesse deutliche Unterschiede festzustellen; dies zeigt sich besonders in der Steigung. Für hohe Intensität im Tunnelregime sind die Raten für alle Wellenlängen dagegen fast identisch; es ist keine ausgeprägte Wellenlängenabhängigkeit zu erkennen. Der Grund dafür ist vor allem darin zu suchen, dass die Ionisation im Tunnelregime keine Folge der hohen Photonendichte wie bei der Multiphotonen-Ionisation ist, sondern auf Grund der durch das eingestrahlte Feld

stark verformten atomaren Potentiale erfolgt. Daher ist die Rate für Tunnelionisation nur abhängig von der Feldstärke.

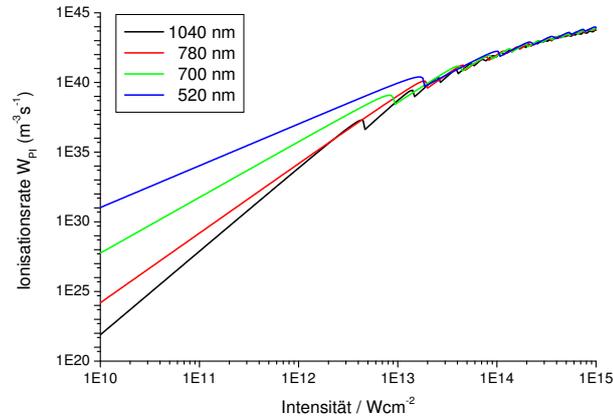


Abbildung 3.3: Die Rate für nichtlineare Photoionisation durch Auswerten der vollständigen Keldysh-Theorie für alle im Rahmen der Arbeit berücksichtigten Wellenlängen.

Es existieren kaum Alternativen zur Benutzung der Keldysh-Theorie für die Berechnung der Rate der nichtlinearen Photoionisation in transparenten Materialien [Nat85]. Das experimentelle Messen des Wirkungsquerschnitts gestaltet sich ebenfalls schwierig, weil die Erzeugung freier Elektronen nicht von der Kaskadenionisation zu trennen ist. Es existieren eine Reihe von zeitaufgelösten Pump/Probe-Messungen der erzeugten Dichte freier Elektronen in Gläsern und Kristallen [Aud94, Que01, Sun05, Sun07] sowie Wasser [Sar06], jedoch müssen zur Messung der Elektronendichte bereits eine ganze Reihe von Annahmen vorgenommen werden. Daher ist es schwierig, verlässliche Raten aus diesen Messungen zu extrahieren. Dubietis et al. haben die nichtlineare Propagation in Wasser über lange Distanzen numerisch simuliert und dabei die Multiphotonen-Rate als Fit-Parameter beim Vergleich mit dem Experiment benutzt [Dub06]. Dabei erhielten sie eine deutlich geringere Rate, als sie aus der Keldysh-Theorie folgt, scheiterten aber daran, wesentliche Aspekte der experimentell beobachteten Propagation numerisch nachbilden zu können. Die nichtlineare Propagation mit der Vielzahl zusätzlicher Effekte wie Selbstfokussierung, Filamentierung und Superkontinuumserzeugung scheint nicht ausreichend verstanden, um aus dem experimentellen Vergleich, Raten für die Multiphotonen-Ionisation zu extrahieren. Kürzlich ist der Ansatz von Keldysh für Materialien mit großer Bandlücke neu ausgewertet worden [Gru04, Gru07]. Dabei wurde anstatt einer parabolischen Energie-Impuls-Beziehung der Elektronen im Leitungsband ein realistischerer Ansatz gewählt. Die Folge sind ausgeprägte Einbrüche und Spitzen in der Ionisationsrate bei bestimmten Intensitäten [Gru04, Gru07]. Die erste Spitze tritt für fast alle

Materialien mit großer Bandlücke bei einer Intensität von einigen $\frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ auf, was vom Autor mit dem Auftreten eines optischen Durchbruchs in Verbindung gebracht wird. Für Wasser als Modellmedium scheint die Gültigkeit der Theorie von Gruzdev fragwürdig, denn die Ionisationsrate steigt bei Erreichen einer der vom Autor beschriebenen Spitzen so dramatisch an, dass dies instantan zur vollständigen Ionisation führt. Dies wiederum ist mit einer im Fokus deponierten Energiedichte von etwa $30 \frac{\text{kJ}}{\text{cm}^3}$ verbunden, was nicht mit den experimentell beobachteten mechanischen und thermischen Folgeeffekten des optischen Durchbruchs bei ultrakurzen Pulsen in Einklang zu bringen ist. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit die Keldysh-Theorie zur Berechnung der nichtlinearen Photoionisation benutzt [Kel65a].

Für die nichtlineare Photoionisation von Gasen ist eine deutliche bessere Vergleichbarkeit zwischen Theorie und Experiment gegeben, da die Photoionisation durch Variation des Gasdrucks unabhängig von der Kaskadenionisation untersucht werden kann. Kaskadenionisation ist in Gasen wegen der langen Stoßzeit ohnehin nur schwach ausgeprägt. Perry et al. haben gute Übereinstimmung für die Einfachionisation von Edelgasen mit der Keldysh-Theorie festgestellt [Per88]. Für Gase existieren des Weiteren im Gegensatz zu Dielektrika eine ganze Reihe alternativer theoretischer Beschreibungen zur nichtlinearen Photoionisation [Per66, Rei80, Amm86, Del91, Mis02, Pop04].

3.3 MRE - Modell

Wie in der Einleitung bereits ausgeführt wurde, ist das Erzeugen eines zum optischen Durchbruch ausreichenden Elektronen-Loch-Plasmas eine Kombination aus nichtlinearer Photoionisation und Kaskadenionisation. Die theoretische Beschreibung des Ionisationsprozesses ist in der Vergangenheit sehr unterschiedlich gehandhabt worden. Am weitesten verbreitet ist der einfachste Ansatz, wobei die Entwicklung der Dichte freier Elektronen in Form des Drude-Modells (3.10) beschrieben wird. Die größte Limitation dieses Ansatzes ist darin bedingt, dass die Energieverteilungsfunktion der freien Elektronen im Leitungsband als konstant angenommen wird. Bei der Herleitung von Gleichung (3.10) wurde rigoros vorausgesetzt, dass aus der Absorption einer Energiemenge ε_{crit} zwangsläufig die Überführung eines zusätzlichen Elektrons ins Leitungsband durch Stoßionisation resultiert. Dies stellt besonders für ultrakurze Pulse ein Problem dar, weil durch Gleichung (3.10) die Zeit, die ein freies Elektron benötigt, um eine kinetische Energie größer als ε_{crit} durch Absorption inverser Bremsstrahlung zu erlangen, nicht berücksichtigt wird. Die Rate für Kaskadenionisation in Gleichung (3.10) ist proportional zur gesamten Dichte freier Elektronen. Die Dichte freier Elektronen, deren kinetische Energie tatsächlich zur Stoßionisation ausreicht, ist

dagegen viel geringer. Das Drude-Modell überschätzt daher den Einfluss der Kaskadenionisation für ultrakurze Pulse.

Dem einfachen Ansatz des Drude-Modells gegenüber stehen sogenannte kinetische Modellierungen unter Benutzung der Fokker-Planck- oder Boltzmann-Gleichung [Stu96, Kai00, Apo00, Vat02]. Dabei wird die Verteilungsfunktion der Elektronen im Leitungsband zeit- und energieabhängig unter Berücksichtigung von nichtlinearer Photoionisation, Stoßionisation, Elektronen-Elektronen-Streuung, Elektronen-Phonon-Streuung und Elektronen-Phonon-Photon-Streuung gelöst. Ein kinetischer Ansatz zur Berechnung der nichtlinearen Ionisation liefert zwar genaue Kenntnisse über die zeitliche Entwicklung der Energieverteilung im Leitungsband, ist jedoch sehr aufwendig zu lösen. Während beim Drude-Modell nur eine Ratengleichung zu integrieren ist, muss bei kinetischen Modellierungen ein System nichtlinear gekoppelter Gleichungen integriert werden. Bei ausreichender Diskretisierung sind einige hundert Gleichungen notwendig [Kai00]. Abgesehen davon, dass für flüssiges Wasser die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Prozesse nicht bekannt sind, wäre eine kinetische Modellierung numerisch zu zeitaufwendig, um gleichzeitig mit der nichtlinearen Propagation gelöst zu werden.

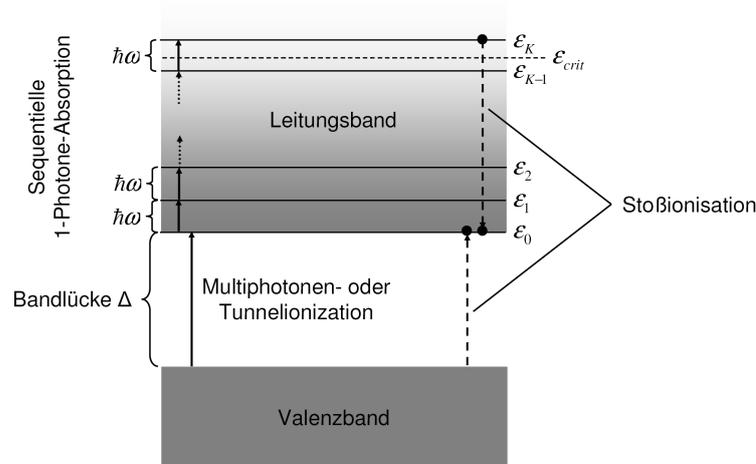


Abbildung 3.4: Nichtlineare Ionisation eines Dielektrikums nach dem MRE-Modell.

Rethfeld hat kürzlich das sogenannte MRE-Modell (Multiple Rate Equation Model) zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisation von Dielektrika vorgeschlagen [Ret04, Ret06, Ret07]. Das MRE-Modell reduziert die kinetische Modellierung auf die dominierenden Effekte, ohne dabei mathematisch und numerisch deutlich anspruchsvoller als das Drude-Modell (3.10) zu sein. Die wesentliche zeitliche Dynamik im Leitungsband wird dadurch erfasst, dass einzelne Energieniveaus durch je eine Ratengleichung beschrieben werden. Die physikalischen Annahmen,

auf denen das MRE-Modell basiert, sind in Abbildung (3.4) skizziert. Durch nichtlineare Photoionisation werden erste Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband überführt. Das erste durch das MRE-Modell beschriebene Niveau befindet sich am energetischen Boden des Leitungsbandes. Ein freies Elektron kann durch Absorption inverser Bremsstrahlung oder sequentielle 1-Photonen-Absorption, wie der Prozess von Rethfeld bezeichnet wird, mit der Wahrscheinlichkeit W_{1Pt} Photonen aus dem Feld absorbieren und dadurch in das nächste Niveau aufsteigen. Die Niveaus haben den energetischen Abstand der Energie der eingestrahnten Photonen. Das oberste vom MRE-Modell beschriebene Niveau K ist das erste, das über der kritischen Energie ε_{crit} für Stoßionisation liegt ($K\hbar\omega > \varepsilon_{crit}$). Für ein sich in Niveau K befindliches Elektron besteht eine gewisse Wahrscheinlichkeit W_{Imp} , durch Stoßionisation ein zusätzliches freies Elektron zu erzeugen. Daraus resultieren zwei freie Elektronen am Boden des Leitungsbandes, die wiederum Photonen aus dem Feld absorbieren können. Die zur Stoßionisation notwendige Energie ε_{crit} ist wegen der Impulserhaltung beim Stoß größer als die tatsächlich zu überwindende Bandlücke Δ [Kel60, Kai00].

$$(3.17) \quad \varepsilon_{crit} = \frac{1 + 2\mu}{1 + \mu} (\Delta + \langle \varepsilon_{Osz} \rangle), \quad \mu = \frac{m^*}{m_v^*}$$

Werden die Massen des Elektrons im Valenzband m_v^* und im Leitungsband m^* als gleich angenommen, nimmt der Vorfaktor den Wert $3/2$ an. Der zweite Term auf der rechten Seite beschreibt die Schwingungsenergie $\langle \varepsilon_{Osz} \rangle = \frac{e^2 E^2}{4m'\omega^2}$ eines Elektrons mit der reduzierten Masse m' im eingestrahnten Feld der Feldstärke E und der Frequenz ω . Durch die Intensitätsabhängigkeit von ε_{crit} kann sich die Anzahl der Photonen K , die absorbiert werden müssen, bevor Stoßionisation auftritt, ändern. Die Differenz zwischen der tatsächlich bei der Stoßionisation zu überwindenden Bandlücke Δ und der dazu notwendigen Energie ε_{crit} wird im MRE-Modell energetisch nicht berücksichtigt; nach der Stoßionisation befinden sich beide Elektronen am Boden des Leitungsbandes. Zur Gewährleistung der Energieerhaltung ist es vorstellbar, dass die Energiedifferenz während des Stoßprozesses auf das beteiligte Atom oder Molekül übergeht.

Die mathematische Beschreibung der Dichte freier Elektronen ρ_n in den Niveaus mit der Energie $\varepsilon_n = n\hbar\omega$ nach dem MRE-Modell lautet:

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial \rho_0(t)}{\partial t} &= W_{PI}(I(t)) - W_{1Pt}(I(t)) \rho_0(t) + 2W_{Imp} \rho_K(t) \\
 \frac{\partial \rho_1(t)}{\partial t} &= W_{1Pt}(I(t)) \rho_0(t) - W_{1Pt}(I(t)) \rho_1(t) \\
 (3.18) \quad & \vdots \\
 \frac{\partial \rho_{K-1}(t)}{\partial t} &= W_{1Pt}(I(t)) \rho_{K-2}(t) - W_{1Pt}(I(t)) \rho_{K-1}(t) \\
 \frac{\partial \rho_K(t)}{\partial t} &= W_{1Pt}(I(t)) \rho_{K-1}(t) - W_{Imp} \rho_K(t)
 \end{aligned}$$

Wird die Dichte der freien Elektronen über alle Niveaus aufsummiert, um die gesamte erzeugte Dichte ρ_{ges} zu erhalten, folgt:

$$(3.19) \quad \frac{\partial \rho_{ges}(t)}{\partial t} = \sum_{n=0}^K \frac{\partial \rho_n(t)}{\partial t} = W_{PI}(I(t)) + W_{Imp} \rho_K(t)$$

Gleichung (3.19) stellt den hauptsächlichen Unterschied zum Drude-Modell (3.10) dar, bei dem die Erzeugung zusätzlicher freier Elektronen proportional zur gesamten Dichte bereits vorhandener freier Elektronen ist. Beim MRE-Modell ist die Stoßionisationsrate dagegen proportional zur Dichte ρ_K freier Elektronen, deren kinetische Energie tatsächlich zur Stoßionisation ausreicht.

Die 1-Photonen-Absorptionswahrscheinlichkeit W_{1Pt} , ein Elektron vom Niveau ε_n ins Niveau ε_{n+1} zu verschieben, kann aus Ausdruck (3.9) aus der Herleitung des Drude-Modells abgeleitet werden. Rethfeld hat gezeigt, dass das Drude-Modell und das MRE-Modell für lange Pulsdauer $\tau \gg [(2^{1/K} - 1)W_{1pt}]^{-1}$ die gleiche Dichte freier Elektronen vorhersagen, wenn die 1-Photonen-Absorptionswahrscheinlichkeit W_{1Pt} wie folgt gewählt wird:

$$(3.20) \quad W_{1Pt} = \eta \left(2^{1/K} - 1\right)^{-1} I$$

Die Größe der 1-Photonen-Absorptionswahrscheinlichkeit hängt von den bei der Herleitung des Drude-Modells vorgenommenen Annahmen ab. Der wichtigste Parameter im Drude-Modell ist die Stoßzeit τ_P , die die mittlere Zeit zwischen Stößen eines freien Elektrons mit den Atomen und Molekülen des Materials angibt. Wegen der Impulserhaltung können Photonen nur dann durch Einfangen inverser Bremsstrahlung absorbiert werden, wenn das freie Elektron gleichzeitig mit einem schweren Teilchen stößt. Dadurch bestimmt die Stoßzeit τ_P die Rate für Kaskadenionisation. Wegen der stark vereinfachten Annahmen bei der Herleitung des Drude-Modells, handelt es

sich bei der Stoßzeit um eine rein phänomenologische Größe, die in der Vergangenheit sehr unterschiedlich angegeben wurde und häufig als Fit-Parameter benutzt wurde. Bloembergen schätzte die Stoßzeit auf etwa eine Femtosekunde für die meisten Festkörper [Blo74]. Messungen in Wasser und Quarzglas bestätigen diesen Bereich [Sum05, Sar06]. In dieser Arbeit wurde $\tau_P = 3 \text{ fs}$ für Wasser angenommen [Dub06, Min07]. Aus den benutzten Parametern folgt ein Stoßquerschnitt $\sigma = 8,97 \times 10^{-18} \text{ cm}^2$ für das Einfangen inverser Bremsstrahlung bei $\lambda = 780 \text{ nm}$ und eine 1-Photonen-Absorptionswahrscheinlichkeit $W_{1Pt} = 55,17 \frac{\text{cm}^2}{\text{Ws}} I$.

Die Wahrscheinlichkeit das ein Elektron im Leitungsband mit Energie $\varepsilon > \varepsilon_{crit}$ durch Stoßionisation ein weiteres freies Elektron erzeugt, wird meist mit einem von Keldysh entwickelten Ausdruck abgeschätzt [Kel60]:

$$(3.21) \quad W_{Imp}(\varepsilon) = P \left(\frac{\varepsilon - \varepsilon_{crit}}{\varepsilon_{crit}} \right)^2$$

Der Parameter P ist normalerweise nicht genau bekannt. Für Quarzglas (Fused Silica) sind bisher zwei unterschiedliche Werte benutzt worden die sich um mehr als eine Größenordnung unterscheiden ($P = 1,5 \text{ fs}^{-1}$ [Stu96, Apo00, Vat02] und $P = 21,2 \text{ fs}^{-1}$ [Kai00]). Für Wasser ist kein Wert für P bekannt. Es ist jedoch damit zu rechnen, dass die Stoßionisationswahrscheinlichkeit für ein Elektron im K -ten Niveau viel größer als die 1-Photonen-Absorptionswahrscheinlichkeit ist [Ret04]. Diese Annahme wird von den beiden für Quarzglas benutzten Werten unterstützt. Deswegen wird in dieser Arbeit das MRE-Modell in abgewandelter Form benutzt, indem angenommen wird, dass Elektronen im K -ten Niveau instantan durch Stoßionisation ein weiteres freies Elektron erzeugen ($W_{Imp} \gg W_{1Pt}$). Das MRE-Modell in der hier benutzten Form lautet:

$$(3.22) \quad \begin{aligned} \frac{\partial \rho_0(t)}{\partial t} &= W_{PI}(I(t)) - W_{1Pt}(I(t)) \rho_0(t) + 2W_{1Pt}(I(t)) \rho_{K-1}(t) \\ \frac{\partial \rho_1(t)}{\partial t} &= W_{1Pt}(I(t)) \rho_0(t) - W_{1Pt}(I(t)) \rho_1(t) \\ &\vdots \\ \frac{\partial \rho_{K-1}(t)}{\partial t} &= W_{1Pt}(I(t)) \rho_{K-2}(t) - W_{1Pt}(I(t)) \rho_{K-1}(t) \end{aligned}$$

Die numerische Integration des MRE-Modells erfolgt unter Benutzung üblicher Runge-Kutta-Methoden [Pre86].

Auf Grund der Benutzung des MRE-Modells anstatt des Drude-Modells verändert sich Ausdruck (3.11) für die Suszeptibilität des ionisierten Dielektrikums. Bei gleicher Dichte ρ freier Elektronen wird nach dem MRE-Modell um den Faktor $(\frac{\hbar\omega}{\varepsilon_{crit}}(2^{1/K} - 1))^{-1} \approx 1.56$ mehr Leistung aus dem

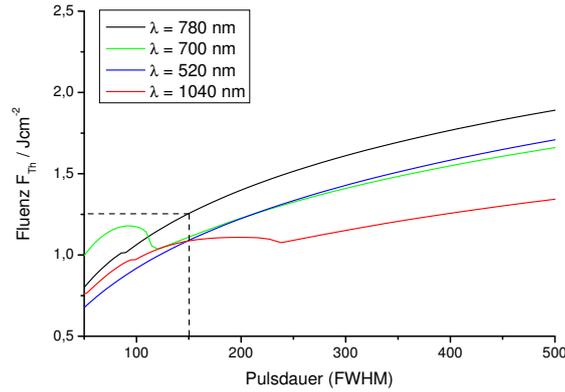


Abbildung 3.5: Schwellfluenz zum Erreichen des optischen Durchbruchs berechnet nach dem MRE-Modell für verschiedene Wellenlängen aufgetragen gegen die Pulsdauer.

Feld absorbiert. Daraus folgt für die Suszeptibilität eines ionisierten Dielektrikums, wenn die Erzeugung freier Elektronen nach dem MRE-Modell beschrieben wird:

$$(3.23) \quad \chi_{fe}(\rho, \omega) = -n^2 \frac{\omega_P^2 \tau_P^2}{1 + \omega^2 \tau_P^2} + in^2 \frac{\omega_P^2 \tau_P}{\omega(1 + \omega^2 \tau_P^2)} \frac{\hbar \omega}{\epsilon_{crit}} (2^{1/K} - 1)^{-1} + in \frac{\Delta c W_{PI}}{\omega I}$$

Abbildung (3.5) zeigt die Schwellfluenz zum Erreichen eines optischen Durchbruchs $\rho_{Bd} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ berechnet nach dem MRE-Modell aufgetragen gegen die Pulslänge für unterschiedliche Wellenlängen. Dabei ist die zum optischen Durchbruch benötigte Fluenz für $\lambda = 780 \text{ nm}$ durchweg am größten. Dies lässt sich über die Wellenlängenabhängigkeit der Raten für nicht-lineare Photoionisation und für Kaskadenionisation erklären. Für $\lambda = 1040 \text{ nm}$ ist die Rate für nichtlineare Photoionisation für Intensitäten im Bereich von $10^{12} - 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ kaum geringer als für $\lambda = 780 \text{ nm}$, gleichzeitig ist der Wirkungsquerschnitt σ für das Einfangen inverser Bremsstrahlung um den Faktor 1,75 größer, so dass die zum optischen Durchbruch ausreichende Plasmadichte bei geringerer Fluenz erreicht wird. Für die beiden kürzeren Wellenlängen $\lambda = 700 \text{ nm}$ und $\lambda = 520 \text{ nm}$ ist im entscheidenden Bereich die Keldysh-Rate deutlich höher, ohne dass sich der Wirkungsquerschnitt für die Absorption inverser Bremsstrahlung zu stark verändert ($\sigma_{700}/\sigma_{780} = 0,81$, $\sigma_{520}/\sigma_{780} = 0,45$). Des Weiteren müssen weniger Photonen zum Erreichen von ϵ_{crit} absorbiert werden als bei $\lambda = 780 \text{ nm}$. Für geringe Pulsdauer kommt die Pulsspitzenintensität in den Bereich, in dem die Keldysh-Rate Stufen ausweist, wenn durch die zusätzlich aufzubringende Schwingungsenergie des freien Elektrons im Laserfeld die Ordnung des Multiphotonen-Prozesses erhöht wird (siehe Abb. 3.3). Dieser Effekt ist für $\lambda = 700 \text{ nm}$ besonders ausgeprägt, weil die Ordnung bereits bei geringer Intensität von 4 Photonen auf

5 Photonen steigt. Dies hat zur Folge, dass die zum Durchbruch benötigte Fluenz für eine Pulsdauer unterhalb von 120 fs zunächst noch einmal ansteigt (siehe Abb. 3.3).

Experimentell ist nicht bestätigt, dass die Rate für nichtlineare Photoionisation die von Keldysh vorhergesagten Stufen aufweist. Des Weiteren ist die Bandlücke in einem realen Material nicht derart scharf ausgeprägt, wie dies theoretisch angenommen wird. Ein ähnliches Verhalten, wie es die Durchbruchfluenz in Abbildung (3.5) für $\lambda = 700$ nm bei kurzer Pulsdauer zeigt, ist experimentell erst einmal für Quarzglas bei $\lambda = 800$ nm beobachtet worden [Du96]. Andererseits haben zwei weitere Messungen ebenfalls in Quarzglas bei der gleichen Wellenlänge dieses Verhalten nicht bestätigt, sondern zeigen eine abnehmende Schwelle für abnehmende Pulsdauer [Len98, Tie99], so wie es auch in Abbildung (3.5) für Wasser bei $\lambda = 780$ nm und $\lambda = 520$ nm zu erkennen ist.

4 Vektorielle, nichtparaxiale Beugung

Ein bedeutender Unterschied im Vergleich zu anderen Studien, bei denen die Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit transparenten Materialien numerisch untersucht wurde [Fen97, Sud02, Liu03, Cou05, Bur07], besteht in dieser Arbeit in der sorgfältigen Wahl geeigneter und vor allem realistischer Anfangsbedingungen. Während üblicherweise die Theorie des Gaußschen Strahles zur Berechnung des elektrischen Feldes im Fokus benutzt wurde, werden hier die Fokusfelder als Ausgangspunkt der nichtlinearen Modellierungen durch numerisches Auswerten eines nichtparaxialen und vektoriell erweiterten Fresnel-Kirchhoff-Beugungsintegrals berechnet [Eng04]. Abgesehen davon, dass der Gaußsche Strahl nur im Rahmen der skalaren und paraxialen Näherung gültig ist und keine analytisch geschlossene Form für hohe numerische Apertur existiert, bietet das Anwenden von Beugungstheorie eine Reihe zusätzlicher Vorteile, wie das Berücksichtigen von beliebigen Eingangsfeldern und Aperturfiltern. Modellierungen zur nichtlinearen Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit transparenten Materialien bei geringer numerischer Apertur haben bereits gezeigt, dass auch bei schwacher Fokussierung das Berücksichtigen von Aperturen, die den Strahl beschneiden, erheblichen Einfluss auf das Fokusfeld und die nichtlineare Wechselwirkung hat [Arn06]. Dies gilt umso mehr bei starker Fokussierung, wenn Mikroskopobjektive benutzt werden, deren numerische Apertur nur dann vollständig ausgenutzt wird, wenn die Eingangsapertur deutlich überstrahlt wird. Existierende analytische Ausdrücke zu beschnittenen gaußschen Strahlen [Hor03, Ure04] werden den komplexen Beugungsphänomenen bei hoher numerischer Apertur nicht gerecht.

Ein Beugungsintegral dient dazu, das Beugungsbild einer elektromagnetischen Welle, die in einer bestimmten Ebene, der Beugungsebene, bekannt ist, in einer zweiten, zur ersten parallelen, Beobachtungsebene zu berechnen. Dazu wird das Feld in der Beugungsebene nach dem Huygens-Prinzip in Elementarwellen zerlegt. Das Feld in der Beobachtungsebene ist dann die Interferenz aller aus der Beugungsebene ausgehender Elementarwellen und wird durch Integrieren über die Beugungsebene erhalten. Im Fall einer stark konvergierenden Welle, wie sie beispielsweise von einem Mikroskopobjektiv erzeugt wird, hat es sich als günstig heraus gestellt anstatt einer Beu-

gungsebene, eine sphärische Referenz zu wählen [Gu00]. In Abbildung (4.1) ist das Fokussieren durch eine Optik hoher numerischer Apertur illustriert. Das auf eine Fokussieroptik treffende

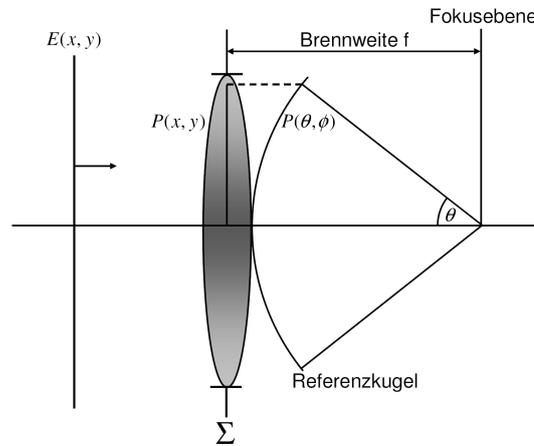


Abbildung 4.1: Fokussierung einer homogenen, ebenen Welle durch eine Optik.

elektrische Feld $E(x, y)$ sei als $P(x, y)$ in der Linsenapertur Σ bekannt. Dabei ist $P(x, y)$ die sogenannte Pupillenfunktion. Eine ideale Fokussieroptik transformiert eine einlaufende ebene Welle in eine sphärisch konvergierende Welle. Auf der Referenzkugel wird das Feld als $P(\theta, \phi)$ in Abhängigkeit des Konvergenzwinkels θ und des Azimuthalwinkels ϕ beschrieben. Bei schwacher Fokussierung sind beide Referenzen näherungsweise gleich ($P(x, y) \approx P(\theta, \phi)$). Wenn jedoch die numerische Apertur der Fokussieroptik groß ist, bestehen erhebliche Unterschiede zwischen der Pupillenfunktion $P(x, y)$ und der sogenannten Apodisationsfunktion $P(\theta, \phi)$. Die Apodisationsfunktion hängt von vielen Parametern, wie der numerischen Apertur, der Transmission, dem Design und der Güte der Fokussieroptik ab und beschreibt wie ein eingestrahktes Feld von der Linsenapertur Σ auf die sphärische Referenz abgebildet wird. Bei einer realen Fokussieroptik sind auch die Abbildungsfehler, die zur Folge haben, dass keine perfekt sphärische Wellenfront erzeugt wird, Teil der Apodisationsfunktion [Gu00].

Als Grundlage des Designs kommerzieller Mikroskopobjektive wird als Apodisationsfunktion meistens die sogenannte Sinus-Bedingung angenommen [Gu00]. Für eine runde Fokussieroptik lautet diese $P(\theta) = P(r)\sqrt{\cos(\theta)}$. Die Sinus-Bedingung besagt, dass ein gedachter einlaufender Strahl in der gleichen Höhe auf die Referenzkugel trifft, in der er in die Linsenapertur Σ eintritt. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung (4.2) verdeutlicht. Homogen über die Linsenapertur eingestrahkte Leistung wird demnach nicht homogen auf die Referenzkugel abgebildet. Mit zunehmendem Winkel θ verringert sich die Leistung in einem Winkelement $d\theta$ auf der

Referenzkugel. Theoretisch sind auch andere Apodisationsfunktionen möglich, aber technisch ist es beim Design von Objektiven hoher numerischer Apertur kaum möglich für große Winkel θ die gleiche Leistungsdichte auf der Referenzkugel aufrecht zu erhalten [Gu00].

Das im Rahmen dieser Arbeit zur Berechnung der Fokusfelder verwendete Beugungsintegral berücksichtigt ebenfalls die Sinus-Bedingung. Diese wird bereits bei der Diskretisierung des eingestrahltten Feldes durch die Wahl der Koordinaten implizit verwendet (siehe Abb. 4.2). Bei der Berechnung des Fokusfeldes wird ausgenutzt, dass das Fresnel-Kirchhoff-Beugungsintegral nicht nur für eine ebene, sondern auch für eine sphärische Referenz geeignet ist [Bor99]. Die Wahl der Koordinaten in der Linsenapertur Σ , sowie auf der Referenzkugel und in der Fokusebene ist in Abbildung (4.2) verdeutlicht. Auf der Referenzkugel wird das gleiche kartesische Koordinatensystem wie in der Linsenapertur verwendet, indem angenommen wird, dass ein Punkt (x_1, y_1) in der Linsenapertur geradlinig auf die Referenzkugel abgebildet wird. Diese Art der Diskretisierung auf der Referenzkugel ist gleichbedeutend mit der Sinus-Bedingung.

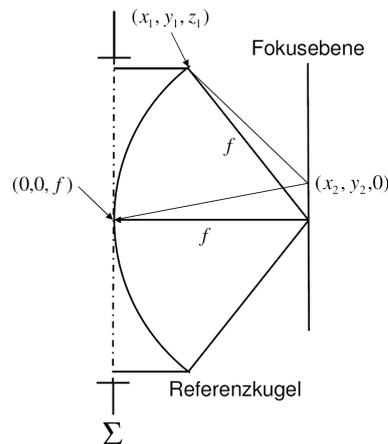


Abbildung 4.2: Wahl der Koordinaten in der Linsenapertur, auf der Referenzkugel und in der Fokusebene für das verwendete Fresnel-Kirchhoff-Beugungsintegral. Die Koordinaten in der Linsenapertur werden geradlinig auf die Referenzkugel projiziert; dies impliziert die Sinus-Bedingung als Apodisationsfunktion.

Das im Rahmen dieser Arbeit benutzte Fresnel-Kirchhoff-Beugungsintegral zur Berechnung des elektrischen Feldes $E(x_2, y_2)$ in der Fokusebene einer Fokussieroptik der Brennweite f lautet [Eng04]:

$$(4.1) \quad E(x_2, y_2) = \frac{\exp(ikf)}{i\lambda f} \exp\left(\frac{ik(x_2^2 + y_2^2)}{2f}\right) \mathcal{F}[E(x_1, y_1)](\xi(x_2), \eta(y_2))$$

Dabei bezeichnet \mathcal{F} die zweidimensionale Fouriertransformation des auf die Referenzkugel

projizierten Koordinatenraums (x_1, y_1) der Linsenapertur Σ in den Fokuskordinatenraum $(x_2 = \lambda\xi z, y_2 = \lambda\eta z)$. Das Beugungsintegral (4.1) erzeugt das elektrische Feld in der Fokusebene als Fouriertransformierte des Eingangsfeldes auf der Referenzkugel und entspricht damit dem Prinzip der Fraunhofer-Beugung angewendet auf eine sphärische Wellenfront [Goo04]. Im Gegensatz zur skalaren und vektoriellen Debye-Theorie [Wol59, Ric59, Sta86, Gu00], die ebenfalls zur Berechnung des Fokusfeldes bei hoher numerischer Apertur benutzt werden können, ist Ausdruck (4.1) durch Anwenden von FFT-Methoden numerisch einfach und schnell auszuwerten. Allerdings liefert das Beugungsintegral (4.1) nur das Feld direkt in der Fokusebene. Soll auch das Feld vor oder hinter der Fokusebene berechnet werden, kann dies entweder durch einen geeigneten Apodisationsfilter geschehen, der eine zusätzliche Phasenverschiebung auf die Referenzkugel aufbringt, was eine Verschiebung der Fokusebene des Integrals zur Folge hat oder aber das Fokusfeld kann durch eine Propagationmethode basierend auf der nichtparaxialen Wellengleichung verschoben werden. Um die gesamte Intensitätsverteilung im Fokus axial und transversal zu berechnen, wird im Rahmen dieser Arbeit mit Ausdruck (4.1) zunächst das transversale Feld in der Fokusebene berechnet; anschließend wird unter Benutzung der exakten nichtparaxialen Propagation im Frequenzraum (2.30), die in Kapitel 2 entwickelt wurde, das Feld an Stellen $z \neq 0$ verschoben.

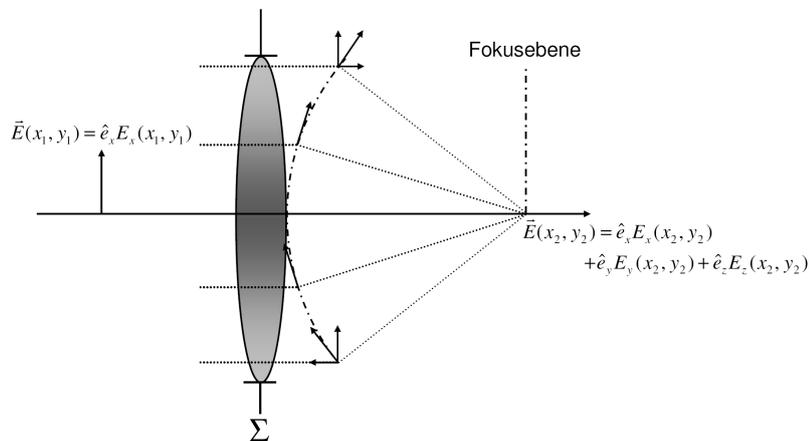


Abbildung 4.3: Depolarisation tritt auf, wenn durch eine Fokussieroptik hoher numerischer Apertur eine einlaufende, ebene Wellenfront in eine sphärisch konvergierende Wellenfront transformiert wird. Dies ist durch Einzeichnen der Polarisationsvektoren auf der Referenzkugel angedeutet.

Ausdruck (4.1) transformiert ein skalares Feld $E(x_1, y_1)$, das auf die Eingangsapertur der Fokussieroptik trifft, in die Fokusebene. Bisher ist vernachlässigt worden, dass ein skalares, also linear in eine ausgezeichnete Richtung, senkrecht zur optischen Achse, polarisiertes, elektromagnetisches

Feld bei starker Fokussierung nicht linear polarisiert bleibt, sondern Polarisationsanteile in alle drei Koordinatenrichtungen aufweist. Dieser als Depolarisation bekannte Effekt ist die Folge der Transformation einer ebenen einlaufenden Wellenfront in eine sphärisch konvergierende Wellenfront durch die Fokussieroptik. Dieser Sachverhalt ist in Abbildung (4.3) dargestellt; eine Zerlegung des Polarisationsvektors auf der Referenzkugel verdeutlicht die Anteile in die Koordinatenrichtungen. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wurde die Polarisation der einlaufenden Welle als linear in x -Richtung angenommen $\vec{E}(x_1, y_1) = \hat{e}_x E_x(x_1, y_1)$. Mathematisch kann die Depolarisation als Drehung beschrieben werden. Der Polarisationsvektor $\vec{P}_0 = (1, 0, 0)$ der einlaufenden Welle wird beim Auftreffen auf die Referenzkugel um einen Winkel θ um die Achse \hat{e}_ϕ gedreht. Die Polarisation \vec{P}_K auf der Referenzkugel lautet:

$$(4.2) \quad \vec{P}_K = \vec{P}_0 (\hat{e}_\phi, \hat{e}_\theta, \hat{e}_\rho) \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos(\theta) & -\sin(\theta) \\ 0 & \sin(\theta) & \cos(\theta) \end{pmatrix} (\hat{e}_\phi, \hat{e}_\theta, \hat{e}_\rho)^T$$

$$\Leftrightarrow \vec{P}_K = \left(1 + \cos(\phi)^2(\cos(\theta) - 1), \sin(\phi) \cos(\phi)(\cos(\theta) - 1), -\sin(\theta) \cos(\phi) \right)$$

Die relative Leistung aller Polarisationsrichtungen im Fokus kann leicht durch Integrieren des Quadrates des Polarisationsvektors \vec{P}_K^2 über die Referenzkugel erhalten werden. Dazu wird als Apodisationsfunktion die zuvor diskutierte Sinus-Bedingung benutzt ($P(\theta) = P(r) \sqrt{\cos(\theta)}$). Die obere Grenze für die Integration über den Konvergenzwinkel θ ist durch den Grenzwinkel α der numerischen Apertur $\text{NA} = n \sin(\alpha)$ der jeweiligen Fokussieroptik gegeben, wobei n der Brechungsindex des Materials ist und $\alpha \leq \pi/2$:

$$(4.3) \quad \begin{aligned} P_{ges.} &= \int_0^{2\pi} \int_0^\alpha P(\theta)^2 \sin(\theta) d\phi d\theta \\ P_x &= \int_0^{2\pi} \int_0^\alpha P(\theta)^2 \left(1 + \cos(\phi)^2(\cos(\theta) - 1) \right)^2 \sin(\theta) d\phi d\theta \\ P_y &= \int_0^{2\pi} \int_0^\alpha P(\theta)^2 (\sin(\phi) \cos(\phi)(\cos(\theta) - 1))^2 \sin(\theta) d\phi d\theta \\ P_z &= \int_0^{2\pi} \int_0^\alpha P(\theta)^2 \sin(\theta)^2 \cos(\phi)^2 \sin(\theta) d\phi d\theta \end{aligned}$$

Abbildung (4.4) zeigt die relative Leistung der drei Polarisationsrichtungen im Fokus in Abhängigkeit der numerischen Apertur. Als Material, in dem der Fokus erzeugt wird, wurde hier wie in der restlichen Arbeit Wasser angenommen. Die simulierten Fokussieroptiken wurden der Einfachheit halber als Wasser-Kontakt-Objektive behandelt, so dass kein Übergang in ein anderes Material berücksichtigt werden muss. Bei schwacher Fokussierung tritt kaum Depolarisation auf

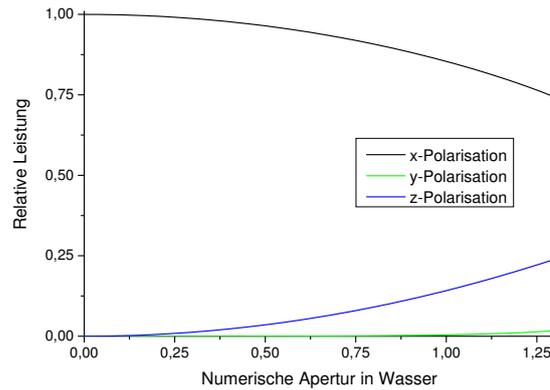


Abbildung 4.4: Die relative Leistung aller drei Polarisationsrichtungen im Fokus aufgetragen gegen die numerische Apertur in Wasser.

und das Feld im Fokus kann in guter Näherung als linear polarisiert aufgefasst werden. Ab einer numerischen Apertur $NA \geq 0,5$ erreicht der axial also in Ausbreitungsrichtung polarisierte Teil des Fokusbereiches eine relative Leistung einiger Prozent und kann deswegen nicht vernachlässigt werden. Für die maximale numerische Apertur in einem Material beim Grenzwinkel $\alpha = \pi/2$ erreicht die axiale Polarisation einen Anteil von etwa 25 %, in y -Richtung dagegen nur etwa 2 %. Die relativen Leistungen in den jeweiligen Polarisationsrichtungen bestätigen die in Kapitel 2 eingeführten Relationen (2.15) zur relativen Größe der Feldamplituden. Damit kann an dieser Stelle bestätigt werden, dass das Vernachlässigen der y -Polarisationsrichtung bei der Herleitung der nichtlinearen Propagationsgleichung in Kapitel 2 in sehr guter Näherung möglich ist, wenn das Feld vor der Fokussierung linear in x -Richtung polarisiert ist.

Abbildung (4.5) zeigt die Leistung in x -, y - und z -Polarisationsrichtung auf der Referenzkugel als Konturengraph für maximale numerische Apertur $\alpha = \pi/2$; zusätzlich ist die Apodisationsfunktion gezeigt. Es ist deutlich zu erkennen, dass für große Konvergenzwinkel θ die Leistung auf der Referenzkugel schnell abnimmt. Die Oberfläche der Referenzkugel ist zur Vereinfachung der Darstellung jeweils auf einen Kreis projiziert; der Konvergenzwinkel kann als $\theta = \arcsin(\sqrt{x^2 + y^2}/R)$ aus den Achsenabschnitten erhalten werden, wobei R der Radius der Referenzkugel ist. Die Farbdarstellung ist auf das jeweilige Maximum skaliert. Wie in Abbildung (4.5) deutlich zu erkennen ist, wirkt sich die Depolarisation am stärksten in Richtung der Eingangspolarisation (x -Richtung) für große Winkel θ aus.

In Abschnitt 2.2.2 wurde gezeigt, dass im Falle linearer Propagation alle drei Polarisationsrichtungen von der Helmholtz-Gleichung vollkommen äquivalent beschrieben werden (siehe Gleichung

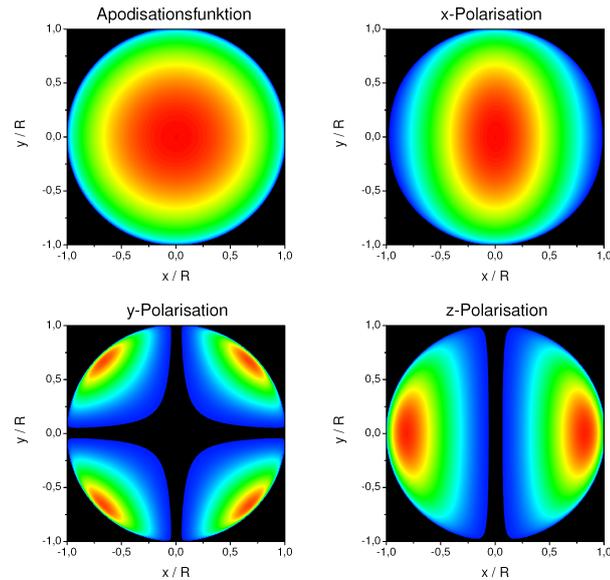


Abbildung 4.5: Gezeigt sind die Leistungen in alle drei Polarisationsrichtungen auf der Referenzkugel als Konturenglyphen. Die Kugeloberfläche wurde zur Vereinfachung der Darstellung jeweils auf einen Kreis projiziert. Zusätzlich ist die Apodisationsfunktion gezeigt. Diese gibt an, wie die Leistung aus der Pupillenebene auf die Referenzkugel abgebildet wird.

2.30). Das Beugungsintegral (4.1) stellt eine integrale Darstellung der skalaren Helmholtz-Gleichung dar und beschreibt das Feld in der Fokusebene als Interferenz von Elementarwellen, die selbst Lösungen der Helmholtz-Gleichung sind. Das vektorielle Fokusfeld kann demnach erhalten werden, indem für jede Polarisationsrichtung je ein skalares Beugungsintegral unter Beachtung der Polarisation auf der Referenzkugel (4.2) ausgeführt wird. Abbildung (4.6) zeigt die derart berechnete Intensitätsverteilung in der Fokusebene für alle drei Polarisationsrichtungen sowie die vollständige Vektorintensität für die größte im Rahmen der Arbeit berücksichtigte numerische Apertur $NA = 1,2$ bei der Wellenlänge $\lambda = 780 \text{ nm}$. Es wurde angenommen, dass die Eingangsapertur der Fokussieroptik mit einer homogenen, ebenen Welle beleuchtet wurde. Dies entspricht dem üblichen experimentellen Vorgehen, wobei die Eingangsapertur zum Ausnutzen der vollständigen numerischen Apertur der Fokussieroptik deutlich überstrahlt wird. Das dazu meist notwendige Aufweiten des Laserstrahles reduziert zusätzlich mögliche Phasenfehler über den Strahlquerschnitt. Es ist möglich beliebige andere Eingangsstrahlen mit beliebigen Intensitäts- und Phasenprofilen bei der Fokussierung zu berücksichtigen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde allerdings ausschließlich die Fokussierung homogener, ebener Wellen in Betracht gezogen, da dies die experimentellen Bedingungen am besten nachempfundenet.

Deutlich ist in Abbildung (4.6) die xy -Asymmetrie für das in x -Richtung polarisierte Fokusfeld

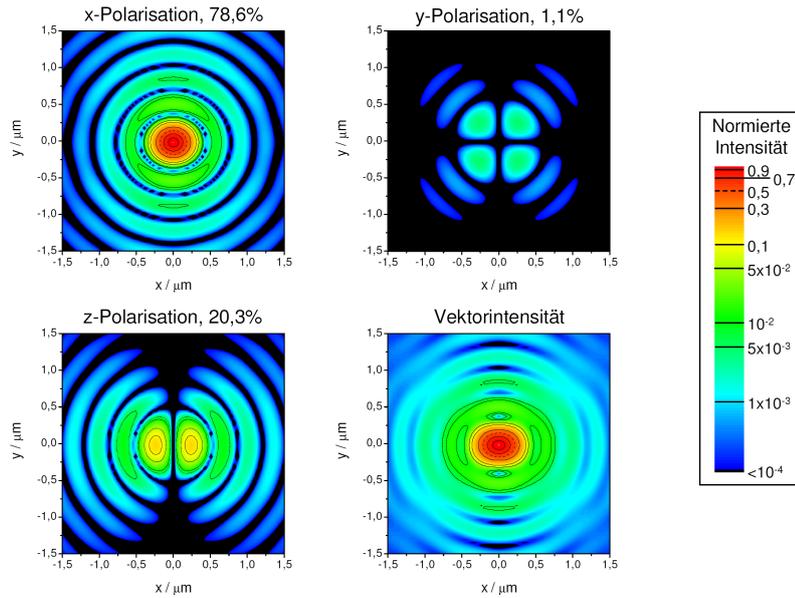


Abbildung 4.6: Intensitätsverteilung in der Fokusebene für alle Polarisationsrichtungen und die Vektorintensität bei einer numerischen Apertur $NA = 1,2$ und einer Wellenlänge $\lambda = 780 \text{ nm}$. Die Ausdehnung des Fokus ist als gestrichelte Isokonturlinie bei der halben normierten Intensität angegeben. Die Isokonturlinien befinden sich bei $I = (5 \times 10^{-3}; 1 \times 10^{-2}; 5 \times 10^{-2}; 0,1; 0,3; 0,5; 0,7; 0,9) I_0$.

zu erkennen. Diese ist dadurch bedingt, dass in x -Richtung für große Winkel θ Leistung in die z -Polarisation übertragen wird, was in y -Richtung nicht geschieht (siehe Abb. 4.5). Eine noch deutlicher ausgeprägte Asymmetrie zeigt sich für das in z -Richtung polarisierte Fokusfeld. Die Intensitätsverteilung ist hauptsächlich in x -Richtung ausgeprägt und weist einen Doppelfokus mit einer Nullstelle auf der optischen Achse auf. Dies ist einfach an Hand der in Abbildung (4.3) eingezeichneten Vektorzerlegung des Polarisationsvektors auf der Referenzkugel für große Fokussierungswinkel zu erklären. Es ist deutlich zu erkennen, dass die z -Polarisation in den $+x$ - und $-x$ -Hemisphären auf der Referenzkugel gegenphasig ist. Daher muss das z -polarisierte Fokusfeld auf der optischen Achse destruktiv interferieren, was eine Nullstelle zur Folge hat. Das gleiche gilt für die y -Polarisation; in jeweils gegenüber liegenden Quadranten ist die Polarisation um eine Phase π verschoben. Das y -polarisierte Fokusfeld interferiert daher ebenfalls destruktiv auf der optischen Achse. Die bei hoher numerischer Apertur und unter Berücksichtigung des Vektorcharakters des elektrischen Feldes auftretenden Asymmetrien sind der Grund dafür, dass in dieser Arbeit kein kreissymmetrisches Schema zur Beschreibung des propagierenden Feldes benutzt werden konnte. Unter Berücksichtigung der vollständigen Vektorintensität $I_{ges} \sim |\vec{E}|^2 = |E_x|^2 + |E_y|^2 + |E_z|^2$ nimmt die Ausdehnung der Intensitätsverteilung im Fokus in x -Richtung um etwa 30 % im Vergleich zur Anwendung eines skalaren Beugungsintegrals zu.

Für hohe numerische Apertur existieren beim Einsatz von Ringaperturen Ansätze, das z -polarisierte Feld durch Verwenden radial-polarisierter Strahlen konstruktiv auf der optischen Achse interferieren zu lassen [Qua00, Dor03]. Dadurch kann sich die transversale Ausdehnung der Intensitätsverteilung im Fokus verkleinern. Andererseits ist zu bedenken, dass eine Ringapertur Fokusfelder sehr ähnlich den Bessel-Strahlen mit axial sehr großer Ausdehnung erzeugt. Zur minimalinvasiven Strukturierung von Materialien und zum Schneiden im Inneren von Zellen ist ein in alle Richtungen möglichst kleiner Fokus besser geeignet.

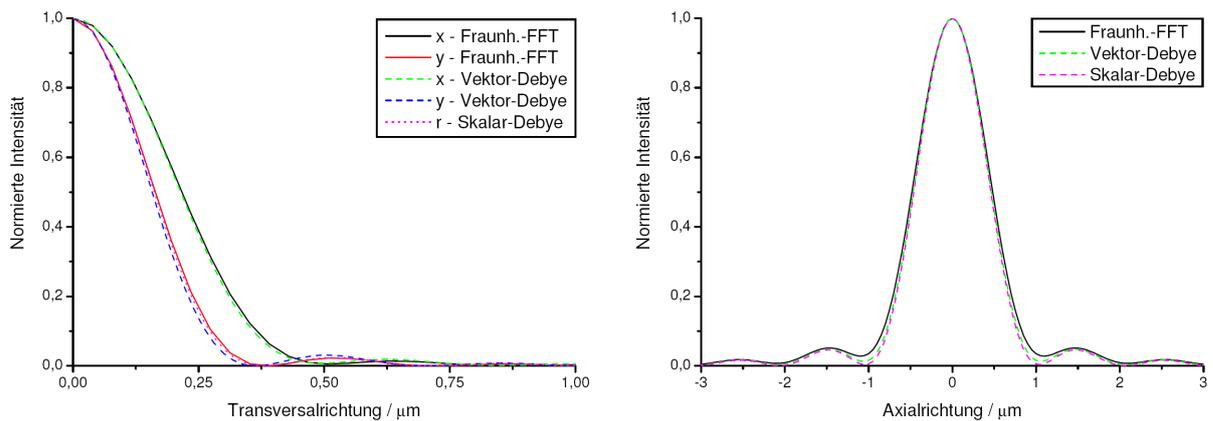


Abbildung 4.7: Vergleich der skalaren und vektoriellen Debye-Theorie [Wol59, Ric59, Sta86, Gu00] mit dem im Rahmen dieser Arbeit benutzten Beugungsintegral (4.1) für $NA = 1,2$ und $\lambda = 780 \text{ nm}$. Der Vergleich ist links an Hand der transversalen Breite der Intensitätsverteilung in der Fokusebene gezeigt, rechts an Hand der axialen Größe des Fokus.

Als Alternativen zu Ausdruck (4.1) zur Berechnung des elektrischen Feldes in der Fokusebene stehen die skalare und vektorielle Debye-Theorie zur Verfügung [Wol59, Ric59, Sta86, Gu00]. Abbildung (4.7) zeigt einen Vergleich dieser beiden Theorien mit dem im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Ausdruck (4.1) an Hand der transversalen und axialen Intensitätsverteilung im Fokus für eine numerische Apertur $NA = 1,2$. Wenn gravierende Unterschiede zwischen den verschiedenen Ansätzen bestehen, sollte dies für die größte berücksichtigte NA am deutlichsten zu Tage treten. Es ist zu erkennen, dass die kreissymmetrische skalare Debye-Theorie nur als Näherung für die y -Richtung der Intensitätsverteilung in der Fokusebene geeignet ist. In x -Richtung wird die Fokusgröße dagegen im Vergleich zu den vektoriellen Ansätzen deutlich zu schmal beschrieben, weil der Beitrag des axial polarisierten Feldes nicht berücksichtigt ist. Die vektorielle Debye-Theorie erzielt in beide Transversalrichtungen sehr gute Übereinstimmung mit dem in dieser Arbeit verwendeten Fresnel-Kirchhoff-Beugungsintegral im Fraunhofer-Regime. Die Abweichungen in der Halbwertsbreite der fokalen Intensitätsverteilung liegen in x -Richtung bei

etwa 1,4% und in y -Richtung bei 3,8%. In axialer Richtung stimmen alle verglichenen Theorien ebenfalls sehr gut überein; die Abweichung in der Halbwertsbreite beträgt lediglich 2,8%. Es ist zu beachten, dass die Theorien verschiedenen Ansätzen folgen und zur besseren Lösbarkeit der Integrale jeweils unterschiedliche, vereinfachende Annahmen getroffen wurden. Daher ist eine Abweichung der Breite der fokalen Intensitätsverteilung im Bereich weniger Prozent in alle drei Raumrichtungen als sehr gute Übereinstimmung und Bestätigung der hier verwendeten Beugungstheorie zu werten.

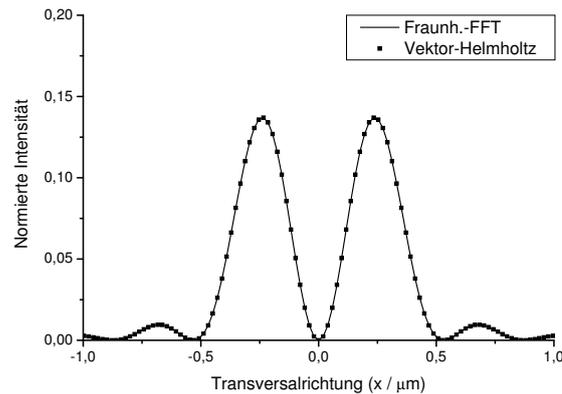


Abbildung 4.8: Gezeigt ist die Intensität des z -polarisierten Feldes in der Fokusebene in x -Richtung ($y = 0$). Der durchgezogene Verlauf wurde berechnet durch Auswerten des Beugungsintegrals (4.1) für die z -Polarisation. Der gepunktete Verlauf wurde aus der in Abschnitt 2.2.2 hergeleiteten Beziehung (2.33) für die Vektor-Helmholtz-Gleichung berechnet.

Die Gültigkeit des Beugungsintegrals (4.1) wurde des Weiteren durch direkten Vergleich mit der Vektor-Helmholtz-Gleichung evaluiert. In Abschnitt 2.2.2 wurde in Form von Ausdruck (2.33) gezeigt, dass die in z -Richtung polarisierte Feldamplitude aus den in x - und y -Richtung polarisierten Anteilen berechnet werden kann. Abbildung (4.8) zeigt die z -polarisierte Intensität in der Fokusebene berechnet durch Auswerten des Beugungsintegrals (4.1) (durchgezogen) im Vergleich zur Berechnung nach Ausdruck (2.33) aus den x - und y -polarisierten Anteilen in der Fokusebene (gepunktet). Es ist deutlich zu erkennen, dass die Kurven deckungsgleich verlaufen. Dies bestätigt, dass das Auswerten des verwendeten Beugungsintegrals (4.1) für jede Polarisationsrichtung einer exakten vektoriellen Lösung der Vektor-Helmholtz-Gleichung in der Fokusebene entspricht.

Das Fresnel-Kirchhoff-Beugungsintegral (4.1) wurde im Rahmen dieser Arbeit vektoriell gelöst und zur Berechnung der Anfangsbedingungen für die nichtlinearen Modellierungen benutzt. Wie in Abbildung (4.8) gezeigt wurde, erzeugt es eine exakte Lösung der Vektor-Helmholtz-Gleichung,

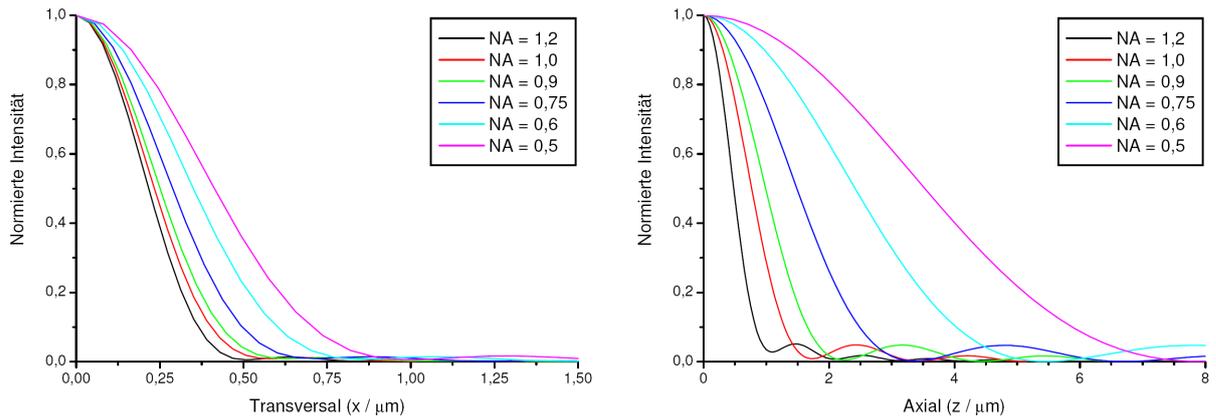


Abbildung 4.9: Die linke Seite zeigt die transversalen Intensitätsverteilungen in der Fokusebene in x -Richtung ($y = 0$) für die im Rahmen der Arbeit berücksichtigten numerischen Aperturen bei $\lambda = 780 \text{ nm}$; die rechte Seite zeigt die Intensitätsverteilungen in longitudinaler Richtung ($x = 0, y = 0$).

auf der auch die für die Modellierungen verwendete unidirektionale Propagationsgleichung (2.54) basiert, in der Fokusebene. Das nach Ausdruck (4.1) in x -Richtung polarisierte Feld in der Fokusebene dient jeweils als Anfangsbedingung für die nichtlinearen Modellierungen, die in Kapitel 5 geschildert sind. Das z -polarisierte Feld kann an jeder Stelle der nichtlinearen Rechnung durch Ausdruck (2.33) berechnet werden. Das y -polarisierte Feld wird bei der Modellierung vernachlässigt, weil sein relativer Anteil stets klein ist, wie Abbildung (4.4) zeigt. Für die Modellierungen sollen numerische Aperturen mittlerer bis hoher NA berücksichtigt werden. Nach den Ausführungen in diesem Kapitel und in Kapitel 2 ist klar, dass im gesamten berücksichtigten Bereich $0,5 \leq NA \leq 1,2$ nichtparaxiale und vektorielle Theorien absolut notwendig sind. Abbildung (4.9) zeigt die für die Modellierungen zu Grunde gelegten Intensitätsverteilungen im Fokus in x -Richtung ($y = 0, z = 0$) und in z -Richtung ($x = 0, y = 0$). Besonders auf der rechten Seite von Abbildung (4.9) ist zu erkennen, dass mit den in Betracht gezogenen numerischen Aperturen ein sehr weiter Bereich abgedeckt wird. Die longitudinale Ausdehnung des Fokus skaliert deutlich sichtbar mit $1/NA^2$, wodurch das Fokusvolumen für geringe numerische Apertur schnell zunimmt. In transversaler Richtung skaliert die Fokusgröße lediglich mit $1/NA$, wodurch die Breite der Intensitätsverteilung in der Fokusebene nicht so deutlich variiert wie entlang der Achse.

Abbildung (4.10) zeigt zweidimensionale fokale Intensitätsverteilungen in der xz - und yz -Ansicht für einige der bei den Modellierungen berücksichtigten numerischen Aperturen. Für $NA = 1,2$ und $NA = 0,9$ ist deutlich die Asymmetrie in transversaler Richtung zu erkennen, die durch

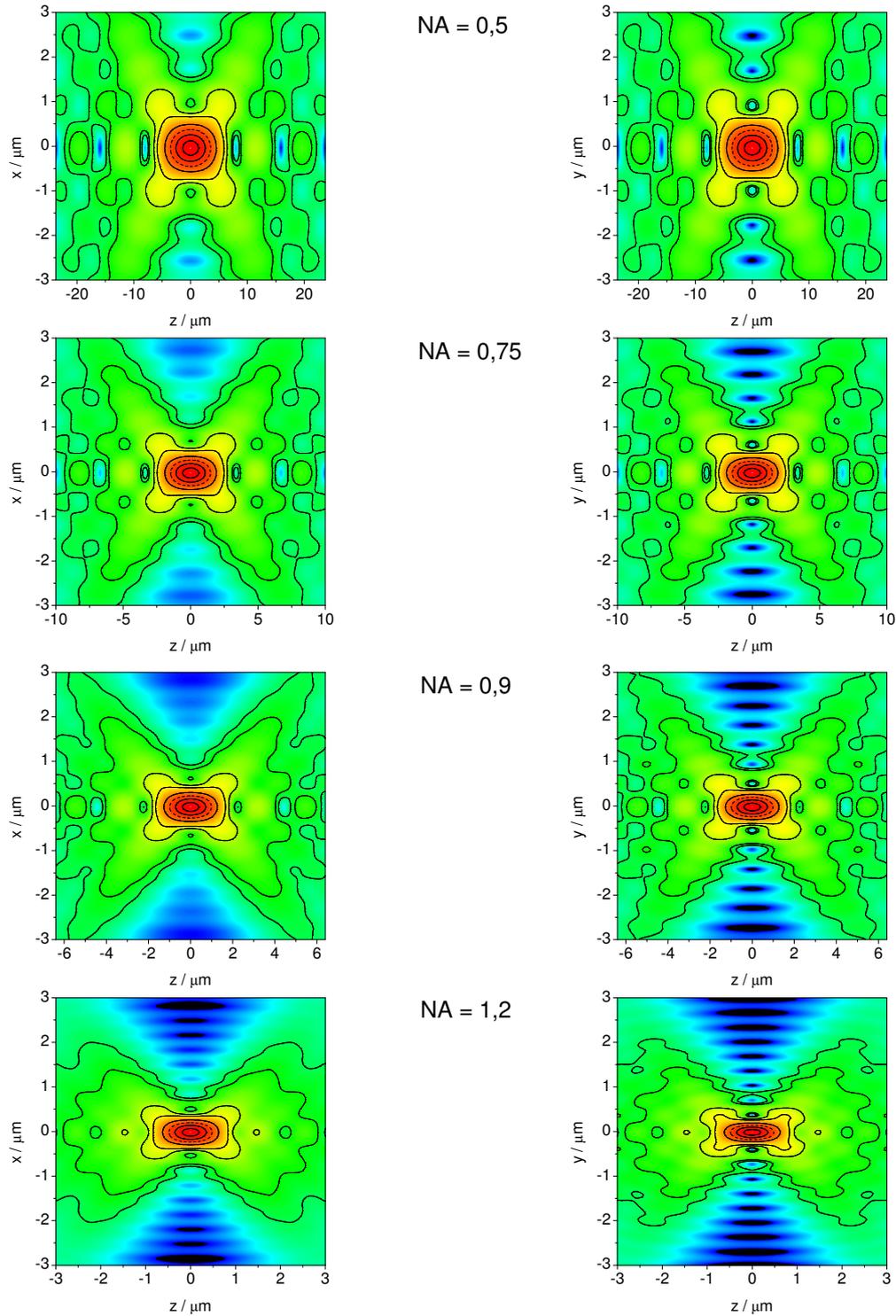


Abbildung 4.10: Zweidimensionale Konturendarstellungen der fokalen Intensitätsverteilung für unterschiedliche numerische Apertur bei $\lambda = 780 \text{ nm}$. Die Isokonturlinien befinden sich bei $I = (5 \times 10^{-3}; 10^{-2}; 5 \times 10^{-2}; 0,1; 0,3; 0,5; 0,7; 0,9) I_0$. Eine einheitliche Skalierung der Achsen ist wegen des deutlich größeren Fokus bei $NA = 0,5$ nur in transversaler Richtung möglich.

das z -polarisierte Feld verursacht wird. Für die beiden geringeren dargestellten numerischen Aperturen ist der Effekt nicht so stark ausgeprägt, weil der relative longitudinal polarisierte Anteil schnell abnimmt beim Verringern der NA.

Die Feldverteilung im Fokus als Anfangsbedingung für die Modellierung der nichtlinearen Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit transparenten Materialien wurde in dieser Arbeit für die Zentralwellenlänge $\lambda_0 = 780$ nm der ultrakurzen Laserpulse berechnet. Bei der hauptsächlich für die Modellierungen in Betracht gezogenen Pulsdauer von $\tau = 150$ fs (FWHM) beträgt die spektrale Halbwertsbreite etwa 6 nm. Dieses Spektrum ist ausreichend schmal, um in Bezug auf die Berechnung des Fokusfeldes in guter Näherung als monochromatisch angenommen zu werden. Für deutlich kürzere Pulsdauer jedoch kann das Spektrum so breit werden, dass eine spektrale Berechnung des Fokusfeldes notwendig wird. In diesem Fall muss das Beugungsintegral (4.1) für die einzelnen Frequenzkomponenten des ultrakurzen Pulses ausgeführt werden, die dann im Fokus wiederum kohärent aufsummiert werden [Fuc05]. Beim Fokussieren extrem kurzer Pulse kann eine ganze Reihe von Effekten auftreten, die das Erzielen eines kleinen Fokus deutlich erschweren. Die kürzeren Wellenlängen im Pulsspektrum werden besser fokussiert als die längeren; dies hat eine nicht homogene spektrale Verteilung über die Fokusebene zur Folge und damit eine ortsabhängige Variation der Pulsdauer [Gu00]. Liegt zusätzlich chromatische Aberration vor, verschiebt sich die Fokusebene für verschiedene spektrale Komponenten. Des Weiteren verursacht Dispersion in den Glaskomponenten der Fokussieroptik eine Zunahme der Pulsdauer, die abhängig von den verwendeten Gläsern und Linsen zudem örtlich inhomogen sein kann und daher nicht durch Induzieren eines entgegengesetzten Chirps zu kompensieren ist. Unterschiedlich lange Glaswege in einer Fokussieroptik können zudem zu Pulsfrontverzerrungen führen, die zur Folge haben, dass Anteile, die in der Fokussieroptik unterschiedliche Wege zurückgelegt haben, nicht zur gleichen Zeit den Fokus erreichen. Gleichzeitig wurde allerdings gezeigt, dass die meisten zuvor beschriebenen Effekte durch die Benutzung von Fokussieroptiken, die keine chromatische Aberration aufweisen, wie übliche Mikroskopobjektive, vermieden werden können [Bor89, Bor92, Hor93, Hor01, Fuc05]. Das relativ schmale Spektrum, der im Rahmen dieser Arbeit berücksichtigten Pulsdauern, sowie die Annahme von vielfach korrigierten Mikroskopobjektiven als Fokussieroptik macht eine spektrale Berechnung der Fokusfelder nicht notwendig.

5 Modellierung von Durchbruchplasmen bei hoher numerischer Apertur

In diesem Kapitel werden die in den vorherigen drei Kapiteln beschriebenen Theorien mit dem Ziel zusammengeführt, die Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit einem transparenten Material bei Fokussierung unter hoher numerischer Apertur zu modellieren. Die nichtlineare Propagation wird durch die in Kapitel 2 unter Berücksichtigung der notwendigen nichtparaxialen und vektoriellen Effekte entwickelte, unidirektionale Propagationsgleichung (2.54) beschrieben. In Kapitel 3 wurde unter Annahme des Drude-Modells zur Beschreibung teilweise ionisierter Dielektrika sowie des modifizierten MRE-Modells (3.22) zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisation die Suszeptibilität (3.23), die bei der Herleitung von Gleichung (2.54) zunächst als $\chi_{fe}(\rho, \omega)$ unbestimmt geblieben war, als nichtlineare Antwort des Materials entwickelt. Die Propagation nach Gleichung (2.54) und die Berechnung der freien Elektronen nach (3.22) müssen in jedem Schritt alternierend numerisch gelöst werden. Die Fokusfelder, die bei den Rechnungen als Anfangsbedingungen dienen, wurden mit Hilfe der in Kapitel 4 eingeführten nichtparaxialen und vektoriellen Beugungstheorie berechnet.

Das im Rahmen dieser Arbeit entwickelte theoretische Model wird eingesetzt, um die Erzeugung des optischen Durchbruchs in Wasser durch ultrakurze Laserpulse im Bereich mittlerer bis hoher numerischer Apertur ($0,5 \leq NA \leq 1,2$) zu untersuchen. Die Plasmaerzeugung wird dabei erstmals im Bereich numerischer Apertur $NA > 0,5$ in einem ganzheitlichen Ansatz, unter Berücksichtigung der nichtlinearen Ausbreitung und der Wechselwirkung des Pulses mit dem erzeugten Plasma, untersucht. Bisherige Ansätze waren stets durch die Benutzung paraxialer Theorien in ihrer Gültigkeit auf kleine Fokussierungswinkel begrenzt [Sud02, Liu03, Cou05, Bur07]. Modellierungen der Plasmaerzeugung bei starker Fokussierung konnten nur unter Vernachlässigung der Ausbreitung erfolgen [Vog05]. Da alle aus dem optischen Durchbruch resultierenden thermischen und mechanischen Effekte eine direkte Folge der Erzeugung eines ausreichend dichten Plasmas sind, ist die Kenntnis über Form, Größe, Dichte und Energie der

erzeugten Plasmen essentiell für das Verständnis der erzielten Manipulation und die auftretenden Nebeneffekte. So bestimmen Größe und Dichte des Plasmas dessen Energie, wodurch wiederum der Grad der Erwärmung und die Größe der erzeugten Kavitationsblase bestimmt werden. Im Vordergrund steht die Fragestellung, in wie fern die Erzeugung des optischen Durchbruchs beeinflusst ist von nichtlinearen Begleiteffekten wie Streifenbildung [Sud02, Cou05, Arn05], die eine Beeinträchtigung der experimentell erzielbaren Präzision zur Folge haben.

Als Grundlage der Modellierungen wurden experimentelle Bedingungen nachempfunden, wie sie üblicherweise bei der Zellchirurgie mit ultrakurzen Pulsen vorgefunden werden. Dabei wurden transform-limitierte, zeitlich Gaußförmige Pulse mit einer Pulsdauer von 150 fs (FWHM) bei einer Zentralwellenlänge $\lambda = 780$ nm angenommen, wie sie von gängigen modengekoppelten Titan:Saphir-Lasersystemen emittiert werden. Für die größte in Betracht gezogene numerische Apertur $NA = 1,2$ wurde eine Pulsenergie von lediglich $E_{Th} = 2,23$ nJ als ausreichend zum Induzieren eines optischen Durchbruchs festgestellt. Das Auftreten eines optischen Durchbruchs wurde mit der Erzeugung eines Plasmas der Dichte $\rho_{Bd} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ assoziiert. Die gefundene Pulsenergie ist in guter Übereinstimmung mit der von Heisterkamp et al. experimentell erhaltenen Schwellenergie von 2,2 nJ unter Benutzung eines Öl-Immersions-Objektives mit $NA = 1,4$, Wellenlänge $\lambda = 790$ nm und einer Pulsdauer von 200–250 fs in der Probe [Hei05b].

Abbildung (5.1) zeigt Konturenglyphen von berechneten Durchbruchplasmen bei unterschiedlicher numerischer Apertur ($0,5 \leq NA \leq 1,2$). Die erzeugenden Pulse wurden von der linken Seite eingestrahlt; der geometrische Fokus befindet sich bei $z = 0$. Die Pulsenergie wurde jeweils 5% über der Schwelle zum optischen Durchbruch gewählt. Bereiche, in denen die mit dem Auftreten eines optischen Durchbruchs assoziierte Dichte erzeugter freier Elektronen $\rho_{Bd} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ überschritten wurde, sind weiß gekennzeichnet. Für die geringste in Betracht gezogene numerische Apertur $NA = 0,5$ ist deutlich zu erkennen, dass das erzeugte Plasma eine ausgeprägte Asymmetrie entlang der Ausbreitungsrichtung aufweist. Die höchste Plasmadichte wird deutlich vor Erreichen des geometrischen Fokus bei $z = 0$ erzeugt. Das Areal hoher Plasmadichte ist umgeben vom einem Bereich geringerer Plasmadichte, der sich bis deutlich über den geometrischen Fokus hinaus erstreckt und dessen Abmessungen groß gegen alle bei höherer NA erzeugten Plasmen sind. Diese als Streifenbildung (Streak Formation) bezeichnete Art der Verzerrung erzeugter Plasmen ist bekannt aus vorherigen Simulationen der Plasmadichte bei geringer numerischer Apertur in der Kornea [Arn05], sowie in Quarzglas [Sud02, Cou05, Bur07]. In der Kornea ist der Effekt als mögliche Beeinträchtigung erzeugter Schnitte bei der Evaluation der fs-Technologie in der refraktiven Chirurgie des Auges festgestellt worden [Hei02] und auch in Quarzglas konnte die

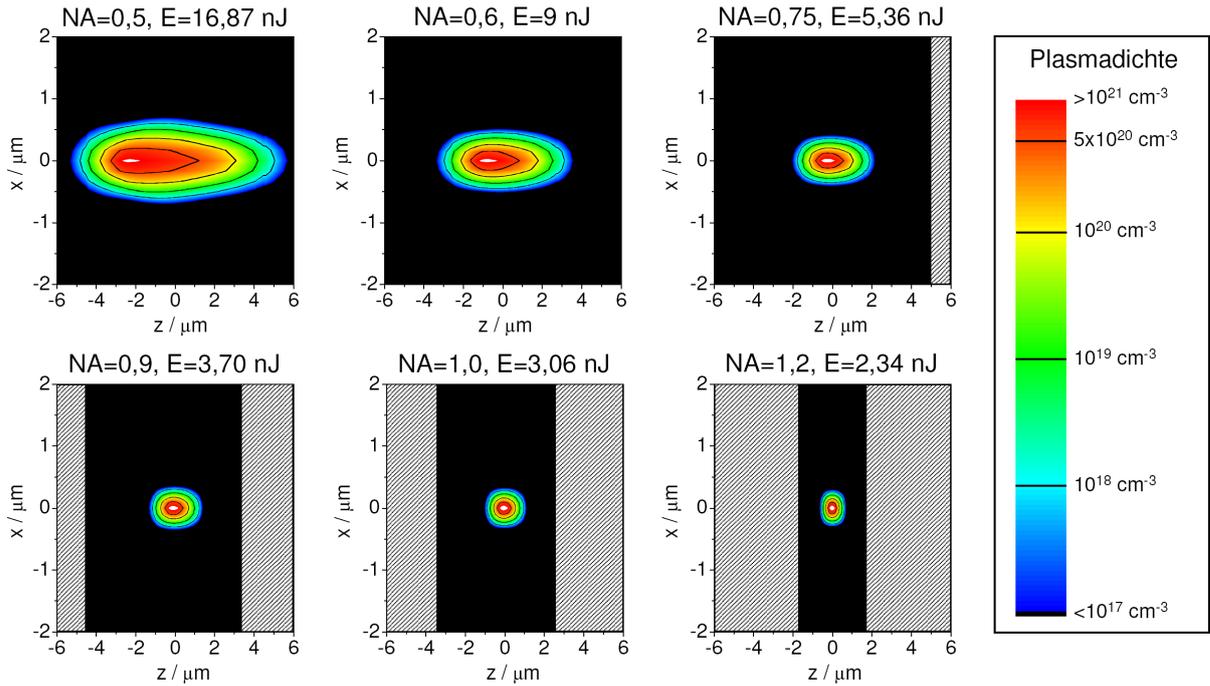


Abbildung 5.1: Gezeigt sind Konturegraphen erzeugter Durchbruchplasmen in zx -Ansicht bei unterschiedlicher numerischer Apertur. Die erzeugenden Pulse wurden jeweils von links eingestrahlt; der geometrische Fokus befindet sich bei $z = 0$. Die Pulsenergie ist 5% über der Schwelle zum optischen Durchbruch gewählt. Die weißen Bereiche zeigen Gebiete, in denen die Durchbruchplasmadichte $\rho_{Bd} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ überschritten wurde, die Konturenlinien markieren die Dichten $\rho = 10^{19}, 10^{20}, 5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$. Die Größe der Berechnungsfelder skalieren mit der numerischen Apertur; Bereiche außerhalb des jeweiligen Feldes sind schraffiert dargestellt.

asymmetrisch verlängerte Struktur erzeugter Modifikationen experimentell nachgewiesen werden [Sud01, Pou03, Mer06]. Der Effekt der Streifenbildung konnte in einer früheren Arbeit bereits hauptsächlich auf Plasmadefokussierung zurückgeführt werden [Arn05]. Die nichtlineare Plasmaerzeugung erfolgt zeitlich asymmetrisch über das Pulsprofil. Während der vorderen Pulshälfte werden freie Elektronen hauptsächlich durch Multiphotonen-Ionisation erzeugt, die Plasmadichte ist gering und Plasmadefokussierung ist kaum ausgeprägt. In der hinteren Pulshälfte wird durch Einsetzen von Kaskadenionisation die Plasmadichte schnell vervielfacht. Die zweite Hälfte des erzeugenden Pulses wird deswegen viel stärker von Plasmadefokussierung beeinflusst. Diese zeitlich stark asymmetrische Wechselwirkung des erzeugenden Pulses mit dem Plasma hat eine ausgeprägte räumliche Asymmetrie des erzeugten Plasmas zur Folge, wie es in Abbildung (5.1) für die niedrigen in Betracht gezogenen numerischen Aperturen deutlich zu erkennen ist. Nachdem die höchste Plasmadichte deutlich vor Erreichen des geometrischen Fokus erzeugt wurde, ist die hintere Pulshälfte bereits überwiegend defokussiert und trägt kaum mehr zur Ionisation bei. Die vordere Pulshälfte propagiert fast unbeeinflusst in Richtung des geometrischen Fokus weiter und

darüber hinaus und erzeugt dabei den länglichen Bereich geringer Plasmadichte. Somit ist die Streifenbildung eine Folge der zeitlich asymmetrischen Wechselwirkung des erzeugenden Pulses mit dem Plasma [Arn05].

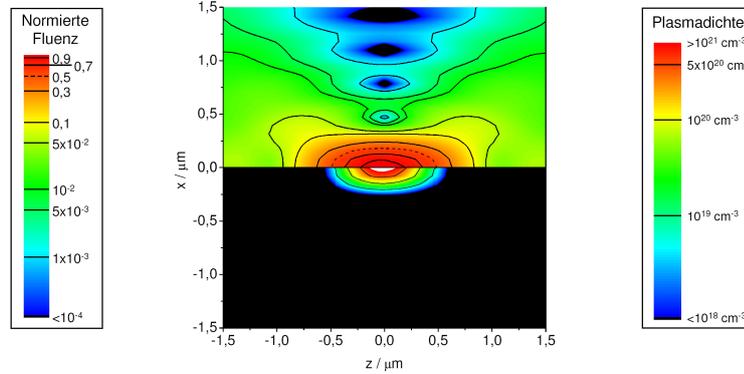


Abbildung 5.2: Gezeigt sind die Konturegraphen der Fluenz (oben) des erzeugenden Pulses im Vergleich zum erzeugten Plasma (unten) bei Fokussierung unter numerischer Apertur $NA = 1,2$ und Pulsenergie $E = 2,34 \text{ nJ}$.

Wie aus Abbildung (5.1) ebenfalls zu erkennen ist, nimmt der störende Einfluss der Plasmadefokussierung bei stärkerer Fokussierung ab. So ist für numerische Apertur $NA \geq 0,9$ keine ausgeprägte Asymmetrie der erzeugten Plasmen mehr festzustellen [Arn07]. Die höchste Plasmadichte wird an der Stelle des geometrischen Fokus erreicht und das gesamte Plasma ist jeweils in alle drei Raumrichtungen auf einen Bereich kleiner als die Halbwertsbreite der fokalen Intensitätsverteilung begrenzt (siehe Abb. 5.2). Für die höchste berücksichtigte numerische Apertur $NA = 1,2$ sind die Abmessungen des erzeugten Plasmas in x -, bzw. y -Richtung deutlich im Sub-Mikrometerbereich und in axialer Richtung in etwa ein Mikrometer. Wird die Konturenlinie bei einer Dichte erzeugter freier Elektronen von 10^{19} cm^{-3} als Begrenzung des Plasmas aufgefasst, hat das ionisierte Volumen lediglich eine Größe von etwa $V_{Plasma} = 0,07 \mu\text{m}^3$. Der Grund dafür, dass sich der störende Effekt der Plasmadefokussierung bei hoher numerischer Apertur kaum bemerkbar macht, ist in der Länge eines erzeugten Plasmas zu suchen. Der Brechungsindex des Plasmas ist deutlich geringer als der des übrigen Materials; das hat eine Beschleunigung der Phase auf der optischen Achse zur Folge, wodurch die Phasenfront entgegen der Ausbreitungsrichtung gekrümmt wird. Dies führt zum beobachteten Effekt des Plasmadefokussierens. Da die mit dem optischen Durchbruch assoziierte Dichte freier Elektronen ρ_{Bd} für alle berücksichtigten Fokussierungswinkel gleich ist, wirkt sich Plasmadefokussierung unterschiedlich stark in Abhängigkeit der Länge der Plasmen aus. Die Länge der Plasmen wiederum skaliert mit der Fokussierung und ist für hohe numerische Apertur am geringsten.

Abbildung (5.3) zeigt die Schwellenergie zum Induzieren des optischen Durchbruchs aufgetragen gegen die numerische Apertur. Es ist eine allgemein vereinfachende Annahme, dass der optische Durchbruch auf die Fokusebene begrenzt sei und dass weder Plasmadefokussierung noch andere störende Effekte auftreten. Diese Annahme ist zwar formal nur für Oberflächen gültig, wird häufig aber auch für die Erzeugung des optischen Durchbruchs im Inneren transparenter Materialien benutzt. Die zum optischen Durchbruch führende Fluenz ist dann konstant, unabhängig von der Fokussierung. Für $\lambda = 780 \text{ nm}$ und eine Pulsdauer 150 fs (FWHM) beträgt die Schwellfluenz etwa $F_{Th} = 1,25 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ (siehe Abb. 3.5). Abbildung (5.3) zeigt deutlich, dass die Vereinfachung (rot eingezeichnet) für hohe numerische Apertur in guter Näherung gültig ist, jedoch bei schwächerer Fokussierung deutlich zu niedrige Pulsenergien vorhersagt. Für $NA = 0,5$ liegt die tatsächlich zum Erzielen des optischen Durchbruchs benötigte Pulsenergie fast doppelt so hoch und für $NA = 0,3$ beträgt sie bereits ein Vielfaches. Für die beobachteten Abweichungen existieren zwei

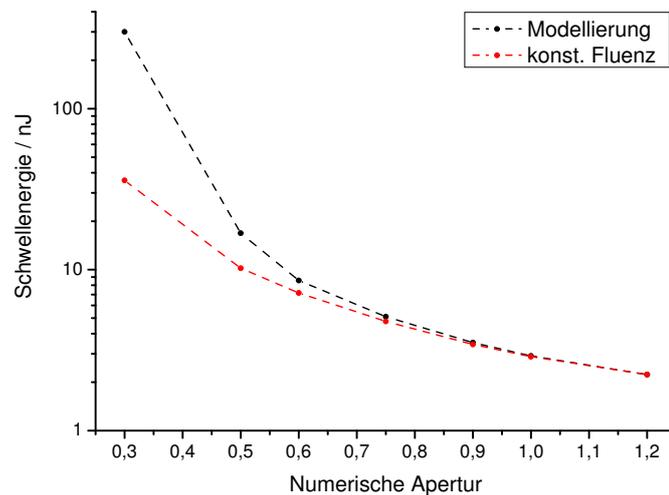


Abbildung 5.3: Schwellenergie berechnet durch vollständige Modellierung im Vergleich zur Annahme konstanter Fluenz in der Fokusebene. Die Verbindungslinien sind lediglich als Sichthilfe gedacht.

Gründe. Zunächst muss, um der Plasmadefokussierung entgegen zu wirken, mehr Pulsenergie aufgebracht werden. Zusätzlich kann die Schwelle zum optischen Durchbruch nicht alleine von der transversalen Fokusgröße abhängen, sondern die mit $1/NA^2$ wachsende axiale Ausdehnung des Fokus bei abnehmender Fokussierung muss ebenfalls in Betracht gezogen werden. Daher muss die Annahme konstanter Fluenz in der Fokusebene bei geringer numerischer Apertur scheitern, weil die axial längliche Form des Fokusvolumens außer Acht gelassen wird und damit die zusätzliche Energie, die benötigt wird, das Fokusvolumen vor und hinter der Fokusebene

zu ionisieren. Dies ist in Abbildung (5.3) deutlich für den Bereich $NA < 0,9$ zu erkennen. Für den optischen Durchbruch erzeugt an Oberflächen dagegen, wenn das Plasma nur als Schicht, deutlich dünner als die Wellenlänge erzeugt wird [Pen05, Sar06], liefert die Annahme konstanter Fluenz verlässliche Ergebnisse.

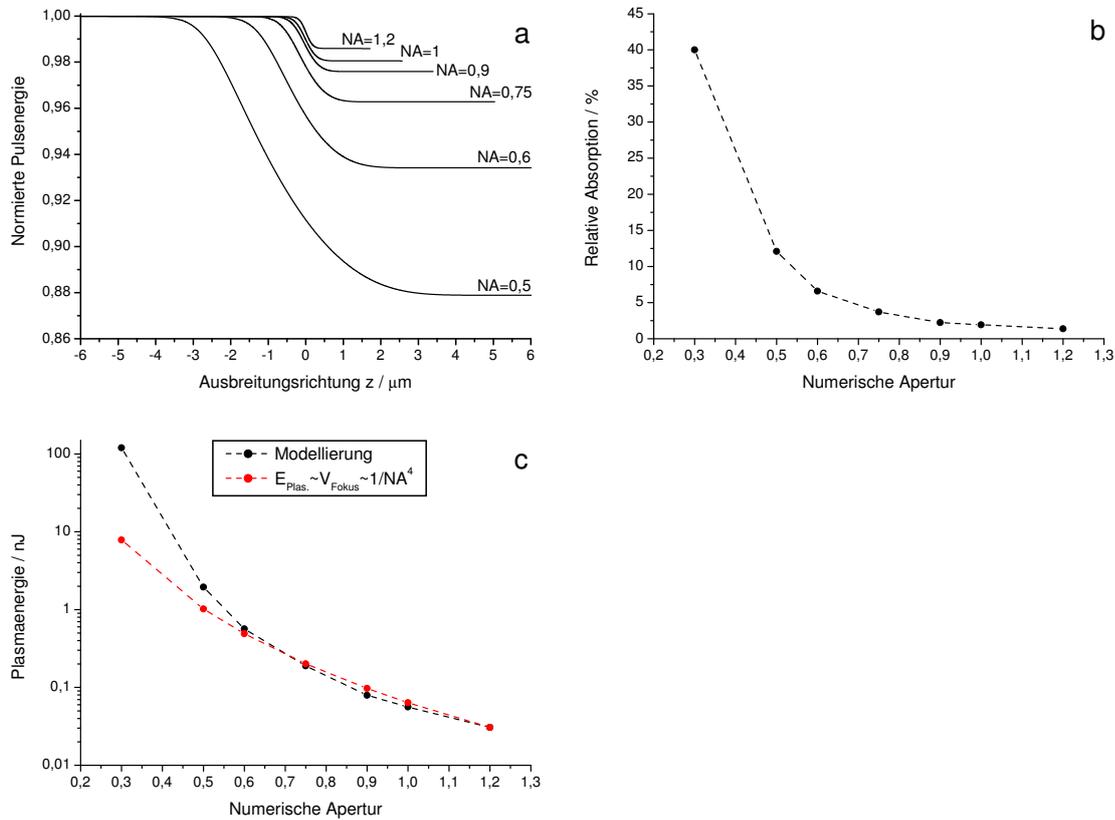


Abbildung 5.4: Graph a zeigt die Entwicklung der normierten Pulsenergie entlang der Propagation durch den Fokus für unterschiedliche numerische Apertur. In Graph b ist die relative absorbierte Pulsenergie in Prozent in Abhängigkeit der NA aufgetragen und in Graph c schließlich ist in schwarz die absolute ins Plasma eingebrachte Energie in Nanojoule gezeichnet. Zum Vergleich ist eine Approximation der Plasmaenergie aus der Volumenzunahme des Fokus in rot eingezeichnet ($E_{Plas.} \sim V_{Fokus} \sim 1/NA^4$). Die Verbindungslinien sind als Sichthilfe gedacht.

Dass die Abmessungen erzeugter Plasmen bei abnehmender Fokussierung nicht nur transversal, sondern auch axial zunehmen, macht sich nicht nur durch eine erhöhte Schwellpulsenergie E_{Th} bemerkbar, sondern auch dadurch, dass der relative Anteil absorbiertes Pulsenergie zunimmt (siehe Abb. 5.4a). Werden für eine numerische Apertur $NA = 1,2$ an der Schwelle zum Durchbruch nur etwa 1,4 % der eingestrahlten Pulsenergie absorbiert und im Fokusvolumen in Form des Plasmas deponiert, sind es für $NA = 0,5$ bereits ca. 12,1 % wie in Abbildung (5.4b) zu erkennen ist. Daraus resultiert ein um etwa den Faktor 60 energiereicheres Plasma bei $NA = 0,5$ im

Vergleich zu $NA = 1,2$ an der Schwelle zum optischen Durchbruch. Die für $NA = 0,3$ erhaltene relative Absorption von ca. 40 % der eingestrahnten Pulsenergie ist in guter Übereinstimmung mit experimentell erhaltenen Werten bei schwacher Fokussierung [Noa99]. Die insgesamt in das erzeugte Plasma eingebrachte Energie skaliert grob mit dem Fokusvolumen ($E_{Plas.} \sim V_{Fokus} \sim 1/NA^4$), was in Abbildung (5.4c) in Form der roten Kurve angedeutet ist. Streifenbildung und die daraus resultierende Asymmetrie verursachen darüber hinaus eine zusätzliche Vergrößerung des Plasmas für numerische Apertur $NA < 0,75$, was eine höhere Plasmaenergie zur Folge hat. Dies ist in Abbildung (5.4c) in schwarz eingezeichnet. Dass die Größe und Energie der erzeugten Plasmen für numerische Apertur $NA < 0,75$ schneller wächst als das Fokusvolumen ist direkte Folge von Plasmadefokussierung und der dadurch bedingten Streifenbildung.

Wellenlängenabhängigkeit

Bei den in der Materialbearbeitung und Zellchirurgie mit Abstand am weitesten verbreiteten Ultrakurzpuls-Lasersystemen handelt es sich um modengekoppelte Titan:Saphir-Laser, die Pulse bei einer Wellenlänge von etwa $\lambda = 780 - 800$ nm emittieren. Die im Rahmen dieser Arbeit angenommene Pulsdauer von 150 fs (FWHM) ist ebenfalls typisch für Lasersysteme dieser Art. Wegen des außerordentlich breiten Verstärkungsprofils sind auf Basis von Titan:Saphir als Lasermaterial Pulsdauern bis unter 5 fs möglich [Bin06]. Der Einsatz solch kurzer Pulse in der Materialbearbeitung ist jedoch nicht empfehlenswert. Dispersionseffekte sowohl in der fokussierenden Optik als auch dem zu bearbeitenden Material stellen ein großes Hindernis dar, was Auswirkungen auf die effektive Pulsdauer im Fokus aber auch auf die Größe des erzeugten Fokus selbst hat [Bor89, Bor92, Hor93, Hor01, Fuc05]. Zusätzlich zur Wellenlänge $\lambda = 780$ nm sind im Rahmen dieser Arbeit drei weitere Wellenlängen untersucht worden, die für Mikromaterialbearbeitung oder Zellchirurgie in Frage kommen. Die Wellenlänge $\lambda = 700$ nm wurde als untere Grenze des Durchstimmbereiches modengekoppelter Titan:Saphir-Laser berücksichtigt. Die Ordnung des Multiphotonen-Prozesses zur Initialisierung der nichtlinearen Plasmaerzeugung in Wasser verringert sich dadurch von 5 Photonen für $\lambda = 780$ nm auf 4 Photonen. Des Weiteren wurde $\lambda = 1040$ nm als Zentralwellenlänge einer neuen Klasse von Ultrakurzpuls-Lasersystemen auf Basis von Ytterbium:Wolframaten berücksichtigt. Im Gegensatz zu Titan:Saphir-Lasern kann dieses Material direkt mit Laserdioden gepumpt werden, wodurch deutlich kompaktere und sparsamere Laserquellen realisierbar sind. Da das Verstärkungsprofil deutlich schmaler als bei Titan:Saphir ist, ist die emittierte Pulsdauer dieser Lasersysteme

üblicherweise etwas länger, im Bereich 300 – 500 fs. Zur besseren Vergleichbarkeit mit den anderen Wellenlängen ist trotzdem eine Pulsdauer von 150 fs (FWHM) angenommen worden. Die letzte in dieser Arbeit in Betracht gezogene Wellenlänge ist mit $\lambda = 520$ nm die erste Harmonische Ytterbium:Wolframat-basierter Ultrakurzpuls-Lasersysteme. Die erste Harmonische des Titan:Saphir-Lasers wurde dagegen nicht berücksichtigt, weil die Absorption biologischer Proben bei $\lambda = 390$ nm bereits deutlich ausgeprägt ist und eine rein nichtlineare Wechselwirkung dadurch nicht gewährleistet ist. Abschließend ist zu sagen, dass seit einigen Jahren durch Einsatz optisch-parametrischer Verstärker ultrakurze Pulse in einem weiten Spektralbereich zwischen UV und Infrarot erzeugt werden können.

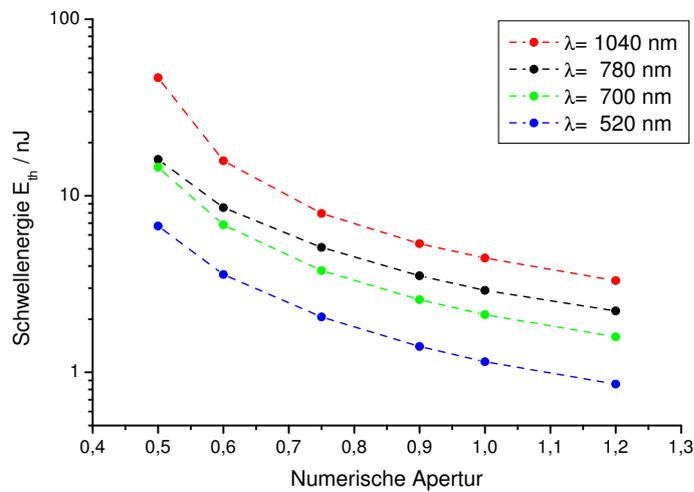


Abbildung 5.5: Schwellenergie zum optischen Durchbruch für die im Rahmen der Arbeit untersuchten Wellenlängen bei Pulsdauer 150 fs (FWHM) aufgetragen gegen die numerische Apertur. Die Verbindungslinien sind als Sichthilfe gedacht.

Abbildung (5.5) zeigt die zum Induzieren eines optischen Durchbruchs benötigte Pulsenergie aufgetragen gegen die numerische Apertur für die vier im Rahmen der Arbeit untersuchten Wellenlängen. Für $\lambda = 520$ nm wird die Schwelle allgemein bei der geringsten Pulsenergie erreicht. Dies liegt vor allem daran, dass der Fokus für die geringste Wellenlänge am kleinsten ist ($V_{Fokus} \sim \lambda^3$); des Weiteren wird die nichtlineare Ionisation bereits durch einen 3-Photonen-Prozess initialisiert. Daher wird für die größte untersuchte numerische Apertur $NA = 1,2$ bei $\lambda = 520$ nm und Pulsdauer 150 fs (FWHM) der optische Durchbruch bereits für eine Pulsenergie unter einem Nanojoule erreicht. Für $\lambda = 700$ nm liegt die Schwellenergie im untersuchten Bereich ebenfalls niedriger als bei $\lambda = 780$ nm. Für die kleinste untersuchte numerischen Apertur $NA = 0,5$ wirkt sich Plasmadefokussierung stärker als beispielsweise für $\lambda = 780$ nm, so dass die

Schwellenergien fast gleich sind. Das gleiche ist für $\lambda = 1040$ nm der Fall, was sich durch einen steilen Anstieg der Pulsenergie bei $NA = 0,5$ bemerkbar macht. Im restlichen Bereich liegen die Schwellenergien für $\lambda = 1040$ nm geringfügig über denen für $\lambda = 780$ nm, was hauptsächlich Folge der größeren Abmessungen des Fokus ist.

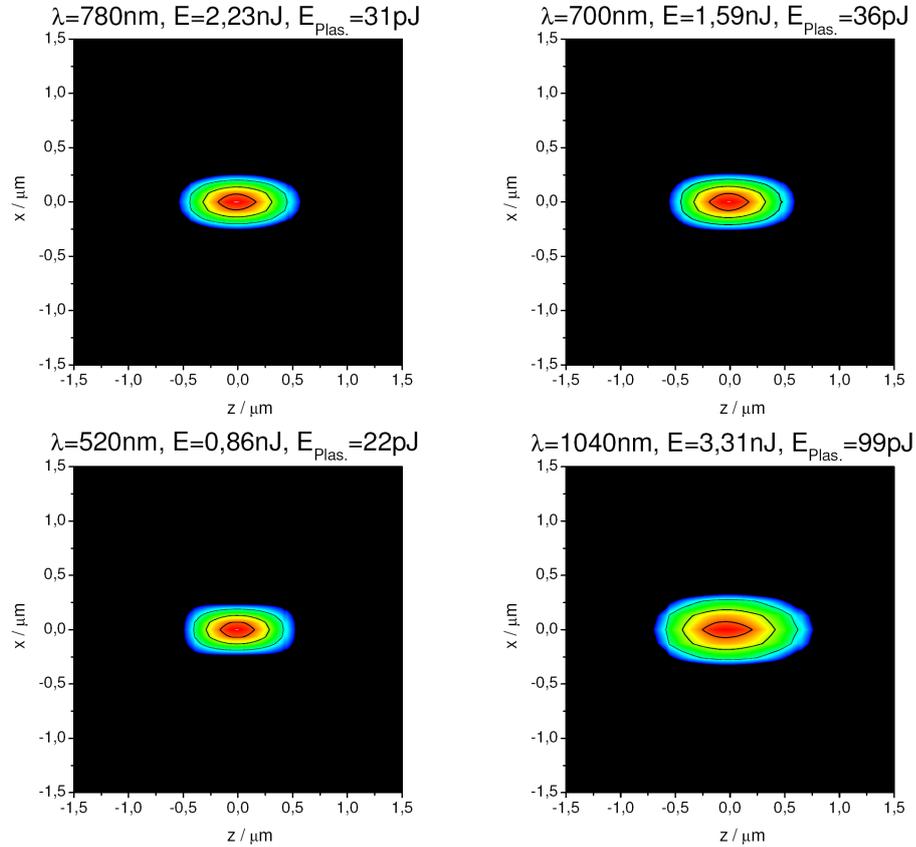


Abbildung 5.6: Konturenglyphen erzeugter Plasmen in der zx -Ansicht für eine numerische Apertur $NA = 1,2$ an der Schwelle zum optischen Durchbruch für vier unterschiedliche Wellenlängen im Vergleich. Die Konturenlinien kennzeichnen die Plasmadichten $\rho = 10^{19}, 10^{20}, 5 \times 10^{20} \text{ cm}^{-3}$.

Abbildung (5.6) zeigt für eine numerische Apertur $NA = 1,2$ bei unterschiedlicher Wellenlänge erzeugte Plasmen in der zx -Ansicht an der Schwelle zum optischen Durchbruch. Obwohl für $\lambda = 700$ nm die Schwellenergie $E_{Th}^{700\text{nm}} = 1,59$ nJ im Vergleich zu $\lambda = 780$ nm mit $E_{Th}^{780\text{nm}} = 2,23$ nJ deutlich niedriger liegt, hat das erzeugte Plasma in etwa die gleichen Abmessungen und die in das Plasma eingebrachte Energie ist sogar etwas größer $E_{Plasma}^{700\text{nm}} = 36$ pJ im Vergleich zu $E_{Plasma}^{780\text{nm}} = 31$ pJ. Für die niedrigste in dieser Arbeit berücksichtigte Wellenlänge $\lambda = 520$ nm dagegen ist das erzeugte Plasma im Vergleich zu den anderen Wellenlängen kleiner und seine Energie beträgt nur $E_{Plasma}^{520\text{nm}} = 22$ pJ. Dies resultiert vor allem aus der deutlich kleineren Fokusgröße im Vergleich zu den anderen berücksichtigten Wellenlängen. Dieser Unterschied

ist besonders ausgeprägt im Vergleich zur größten untersuchten Wellenlänge $\lambda = 1040$ nm; die Spotgröße im Fokus beträgt das Vierfache und das Fokusvolumen das Achtfache im Vergleich zu $\lambda = 520$ nm. Auch durch die deutlich höhere Ordnung des Multiphotonen-Prozesses für $\lambda = 1040$ nm, der die nichtlineare Ionisation initialisiert, kann der erhebliche Unterschied in den Abmessungen des Fokus nicht ausgeglichen werden. Das bei $\lambda = 1040$ nm an der Schwelle zum optischen Durchbruch erzeugte Plasma ist in seinen Abmessungen deutlich größer als für alle anderen berücksichtigten Wellenlängen. Des Weiteren ist die in das Plasma eingebrachte Energie mit $E_{Plasma}^{1040\text{ nm}} = 99$ pJ mit Abstand am größten. Im Vergleich zu den anderen Wellenlängen bedeutet dies für $\lambda = 1040$ nm die größte Wechselwirkungszone, die am wenigsten schonend eingebrachte Materialmodifikation und damit verbunden die geringste erzielbare Genauigkeit.

Pulsdauerabhängigkeit

Bisher wurde in dieser Arbeit die Erzeugung von Durchbruchplasmen nur für eine einheitliche Pulsdauer von 150 fs (FWHM) untersucht. Für die Wellenlänge $\lambda = 780$ nm sollen hier auch andere Pulsdauern in Betracht gezogen werden. Das in dieser Arbeit benutzte modifizierte MRE-Model (3.22) zur Beschreibung der nichtlinearen Ionisation sagt eine anwachsende Schwellfluenz bei steigender Pulsdauer voraus, wie es in Abbildung (3.5) gezeigt wurde. Dort zu beobachtende Abweichungen von dieser Regel für die Wellenlängen $\lambda = 700$ nm und $\lambda = 1040$ nm bei niedrigen Pulsdauern wurden in Kapitel 3 als Besonderheit der Keldysh-Theorie, die zur Beschreibung der nichtlinearen Photoionisation benutzt wurde, identifiziert und stellen keine generelle Einschränkung der zuvor geäußerten Aussage dar. Wenn die nichtlineare Ionisation unabhängig von der Ausbreitung der erzeugenden Pulse ist, wie beispielsweise beim optischen Durchbruch an Oberflächen, kann der in Abbildung (3.5) gezeigte Verlauf der Schwellfluenz gegen die Pulsdauer auch experimentell beobachtet werden [Stu96, Loe96, Len98, Tie99, Kim01, Gig07]. Wenn die nichtlineare Ionisation dagegen nicht unabhängig von der Ausbreitung der erzeugenden Pulse ist, wie es beim optischen Durchbruch im Inneren von transparenten Materialien der Fall ist, kann eine Abweichung von der zuvor beschriebenen Pulsdauerabhängigkeit erwartet werden. Abbildung (5.7) zeigt die Schwellenergie für die geringste berücksichtigte numerische Apertur $NA = 0,5$ berechnet nach dem vollständigen Wechselwirkungsmodell aufgetragen gegen die Pulsdauer. Die durchgezogene Linie dagegen zeigt die Pulsdauerabhängigkeit, wie sie ohne Propagationseffekte, allein unter Benutzung des modifizierten MRE-Modells (3.22) verlief; die Kurve wurde an Hand der Schwelle für $\tau = 150$ fs geeicht. Die Kurven unterscheiden sich sehr deutlich voneinander. Für

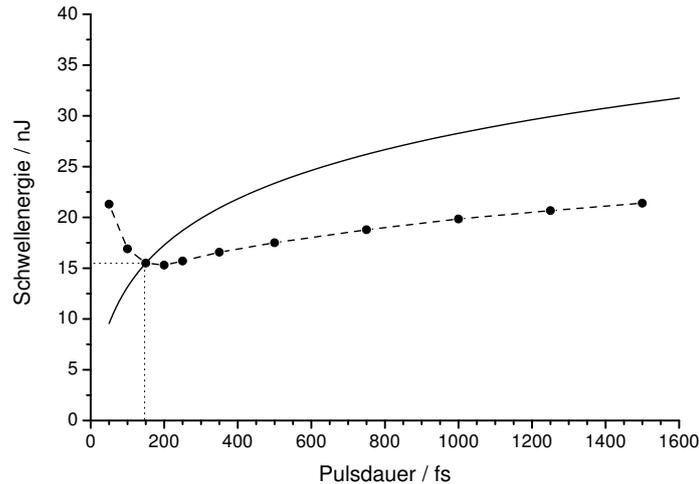


Abbildung 5.7: Schwellenergie zum optischen Durchbruch für die Wellenlänge $\lambda = 780 \text{ nm}$ aufgetragen gegen die Pulsdauer bei Fokussierung unter einer numerischen Apertur $NA = 0,5$. Die durchgezogene Linie kennzeichnet den Verlauf der Schwellenergie ohne Berücksichtigung der Pulspropagation, wie es bei der Erzeugung optischer Durchbrüche an Oberflächen der Fall wäre.

steigende Pulsdauer steigt die zum Induzieren eines optischen Durchbruchs benötigte Pulsenergie viel geringer als unter Vernachlässigung der Ausbreitung und für kürzere Pulsdauer steigt die Schwellenergie steil an, wogegen unter alleiniger Benutzung des MRE-Modells für kurze Pulsdauer ein steiler Abfall auftritt.

Der Grund für die drastisch unterschiedlichen Verläufe der Schwellenergie ist in der für $NA = 0,5$ ausgeprägt auftretenden Plasmadefokussierung zu suchen. Diese wurde zuvor als der hauptsächlichste störende nichtlineare Begleiteffekt identifiziert, der die Erzeugung optischer Durchbruchplasmen erschwert und die notwendige Pulsenergie erhöht. Gleichzeitig wurde diskutiert, dass Plasmadefokussierung zeitlich asymmetrisch wirkt und sich hauptsächlich während der hinteren Pulshälfte, wenn die Plasmadichte durch Kaskadenionisation schnell vervielfacht wird, auswirkt [Arn05]. Der Zeitpunkt, zu dem, gemessen am zeitlichen Pulsprofil, die Kaskadenionisation tatsächlich einsetzt und damit Plasmadefokussierung verstärkt auftritt, hängt von der Pulsdauer ab. Das Einsetzen der Kaskadenionisation zu relativ späterem Zeitpunkt für längere Pulsdauer ist deutlich in Abbildung (5.8) zu erkennen; daher wird für längere Pulse prozentual weniger Pulsenergie defokussiert. Der störende Effekt der Plasmadefokussierung wirkt sich also bei der Erzeugung optischer Durchbrüche im Inneren transparenter Materialien für längere Pulse weniger störend aus. Dies resultiert in dem in Abbildung (5.7) gezeigten Verlauf der Schwellenergie in Abhängigkeit der Pulsdauer. Besonders für sehr kurze Pulse tritt Plasmadefokussierung deutlich

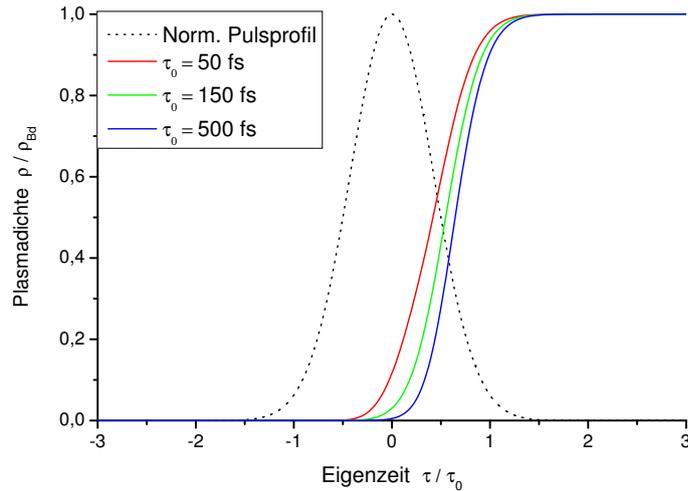


Abbildung 5.8: Gezeigt ist die Entwicklung der normierten Plasmadichte ρ/ρ_{Bd} in jeweils der normierten Eigenzeit von Pulsen unterschiedlicher Pulsdauer an der Schwelle zum optischen Durchbruch. Die gestrichelte Kurve deutet das zeitliche Intensitätsprofil der erzeugenden Pulse an.

zu Tage und verursacht den unterhalb einer Pulsdauer von $\tau = 150$ fs beobachteten steilen Anstieg der Schwellenergie. Es ist hier zu erwähnen, dass das vorgestellte numerische Model bei einer Pulsdauer von $\tau = 50$ fs an seine Grenzen stößt, da bestimmte Zeitabhängigkeiten zur Erhöhung der Durchlaufgeschwindigkeit vernachlässigt wurden. Es ist allerdings nicht zu erwarten, dass eine Berücksichtigung der entsprechenden Zeitabhängigkeiten den in Abbildung (5.7) gezeigten Verlauf der Schwellenergie gravierend ändert.

Auch experimentell sind Hinweise darauf gefunden worden, dass unter Benutzung längerer Pulsdauern das Erzeugen eines optischen Durchbruchs im Inneren transparenter Materialien schonender sein kann [Bur07]. Burakov et al. haben experimentell gezeigt, dass es bei Benutzung einer numerischen Apertur $NA = 0,45$ mit einer Pulsdauer von 2 ps möglich war, in Quarzglas deutlich kleinere Modifikationen zu erzeugen als dies mit einer Pulsdauer von 120 fs möglich war. Dies weist darauf hin, dass für die längere Pulsdauer von 2 ps die Abmessungen des erzeugten Plasmas kleiner waren, die in das Plasma insgesamt eingebrachte Energie geringer und daher die erzielte Modifikation besser lokalisiert und schonender erfolgte.

6 Diskussion und Ausblick

Bei der vorgelegten Arbeit handelt es sich um die erste Untersuchung der Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit transparenten Materialien bei hoher numerischer Apertur unter Berücksichtigung des Zusammenwirkens von Plasmaerzeugung und nichtlinearer Propagation. Das Ziel war besonders das zum optischen Durchbruch führende Plasma in Form, Größe und Dichte zu beschreiben, sowie zu bestimmen, in wie fern die Plasmaerzeugung von nichtlinearen Ausbreitungseffekten beeinflusst ist. Unter Berücksichtigung von Nichtparaxialität und Vektoreffekten konnte eine unidirektionale Propagationsgleichung für ultrakurze Pulse gefunden werden, die die Propagation mit der Plasmaerzeugung koppelt. Im Gegensatz zu üblichen nichtlinearen Propagationsgleichungen ist die vorgestellte Gleichung nicht auf den Gültigkeitsbereich der skalaren und paraxialen Näherungen begrenzt. Die nichtlineare Ionisation des Materials wurde nach dem MRE-Modell (Multi Rate Equation) berechnet, das im Gegensatz zum einfacheren, gewöhnlich verwendeten Drude-Modell die Dynamik der Energieverteilung im Leitungsband berücksichtigt. Es handelt sich um die erste Studie, bei der das MRE-Modell simultan mit einer nichtlinearen Schrödinger-Gleichung gelöst wird. Des Weiteren wurde besonderer Wert auf möglichst realistische Anfangsbedingungen für die Modellierungen gelegt. Dazu wurde das Fokusfeld durch Auswerten eines vektoriiellen und nichtparaxialen Beugungsintegrals berechnet. Für experimentell eingesetzte, vielfach korrigierte Mikroskopobjektive, die Foki sehr nah am theoretischen Beugungslimit erzeugen, kann nur ein solches Vorgehen realistische Anfangsbedingungen liefern. Das vorgestellte Modell wurde eingesetzt, um die Erzeugung von Durchbruchplasmen im Bereich mittlerer bis hoher numerischer Apertur $0,5 \leq NA \leq 1,2$ unter Benutzung von Wasser als Modellmedium zu simuliert. Dabei wurden mit einer Pulsdauer von $\tau = 150$ fs (FWHM) und einer Zentralwellenlänge $\lambda = 780$ nm übliche experimentelle Bedingungen, wie sie bei der Zellchirurgie basierend auf einem Titan-Saphir Ultrakurzpuls-Laser vorgefunden werden, gewählt. Die zentrale Fragestellung war dabei, ob Bedingungen gefunden werden können, unter denen die Erzeugung des Durchbruchplasmas unabhängig von störenden nichtlinearen Effekten erzielt werden kann. Als solche störenden Effekte kommen Selbstfokussierung und durch Plasmadefo-

kussierung bedingte Streifenbildung in Frage. Dabei ist der Einfluss der Selbstfokussierung im gesamten untersuchten Parameterbereich gering. Dies liegt vor allem daran, dass selbst bei der geringsten in Betracht gezogenen numerischen Apertur $NA = 0,5$ die Pulsspitzenleistung an der Schwelle zum optischen Durchbruch klein gegen die kritische Leistung für Selbstfokussierung ist. Für die Plasmadefokussierung konnte dagegen gezeigt werden, dass ihr Effekt auch bei hoher numerischer Apertur eine Rolle spielt. Es wurden räumlich deutlich verzerrte Plasmen bis zu einer numerischen Apertur $NA < 0,9$ beobachtet. Dass der störende Einfluss der Plasmadefokussierung bei zunehmender numerischer Apertur abnimmt, ist leicht dadurch zu erklären, dass der Fokus und damit auch das erzeugte Plasma entlang der Ausbreitungsrichtung kürzer werden. Die Plasmadefokussierung ist die Folge einer durch den verringerten Brechungsindex des Plasmas induzierten Phasenbeschleunigung auf der Strahlachse; die Phasenfronten werden entgegen der Ausbreitung gekrümmt, Defokussierung tritt ein. Dieser Effekt wirkt sich für die kürzeste Wechselwirkungsstrecke am geringsten aus. Dementsprechend konnte gezeigt werden, dass es für eine numerische Apertur $NA \geq 0,9$ möglich ist, unverzerrte Durchbruchplasmen mit Abmessungen unterhalb der jeweiligen Fokusgröße zu erzeugen.

Dass für hohe numerische Apertur das Plasma nur im unmittelbaren Fokus erzeugt wird, offenbart sich auch dadurch, dass die zur Erzeugung des Plasmas aufgewandte Energie klein gegen die Pulsenergie ist. So werden beispielsweise für eine $NA = 1,2$ an der Schwelle zum optischen Durchbruch nur etwa 1,4 % der Pulsenergie absorbiert; dies entspricht nur etwa einer Energiemenge von 31 pJ. Für $NA = 0,5$ dagegen werden 12,1 % zur Erzeugung des Plasmas aufgewandt, was einer Energie von 1,94 nJ und damit etwa dem 60-fachen entspricht. Vogel et al. haben durch numerisches Lösen eines thermodynamischen Modells die Konversionseffizienz von im Fokus deponierter Energie zur Energie der Kavitationsblase als $E_{Plas.}/E_{Kav.} \approx 0,032\%$ bestimmt [Vog05]. Für das vorangegangene Beispiel mit $NA = 1,2$ entspricht dies einer Energie der Kavitationsblase von etwa 10 fJ. Wenn einige der Annahmen von Vogel et al. übernommen werden, lässt sich ein maximaler Radius der Kavitationsblase von $R_{max} = 300 - 400$ nm abschätzen. Dadurch kann eine Dissektionsgenauigkeit im Submikrometerbereich, wie experimentell berichtet, bestätigt werden. Es muss bedacht werden, dass mit dem Durchbruchkriterium von $\rho_{Bd} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ freien Elektronen ein zwar anerkanntes, aber synthetisches Kriterium benutzt wurde. Vogel et al. haben auf Grund ihres thermodynamischen Modells eine niedrigere Dichte von $\rho = 0,24 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ als ausreichend zum Induzieren eines optischen Durchbruchs mit Kavitationsblase gefunden [Vog05]. Hier muss allerdings berücksichtigt werden, dass ein solches Modell eine ganze Reihe notwendiger Annahmen beinhaltet; besonders die Umrechnung der Dichte freier

Elektronen in eine Temperaturverteilung ist kritisch, weil die zu Grunde liegenden Effekte nicht verstanden sind. Wird trotzdem für einen Moment $\rho = 0,24 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ als Durchbruchskriterium angenommen, folgt daraus ein maximaler Kavitationsblasendurchmesser von $D_{max} \approx 400 \text{ nm}$. Dies ist relativ nah an der von Heisterkamp et al. experimentell in biologischen Zellen gefundenen Schnittbreite von 240 nm [Hei05b]. Des Weiteren ist zu beachten, dass durch die Annahme der optischen linearen und nichtlinearen sowie der thermischen Eigenschaften von Wasser als Modellmedium höchstwahrscheinlich Unterschiede zu realem Gewebe oder Zytoplasma bestehen. So ist beispielsweise anzunehmen, dass eine Kavitationsblase gleicher Energie in einem viskoelastischen Material wie Gewebe oder Zytoplasma kleiner ist als in Wasser [Vog05].

Für alle modellierten numerischen Aperturen wurden Durchbruchsschwellen bestimmt. Für eine Pulsdauer von $\tau = 150 \text{ fs}$ (FWHM) und eine Zentralwellenlänge von $\lambda = 780 \text{ nm}$ wurden Pulsenergien im Bereich von $E_{th} \approx 2,23 \text{ nJ}$ für $NA = 1,2$ und $E_{th} \approx 16,07 \text{ nJ}$ für $NA = 0,5$ gefunden. Die Schwelle für $NA = 1,2$ zeigt dabei eine gute Übereinstimmung mit der von Heisterkamp et al. gefundenen Pulsenergie in biologischen Zellen von $E_{Th} = 2,2 \text{ nJ}$ bei einer Pulsdauer von $200 - 250 \text{ fs}$, einer Wellenlänge $\lambda = 790 \text{ nm}$ und einer numerischen Apertur der Fokussieroptik von $NA = 1,4$ [Hei05b]. Wie es zu erwarten war, liegen die Schwellen für die beiden kürzeren in Betracht gezogenen Wellenlängen $\lambda = 700 \text{ nm}$ und $\lambda = 520 \text{ nm}$ niedriger, für die längere Wellenlänge $\lambda = 1040 \text{ nm}$ höher als bei $\lambda = 780 \text{ nm}$. Der Grund dafür ist zunächst in der Fokusgröße, die mit dem Quadrat der Wellenlänge skaliert, zu suchen. Des Weiteren ist die Multiphotonen-Ionisationsrate höher, je geringer die Ordnung des Multiphotonen-Prozesses ist [Kel65a]. Andererseits nimmt die Kaskadenionisationsrate mit ansteigender Wellenlänge stark zu [DeM69, Blo74]. Dies führt insgesamt dazu, dass zwar die Schwelle für die Pulsenergie bei $\lambda = 1040 \text{ nm}$ am größten ist, aber wiederum die Schwelle bezogen auf die Fluenz geringer ist als etwa bei $\lambda = 780 \text{ nm}$. Ein Vergleich der vier in Betracht gezogenen Wellenlängen zeigte, dass bei numerischer Apertur $NA = 1,2$ an der Schwelle zum optischen Durchbruch das kleinste Plasma mit der geringsten darin deponierten Energie für $\lambda = 520 \text{ nm}$ erzeugt wurde, was experimentell der schonendsten Bearbeitung mit der größten Genauigkeit entspricht. Bei $\lambda = 1040 \text{ nm}$ ist das erzeugte Plasma dagegen mehr als viermal so energiereich und der optische Durchbruch erfolgt mit deutlicher ausgeprägten mechanischen Effekten. Es konnte gezeigt werden, dass der Effekt der Plasmadefokussierung, der bei geringer numerischer Apertur die Erzeugung von Durchbruchplasmen erheblich erschwert, deutlich abhängig von der Pulsdauer ist. So kann es bei schwacher Fokussierung unter bestimmten Umständen vorteilhaft sein, längere Pulse zu benutzen. Experimentell stellt sich der Vergleich schwierig dar, weil Messungen der

Pulsdauerabhängigkeit des optischen Durchbruchs normalerweise an Oberflächen durchgeführt werden [Du96, Stu96, Len98, Tie99, Kim01, Gig07], wobei Ausbreitungseffekte keine Rolle spielen. Burakov et al. konnten allerdings zeigen, dass im Inneren von Quarzglas bei $NA = 0,45$ und einer Pulsdauer von 2 ps Modifikationen mit kleineren Abmessungen erzeugt werden konnten, als dies mit einer Pulsdauer von 120 fs möglich war [Bur07].

Zu den numerisch gefundenen Schwellen ist abschließend noch anzumerken, dass natürlich die Ergebnisse jedweder Modellierung von den im Modell verwendeten Parametern geprägt sind. Alle Simulationen der nichtlinearen Plasmaerzeugung leiden darunter, dass die Wahrscheinlichkeiten der verschiedenen Ionisationsprozesse nicht genau bekannt sind. In Ermangelung einer Stoßionisationswahrscheinlichkeit für freie Elektronen in Wasser musste das für die nichtlineare Ionisation benutzte MRE-Modell abgeändert werden. Die Multiphotonen-Ionisationsraten, die in unterschiedlichen Studien benutzt worden sind, schwanken um mehrere Größenordnungen, und auch die in dieser Arbeit durchgeführte exakte Auswertung der Keldysh-Theorie in Abhängigkeit der Intensität ist kein Garant für die Richtigkeit. Trotz der höchstwahrscheinlich fehlerbehafteten Parameter für die nichtlineare Ionisation stimmen die berechneten Schwellen gut mit dem Experiment überein [Hei05b]. Des Weiteren war das Hauptaugenmerk dieser Arbeit auf das Auftreten nichtlinearer Nebeneffekte gerichtet. Der experimentell störende und die Präzision limitierende Effekt der Plasmadefokussierung tritt erst als Folge eines erzeugten Durchbruchplasmas auf und ist somit kaum von der Erzeugung selbst abhängig.

Die Fokusfelder als Ausgangspunkt für die Modellierungen werden unter Berücksichtigung aller bei hoher numerischer Apertur notwendiger Effekte wie Nichtparaxialität und Depolarisation möglichst realistisch berechnet. Experimentell gesehen beinhalten die so erhaltenen Anfangsbedingungen trotzdem ein gewisses Maß an Idealisierung, weil bei der Berechnung perfekte homogene Wellen mit ebenem Phasenprofil, sowie aberrationsfreie Fokussieroptiken angenommen werden. Andererseits handelt es sich bei Mikroskopobjektiven um vielfach korrigierte Optiken, die tatsächlich annähernd aberrationsfrei fokussieren [Gu00]. Des Weiteren ist es durch Techniken der Modenreinigung und durch deutliches Überstrahlen der Eingangsapertur des Objektivs möglich, ein annähernd homogenes Transversalprofil, sowie eine in guter Näherung ebene Phase zu erzielen. Anhand der idealisierten Bedingungen konnte ein grundsätzliches Verständnis für die Erzeugung des optischen Durchbruchs in Abhängigkeit der numerischen Apertur geschaffen werden. Es konnte klar ein Bereich abgegrenzt werden, in dem es möglich ist, Durchbruchplasmen zu erzeugen, die in ihren Abmessungen kleiner als der jeweilige Fokus sind und eine Dissektion im Submikrometerbereich begünstigen.

Auch wenn idealisierte Anfangsbedingungen benutzt wurden, ist es dennoch möglich, Aberrationen oder andere Abweichungen in Betracht zu ziehen. Ein Vorteil der Benutzung nahinfraroter ultrakurzer Pulse in der Multiphotonen-Mikroskopie und der Zellchirurgie ist die hohe Eindringtiefe der Strahlung in das Probenmaterial. Der dadurch ermöglichte tiefe Einblick in die Probe wird wiederum durch sphärische Aberrationen erschwert, die zunehmen, je weiter die Objektiefe von der Designtiefe des Objektivs abweicht [Gu00]. Sphärische Aberrationen, genauso wie jede andere Art von Aberrationen, können in Form einer Aperturfunktion bei der Auswertung des Beugungsintegrals berücksichtigt werden. So kann die Wechselwirkung auch bei nicht optimalen Bedingungen modelliert werden und Ansätze zur Verbesserung gefunden werden.

Die erzielbare Nähe zwischen Experiment und Modellierung wird in Zukunft noch zunehmen. Es ist ein deutlicher Trend zur aktiven experimentellen Kontrolle des elektrischen Feldes und besonders der Phase zu erkennen [She02, Mar03, Sch04b, Wri05]. Die Kombination aus Shack-Hartmann-Sensor zur räumlichen Vermessung der Phase in Verbindung mit einem aktiven Element wie einem deformierbaren Spiegel oder einem SLM (Spatial Light Modulator) liefert die Möglichkeit einer stets aberrationsfreien Fokussierung. Ein gemessenes oder auch korrigiertes Phasenprofil kann als Ausgangspunkt für die Berechnung der Wechselwirkung im Fokus dienen, oder aber ein auf Grund der Modellierung optimiertes Fokusfeld kann als Ausgangspunkt für die Korrektur des Feldes benutzt werden. Durch die aktive Kontrolle von Amplitude und Phase rückt auch das Konzept der optischen Superauflösung (Super-Resolution) [Boy76, Sal97a, She98, Sal98, Mar02, Bla02, Luo04, Jab06] in den experimentellen Fokus. So ist es möglich, Phasen- oder Amplitudenfunktionen für die Eingangsapertur der Fokussieroptik zu finden, die es erlauben, einen Fokus zu erzeugen, dessen Abmessung kleiner ist als das Beugungslimit bei der jeweiligen numerischen Apertur. Der Fokus kann zwar durch Methoden der Superauflösung nicht beliebig verkleinert werden [Sal97b], dennoch ist eine Verringerung der Breite des zentralen Maximums in transversaler und axialer Richtung um etwa 20% realistisch [Boy76, Sal98]. Bei weiterer Verkleinerung tritt eine deutliche Abnahme des Strehl-Verhältnisses und damit eine deutliche Zunahme der Nebenmaxima ein. Dies wäre beispielsweise beim Schneiden hinderlich, da auch in Bereichen, die sich nicht unmittelbar im Fokus befinden, eine nicht vernachlässigbare Dichte freier Elektronen erzeugt würde. Durch Anwenden von Methoden der Superauflösung auf das vorliegende Modell könnte es möglich sein, geeignete Aperturfilter zu finden, die speziell für die Anwendung des Schneidens optimiert sind.

Aktive optische Elementen können ebenfalls zur Manipulation der spektralen Phase eingesetzt werden [Gar03, Bin06], um beispielsweise eine zeitliche Pulsform zu erzielen, die in besonderer

Weise an die Art der Wechselwirkung angepasst ist. Bei der numerischen Vorhersage einer optimalen zeitlichen Pulsform oder einer optimalen Folge von Pulsen stößt allerdings das heutige, überwiegend phänomenologisch geprägte Verständnis der nichtlinearen Ionisationsprozesse an seine Grenzen.

In Anwendungen der Zellchirurgie mit ultrakurzen Laserpulsen werden üblicherweise zwei unterschiedliche Ansätze zur Erzeugung einer Dissektion unterschieden. Bei der hier in Betracht gezogenen Methode wird durch Einstrahlen von Pulsen bei geringer Repetitionsrate im kHz-Bereich die Dissektion als Einzelpulsereignis oder Summe von Einzelpulsereignissen durch Erzeugen eines optischen Durchbruchs und die darauf folgende kurzlebige Kavitationsblase erzielt. Bei der zweiten Methode wird ein langer Pulszug bei hoher Repetitionsrate von normalerweise 80 MHz und Pulsenergien deutlich unter der Schwelle zum optischen Durchbruch appliziert [Kön01, Smi01, Sup05, Bau07]. Auch mit diesen Parametern ist es möglich, eine Dissektion zu erzielen, diese beruht allerdings nicht auf der Erzeugung eines optischen Durchbruchs, sondern ist durch chemische Dekomposition [Vog05] bedingt. Beide Methoden erzeugen Dissektionen mit vergleichbarer Präzision [Vog05]. Ein Modell der Wechselwirkung bei hoher Repetitionsrate müsste sich eher der chemischen Wirkung freier Elektronen widmen.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine unidirektionale, speziell für den Fall hoher numerischer Apertur angepasste, nichtlineare Propagationsgleichung entwickelt. Diese Gleichung ist in ihrer Anwendbarkeit keineswegs auf den speziellen Fall starker Fokussierung begrenzt, sondern kann durch geringfügige Änderungen auf das gesamte Spektrum der nichtlinearen Wechselwirkung von ultrakurzen Pulsen mit transparenten Materialien wie Flüssigkeiten, Gase und Festkörper angewendet werden. Phänomene, die erst bei hoher Pulsenergie auftreten, wie überkritische Selbstfokussierung, Superkontinuumserzeugung und einfache sowie mehrfache Filamentierung sind bisher kaum unter Benutzung vektorieller Modelle untersucht worden [Kol04].

Literaturverzeichnis

- [Agr79] G. P. Agrawal, D. N. Pattanayak. Gaussian beam propagation beyond the paraxial approximation. *J. Opt. Soc. Am.*, **69**(4):575–578, 1979.
- [Agr83] G. P. Agrawal, M. Lax. Free-space wave propagation beyond the paraxial approximation. *Phys. Rev. A*, **27**(3):1693–1695, 1983.
- [Agr01] G. P. Agrawal. *Nonlinear Fiber Optics (Optics and Photonics)*. Academic Press, San Diego, 2001.
- [Akö00] N. Aközbek, C. M. Bowden, A. Talebpour, S. L. Chin. Femtosecond pulse propagation in air: Variational analysis. *Phys. Rev. E*, **61**(4):4540–4549, 2000.
- [Akh93] N. Akhmediev, A. Ankiewicz, J. M. Soto-Crespo. Does the nonlinear Schrödinger equation correctly describe beam propagation? *Opt. Lett.*, **18**(6):411–413, 1993.
- [Amm86] M. V. Ammosov, N. B. Delone. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, **64**(6):1191–1194, 1986.
- [Apo00] T. Apostolova, Y. Hahn. Modeling of laser-induced breakdown in dielectrics with subpicosecond pulses. *J. Appl. Phys.*, **88**(2):1024–1034, 2000.
- [Arn05] C. L. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Streak formation as side effect of optical breakdown during processing the bulk of transparent kerr media with ultra-short laser pulses. *Appl. Phys. B*, **80**:247–253, 2005.
- [Arn06] C. L. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Simulation of ultrashort pulse induced plasma generation and interaction within the bulk of transparent kerr media. *Proc. SPIE*, **6108**:08, 2006.
- [Arn07] C. L. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Computational model for nonlinear plasma formation in high NA micromachining of transparent materials and biological cells. *Opt. Express*, **15**(16):10303–10317, 2007.
- [Ash06] J. B. Ashcom, R. R. Gattass, C. B. Schaffer, E. Mazur. Numerical aperture dependence of damage and supercontinuum generation from femtosecond laser pulses in bulk fused silica. *Opt. Express*, **23**(11):2317–2322, 2006.
- [Aud94] P. Audebert, P. Daguzan, A. Dos Santos, J. C. Gauthier, J. P. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite, A. Antonetti. Space-time observation of an electron gas in SiO₂. *Phys. Rev. Lett.*, **73**(14):1990–1993, 1994.
- [Bau07] J. Baumgart, W. Bintig, A. Ngezhahayo, S. Willenbrock, H. Murua-Escobar, W. Ertmer, H. Lubatschowski, A. Heisterkamp. Femtosecond laser based opto-perforation of living GFSHR-17 and MTH53a cells. *submitted*, 2007.
- [Bec01] A. Becker, N. Aközbek, K. Vijayalakshmi, E. Oral, C. M. Bowden, S. L. Chin. Intensity clamping and re-focusing of intense femtosecond laser pulses in nitrogen molecular gas. *Appl.*

- Phys. B*, **73**:287–290, 2001.
- [Ber03] L. Bergé, C. Gouédard, J. Schjødt-Eriksen, H. Warda. Filamentation patterns in kerr media vs. beam shape robustness, nonlinear saturation and polarization states. *Physica D*, **176**:181–211, 2003.
- [Bin06] T. Binhammer, E. Rittweger, U. Morgner, R. Ell, F. X. Kärtner. Spectral phase control and temporal superresolution toward the single-cycle pulse. *Opt. Lett.*, **31**(10):1552–1554, 2006.
- [Bla02] C. Blanca, S. Hell. Axial superresolution with ultrahigh aperture lenses. *Opt. Express*, **10**(17):893–898, 2002.
- [Blo74] N. Bloembergen. Laser-induced electric breakdown in solids. *IEEE J. Quantum. Electron.*, **10**:375–386, 1974.
- [Boa00] A. D. Boardman, K. Marinow, D. I. Pushkarov, A. Shivarova. Influence of nonlinearly induced diffraction on spatial solitary waves. *Opt. and Quantum Electron.*, **32**:49–62, 2000.
- [Bor89] Z. Bor. Distortion of femtosecond laser pulses in lenses. *Opt. Lett.*, **14**(2):119–121, 1989.
- [Bor92] Z. Bor, Z. L. Horváth. Distortion of femtosecond pulses in lenses. Wave optical description. *Opt. Commun.*, **94**:249–258, 1992.
- [Bor99] M. Born, E. Wolf. Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light (7th Edition). Cambridge University Press, 1999.
- [Boy76] G. R. Boyer. Pupil filters for moderate superresolution. *Appl. Opt.*, **15**(12):3089–3093, 1976.
- [Boy92] R. W. Boyd. Nonlinear Optics. Academic, New York, 1992.
- [Boy99] J. P. Boyd. Chebyshev and Fourier Spectral Methods. Dover Publications Inc., Dover, 1999.
- [Bra97] T. Brabec, F. Krausz. Nonlinear optical pulse propagation in the single-cycle regime. *Phys. Rev. Lett.*, **78**(17):3282–3285, 1997.
- [Bre95] C. E. Brennen. Cavitation and Bubble Dynamics. Oxford University Press, Oxford, 1995.
- [Bro98] A. Brodeur, S. L. Chin. Band-gap dependence of the ultrafast white-light continuum. *Phys. Rev. Lett.*, **80**(20):4406–4408, 1998.
- [Bro99] I. N. Bronstein, K. A. Semendjajew, G. Musiol, H. Mühlig. Taschenbuch der Mathematik. Wissenschaftlicher Verlag Harri Deutsch, Frankfurt am Main, 1999.
- [Bud66] J. P. Budin, J. Raffy. On the dynamics of laser-induced damage in glasses. *Appl. Phys. Lett.*, **9**(8):291–293, 1966.
- [Bur07] I. M. Burakov, N. M. Bulgakova, R. Stoian, A. Mermillod-Blondin, E. Audouard, A. Rosenfeld, A. Husakou, I. V. Hertel. Spatial distribution of refractive index variations induced in bulk fused silica by single ultrashort and short laser pulses. *J. Appl. Phys.*, **101**:043506, 2007.
- [Che92] P. Chernev, V. Petrov. Self-focusing of light pulses in the presence of normal group-velocity dispersion. *Opt. Lett.*, **17**(3):172–174, 1992.
- [Chi64] R. Y. Chiao, E. Garmire, C. H. Townes. Self-trapping of optical beams. *Phys. Rev. Lett.*, **13**(15):479–482, 1964.
- [Chi95] S. Chi, Q. Guo. Vector theory of self-focusing of an optical beam in kerr media. *Opt. Lett.*, **20**(15):1598–1600, 1995.
- [Chi99] A. Chiron, B. Lamouroux, R. Lange, J.-F. Ripoche, M. Franco, B. Prade, G. Bonnaud, G. Riazuelo, A. Mysyrowicz. Numerical simulations of the nonlinear propagation of femtosecond optical pulses in gases. *Eur. Phys. J. D*, **6**:383–396, 1999.

- [Cho02] J. W. M. Chon, X. Gan, M. Gu. Splitting of the focal spot of a high numerical-aperture objective in free space. *Appl. Phys. Lett.*, **81**(9):1576–1578, 2002.
- [Chu06] S. H. Chung, D. A. Clark, C. V. Gabel, E. Mazur, A. D. Samuel. The role of the AFD neuron in *C. elegans* thermotaxis analyzed using femtosecond laser ablation. *BMC Neuroscience*, **7**(30), 2006.
- [Cia00] A. Ciattoni, P. Di Porto, B. Crosignani, A. Yariv. Vectorial nonparaxial propagation equation in the presence of a tensorial refractive-index perturbation. *J. Opt. Soc. Am. A*, **17**(5):809–819, 2000.
- [Cia02] A. Ciattoni, C. Conti, E. DelRe, P. Di Porto, B. Crosignani, A. Yariv. Polarization and energy dynamics in ultrafocused optical kerr propagation. *Opt. Lett.*, **27**(9):734–736, 2002.
- [Coh77] C. Cohen-Tannoudji, B. Diu, F. Laloë. *Quantenmechanik*. De Gruyter, Berlin, 1977.
- [Cou03] A. Couairon. Dynamics of femtosecond filamentation from saturation of self-focusing laser pulses. *Phys. Rev. A*, **68**:015801, 2003.
- [Cou05] A. Couairon, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz. Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, **71**:125435, 2005.
- [Cou07] A. Couairon, A. Mysyrowicz. Femtosecond filamentation in transparent media. *Physics Reports*, **441**:47–189, 2007.
- [Cro97] B. Crosignani, P. Di Porto, A. Yariv. Nonparaxial equation for linear and nonlinear optical propagation. *Opt. Lett.*, **22**(11):778–780, 1997.
- [Dav79] L. W. Davis. Theory of electromagnetic beams. *Phys. Rev. A*, **19**(3):1177–1179, 1979.
- [Daw69] E. L. Dawes, J. H. Marburger. Computer studies in self-focusing. *Phys. Rev.*, **179**(3):179, 1969.
- [Del91] N. B. Delone, V. P. Krainov. Energy and angular electron spectra for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation. *J. Opt. Soc. Am. B*, **8**(6):1207–1211, 1991.
- [DeM67] F. DeMartini, C. H. Townes, T. K. Gustafson, P. L. Kelley. Self-steepening of light pulses. *Phys. Rev.*, **164**(2):312–323, 1967.
- [DeM69] C. DeMichelis. Laser induced gas breakdown: A bibliographical review. *IEEE J. Quantum. Electron.*, **5**(4):188–202, 1969.
- [Did98] S. A. Diddams, H. K. Eaton, A. A. Zozulya, T. S. Clement. Amplitude and phase measurements of femtosecond pulse splitting in nonlinear dispersive media. *Opt. Lett.*, **23**(5):379–381, 1998.
- [dlF00] R. de la Fuente, O. Varela, H. Michinel. Fourier analysis of non-paraxial self-focusing. *Opt. Commun.*, **173**:403–411, 2000.
- [Dor03] R. Dorn, S. Quabis, G. Leuchs. Sharper focus for a radially polarized light beam. *Phys. Rev. Lett.*, **91**(23):233901, 2003.
- [Du96] D. Du, X. Liu, G. Mourou. Reduction of multi-photon ionization in dielectrics due to collisions. *Appl. Phys. B*, **63**:617–621, 1996.
- [Dub03] A. Dubietis, G. Tamošauskas, I. Diomin, A. Varanavičius. Self-guided propagation of femtosecond light pulses in water. *Opt. Lett.*, **28**(14):1269–1271, 2003.
- [Dub04a] A. Dubietis, E. Gaižauskas, G. Tamošauskas, P. Di Trapani. Light filaments without self-channeling. *Phys. Rev. Lett.*, **92**(25):253903, 2004.
- [Dub04b] A. Dubietis, G. Tamošauskas, G. Fibich, B. Ilan. Multiple filamentation induced by input-beam

- ellipticity. *Opt. Lett.*, **29**(10):1126–1128, 2004.
- [Dub06] A. Dubietis, A. Couairon, E. Kučinskas, G. Tamošauskas, E. Gaižauskas, D. Faccio, P. Di Trapani. Measurement and calculation of nonlinear absorption associated with femtosecond filaments in water. *Appl. Phys. B*, **84**(3):439–446, 2006.
- [Ell06] C. G. Elles, A. E. Jailaubekov, R. A. Crowell, S. E. Bradforth. Excitation-energy dependence of the mechanism for two-photon ionization of liquid H₂O and D₂O from 8.3 to 12.4 eV. *J. Chem. Phys.*, **125**(4):044515, 2006.
- [Eng04] Y. M. Engelberg, S. Ruschin. Fast method for physical optics propagation of high-numerical-aperture beams. *J. Opt. Soc. Am. A*, **21**(11):2135–2145, 2004.
- [Fan02] C. H. Fan, J. Sun, J. B. Longtin. Breakdown threshold and localized electron density in water induced by ultrashort laser pulses. *J. Appl. Phys.*, **91**(4):2530–2536, 2002.
- [Fei74] M. D. Feit, J. J. A. Fleck. Effect of refraction on spot-size dependence of laser-induced breakdown. *Appl. Phys. Lett.*, **24**(4):169–172, 1974.
- [Fei88] M. D. Feit, J. Fleck, Jr. Beam nonparaxiality, filament formation, and beam breakup in the self-focusing of optical beams. *J. Opt. Soc. Am. B*, **5**(3):633, 1988.
- [Fen97] Q. Feng, J. V. Moloney, A. C. Newell, E. M. Wright, K. Cook, P. K. Kennedy, D. X. Hammer, B. A. Rockwell, C. R. Thompson. Theory and simulation on the threshold of water breakdown induced by focused ultrashort laser pulses. *IEEE J: Quantum. Electron.*, **33**(2):127–137, 1997.
- [Fib95] G. Fibich, V. M. Malkin, G. C. Papanicolaou. Beam self-focusing in the presence of small normal time dispersion. *Phys. Rev. A*, **52**(5):4218–4228, 1995.
- [Fib96] G. Fibich. Small beam nonparaxiality arrests self-focusing of optical beams. *Phys. Rev. Lett.*, **76**(23):4356–4359, 1996.
- [Fib97] G. Fibich, G. C. Papanicolaou. Self-focusing in the presence of small time dispersion and nonparaxiality. *Opt. Lett.*, **22**(18):1379–1381, 1997.
- [Fib99] G. Fibich, G. Papanicolaou. Self-focusing in the perturbed and unperturbed nonlinear Schrödinger equation in critical dimension. *SIAM J. APPL. MATH.*, **60**(1):183–240, 1999.
- [Fib00] G. Fibich, A. L. Gaeta. Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguides. *Opt. Lett.*, **25**(5):335–337, 2000.
- [Fib01a] G. Fibich, B. Ilan. Deterministic vectorial effects lead to multiple filamentation. *Opt. Lett.*, **26**(11):840–842, 2001.
- [Fib01b] G. Fibich, B. Ilan. Vectorial and random effects in self-focusing and in multiple filamentation. *Physica D*, **157**:112–146, 2001.
- [Fib03] G. Fibich, W. Ren, X.-P. Wang. Numerical simulations of self-focusing of ultrafast laser pulses. *Phys. Rev. E*, **67**:056603–1–9, 2003.
- [Fib04] G. Fibich, S. Eisenmann, B. Ilan, A. Zigler. Control of multiple filamentation in air. *Opt. Lett.*, **29**(15):1772–1774, 2004.
- [Fib05a] G. Fibich, S. Eisenmann, B. Ilan, Y. Erlich, M. Fraenkel, Z. Henis, A. L. Gaeta, A. Zigler. Self-focusing distance of very high power laser pulses. *Opt. Express*, **13**(15):5897–5903, 2005.
- [Fib05b] G. Fibich, N. Gavisha, X.-P. Wang. New singular solutions of the nonlinear Schrödinger equation. *Physica D*, **211**:193–220, 2005.
- [Fib06] G. Fibich. Some modern aspects of self-focusing theory. In R. W. Boyd, S. G. Lukishova, Y. R. Shen, editors, *Self-focusing: Past and Present*. to be published by Springer, Berlin, 2006.

- [Fib07] G. Fibich, N. Gavisha, X.-P. Wang. Singular ring solutions of critical and supercritical nonlinear Schrödinger equations. *Physica D*, **231**:55–86, 2007.
- [Fle76] J. A. Fleck, Jr., J. R. Morris, M. D. Feit. Time-dependent propagation of high-energy laser beams through the atmosphere I. *Appl. Phys.*, **10**:129–160, 1976.
- [Fri05] M. Frigo, S. G. Johnson. The design and implementation of FFTW3. *Proc. IEEE*, **19**(2):216–231, 2005.
- [Fu02] X. Fu, H. Guo, W. Hu, S. Yu. Spatial nonparaxial correction of the ultrashort pulsed beam propagation in free space. *Phys. Rev. E*, **65**:056611, 2002.
- [Fuc05] U. Fuchs, U. D. Zeitner, A. Tünnermann. Ultra-short pulse propagation in complex optical systems. *Opt. Express*, **13**(10):3852–3861, 2005.
- [Gae00] A. L. Gaeta. Catastrophic collapse of ultrashort pulses. *Phys. Rev. Lett.*, **84**(16):3582–3585, 2000.
- [Gae03] A. L. Gaeta. Collapsing light really shines. *Science*, **301**:54, 2003.
- [Gar03] J. Garduño-Mejía, A. Greenaway, D. Reid. Designer femtosecond pulses using adaptive optics. *Opt. Express*, **11**(17):2030–2040, 2003.
- [Ger01] K. Germaschewski, R. Grauer, L. Bergé, V. K. Mezentsev, J. Juul Rasmussen. Splittings, coalescence, bunch and snake patterns in the 3d nonlinear Schrödinger equation with anisotropic dispersion. *Physica D*, **151**:175–198, 2001.
- [Gig07] D. Giguère, G. Olivié, F. Vidal, S. Toetsch, G. Girard, T. Ozaki, J.-C. Kieffer, O. Nada, I. Brunette. Laser ablation threshold dependence on pulse duration for fused silica and corneal tissues: experiments and modeling. *J. Opt. Soc. Am. A*, **24**(6):1562–1568, 2007.
- [Giu64] C. R. Giuliano. Laser-induced damage to transparent dielectric materials. *Appl. Phys. Lett.*, **5**(7):137–139, 1964.
- [Goo04] J. W. Goodman. Introduction to Fourier Optics. Roberts & Company Publishers, Englewood, Colorado, 2004.
- [Gro06] T. D. Grow, A. A. Ishaaya, L. T. Vuong, L. A. Gaeta, N. Gavish, G. Fibich. Collapse dynamics of super-gaussian beams. *Opt. Express*, **14**(12):5468–5475, 2006.
- [Gru04] V. E. Gruzdev. Analysis of the transparent-crystal ionization model developed by L. V. Keldysh. *J. Opt. Technol.*, **71**(8):504–508, 2004.
- [Gru07] V. E. Gruzdev. Photoionization rate in wide band-gap crystals. *Phys. Rev. B*, **75**(20):205106, 2007.
- [Gu00] M. Gu. Advanced Optical Imaging Theory. Springer, Berlin, 2000.
- [Hei02] A. Heisterkamp, T. Ripken, T. Mamom, W. Drommer, H. Welling, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Nonlinear side effects of fs pulses inside corneal tissue during photodisruption. *Appl. Phys. B*, **74**:419–425, 2002.
- [Hei03] A. Heisterkamp, T. Mamom, O. Kermani, W. Drommer, H. Welling, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Intrastromal refractive surgery with ultrashort laser pulses: in vivo study on the rabbit eye. *Graef. Arch. Clin. Exp.*, **241**(6):511–517, 2003.
- [Hei05a] A. Heisterkamp, I. Z. Maxwell, S. Kumar, J. M. Underwood, J. A. Nickerson, D. E. Ingber, E. Mazur. Nanosurgery in live cells using ultrashort laser pulses. *Proc. SPIE*, **5695**:230–235, 2005.
- [Hei05b] A. Heisterkamp, I. Z. Maxwell, E. Mazur. Pulse energy dependence of subcellular dissection

- by femtosecond laser pulses. *Opt. Express*, **13**(10):3690–3696, 2005.
- [Hor93] Z. L. Horváth, Z. Bor. Focusing of femtosecond pulses having gaussian spatial distribution. *Opt. Commun.*, **100**:6–12, 1993.
- [Hor01] Z. L. Horváth, Z. Bor. Diffraction of short pulses with boundary diffraction wave theory. *Phys. Rev. E*, **63**:026601, 2001.
- [Hor03] Z. L. Horváth, Z. Bor. Focusing of truncated gaussian beams. *Opt. Commun.*, **222**:51–68, 2003.
- [Ilk93] F. A. Ilkov, L. S. Ilkova, S. L. Chin. Supercontinuum generation versus optical breakdown in CO₂ gas. *Opt. Lett.*, **18**(9):681–683, 1993.
- [Int97] The International Association for the Properties of Water and Steam. Release on the Refractive Index of Ordinary Water Substance as a Function of Wavelength, Temperature and Pressure, 1997.
- [Jab06] T. Jabbour, S. Kuebler. Vector diffraction analysis of high numerical aperture focused beams modified by two- and three-zone annular multi-phase plates. *Opt. Express*, **14**(3):1033–1043, 2006.
- [Jia03] T. Q. Jia, Z. Z. Xu, X. X. Li, R. X. Li, B. Suai, F. L. Zhao. Microscopic mechanisms of ablation and micromachining of dielectrics by using femtosecond lasers. *Appl. Phys. Lett.*, **82**(24):4382–4384, 2003.
- [Jog04] A. P. Joglekar, H. Liu, E. Meyhöfer, G. Mourou, A. J. Hunt. Optics at critical intensity: Applications to nanomorphing. *PNAS*, **101**(16):5856–5861, 2004.
- [Juh99] T. Juhasz, F. H. Loesel, R. N. Kurtz, C. Horvath, J. F. Bille, G. Mourou. Corneal refractive surgery with femtosecond lasers. *IEEE Sel. Top. Quantum Electron.*, **5**(4):902–910, 1999.
- [Kai00] A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek, G. Simon. Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, **61**:11437–11450, 2000.
- [Kel60] L. V. Keldysh. Kinetic theory of impact ionization in semiconductors. *Sov. Phys. JETP*, **37**(10):509–518, 1960.
- [Kel65a] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, **20**:1307–1314, 1965.
- [Kel65b] P. L. Kelley. Self-focusing of optical beams. *Phys. Rev. Lett.*, **15**(26):1005–1008, 1965.
- [Ken95] P. K. Kennedy. A first-order model for computation of laser-induced breakdown thresholds in ocular and aqueous media: Part I—theory. *IEEE J. Quantum. Electron.*, **31**(12):2241–2249, 1995.
- [Kim01] B.-M. Kim, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, E. J. Joslin, P. M. Celliers, J. Eichler, L. B. Da Silva. Influence of pulse duration on ultrashort laser pulse ablation of biological tissues. *J. Biomed. Opt.*, **6**(3):332–338, 2001.
- [Kön01] K. König, I. Riemann, W. Fritzsche. Nanodissection of human chromosomes with near-infrared femtosecond laser pulses. *Opt. Lett.*, **26**(11):819–821, 2001.
- [Kol02] M. Kolesik, J. V. Moloney, M. Mlejnek. Unidirectional optical pulse propagation equation. *Phys. Rev. Lett.*, **89**(28):283902–1–4, 2002.
- [Kol03] M. Kolesik, G. Katona, J. V. Moloney, E. M. Wright. Physical factors limiting the spectral extent and band gap dependence of supercontinuum generation. *Phys. Rev. Lett.*, **91**(4):043905, 2003.

- [Kol04] M. Kolesik, J. V. Moloney. Nonlinear optical pulse propagation simulation: From Maxwell's to unidirectional equations. *Phys. Rev. E*, **70**:036604, 2004.
- [Kop86] K. Kopitzki, P. Herzog. Einführung in die Festkörperphysik. Teubner, Stuttgart, 1986.
- [Kor04] F. Korte, J. Koch, J. Serbin, A. Ovsianikov, B. N. Chichkov. Three-dimensional nanostructuring with femtosecond laser pulses. *IEEE T. Nanotechnol.*, **3**(4):468–472, 2004.
- [Kos97] O. G. Kosareva, V. P. Kandidov, A. Brodeur, C. Y. Chien, S. L. Chin. Conical emission from laser-plasma interactions in the filamentation of powerful ultrashort laser pulses in air. *Opt. Lett.*, **22**(17):1332–1334, 1997.
- [Lai06] Y. Lai, K. Zhou, L. Zhang, I. Bennion. Microchannels in conventional single-mode fibers. *Opt. Lett.*, **31**(17):2559–2561, 2006.
- [Lax75] M. Lax, W. H. Louisell, W. B. McKnight. From Maxwell to paraxial wave optics. *Phys. Rev. A*, **11**(4):1365–1370, 1975.
- [Len98] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, C. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, F. Krausz. Femtosecond optical breakdown in dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, **80**(18):4076–4079, 1998.
- [Lia05] R. Lian, R. A. Crowell, I. A. Shkrob. Solvation and thermalization of electrons generated by above-the-gap (12.4 eV) two-photon ionization of liquid H₂O and D₂O. *J. Phys. Chem. A*, **109**:1510–1520, 2005.
- [Lin07] N. Linz, S. Freidank, G. Paltauf, A. Vogel. Femtosecond laser-induced nanocavitation. *Conf. 6632, European Conference of Biomedical Optics, Munich*, 2007.
- [Liu02a] W. Liu, O. Kosareva, I. S. Golubtsov, A. Iwasaki, A. Becker, V. P. Kandidov, S. L. Chin. Random deflection of the white light beam during self-focusing and filamentation of a femtosecond laser pulse in water. *Appl. Phys. B*, **75**:595–599, 2002.
- [Liu02b] W. Liu, S. Petit, A. Becker, N. Aközbek, C. M. Bowden, S. L. Chin. Intensity clamping of a femtosecond laser pulse in condensed matter. *Opt. Commun.*, **202**:189–197, 2002.
- [Liu03] W. Liu, O. Kosareva, I. S. Golubtsov, A. Iwasaki, A. Becker, V. P. Kandidov, S. L. Chin. Femtosecond laser pulse filamentation versus optical breakdown in H₂O. *Appl. Phys. B*, **76**(3):215–229, 2003.
- [Loe96] F. H. Loesel, J. F. Niemz, M. H. Bille, T. Juhasz. Laser-induced optical breakdown on hard and soft tissues and its dependence on the pulse duration: Experiment and model. *IEEE J. Quantum Electron.*, **32**(10):1717–1722, 1996.
- [Lu03] D. Lu, W. Hu, Z. Yang, Y. Zheng. Vectorial nature of nonparaxial ultrashort pulsed beam propagation in free space. *J. Opt. A*, **5**:263–267, 2003.
- [Lub00] H. Lubatschowski, G. Maatz, A. Heisterkamp, U. Hetzel, W. Drommer, H. Welling, W. Ertmer. Application of ultrashort laser pulses for intrastromal refractive surgery. *Graef. Arch. Clin. Exp.*, **238**:33–39, 2000.
- [Luo04] H. Luo, C. Zhou. Comparison of superresolution effects with annular phase and amplitude filters. *Appl. Opt.*, **43**(34):6242–6247, 2004.
- [Lut94a] G. G. Luther, J. V. Moloney, A. C. Newell, E. M. Wright. Self-focusing threshold in normally dispersive media. *Opt. Lett.*, **19**(12):862–864, 1994.
- [Lut94b] G. G. Luther, A. C. Newell, J. V. Moloney. Short-pulse conical emission and spectral broadening in normally dispersive media. *Opt. Lett.*, **19**(11):789–791, 1994.
- [Mak64] P. D. Maker, R. W. Terhune, C. M. Savage. Intensity-dependent changes in the refractive

- index of liquids. *Phys. Rev. Lett.*, **12**(18):507–509, 1964.
- [Mak65] P. D. Maker, R. W. Terhune. Study of optical effects due to an induced polarization third order in the electric field strength. *Phys. Rev.*, **137**(3A):801–818, 1965.
- [Mal01] B. A. Malomed, K. Marinov, D. I. Pushkarov, A. Shivarova. Stability of narrow beams in bulk kerr-type nonlinear media. *Phys. Rev. A*, **64**:023814, 2001.
- [Mar75] J. H. Marburger. Self-focusing: Theory. *Prog. Quant. Electr.*, **4**:35–110, 1975.
- [Mar00] K. Marinov, A. Shivarova. Beam propagation in kerr-type nonlinear waveguides. *Phys. Scr.*, **T84**:197–199, 2000.
- [Mar02] M. Martinez-Corral, M. Caballero, E. H. K. Stelzer, J. Swoger. Tailoring the axial shape of the point spread function using the toraldo concept. *Opt. Express*, **10**(1):98–103, 2002.
- [Mar03] P. N. Marsh, D. Burns, J. M. Girkin. Practical implementation of adaptive optics in multi-photon microscopy. *Opt. Express*, **11**(10):1123–1130, 2003.
- [Mat03] M. Matuszewski, W. Wasilewska, M. Trippenbach, Y. B. Band. Self-consistent treatment of the full vectorial nonlinear optical pulse propagation equation in an isotropic medium. *Opt. Commun.*, **221**:337–351, 2003.
- [Max05] I. Maxwell, S. Chung, E. Mazur. Nanoprocessing of subcellular targets using femtosecond laser pulses. *Med. Laser Appl.*, **20**:193–200, 2005.
- [Mer06] A. Mermillod-Blondin, I. M. Burakov, R. Stoian, A. Rosenfeld, E. Audouard, N. M. Bulgakova, I. V. Hertel. Direct observation of femtosecond laser induced modifications in the bulk of fused silica by phase contrast microscopy. *JLMN*, **1**(3):155–160, 2006.
- [Mil95] C. S. Milsted, Jr., C. D. Cantrell. Vector effects in self-focusing. *Phys. Rev. A*, **53**(5):3536–3542, 1995.
- [Min07] S. Minardi, A. Gopal, M. Tatarakis, A. Couairon, G. Tamošauskas, R. Piskarskas, A. Dubietis, P. Di Trapani. Time-resolved refractive index and absorption mapping of light-plasma filaments in water. *submitted to Opt. Lett.*, 2007.
- [Mis02] K. Mishima, M. Hayashi, J. Yi, S. H. Lin, H. L. Selzle, E. W. Schlag. Generalization of Keldysh's theory. *Phys. Rev. A*, **66**(3):033401, 2002.
- [Mle98] M. Mlejnek, E. M. Wright, J. V. Moloney. Dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air. *Opt. Lett.*, **23**(5):382–384, 1998.
- [Mle99] M. Mlejnek, E. M. Wright, J. V. Moloney. Power dependence of dynamic spatial replenishment of femtosecond pulses propagating in air. *Opt. Express*, **4**(7):223–228, 1999.
- [Mol03] K. D. Moll, A. L. Gaeta, G. Fibich. Self-similar optical wave collapse: Observation of the townes profile. *Phys. Rev. Lett.*, **90**(20):203902, 2003.
- [Mon92] P. Monot, T. Auguste, L. A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus. Focusing limits of a terawatt laser in an underdense plasma. *J. Opt. Soc. Am. B*, **9**(9):1579–1584, 1992.
- [Nat85] V. Nathan, A. H. Guenther, S. S. Mitra. Review of multiphoton absorption in crystalline solids. *J. Opt. Soc. Am. B*, **2**(2):294–316, 1985.
- [Ngu03] N. T. Nguyen, A. Saliminia, W. Liu, S. L. Chin, R. Vallée. Optical breakdown versus filamentation in fused silica by use of femtosecond infrared laser pulses. *Opt. Lett.*, **28**(17):1591–1593, 2003.
- [Nib96] E. T. J. Nibbering, P. F. Curley, G. Grillon, B. S. Prade, M. A. Franco, F. Salin, A. Mysyrowicz. Conical emission from self-guided femtosecond pulses in air. *Opt. Lett.*, **21**(1):62–64, 1996.

- [Nik83] D. N. Nikogosyan, A. A. Oraevsky, V. I. Rupasov. Two-photon ionization and dissociation of liquid water by powerful laser UV radiation. *Chem. Phys.*, **77**:131–143, 1983.
- [Nis06] N. Nishimura, C. B. Schaffer, B. Friedman, P. S. Tsai, P. D. Lyden, D. Kleinfeld. Targeted insult to subsurface cortical blood vessel using ultrashort laser pulses: Three models of stroke. *Nat. Meth.*, **3**:99–108, 2006.
- [Noa99] J. Noack, A. Vogel. Laser-induced plasma formation in water at nanosecond to femtosecond time scales: Calculation of thresholds, absorption coefficients, and energy density. *IEEE J. Quantum Electron.*, **35**(8):1156–1167, 1999.
- [Ose03] R. Osellame, S. Taccheo, M. Marangoni, R. Ramponi, P. Laporta, D. Polli, S. De Silvestri, G. Gerullo. Femtosecond writing of active optical waveguides with astigmatically shaped beams. *J. Opt. Soc. Am. B*, **20**(7):1559–1567, 2003.
- [Pal99] G. Paltauf, H. Schmidt-Kloiber. Photoacoustic cavitation in spherical and cylindrical absorbers. *Appl. Phys. A*, **68**:525–531, 1999.
- [Pen05] J. R. Penano, P. Sprangle, B. Hafizi, W. Manheimer, A. Zigler. Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics. *Phys. Rev. E*, **72**(3):036412, 2005.
- [Pep92] C. Pepin, D. Houde, H. Remita, T. Goulet, J.-P. Jay-Gerin. Evidence for resonance-enhanced multiphoton ionization of liquid water using 2-eV laser light: Variation of hydrated electron absorbance with femtosecond pulse intensity. *Phys. Rev. Lett.*, **69**(23):3389–3392, 1992.
- [Per66] A. M. Perelomov, V. S. Popov. Ionization of atoms in an alternating electric field. *Sov. Phys. JETP*, **23**(5):924–934, 1966.
- [Per88] M. D. Perry, O. L. Landen, A. Szöke, E. M. Campbell. Multiphoton ionization of the noble gases by an intense 10^{14} W/cm² dye laser. *Phys. Rev. A*, **37**(3):747–760, 1988.
- [Pol01] S. Polyakov, F. Yoshino, G. Stegeman. Interplay between self-focusing and high-order multiphoton absorption. *J. Opt. Soc. Am. B*, **18**(12):1891–1895, 2001.
- [Pop04] V. S. Popov. Tunnel and multiphoton ionization of atoms and ions in a strong laser field (Keldysh theory). *Physics - Usspekhi*, **47**(9):855–885, 2004.
- [Pou03] B. Poumellec, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz. Femtosecond laser irradiation stress induced in pure silica. *Opt. Express*, **11**(9):1070–1079, 2003.
- [Pre86] W. H. Press, B. P. Flannery, S. A. Teukolsky, W. T. Vetterling. Numerical Recipes: The Art of Scientific Computing. Cambridge University Press, New York, 1986.
- [Qua00] S. Quabis, R. Dorn, M. Eberler, O. Glöckl, G. Leuchs. Focusing light to a tighter spot. *Opt. Commun.*, **179**:1–7, 2000.
- [Que01] F. Quere, S. Guizard, P. Martin. Time-resolved study of laser-induced breakdown in dielectrics. *Europhys. Lett.*, **56**(1):138–144, 2001.
- [Ran96] J. K. Ranka, R. W. Schirmer, A. L. Gaeta. Observation of pulse splitting in nonlinear dispersive media. *Phys. Rev. Lett.*, **77**(18):3783–3786, 1996.
- [Ran98] J. K. Ranka, A. L. Gaeta. Breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of ultrashort pulses. *Opt. Lett.*, **23**(7):534–536, 1998.
- [Rei80] H. R. Reiss. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system. *Phys. Rev. A*, **22**(5):1786–1813, 1980.
- [Ret04] B. Rethfeld. Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, **92**(18):187401, 2004.

- [Ret06] B. Rethfeld. Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics. *Phys. Rev. B*, **73**(3):035101, 2006.
- [Ret07] B. Rethfeld. Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics. *Contrib. Plasma Phys.*, **47**(4-5):360–367, 2007.
- [Ric59] B. Richards, E. Wolf. Electromagnetic diffraction in optical systems. II. Structure of the image field in an aplanatic system. *Proc. R. Soc. A*, **253**:358–379, 1959.
- [Rip07] T. Ripken, U. Oberheide, M. Fromm, S. Schumacher, G. Gerten, H. Lubatschowski. fs-laser induced elasticity changes to improve presbyopic lens accommodation. *accepted Graef. Arch. Clin. Exp.*, 2007.
- [Rot92a] J. E. Rothenberg. Pulse splitting during self-focusing in normally dispersive media. *Opt. Lett.*, **17**(8):583–585, 1992.
- [Rot92b] J. E. Rothenberg. Space-time focusing: breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of femtosecond pulses. *Opt. Lett.*, **17**(19):1340–1342, 1992.
- [Sac91] C. A. Sacchi. Laser-induced electric breakdown in water. *J. Opt. Soc. Am. B*, **8**(2):337–345, 1991.
- [Sal97a] T. R. M. Sales, G. M. Morris. Diffractive superresolution elements. *J. Opt. Soc. Am. A*, **14**(7):1637–1646, 1997.
- [Sal97b] T. R. M. Sales, G. M. Morris. Fundamental limits of optical superresolution. *Opt. Lett.*, **22**(9):582–584, 1997.
- [Sal98] T. R. M. Sales. Smallest focal spot. *Phys. Rev. Lett.*, **81**(18):3844–3847, 1998.
- [Sar06] C. Sarpe-Tudoran, A. Assion, M. Wollenhaupt, M. Winter, T. Baumert. Plasma dynamics of water breakdown at a water surface induced by femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. Lett.*, **88**:261109, 2006.
- [Sch01] C. B. Schaffer, A. Brodeur, J. F. García, E. Mazur. Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy. *Opt. Lett.*, **26**(2):93–95, 2001.
- [Sch04a] C. B. Schaffer, A. O. Jamison, E. Mazur. Morphology of femtosecond laser-induced structural changes in bulk transparent materials. *Appl. Phys. Lett.*, **84**(9):1441–1443, 2004.
- [Sch04b] M. Schwertner, M. J. Booth, T. Wilson. Characterizing specimen induced aberrations for high NA adaptive optical microscopy. *Opt. Express*, **12**(26):6540–6552, 2004.
- [Ser04] J. Serbin, A. Ovsianikov, B. Chichkov. Fabrication of woodpile structures by two-photon polymerization and investigation of their optical properties. *Opt. Express*, **12**(21):5221–5228, 2004.
- [She75] Y. R. Shen. Self-focusing: Experimental. *Prog. Quantum Electr.*, **4**:1–34, 1975.
- [She84] Y. R. Shen. *The Principles of Nonlinear Optics*. Wiley, New York, 1984.
- [She98] C. J. R. Sheppard, G. Calvert, M. Wheatland. Focal distribution for superresolving toraldo filters. *J. Opt. Soc. Am. A*, **15**(4):849–856, 1998.
- [She02] L. Sherman, J. Y. Ye, O. Albert, T. B. Norris. Adaptive correction of depth-induced aberrations in multiphoton scanning microscopy using a deformable mirror. *J. Microsc.*, **206**(1):65–71, 2002.
- [Sie86] A. E. Siegman. *Lasers*. University Science Books, Sausalito, California, 1986.
- [Sie05] J. Siegel, J. M. Fernández-Navarro, A. García-Navarro, V. Diez-Blanco, O. Sanz, J. Solis, F. Vega, J. Armengol. Waveguide structures in heavy metal oxide glass written with femto-

- second laser pulses above the critical self-focusing threshold. *Appl. Phys. Lett.*, **86**:121109, 2005.
- [Sin03] O. V. Sinkin, R. Holzlöhner, J. Zweck, C. R. Menyuk. Optimization of the split-step fourier method in modeling optical fiber communications systems. *J. Lightwave Technol.*, **21**:61, 2003.
- [Smi01] N. I. Smith, K. Fujita, T. Kaneko, K. Katoh, O. Nakamura, S. Kawata, T. Takamatsu. Generation of calcium waves in living cells by pulsed-laser-induced photodisruption. *Appl. Phys. Lett.*, **79**(8):1208–1210, 2001.
- [Sol94] V. C. Solano Reynoso, L. C. Barbosa, O. L. Alves, N. Aranha, C. L. Cesar. Preparation and characterization of heavy-metal oxide glasses: $\text{Bi}_2\text{O}_3\text{--PbO--B}_2\text{O}_3\text{--GeO}_2$ system. *J. Mater. Chem.*, **4**(4):529–532, 1994.
- [Sot93] J. M. Soto-Crespo, N. Akhmediev. Description of the self-focusing and collapse effects by a modified nonlinear Schrödinger equation. *Opt. Commun.*, **101**:223–230, 1993.
- [Sta86] J. J. Stamnes. *Waves in Focal Regions: Propagation, Diffraction and Focusing of Light, Sound and Water Waves*. Institute of Physics Publishing, London, 1986.
- [Ste06] D. Stevenson, B. Agate, X. Tsampoula, P. Fischer, C. T. A. Brown, W. Sibbett, A. Riches, F. Gunn-Moore, K. Dholakia. Femtosecond optical transfection of cells: viability and efficiency. *Opt. Express*, **14**(16):5125–5133, 2006.
- [Sto89] R. H. Stolen, J. P. Gordon, W. J. Tomlinson, H. A. Haus. Raman response function of silica-core fibers. *J. Opt. Soc. Am. B*, **6**(6):1159–1166, 1989.
- [Stu95] B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. Shore, M. D. Perry. Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, **74**(12):2248–2251, 1995.
- [Stu96] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, M. D. Perry. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics. *Phys. Rev. B*, **53**(4):1749–1761, 1996.
- [Sud01] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz. Study of damage in fused silica induced by ultra-short IR laser pulses. *Opt. Commun.*, **191**:333–339, 2001.
- [Sud02] L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz. Femtosecond laser-induced damage and filamentary propagation in fused silica. *Phys. Rev. Lett.*, **89**(18):186601, 2002.
- [Sul99] C. Sulem, P. L. Sulem. *The Nonlinear Schrödinger Equation*. Springer, New York, 1999.
- [Sun05] Q. Sun, H. Jiang, Y. Liu, Z. Wu, H. Yang, Q. Gong. Measurement of the collision time of dense electronic plasma induced by a femtosecond laser in fused silica. *Opt. Lett.*, **30**(3):320–322, 2005.
- [Sun07] H. Sun, T. Jia, C. Li, X. Li, S. Xu, D. Feng, X. Wang, X. Ge, Z. Xu. Mechanisms of femtosecond laser-induced damage in magnesium fluoride. *Solid State Commun.*, **141**(2007):127–131, 2007.
- [Sup05] W. Supatto, D. Débarre, B. Moullia, E. Brouze, J.-L. Martin, E. Farge, E. Beaurepaire. In vivo modulation of morphogenetic movements in drosophila embryos with femtosecond laser pulses. *PNAS*, **102**(4):1047–1052, 2005.
- [Tie99] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, G. Mourou. Short-pulse laser damage in transparent materials as a function of pulse duration. *Phys. Rev. Lett.*, **82**(19):3883–3886, 1999.

- [Tir02] U. K. Tirlapur, K. König. Targeted transfection by femtosecond laser. *Nature*, **418**:290–291, 2002.
- [Tzo01a] S. Tzortzakis, L. Berge, A. Couairon, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz. Breakup and fusion of self-guided femtosecond light pulses in air. *Phys. Rev. Lett.*, **86**(24):5470–5473, 2001.
- [Tzo01b] S. Tzortzakis, B. Lamouroux, A. Chiron, S. D. Moustazis, D. Anglos, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz. Femtosecond and picosecond ultraviolet laser filaments in air: experiments and simulations. *Opt. Commun.*, **197**:131–143, 2001.
- [Tzo01c] S. Tzortzakis, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz. Self-guided propagation of ultrashort ir laser pulses in fused silica. *Phys. Rev. Lett.*, **87**(21):213902, 2001.
- [Ure04] H. Urey. Spot size, depth-of-focus, and diffraction ring intensity formulas for truncated gaussian beams. *Appl. Opt.*, **43**(3):620–625, 2004.
- [Vat02] S. R. Vatsya, S. K. Nikumb. Modeling of laser-induced avalanche in dielectrics. *J. Appl. Phys.*, **91**(1):344–351, 2002.
- [Ven02] V. Venugopalan, A. Guerra III, K. Nahen, A. Vogel. Role of laser-induced plasma formation in pulsed cellular microsurgery and micromanipulation. *Phys. Rev. Lett.*, **88**(7):078103, 2002.
- [Vog99] A. Vogel, J. Noack, K. Nahen, D. Theisen, S. Busch, U. Parlitz, D. X. Hammer, G. D. Noojin, B. A. Rockwell, R. Birngruber. Energy balance of optical breakdown in water at nanosecond to femtosecond time scales. *Appl. Phys. B*, **68**:271–280, 1999.
- [Vog03] A. Vogel, V. Venugopalan. Mechanisms of pulsed laser ablation of biological tissues. *Chem. Rev.*, **103**:577–644, 2003.
- [Vog05] A. Vogel, J. Noack, G. Hüttman, G. Paltauf. Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissue. *Appl. Phys. B*, **81**:1015–1047, 2005.
- [Vuo06] L. T. Vuong, T. D. Grow, A. Ishaaya, A. L. Gaeta, G. W. 't Hooft, E. R. Eliel, G. Fibich. Collapse of optical vortices. *Phys. Rev. Lett.*, **96**:133901, 2006.
- [Wil76] F. Williams, S. P. Varma, S. Hillenius. Liquid water as a lone-pair amorphous semiconductor. *J. Chem. Phys.*, **64**:1549–1554, 1976.
- [Wün92] A. Wünsche. Transition from the paraxial approximation to exact solutions of the wave equation and application to gaussian beams. *J. Opt. Soc. Am. A*, **9**(5):765, 1992.
- [Wol59] E. Wolf. Electromagnetic diffraction in optical systems I. An integral representation of the image field. *Proc. R. Soc. A*, **253**:349–357, 1959.
- [Wri05] A. J. Wright, B. A. Patterson, S. P. Poland, J. M. Girkin. Dynamic closed-loop system for focus tracking using a spatial light modulator and a deformable membrane mirror. *Opt. Express*, **14**(1):222–228, 2005.
- [Yab72] E. Yablonovitch, N. Bloembergen. Avalanche ionization and the limiting diameter of filaments induced by light pulses in transparent media. *Phys. Rev. Lett.*, **29**(14):907–910, 1972.
- [Yan04] M. F. Yanik, H. Cinar, A. D. Chisholm, Y. Jin, A. Ben-Yakar. Neurosurgery: Functional regeneration after laser axotomy. *Nature*, **432**:822, 2004.
- [Zoz99] A. A. Zozulya, S. A. Diddams, A. G. Van Engen, T. S. Clement. Propagation dynamics of intense femtosecond pulses: Multiple splittings, coalescence, and continuum generation. *Phys. Rev. Lett.*, **82**(7):1430–1433, 1999.

A Lebenslauf und Bildungsweg

Persönliche Daten

Name: Cord L. Arnold
Geburtsdatum: 12.12.1977
Geburtsort: Hannover
Eltern: Klaus-Dietrich Arnold
Christa Arnold, geb. Jerzy
Familienstand: ledig

Ausbildung

Schulbildung: 07/1997 Abitur am Georg-Büchner-Gymnasium Seelze
Wehrdienst: 09/1997 - 06/1998 Gebirgsjägerbataillon 231
Hochschulstudium: 10/1998 - 12/2003 Physikstudium, Studienrichtung Technische Physik,
Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover
11/2002 - 11/2003 Diplomarbeit am Laser Zentrum Hannover e.V.
01/2004 - 10/2007 Promotionsstudium Physik, Gottfried Wilhelm
Leibniz Universität Hannover
Auslandsaufenthalt: 09/2001 - 02/2002 Universität Kopenhagen, Dänemark

Beruflicher Werdegang

2001 Hilfwissenschaftler am Laser Zentrum Hannover e.V.
2003 Hilfwissenschaftler am Institut für Quantenoptik
seit 2004 Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Laser Zentrum Hannover e.V.

B Liste der Publikationen

- C.L. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Computational model for nonlinear plasma formation in high NA micromachining of transparent materials and biological cells. *Opt. Express*, 15(16):10303–10317, 2007.
- C.L. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Streak formation as side effect of optical breakdown during processing the bulk of transparent Kerr media with ultra-short laser pulses. *Appl. Phys. B*, 80:247–253, 2005.
- C. L. Arnold; W. Ertmer; H. Lubatschowski. Modeling of ultrashort pulse propagation and nonlinear plasma formation in transparent Kerr media using realistic initial conditions (Proceedings Paper). *Proc. SPIE Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers VII*, 6460:10, 2007.
- C. L. Arnold; W. Ertmer; H. Lubatschowski. Simulation of ultrashort pulse induced plasma generation and interaction within the bulk of transparent Kerr media (Proceedings Paper). *Proc. SPIE Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers VI*, 6108:08, 2006
- C.L. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Numerical calculation of nonlinear ultrashort laser pulse propagation in transparent Kerr media (Proceedings Paper). *Proc. SPIE Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers V*, 5714:126–137, 2005.
- C.L. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski. Numerical calculation of nonlinear ultrashort laser pulse propagation in water (Proceedings Paper). *Proc. SPIE Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers IV*, 5340:47–54, 2004.

Ein Teil der in dieser Arbeit vorgestellten Ergebnisse wurde aus Prioritätsgründen bereits veröffentlicht und ist in der Liste der Publikationen enthalten.

C Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Mein besonderer Dank gilt Prof. Dr. Wolfgang Ertmer für die Möglichkeit, diese Arbeit durchzuführen. Es gelingt Wolfgang Ertmer, im Institut für Quantenoptik eine außerordentlich produktive sowie freundschaftliche Atmosphäre zum wissenschaftlichen Arbeiten zu schaffen. Dies hat mich stets sehr beeindruckt. Danke, dass ich daran Teil haben durfte.

Herrn Prof. Dr. Uwe Morgner danke ich für die Übernahme des Korreferats.

Besonderer Dank gilt Prof. Dr. Holger Lubatschowski für die ständige Unterstützung während der Durchführung dieser Arbeit. Holger Lubatschowski leitet die Abteilung Lasermedizin in offener und unkomplizierter Art und Weise und schafft dadurch eine einzigartige Arbeitsatmosphäre, die jeden Tag aufs Neue Spaß macht und motiviert.

Besonders möchte ich mich bei Prof. Dr. Alexander Heisterkamp bedanken, der mir seit Beginn meiner Zeit am Laser Zentrum stets mit Rat und Tat zur Seite stand.

Ich danke der gesamten Abteilung Lasermedizin für die ständige Unterstützung, für fachlichen und persönlichen Rat. Der Zusammenhalt in der Gruppe ist nicht nur auf das Institut beschränkt, sondern reicht auch weit darüber hinaus: Danke für die schönen Tage und Abende, die wir vor allem auch auf unseren gemeinsamen Dänemark-Fahrten hatten. Besonders möchte ich mich hier bei Silvia Schumacher bedanken, deren Hilfsbereitschaft mich stets beeindruckt hat. Des Weiteren gilt mein Dank Dr. Tammo Ripken für eine besondere Stimmung im Büro, die uns über die Jahre sicherlich geprägt hat.

Es sei abschließend in besonderem Maße auch meinen Eltern und Großeltern gedankt, die nicht zuletzt durch ihre finanzielle Unterstützung dafür gesorgt haben, dass ich mich stets der Physik widmen konnte.

