

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit im Studiengang Physik

vorgelegt von

Helga Rietz

aus Köln

Januar 2007

Aufbau und Inbetriebnahme einer Apparatur zur Erzeugung hoher harmonischer Strahlung und deren Charakterisierung

Die Diplomarbeit wurde von Helga Rietz ausgeführt am
Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg
unter der Betreuung von
Herrn Dr. K. Simeonidis
sowie
Herrn Prof. Dr. J. Ullrich

Zusammenfassung

Die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung in Edelgasen mittels kurzen Laserpulsen hat sich als effiziente Methode erwiesen, Lichtimpulse von wenigen hundert Attosekunden Dauer zu erzielen. Das eröffnet die Möglichkeit, Prozesse die sich auf ähnlich kurzen Zeitskalen abspielen wie beispielsweise die Bewegung eines Elektrons im Orbital eines Atoms, direkt zu erforschen.

Die vorliegende Arbeit beschreibt die erste Phase des Aufbaus eines Pump-Probe-Experiments, das Attosekunden-Lichtimpulse mit einem sogenannten „Reaktionsmikroskop“ kombinieren wird. Eine neuartige Vakuumkammer wurde konstruiert und erfolgreich in Betrieb genommen. In dieser sind ein Gas-Target zur Erzeugung der harmonischen Strahlung und ein Spektrometer zu deren Charakterisierung untergebracht. Zur Erzeugung der Harmonischen wurde eine kommerzielles Titan-Saphir Lasersystem verwendet, das 800 nm-Lichtimpulse mit Einzelimpulsenergien von 0,7 mJ zur Verfügung stellt. Die Impulsdauer beträgt 25 fs, eine weitere Verkürzung auf etwa 6 fs ist geplant. Der Einfluss experimenteller Parameter wie der Druck des Targets und die Position des Fokuspunktes wurden untersucht und die Intensität der harmonischen Strahlung optimiert. Eine erste Untersuchung der erzeugten hohen harmonischen Strahlung zeigte eine vielversprechende Ausbeute und bestätigte die Eignung des Aufbaus.

Abstract

The generation of high harmonic radiation (HHG) in rare gases using ultrashort infrared laser pulses is a well proven method to produce attosecond light pulses, thus opening the door to direct investigation of dynamics on attosecond timescales, such as the electronic motion in atoms.

This diploma-thesis reports on the construction and start up of the first stage of a new experiment that will combine attosecond light pulses from HHG with a so called „reaction microscope“, to perform pump-probe measurements with attosecond resolution on atoms and molecules. An innovative, versatile vacuum chamber housing all necessary optics, a gas target for HHG and a spectrometer setup for XUV-characterisation have been designed and successfully put into operation. The harmonics are generated using 800 nm Ti:Sapphire laser pulses produced by a commercially available Ti:Sa-amplifier system with a single pulse energy of 0.7 mJ and a duration of approximately 25 fs. A further compression to 6 fs is planned. The influence of important experimental parameters such as target pressure and focal position have been studied and the HHG-signal optimized. First examinations of the harmonics produced in Argon and Neon exhibit a promising yield of coherent soft-X-ray radiation and confirm our setup.

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|---|-----------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung in Gasen | 7 |
| 2.1 | Die Entdeckung harmonischer Strahlung | 7 |
| 2.2 | Theoretische Beschreibung | 10 |
| 2.2.1 | Corkums Drei-Schritt-Modell | 11 |
| 2.2.2 | Weiterführende Theorien und Simulationen | 14 |
| 2.3 | Die Erzeugung von Attosekundenimpulsen | 18 |
| 2.3.1 | Die zeitliche Struktur harmonischer Strahlung | 18 |
| 2.3.2 | Vom Impulszug zum einzelnen Attosekundenimpuls | 20 |
| 2.3.3 | Experimentelle Bestätigung der Attosekundenstruktur | 22 |
| 3 | Der experimentelle Aufbau | 25 |
| 3.1 | Das Lasersystem | 26 |
| 3.2 | Das Vakuumsystem: Kammer und „Cube“ | 28 |
| 3.2.1 | Die äußere Vakuumkammer | 29 |
| 3.2.2 | Die innere Targetkammer | 30 |
| 3.2.3 | Pumpensystem und Druckmessung | 33 |
| 3.2.4 | Targetröhrchen aus Stahl und Aluminium | 37 |
| 3.3 | Einkopplung des Lasers | 39 |
| 3.3.1 | Justage des Aufbaus | 39 |
| 3.3.2 | Fokussierung | 41 |

| | | |
|----------|---|-----------|
| 3.4 | Das Spektrometer zur Charakterisierung der harmonischen Strahlung | 43 |
| 3.4.1 | XUV-Gitter und Filter | 44 |
| 3.4.2 | Die CCD-Kamera | 46 |
| 3.4.3 | Kalibrierung der Spektren | 46 |
| 3.5 | Verbesserungen und Erweiterungen des experimentellen Aufbaus . | 47 |
| 3.5.1 | Methoden zur Steigerung der Intensität | 48 |
| 3.5.2 | Geplante Entwicklung des Experiments | 49 |
| 4 | Experimentelle Ergebnisse | 51 |
| 4.1 | Einfluss des Drucks des Targetgases | 51 |
| 4.2 | Charakterisierung der harmonischen Strahlung | 54 |
| 4.2.1 | Diskussion der Spektren | 56 |
| 4.2.2 | Zusammenhang mit der Zentralwellenlänge der fundamen- talen Laserstrahlung | 59 |
| 4.2.3 | Fehlerbetrachtung | 61 |
| 4.3 | Abschätzung der Photonenzahl | 65 |
| 4.4 | Messungen in anderen Spektralbereichen | 68 |
| 5 | Zusammenfassung und Ausblick | 71 |
| | Literaturverzeichnis | 74 |
| | Danksagung | 81 |

Kapitel 1

Einleitung

Die rasante Entwicklung intensiver, gepulster Lasersysteme in den letzten fünfzehn Jahren machte die Erzeugung extrem starker elektromagnetischer Felder im Labor möglich. Die erzielbaren Intensitäten erreichen bis zu 10^{18} W/cm², und immer kürzere Lichtimpulse werden verfügbar. Derzeit sind Lasersysteme, die Impulsdauern von 25 bis 30 Femtosekunden ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) liefern, kommerziell erhältlich, und die Methoden zur weiteren Verkürzung dieser Impulse auf unter 10 fs sind in modernen Experimenten bereits Standard. Die Intensitäten der so erzeugten elektromagnetischen Felder sind damit vergleichbar mit der Bindungsenergie der Elektronen in einem Atom. Ein Resultat der Wechselwirkung derart starker externer Felder mit Materie ist die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung. Diese entsteht, wenn ein kurzer Laserimpuls — die typische Dauer liegt zwischen 100 fs und einigen wenigen fs — in ein geeignetes Medium fokussiert wird. Die Atome des Gases verhalten sich dann wie Dipolantennen: sie folgen den Schwingungen des externen Feldes und senden ihrerseits Strahlung aus. Durch nichtlineare Effekte strahlen die Atome des Gases jedoch nicht nur die Wellenlänge des fundamentalen Laserimpulses, sondern auch deren „Harmonische“ ab: Wellen, die mit ganzzahligen Vielfachen der Fundamentalen oszillieren. Diesen Effekt kann man sich zunutze machen, um sehr hohe Photonenenergien bis in die Spektralbereiche extrem ultravioletter (XUV) und weicher Röntgenstrahlung (soft x-ray) hinein im Labor zu erzeugen.

In das Zentrum des Interesses von Atom- und Molekülphysikern gelangte hohe harmonische Strahlung Ende der 90er Jahre, als sich sowohl in theoretischen Analysen als auch in einer Reihe von Experimenten zeigte, dass harmonische Strahlung in Form von Impulszügen emittiert wird, deren gesamte Dauer zwar in etwa der Dauer des anregenden Laserimpulses entspricht, deren Einzelimpulse jedoch nur wenige hundert Attosekunden ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) lang sind. In trick-

reichen und spektakulären Experimenten gelang es vor kurzem sogar, einzelne Attosekundenimpulse zu erzeugen. Diese kürzesten Impulse sind insbesondere für Pump-Probe-Experimente interessant. Auf diese Anwendung hoher harmonischer Strahlung ist auch die vorliegende Arbeit ausgerichtet.

Unter einem Pump-Probe-Experiment versteht man die Erforschung eines physikalischen Systems mit zwei zeitlich versetzten Laserimpulsen. Dabei bewirkt der erste Impuls („Pump“) eine Änderung des Systems, beispielsweise die Anregung von Schwingungen, Ionisierung oder Fragmentierung. Der zweite Impuls („Probe“) macht zum Zeitpunkt seines Eintreffens eine Momentaufnahme des Systems. Durch Variation des zeitlichen Abstandes zwischen den beiden Impulsen kann man die Entwicklung des Systems analysieren, man „filmt“ gewissermaßen in vielen Einzelbildern dessen Bewegung. Pump-Probe-Experimente eignen sich für eine Vielzahl von Systemen, von Atomen und kleinen Molekülen bis hin zu Clustern und Biomolekülen.

Die zeitliche Auflösung, mit der sich schnelle Prozesse mittels Pump-Probe-Spektroskopie verfolgen lassen, wird dabei von der Dauer der Impulse, insbesondere der des Probe-Impulses, bestimmt. So ähnlich wie man über die Belichtungszeit eines Fotoapparates steuert, ob ein schnell bewegtes Objekt auf der Fotografie verwaschen oder mit scharfen Konturen abgebildet wird, bestimmt die Dauer des Probe-Impulses die „Belichtungszeit“ des untersuchten physikalischen Systems. Typische, aktuelle Pump-Probe-Experimente verwenden Laserimpulse von einigen Pikosekunden (10^{-12} s) bis zu wenigen Femtosekunden (10^{-15} s).

Was die konkrete Durchführung von Pump-Probe Experimenten angeht, gibt es zahlreiche verschiedene Konzepte. Der im Rahmen dieser Arbeit fertiggestellte experimentelle Aufbau ist für Pump-Probe-Messungen mit einem so genannten „Reaktionsmikroskop“ ausgelegt, das Mitte der 90er Jahre von J. Ullrich, R. Moshhammer und deren Mitarbeitern entwickelt wurde [Mos96] [Ull03]. Dessen Funktionsprinzip soll daher an dieser Stelle skizziert werden.

Die zu untersuchenden Moleküle werden im Zentrum des Reaktionsmikroskops durch das intensive Feld eines fokussierten Laserstrahls dissoziiert. Elektrische und magnetische Felder projizieren die Reaktionsfragmente auf hochgenaue orts- und zeitauflösende Detektoren, so genannte „Micro channel plates“. Dadurch ist es möglich, den gesamten Impulsraum auch für mehrere Teilchen gleichzeitig zu erfassen. Vor der Entwicklung dieser Technik war man gezwungen, viele kleine Ausschnitte des Impulsraums nacheinander zu untersuchen, was insbesondere bei Koinzidenzmessungen sehr lange Messzeiten zur Folge hatte. Messungen von besonders kleinen Wirkungsquerschnitten waren meist überhaupt nicht möglich.

In den letzten Jahren wurden mit Reaktionsmikroskopen umfangreiche Messungen zur Dissoziation von Wasserstoff (H_2) und Deuterium (D_2) durchgeführt. Durch die Verwendung von Laserimpulsen mit wenigen Femtosekunden Dauer gelangen „Echtzeitabbildungen“ von schnellsten Molekülschwingungen mit einer Periode von nur 11 fs, die Bewegung der Atomkerne gegeneinander konnte bezüglich Rotation und Vibration direkt verfolgt und abgebildet werden [Erg06] [Rud06].

Die Entwicklung der Pump-Probe-Spektroskopie mit Femtosekundenlasern eröffnete vor allem für die Erforschung von chemischen Reaktionen ein neues Zeitalter. Chemische Reaktionen spielen sich auf genau den Zeitskalen ab, die mit Femtosekundenimpulsen untersucht werden können. Viele anwendungsrelevante Erfolge, unter denen der berühmteste die Entschlüsselung des Energietransports bei der Photosynthese ist, trugen wesentlich zu unserem heutigen Verständnis von chemischen Prozessen bei [Bha01]. Auf dem Gebiet der Physik konnten grundlegende Fragen der Wechselwirkung von starken Feldern mit Molekülen beantwortet werden [Erg06]. Andere, noch schnellere Prozesse dagegen blieben bisher weitgehend unzugänglich. Dazu gehören in erster Linie Bewegungen, die in der Elektronenhülle eines Atoms oder Moleküls stattfinden. Um die Dynamik von Elektronen in ihren Orbitalen direkt zu „verfolgen“ benötigt man, so die Vorhersagen der Theorie, Laserimpulse die nur noch wenige Attosekunden lang sind. Elektronische Prozesse in der Hülle, wie zum Beispiel das Auffüllen eines Lochzustandes nach Innerschalenionisation durch ein Elektron einer äußeren Schale unter gleichzeitiger Emission eines weiteren — ein so genannter Auger-Zerfall — verlaufen auf einer Zeitskala von wenigen fs und können bereits mit Lichtimpulsen einer Länge von 100 as aufgelöst werden. Ein solches Pionierexperiment ist vor kurzem gelungen [Dre02].

Solche Attosekundenimpulse sind jedoch mit sichtbarem Licht nicht herstellbar: Die untere Grenze für die Impulsdauer ist durch die Schwingungsperiode eines Lichtzyklus gegeben. Für sichtbares Licht sind das knapp 3 Femtosekunden. Verwendet man dagegen wesentlich kürzere Trägerwellenlängen, wie sie beispielsweise bei der Erzeugung hoher harmonischer Strahlung entstehen, werden um ein bis zwei Größenordnungen kürzere Lichtimpulse prinzipiell möglich. Dies beweist eindrucksvoll eine Serie von Messungen in denen es gelang, einzelne Attosekundenimpulse zu erzeugen, zu isolieren und genau zu charakterisieren [Mai04] [LM05] [Kie04].

Eine der vielen möglichen Anwendungen solcher Impulse wurde vor kurzem in Simulationsrechnungen amerikanischer Physiker auf bestechende Weise dargestellt. Abbildung 1.1 zeigt das Ergebnis ihrer Simulation von Pump-Probe-Experimenten an Deuterium und Wasserstoff mit sowohl Femtosekunden- als auch

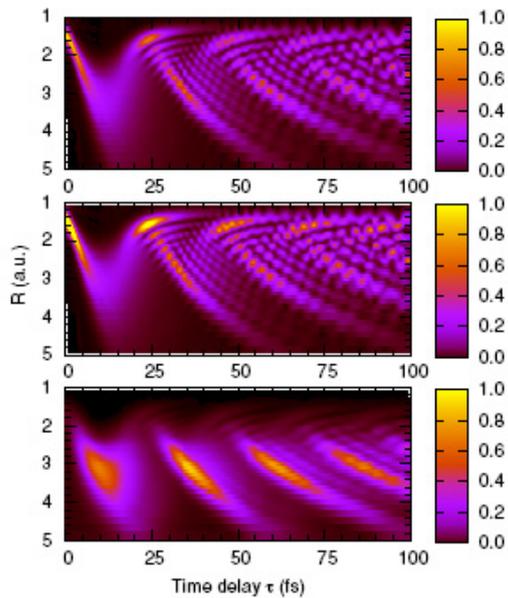


Abbildung 1.1: Numerische Simulation der Vibration eines D_2^+ -Moleküls, nach Ionisation zum Zeitpunkt $\tau = 0$. Der obere Graph zeigt das „exakte“ Wellenpaket, wie es die Theorie vorhersagt. In der Mitte das Wellenpaket, wie man es mittels Spektroskopie mit XUV-Lichtimpulsen von 0,3 fs Dauer bei einer Zentralwellenlänge von 25 nm rekonstruieren würde; im unteren Graph das mit einem 800 nm IR-Impuls von 8 fs Dauer rekonstruierte Wellenpaket. Die Dynamik des Wellenpakets kann demnach mit einem Attosekundenimpuls naturgetreu abgebildet werden [Lin06].

Attosekundenimpulsen [Lin06]. Man erkennt, dass bei der Abbildung des Wellenpakets mit einem Femtosekundenimpuls die feineren Strukturen verwaschen erscheinen, dagegen bei der Verwendung von Attosekundenimpulsen vollständig und präzise wiedergegeben werden.

Vor der konkreten Umsetzung eines derartigen Experiments müssen allerdings noch einige technische Schwierigkeiten gemeistert werden: Experimente mit Attosekundenimpulsen setzen die vollständige Kontrolle über das elektrische Feld des Laserimpulses und eine stabile zeitliche Beziehung zwischen der harmonischen Strahlung und ihrer Fundamentalen voraus. Darüber hinaus müssen die beiden Impulse kontrolliert zeitlich gegeneinander verschoben werden können — und das mit Attosekunden-Präzision. Daraus entwickelte sich ein neues Gebiet aktueller Forschung, die „Attosekundenphysik“ [Scr05a].

Ziel dieser Arbeit war der Aufbau einer Apparatur zur Erzeugung hoher harmonischer Strahlung in Neon und Argon für Attosekunden-Pump-Probe-Experimente mit einem Reaktionsmikroskop. Kernstück des Aufbaus ist die „innere Targetkammer“, in der die harmonische Strahlung erzeugt wird und wo zu diesem Zweck ein Gastarget — ein dünnes gasdurchströmtes Röhrchen — justierbar montiert ist. Die Targetkammer wurde im Rahmen der Diplomarbeit geplant, konstruiert und erfolgreich in Betrieb genommen. Zur Charakterisierung der erzeugten Strahlung wurde ein Spektrometer aufgebaut, das die hochenergetische harmonische Strahlung über ein Transmissionsgitter zerlegt. Als Detektor dient

eine CCD-Kamera. Eine systematische Untersuchung der erzeugten harmonischen Strahlung beweist die Eignung des Aufbaus für die geplanten Pump-Probe Experimente.

Die vorliegende Arbeit ist folgendermaßen gegliedert: In Kapitel 2 werden die physikalischen Grundlagen der Erzeugung hoher harmonischer Strahlung diskutiert und Ansätze der theoretischen Beschreibung skizziert. Kapitel 3 befasst sich detailliert mit dem experimentellen Aufbau der Apparatur und beschreibt ausführlich die zur Justage notwendigen Schritte. Verschiedene Möglichkeiten zur Steigerung der Ausbeute hoher Harmonischer und die geplante Weiterentwicklung des Experiments werden vorgestellt. Darauf folgt in Kapitel 4 eine Diskussion der beobachteten Spektren und die Charakterisierung der mit der Apparatur erzeugten hohen harmonischen Strahlung, sowie eine Abschätzung der Konversionseffizienz des Experimentes. Kapitel 5 fasst die Ergebnisse und Beobachtungen zusammen und gibt einen Ausblick auf künftige Experimente.

Kapitel 2

Die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung in Gasen

Hohe harmonische Strahlung wird erzeugt, wenn ein intensives, linear polarisiertes Laserfeld mit einem nichtlinearen Medium — meist einem Edelgas — wechselwirkt. Dank des vergleichsweise geringen experimentellen Aufwands hat sich die Erzeugung hoher Harmonischer in den letzten fünfzehn Jahren zu einem vielseitigen und leistungsstarken Hilfsmittel physikalischer Forschung entwickelt.

2.1 Die Entdeckung harmonischer Strahlung

Die Erforschung nichtlinearer optischer Effekte begann 1961, als es P. Franken gelang, die zweite Harmonische des Lichtes eines Rubinlasers in einem dielektrischen Kristall zu erzeugen [Fra61]. Rasch wurden weitere nichtlineare Effekte wie Frequenzmischung und Frequenzvervielfachung [She84] entdeckt.

Physikalisch beruhen diese auf einem nichtlinearen Zusammenhang zwischen einem äußeren elektrischen Feld und der von diesem Feld in einem Medium hervorgerufenen Polarisation: Ein elektrisches Feld, das von außen an ein Medium angelegt wird, induziert Ladungsverschiebungen im Medium. Quantifiziert wird diese Ladungsverschiebung mit dem Dipolmoment $d = q \cdot l$, dem Produkt aus der getrennten Ladung q und deren räumlicher Entfernung l . Die Induktion von Dipolmomenten äußert sich makroskopisch in der Polarisation $P = Nd$ des Mediums, wobei N die Anzahl induzierter Dipole ist.

Solange das äußere elektrische Feld schwach ist, hängt d und damit auch P linear von der Stärke des externen Feldes ab. Bei starken Feldern treten jedoch

nichtlineare Komponenten der Polarisation P auf. Mathematisch beschreibt man diese, indem man P in eine Potenzreihe zerlegt [She84]:

$$(2.1) \quad P = \epsilon_0 \chi E = \epsilon_0 \left[\chi^{(1)} E + \underbrace{\chi^{(2)} E^2 + \chi^{(3)} E^3 + \chi^{(4)} E^4 + \dots}_{\text{nichtlinearer Anteil der Polarisation}} \right]$$

Dabei sind $\chi^{(n)}$ die Suszeptibilitäten der Ordnung n , $\epsilon_0 = 8,854 \cdot 10^{-12}$ F/m die Dielektrizitätskonstante des Vakuums und E die Stärke des angelegten elektrischen Feldes. Da die Suszeptibilitäten $\chi^{(n)}$ mit zunehmender Ordnung sehr schnell abnehmen, sind zur Beobachtung der Effekte höherer Ordnungen um jeweils viele Größenordnungen stärkere Felder nötig.

Eine einfache Evaluation der n -ten Potenz des elektrischen Feldes zeigt, dass die nichtlinearen Suszeptibilitäten zur Abstrahlung von Wellen mit neuen Frequenzen führen (vgl. [She84] oder [Mor03]). Bei auf diese Art erzeugten Wellen, die mit einem ganzzahligen Vielfachen der Frequenz des äußeren Feldes — der „Fundamentalen“ — oszillieren, spricht man von „(optischen) Harmonischen“ und von deren Gesamtheit als „harmonische Strahlung“.

Dass stets ganzzahlige Vielfache der fundamentalen Frequenz erzeugt werden, kann man sich leicht im Photonenbild plausibel machen: ein Atom, das sich anfangs im Grundzustand befindet, absorbiert aus einem äußeren elektromagnetischen Feld n Photonen der Frequenz ν_0 , und gibt die dabei aufgenommene Energie $E = n h \nu_0$ — h ist hier das Planck'sche Wirkungsquantum — in einem einzigen Photon wieder ab. Dessen Frequenz beträgt dann zwangsläufig $n \nu_0$.

Die Frequenzmischung und die Erzeugung der zweiten und dritten Harmonischen haben bereits den Weg in zahlreiche Anwendungen gefunden, etwa zur Erzeugung von anderweitig schwer zugänglichen Laserfrequenzen [Sil00] oder bei der Charakterisierung kurzer Laserimpulse [Bau02].

Bedingt durch die enormen Fortschritte auf dem Gebiet kurzer, intensiver Laserimpulse in den 1980er Jahren standen mit der Zeit immer intensivere Strahlungsquellen zur Verfügung, deren Felder zur Untersuchung nichtlinearer Effekte genutzt werden konnten. Als nichtlineare Medien wurden Edelgase von Helium bis Xenon verwendet. Anfang der 90er Jahre zeigte eine Reihe von Experimenten mit den stärksten damals verfügbaren Lasern, dass die Intensität harmonischer Strahlung nicht wie erwartet mit zunehmender Ordnung kontinuierlich abfällt. Statt dessen weisen die Spektren der erzeugten Frequenzen ein breites Plateau auf, in dem sehr viele Harmonische bei nahezu gleicher Intensität auftreten [Scr05a]. Beispielhaft für diese Zeit zeigt Abbildung 2.1 ein Spektrum hoher harmonischer Strahlung aus dem Jahr 1993. Damals gelang es A. L'Huillier und Ph. Balcou,

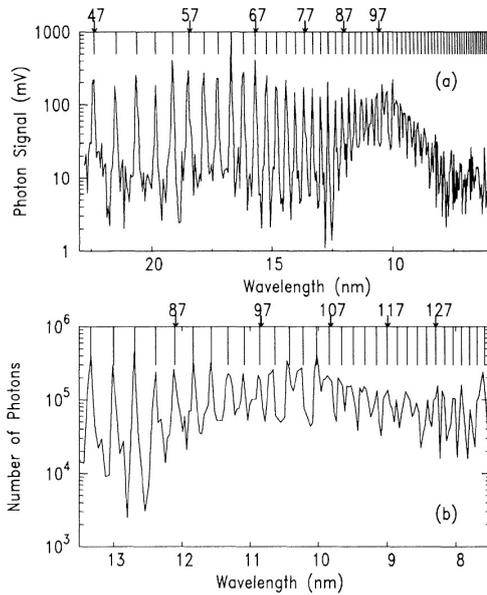


Abbildung 2.1: Spektrum hoher harmonischer Strahlung, erzeugt in Neon bei 40 torr und einer Laserintensität von $1,5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Oben die Rohdaten, unten nach einer spektrometerspezifischen Korrektur im Bereich sehr kleiner Wellenlängen [L’H93a].

in Neon Harmonische der Strahlung eines Nd:YLF-Lasers (1053 nm) bis über die 135. Ordnung hinaus zu erzeugen [L’H93a].

Systematische Messungen zeigten, dass das Plateau stets mit einem scharfen „Cutoff“ endet, das heißt, oberhalb einer charakteristischen Photonenenergie fällt die Intensität innerhalb sehr weniger Harmonischer auf Null ab [L’H93a]. Darüber hinaus wurde deutlich, dass die Position des Cutoffs mit der Fundamentalwellenlänge skaliert: je länger die Wellen der Fundamentalen, desto höher liegt die Cutoff-Frequenz.

Kenneth Kulander schlug 1992 ein einfaches Gesetz zur Quantifizierung dieser Abhängigkeit vor [Kra92]: Die Photonenenergie der harmonischen Strahlung am Cutoff E_{max} ist demnach durch $E_{max} \approx I_p + 3U_p$ gegeben. Darin ist I_p das Ionisationspotential des Gases, das als nichtlineares Medium verwendet wird, und U_p das vom Laserfeld erzeugte „ponderomotive Potential“. Das ponderomotive Potential ist die mittlere kinetische Energie, die ein freies Elektron in einem gegebenen Laserfeld aufnimmt. U_p hängt von der Frequenz ω und der Amplitude E des elektrischen Feldes ab:

$$(2.2) \quad U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2} = 9,33 \cdot 10^{-14} I \lambda^2 \text{ eV},$$

wobei e und m Ladung bzw. Masse des Elektrons sind. Auf der rechten Seite ist I die Intensität in W/cm^2 und λ die Wellenlänge der Fundamentalen in μm [Mac93] [L’H93a]. Kulers Cutoff-Regel erwies sich als richtig und wurde später theoretisch untermauert, wie in den Kapiteln 2.2.1 und 2.2.2 skizziert.

Verfeinerte Experimente mit hochintensiven Laserimpulsen, die nur noch wenige optische Zyklen dauern, machten Ende der 90er Jahre die Erzeugung immer höherer Vielfacher der fundamentalen Wellenlänge möglich. Laserimpulse mit Intensitäten um $5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und Impulsdauern von 25 fs bis unter 7 fs erlaubten die Erzeugung von Wellenlängen von weniger als 2,5 nm in Helium und ca. 5 nm in Neon [Sch98] [Spi97] [Cha97]. Das entspricht Photonenenergien von 250 eV bis knapp 0,5 keV, die harmonischen Spektren reichen also bis in den Spektralbereich weicher Röntgenstrahlung hinein. Unlängst wurde sogar die Beobachtung harmonischer Strahlung mit über 1 keV Photonenenergie berichtet, das entspricht Harmonischen der Ordnung 500 und darüber [Ser05].

2.2 Theoretische Beschreibung

Bereits nach den ersten Beobachtungen hoher Harmonischer war klar, dass hier eine neue Quelle kohärenter hochenergetischer Strahlung erschlossen wurde, die unter Umständen mit Synchrotronquellen konkurrieren konnte. So entstand ein großes Interesse an einer fundierten theoretischen Beschreibung der Erzeugung hoher Harmonischer.

Eine intuitive Erklärung lieferte eine halbklassische Beschreibung, genannt „simple man’s picture“ oder „Drei-Schritt-Modell“, die auf P. B. Corkum und K. Kulander zurück geht [Cor93] [Kul93]: ein Elektron wird in einem starken externen Feld, in der Regel dem eines Lasers, durch Tunnelionisation freigesetzt und anschließend in dem externen Feld beschleunigt. Kehrt es zum Ort des Ionenrumpfes zurück, kann es unter Abstrahlung der aus dem Feld aufgenommenen kinetischen Energie in Form eines hochenergetischen Photons mit dem Ion rekombinieren. Der Vorgang wiederholt sich periodisch mit den Oszillationen des externen Laserfeldes, so dass sich ein kohärenter Harmonischenstrahl mit geringer Divergenz ausbildet.

Der physikalische Mechanismus dieses Modells taucht bereits 1987 in einem Artikel von M. Kuchiev unter der Bezeichnung „atomare Antenne“ auf [Kuc87], da ein Elektron hier genau wie eine klassische Antenne als Absorber von Feldenergie dient. Die Möglichkeit, dass die aus dem Feld aufgenommene Energie in einem einzigen HHG-Photon abgegeben wird, betrachtet Kuchiev jedoch nicht.

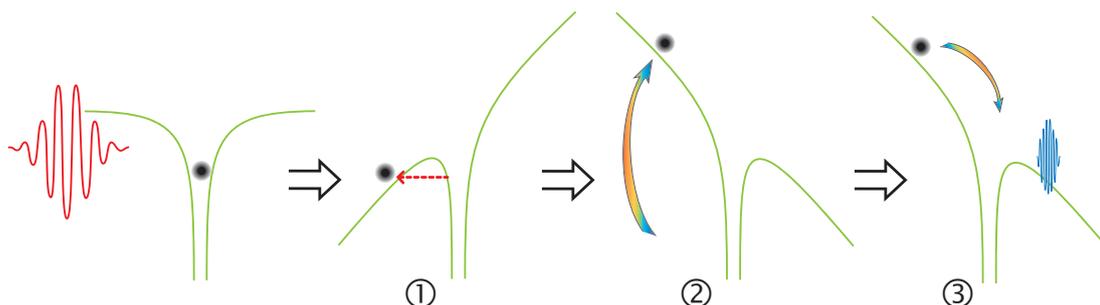


Abbildung 2.2: Schematische Darstellung von Paul Corkum's Drei-Schritt-Modell: ein Elektron tunnelt durch die unter dem Einfluss eines starken externen Feldes abgesenkte Coulombbarriere. Anschließend gewinnt es durch Beschleunigung im externen Feld kinetische Energie, die es in Form eines hochenergetischen Photons abgibt.

2.2.1 Corkums Drei-Schritt-Modell

P. B. Corkum leitete seine Theorie hoher harmonischer Strahlung aus Konzepten ab, die bereits in der Plasmaphysik breite Anwendung gefunden hatten und gelangte mit deren Hilfe zu einer weitaus vollständigeren Theorie als die bis dahin formulierten. Das Drei-Schritt-Modell ist jedoch nur für die Beschreibung *hoher* Harmonischer gültig — für nichtlineare Effekte also, bei denen das äußere Feld in etwa so stark ist wie die Bindungsenergie der äußeren Elektronen oder diese noch übertrifft. Für nichtlineare Effekte niedriger Ordnung ist es nicht geeignet.

Die große Stärke von Corkums Theorie liegt darin, dass sie neben der Reproduktion der wesentlichen Merkmale harmonischer Spektren auch physikalisch plausible Bilder zum Verständnis der inneratomaren Vorgänge liefert. Ein wesentlicher Punkt seiner Untersuchungen ist, dass ein Atom bei der Ionisation durch Absorption einer großen Zahl Photonen nicht in ein Elektron und ein davon getrenntes Ion zerfällt, sondern das Elektron für eine gewisse Zeit in der Nähe des Ions verbleibt. Es gibt also eine signifikante Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron zum Atomrumpf zurückkehrt.

Corkums Modell beschreibt die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung in drei Schritten, die schematisch in Abbildung 2.2 dargestellt sind: Ein Elektron wird durch Tunnelionisation im elektrischen Feld der Laserstrahlung freigesetzt, das heißt ein Elektronen-Wellenpaket entsteht am Ort des Atoms. Dies geschieht bei jedem Maximum des elektrischen Laserfeldes.

Im zweiten Schritt wird die Bewegung des Wellenpaketes im elektrischen Feld des Lasers klassisch behandelt. Sowohl das magnetische Feld des Lasers als auch das elektrische Feld des Ions werden dabei vernachlässigt. Als Anfangspunkt der

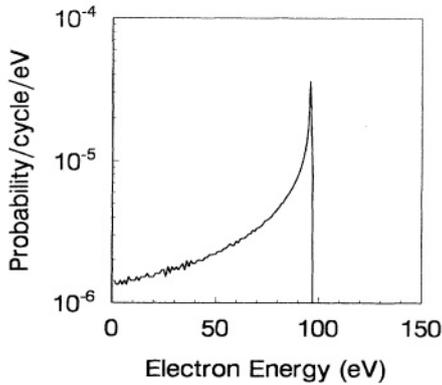


Abbildung 2.3: Die Wahrscheinlichkeit $P(E)$ pro Energieeinheit und pro Laserzyklus, mit der ein Elektron mit einer bestimmten Energie E zum Ionenrumpf zurückkehrt: 800 nm Strahlung wechselwirkt bei einer Feldstärke von $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ mit Helium [Cor93].

freien Bewegung des Wellenpaketes wird die Position des Ions im Koordinatensprung gewählt. Man erhält für Licht allgemeiner Polarisierung die klassischen Bewegungsgleichungen des Elektrons:

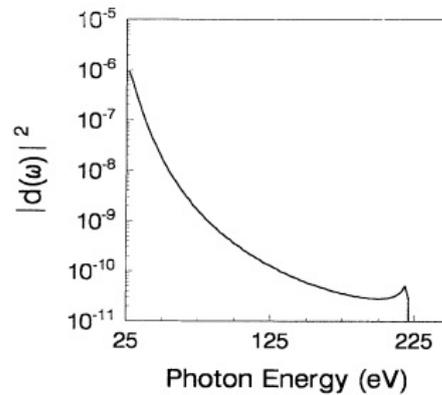
$$\begin{aligned}x &= x_0[-\cos(\omega t)] + v_{0x}t + x_{0x} \\y &= ax_0[-\sin(\omega t)] + av_{0y}t + y_{0y} \\v_x &= v_0 \sin(\omega t) + v_{0x} \\v_y &= -av_0 \cos(\omega t) + v_{0y}\end{aligned}$$

mit $v_0 = qE_0/m_e\omega$ und $x_0 = qE_0/m_e\omega^2$. Position und Geschwindigkeit des Elektrons zum Zeitpunkt des Tunnelns werden als 0 angenommen. In den Bewegungsgleichungen ist $a = 0$ für linear polarisiertes Licht, $a = \pm 1$ gilt für zirkular polarisiertes Licht. Man sieht, dass das Elektron nur in einem linear polarisierten Laserfeld zum Ion zurückkehrt; bei zirkular oder elliptisch polarisiertem Licht verläuft die Trajektorie des Elektrons nach der Tunnelionisation nicht mehr durch den Ursprung. Zusammen mit der Ionisationsrate für Tunnelionisation folgt außerdem, dass die Hälfte der ionisierten Elektronen innerhalb der ersten Laserperiode nach der Ionisation zum Ion am Ort $x = 0$ zurückkehren [Cor93].

Daraus lässt sich die Wahrscheinlichkeit $P(E)$ errechnen, mit der ein Elektron mit der Energie E den Ionenrumpf passiert. Diese ist in Abbildung 2.2.1 dargestellt. Die größte Wahrscheinlichkeit pro Laserzyklus und Elektronenenergie tritt bei der höchstmöglichen Geschwindigkeit des Elektrons auf und entspricht einer kinetischen Energie von 3,17 mal dem ponderomotiven Potential U_p . Bereits hier deutet sich die Cutoff-Regel der harmonischen Spektren an. Außerdem kann man nachrechnen, dass diejenigen Elektronen, die die maximale kinetische Energie erhalten, immer dann tunneln, wenn das externe Feld die Phase $\omega t \approx 17^\circ$ hat.

Als Folge der Rückkehr des Elektrons zu dem Ionenrumpf betrachtet Corkum drei Prozesse: falls die Energie des Elektrons das zweite Ionisationspotential des

Abbildung 2.4: Das Quadrat des berechneten Dipolmomentes in atomaren Einheiten in Abhängigkeit von der Energie der emittierten harmonischen Strahlung. Die Rechnung bezieht sich auf Heliumatome in einem Laserfeld mit $1,06 \mu\text{m}$ und einer Intensität von $6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ [Cor93].



untersuchten Atoms übersteigt, kann es ein zweites Elektron durch Kollision aus der Elektronenhülle des Atoms entfernen. Elastische Streuung des Elektrons am Ionenrumpf dagegen führt zu above-threshold-ionisation (ATI). Beide Prozesse werden von Corkums quasistatischem Modell qualitativ richtig wiedergegeben.

Eine weitere — und in Corkums Augen wichtigste — Konsequenz der Elektron-Ion-Wechselwirkung nach dem Tunneln ist die Emission harmonischer Strahlung, bei der das Elektron die aus dem Feld gewonnene kinetische Energie in Form eines einzigen Photons abstrahlt. Da das Elektronen-Wellenpaket in einem linear polarisierten Feld den Ionenrumpf während jedes Laserzyklus auf die gleiche Weise passiert, muss die Abstrahlung bei Vielfachen der fundamentalen Wellenlänge geschehen. Die Intensität der Strahlung kann über den Erwartungswert des Dipoloperators $\langle \Psi | er | \Psi \rangle$ berechnet werden. Man erhält ein frequenzabhängiges induziertes Dipolmoment $|d(\omega)|$, dessen Quadrat ein Maß für die Stärke der Emission ist.

Abbildung 2.2.1 zeigt das anhand des Quadrats des Dipolmomentes $|d(\omega)|^2$ berechnete harmonische Spektrum. Augenfällig sind das lange Plateau, innerhalb dessen die verschiedenen Harmonischen nahezu gleiche Intensitäten aufweisen, und der scharfe Cutoff des Spektrums bei einer Energie von $3,17 \cdot U_p + I_p$. Das Modell reproduziert also trotz seiner Einfachheit die wesentlichen Kennzeichen der Spektren harmonischer Strahlung, und verdeutlicht dabei einige wesentliche physikalische Zusammenhänge: der Cutoff des Spektrums wird von der maximalen kinetischen Energie der Elektronen und somit vom ponderomotiven Potential U_p des Laserfeldes bestimmt. Die Intensität der einzelnen Harmonischen dagegen hängt von der Wahrscheinlichkeit ab, dass ein Elektron mit entsprechender kinetischer Energie zum Ionenrumpf zurückkehrt. Diese wird im Wesentlichen von der Ionisationsrate bestimmt.

2.2.2 Weiterführende Theorien und Ergebnisse wichtiger Simulationen

Corkums semiklassisches Modell hoher harmonischer Strahlung beruht auf drei fundamentalen Annahmen: hohe Harmonische werden in seiner Theorie von denjenigen Elektronen erzeugt, die (i) mit kinetischer Energie gleich Null im Kontinuum erscheinen, (ii) zum Ionenrumpf zurückkehren und (iii) bei ihrer Rückkehr die nötige kinetische Energie besitzen, um eine bestimmte Harmonische zu erzeugen. Dabei werden klassische und quantenmechanische Bilder vermischt: Die Tunnelionisation und die Rekombination werden quantenmechanisch behandelt, die Beschleunigung im Laserfeld dagegen klassisch. Quanteneffekte wie beispielsweise die Diffusion des Elektronenwellenpaketes im Kontinuum werden nicht berücksichtigt [Lew94]. Es gab daher stets Bestrebungen, eine vollständige quantentheoretische Beschreibung der Erzeugung hoher Harmonischer zu etablieren.

Frühe Theorien beschränkten sich zunächst darauf, die Emission eines einzelnen Atoms aus der Abstrahlcharakteristik des durch das äußere Feld induzierten Dipols zu berechnen. Dabei wurden entweder sehr einfache, kurzreichweitige Modellpotentiale wie das dreidimensionale δ -Potential verwendet [Bec90], oder ein Hamiltonoperator, der nur zwei Atomzustände zulässt, nämlich den Grund- und den Kontinuumszustand [L'H93b] [Kra92]. Letzteres wird in der Literatur „effective-dipole model“ genannt. Selbst mit diesen vergleichsweise einfachen Modellen konnten die wesentlichen Charakteristika der Spektren harmonischer Strahlung — Plateau und Cutoff — recht genau reproduziert werden. Die Rechnungen zeigten außerdem, dass aufgrund der Symmetrie des Atompotentials nur ungerade Harmonische erzeugt werden.

Das Drei-Schritt-Modell in quantenmechanischer Beschreibung

1994 präsentierte M. Lewenstein zusammen mit Ph. Balcou, A. L'Huillier und P. B. Corkum ein vollständig quantentheoretisches Modell harmonischer Strahlung, das insofern aus der Masse der theoretischen Beschreibungen hoher harmonischer Strahlung hervorsticht, als es das anschauliche Modell Corkums mit den quantenmechanischen Ansätzen verbindet.

Für ein einzelnes Atom in einem klassischen elektromagnetischen Feld konnte dort die Schrödingergleichung unter Verwendung von drei Annahmen gelöst werden: (i) alle Elektronenzustände außer dem Grundzustand und dem Kontinuum werden ignoriert, (ii) die Entleerung des Grundzustands durch Ionisation wird vernachlässigt und (iii) das Elektron im Kontinuumszustand, im Folgenden mit

$|v\rangle$ bezeichnet, wird im elektrischen Feld wie ein freies Teilchen behandelt, das heißt das Potential des Ionenrumpfs wird ignoriert. Unter diesen Annahmen kann die Wellenfunktion des Elektrons $|\Psi(t)\rangle$ folgendermaßen geschrieben werden:

$$(2.3) \quad |\Psi(t)\rangle = e^{iI_p t} \left(a(t) |0\rangle + \int d^3v b(v, t) |v\rangle \right)$$

wobei $a(t)$ und $b(v, t)$ die Amplituden im Grund- und Kontinuumszustand sind, und I_p das Ionisationspotential. Die Schrödingergleichung kann exakt gelöst werden. Daraus kann man das zeitabhängige Dipolmoment $x(t)$ berechnen:

$$(2.4) \quad x(t) = \langle \Psi(t) | x | \Psi(t) \rangle = \int d^3v d_x^*(v) b(v, t) + c.c.$$

Darin ist $d(v) = \langle v | x | 0 \rangle$ das Matrixelement des Übergangs zwischen Grundzustand und Kontinuum. d_x ist die Komponente parallel zur Polarisationsrichtung des elektrischen Feldes, und d_x^* deren komplex konjugierte. Das Spektrum der harmonischen Strahlung erhält man durch Fouriertransformation des Dipolmomentes $x(t)$. Auch hier werden aufgrund der Symmetrie des Potentials nur ungerade Harmonische erzeugt.

Unter Verwendung eines kanonischen Impulses $p = v + A$ lässt sich $x(t)$ umschreiben zu

$$(2.5) \quad x(t) = i \int_0^t d\tau \int d^3p E \cos(\tau) d_x(p - A(\tau)) \exp[-iS(p, t, \tau)] \times d_x^*(p - A(t)) + c.c.$$

mit

$$(2.6) \quad S(p, t, \tau) = \int_\tau^t dt' \left(\frac{[p - A(t')]^2}{2} + I_p \right).$$

Die Gleichung 2.5 kann als Summe über die Wahrscheinlichkeitsamplituden für die drei Prozesse interpretiert werden, die Corkum in seinem Drei-Schritt-Modell annahm: Der erste Term des Integrals, $E \cos(\tau) d_x(p - A(\tau))$, ist die Übergangswahrscheinlichkeit des Elektrons vom Grund- in den Kontinuumszustand zu einem Zeitpunkt τ mit einem Impuls p . In der Zeit zwischen τ und t propagiert das Elektron im äußeren elektrischen Feld, wobei seine Wellenfunktion einen Phasenfaktor $\exp[-iS(p, t, \tau)]$ erhält. Darin ist $S(p, t, \tau)$, wie man an Gleichung 2.6 abliest, das zeitliche Integral über die aus dem elektrischen Feld gewonnene kinetische Energie und das Ionisationspotential. Das Elektron recombiniert schließlich zum Zeitpunkt t mit dem Ionenrumpf. Die Wahrscheinlichkeit für diesen Prozess ist in $d_x^*(p - A(t))$ zu finden [Lew94] [Ago04]. In diesen drei Schritten erkennt man leicht das semiklassische Modell Corkums wieder.

Aus Lewensteins Theorie lässt sich darüber hinaus eine exakte quantentheoretische Formel für den Cutoff des Spektrums ableiten: Aufgrund von Quanteneffekten verändert sich diese zu $E_{max} = 3,17U_p + I_p F(I_p/U_p)$, wobei $F(I_p/U_p) = 1,3$ ist in dem Fall, dass $I_p \ll U_p$ ist, und mit wachsendem I_p auf 1 abfällt [Lew94].

Kollektive Effekte und Phasenanpassung

Für eine präzise Modellierung der Spektren harmonischer Strahlung reicht es jedoch nicht aus, die Emission eines einzelnen Atoms zu berechnen, wie das die Theorien der frühen 90er Jahre taten. Hohe harmonische Strahlung wird in Gargets erzeugt, deren Dichte so groß ist, dass kollektive Effekte nicht vernachlässigt werden können. Harmonische, die durch das Medium propagieren, interferieren miteinander, können an Atomen streuen und die Erzeugung weiterer Harmonischer anregen, und beeinflussen so das experimentelle Resultat.

Anne L’Huillier erarbeitete zusammen mit Philippe Balcou und Macej Lewenstein in umfangreichen Simulationen die Effekte der Propagation harmonischer Strahlung im Medium [L’H92] [L’H93b]. Die Emission der Strahlung durch ein einzelnes Atom und die darauf folgende Propagation durch das Medium betrachteten sie getrennt, so dass sich das Modell auf eine Vielzahl von experimentellen Rahmenbedingungen anwenden ließ.

Kohärente Emission der Harmonischen in eine bestimmte Richtung setzt korrektes „phase-matching“ voraus, das heißt verschiedene Harmonische dürfen bei der Propagation durch das Medium nicht destruktiv interferieren. Die Dispersion im Medium und der Phasensprung am Fokuspunkt rufen Phasenfehlanspassungen hervor, die um so gravierender werden, je höher die Ordnung der betreffenden Harmonischen ist. Man würde daher erwarten, dass hohe Harmonische aufgrund destruktiver Interferenzen praktisch unbeobachtbar werden. Glücklicherweise hilft an dieser Stelle die Natur etwas nach: L’Huilliers Rechnungen zeigen, dass in einem sehr starken Feld die Phasenanpassung auch wesentlich von den Amplituden der Felder im Medium abhängt, so dass auch für hohe Harmonische die phase-matching-Bedingung erfüllt wird. Man muss daher grundsätzlich zwischen der Phasenanpassung in einem starken äußeren Feld und der im schwachen Feld unterscheiden.

Dieses Ergebnis kann man sich mit folgender Überlegung plausibel machen: Im schwachen Feld ist die Produktion hoher harmonischer Strahlung in der Nähe des Fokuspunktes konzentriert, wo große Phasenverschiebungen auftreten. Im starken Feld dagegen variiert die nichtlineare Polarisation weniger schnell, so dass das Volumen, in dem die Harmonischen erzeugt werden, deutlich größer ist. Der

Verlust an Kohärenz wird dadurch ausgeglichen, das Resultat sind weitgehend konstante Phasenanpassungs-Faktoren für alle Harmonischen innerhalb des Plateaus. Effiziente Phasenanpassung kann damit als Ergebnis einer schwächeren Intensitäts-Abhängigkeit der Emission eines einzelnen Atoms interpretiert werden; es handelt sich im starken Feld mehr um einen Amplituden- als um einen Phaseneffekt.

Simulationen der Propagation harmonischer Strahlung zeigten außerdem, inwieweit das nichtlineare Medium Divergenz, räumliche Struktur und Kohärenz der hohen Harmonischen beeinflusst [L'H91] [Chr01] [L'H92]. Ein wichtiger Effekt der Propagation im Medium ist, dass die harmonische Strahlung stärker kollimiert ist als die Fundamentale, so dass sich die Harmonischen als enges Bündel im Zentrum des fundamentalen Laserstrahls ausbreiten. Einige Experimente nutzen diesen Effekt, um Harmonische und Fundamentale räumlich zu trennen, zum Beispiel unter Verwendung eines Spiegels, der aus zwei konzentrischen, gegeneinander beweglichen Komponenten besteht [Dre02] [Dre01].

Quantitative Betrachtungen des Einflusses der Propagation der harmonischen Strahlung durch das Medium werden dadurch erschwert, dass dieser wesentlich von der Fokussierung des treibenden Lasers und zahlreichen experimentellen Parametern abhängt. Die Targetlänge, die Position des Fokuspunktes relativ zum Target und der Druck des Targetgases sind nur einige von vielen Parametern, die Spektrum und Ausbeute harmonischer Strahlung signifikant beeinflussen [L'H93a], so dass ein vollständiges, quantitatives Verständnis der optimalen experimentellen Bedingungen für die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung bis heute fehlt [Kaz03].

Vereinheitlichte Theorien

Die bisher skizzierten Modelle berücksichtigen weder angeregte Elektronenzustände noch den Einfluss des elektrischen Feldes des Ionenrumpfs auf die Bewegung des Elektrons im Kontinuum, darüber hinaus werden Effekte der Ionisation des Mediums außer Acht gelassen. Verfeinerte Theorien von K. Kulander, A. L'Huillier, M. Lewenstein und P. Antoine gleichen diese Defizite aus [Bec94] [Lew95] [Ant96]. W. Becker schließlich entwickelte eine Theorie hoher harmonischer Strahlung, die streng parallel zur Theorie der Multi-Photon-Ionisation von Keldysh und Faisal [Kel65] vorgeht. Becker konnte zeigen, dass dieses Konzept die vereinfachten Modelle der Erzeugung harmonischer Strahlung in kurzreichweitigen Potentialen und in der Dipolnäherung verbindet, und rechtfertigte damit die darin gemachten Näherungen [Bec97].

2.3 Die Erzeugung von Attosekundenimpulsen

Ende der 90er Jahre rückte hohe harmonische Strahlung abermals in das Zentrum des Interesses von Atom- und Molekülphysikern: theoretische Untersuchungen deuteten darauf hin, dass die Emission harmonischer Strahlung auf Zeitskalen von wenigen hundert Attosekunden geschieht. Man schloss daraus, dass hohe Harmonische sich zur Erzeugung extrem kurzer, kohärenter Lichtimpulse eignen könnten. Derart kurze Impulse ermöglichen die direkte Erforschung einiger der schnellsten Prozesse der Atom- und Molekülphysik, beispielsweise die Bewegung eines Elektrons im Orbital eines Atoms. Ein neuer Zweig an der Schnittstelle von Atomphysik und Optik entstand, die „Attosekundenphysik“. Diese ist heute Gegenstand aktueller, intensiver Forschung.

2.3.1 Die zeitliche Struktur harmonischer Strahlung

Wenn man das halbklassische Bild Corkums auch hinsichtlich der zeitlichen Struktur der Harmonischen ernst nimmt, so erwartet man, dass Harmonische unterschiedlicher Energie zu verschiedenen Zeitpunkten innerhalb eines Laserzyklus produziert werden, da in diesem Modell jede harmonische Ordnung an bestimmte Zeitpunkte der Ionisation und der Rekombination geknüpft ist. Photonen bestimmter Energie werden in diesem Bild periodisch innerhalb kurzer Zeitintervalle emittiert, die jeweils nur einem Bruchteil der Schwingungsdauer der Fundamentalen entsprechen.

Abbildung 2.5 zeigt einen Vergleich der aus dem Drei-Schritt-Modell erwarteten Ionisation mit den Ergebnissen einer numerischen Simulation des atomaren Dipolmoments. Zunächst ist erstaunlich, dass die quantenmechanische Berechnung zum annähernd selben Resultat führt wie das klassische Drei-Schritt-Modell: der Zeitpunkt der Emission einer bestimmten Harmonischen ist an die Phase des fundamentalen Laserfeldes gekoppelt [Scr05a] [Scr05b]. Plausibel wird dieses Ergebnis, wenn man bedenkt, dass der Mittelwert der quantenmechanischen Ausbreitung eines Wellenpaketes stets der klassischen Bewegungsgleichung gehorcht.

Dieser Sachverhalt legt nahe, sehr kurze Lichtimpulse durch Selektion weniger benachbarter Harmonischer — unter Berücksichtigung der für einen so kurzen Impuls nötigen spektralen Bandbreite — zu erzeugen. Wie soeben erläutert, werden diese nur bei bestimmten Phasen des fundamentalen Laserfeldes erzeugt. Trennt man beispielsweise das hochfrequente Ende des harmonischen Spektrums vom Rest der Laserstrahlung ab, erhält man bei jedem Feldminimum des fundamentalen Lasers, wenn die zurückkehrenden Elektronen die höchstmögliche Energie

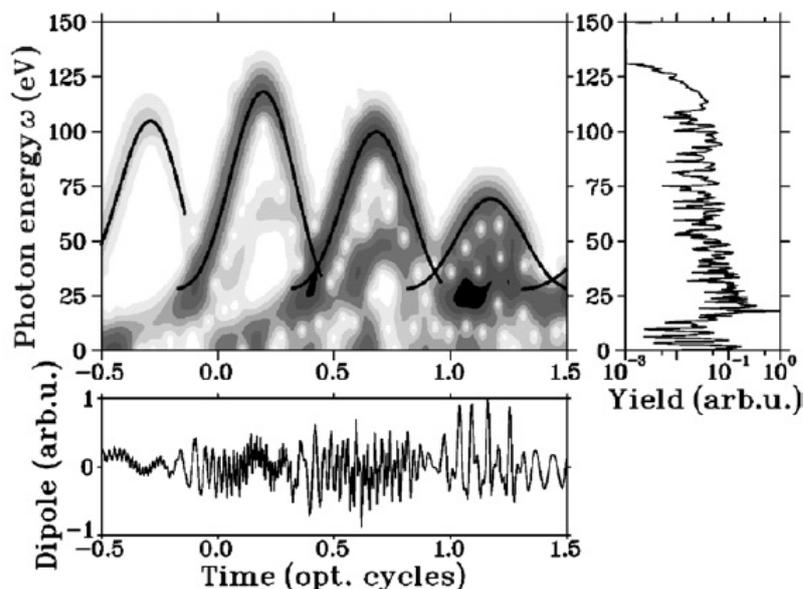


Abbildung 2.5: Klassische Elektronenbahn und Dynamik des quantenmechanischen Wellenpakets im Vergleich: Der untere Graph zeigt das numerisch berechnete Dipolmoment eines Atoms. Durch Fouriertransformation erhält man daraus die pro Zeiteinheit produzierten Energien, die im oberen Graphen dargestellt sind. Darin zeigt die durchgezogene Linie die anhand des klassischen Bildes erwarteten Energien, Graustufen die Ergebnisse der numerischen Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung. Rechts ist das gesamte harmonische Spektrum abgebildet [Scr05b].

aufweisen, einen kurzen Impuls harmonischer Strahlung. Die harmonische Strahlung wird also in Form von Impulszügen emittiert, deren Repetitionsrate genau der halben Frequenz des fundamentalen Laserlichtes entspricht, wobei die einzelnen Impulse nur Bruchteile der Schwingungsdauer des fundamentalen Laserimpulses — einige hundert Attosekunden — dauern. Für die Frequenzfilterung eignen sich beispielsweise dünne Metallfolien aus Aluminium oder Zirkonium (siehe dazu auch Abschnitt 4.4).

Für zeitaufgelöste Spektroskopie sind derartige Impulszüge jedoch nur bedingt geeignet. Da so viele Impulse in sehr kurzem Abstand aufeinander folgen, entspricht die mit ihnen erreichte Auflösung eher der Gesamtdauer des Impulszuges. Man benötigt vielmehr einen einzelnen, isolierten Attosekundenimpuls. Um diesen zu erzeugen, muss entweder sichergestellt werden, dass der fundamentale Laserimpuls nur ein einziges, prominentes Feldmaximum aufweist, oder einzelne XUV-Impulse müssten aus dem Impulszug selektiert werden [Spi01]. Letzteres ist derzeit jedoch noch nicht machbar.

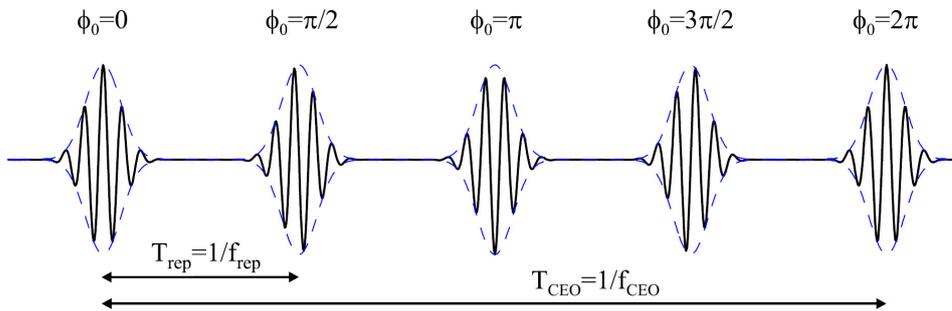


Abbildung 2.6: Lichtimpulse mit unterschiedlicher CEO-Phase Φ_0 . Gestrichelt eingezeichnet ist die Einhüllende der Impulse, die durchgezogene Linie stellt die Oszillationen des elektrischen Feldes dar. f_{rep} bezeichnet die Repetitionsrate des Lasers, f_{CEO} die Rate, mit der sich Impulse gleicher CEO-Phase wiederholen. In diesem speziellen Fall ist $f_{CEO} = 1/4 \cdot f_{rep}$ [Gim06].

2.3.2 Vom Impulszug zum einzelnen Attosekundenimpuls

Die Bedingung, dass der fundamentale Laserimpuls nur ein Feldmaximum innerhalb der Einhüllenden aufweist, so dass einzelne Attosekundenimpulse erzeugt werden können, lässt sich jedoch erfüllen: dazu wird der Impuls so weit komprimiert, dass er nur noch aus wenig mehr als einer einzigen elektromagnetischen Oszillation besteht. Einen solchen Impuls nennt man „single-cycle-pulse“.

Bei derart kurzen Impulsen wird die relative Phase Φ_0 des elektromagnetischen Feldes zur Einhüllenden des Impulses relevant. Diese wird CEO-Phase (aus dem Englischen „carrier-envelope-phase“) genannt. Bei einem single-cycle Impuls kann man in Extremfällen entweder einen einzelnen, sehr hohen Peak erzeugen, oder aber zwei gleich starke, je nachdem, ob in der Mitte der Einhüllenden ein Feldmaximum oder ein Nulldurchgang liegt. Man spricht dann von einem Kosinus- ($\Phi_0 = 0, \pi, 2\pi, \dots$) beziehungsweise von einem Sinus-Impuls ($\Phi_0 = \pi/2, 3/2\pi, \dots$). Ein typischer ultra-kurzer Impulszug der Repetitionsfrequenz f_{rep} ist in Abbildung 2.6 gezeigt. Man sieht, dass sich die relative Phase zwischen Trägerwelle und Einhüllender von Impuls zu Impuls aufgrund der Dispersion in Luft (unterschiedliche Gruppen- und Phasengeschwindigkeit) um einen wohldefinierten Betrag verschiebt. Nach einer bestimmten Zeit $T_{CEO} = 1/f_{CEO}$ ist die Ausgangssituation wieder erreicht.

Wichtig in unserem Zusammenhang ist, dass sich die CEO-Phase sowohl auf die zeitliche Struktur als auch auf das beobachtete Spektrum der harmonischen Strahlung auswirkt: bei einem kosinusförmigen single-cycle-Impuls ist der Cut-off am hochfrequenten Ende des Spektrums verwaschen. Hier wird die höchste

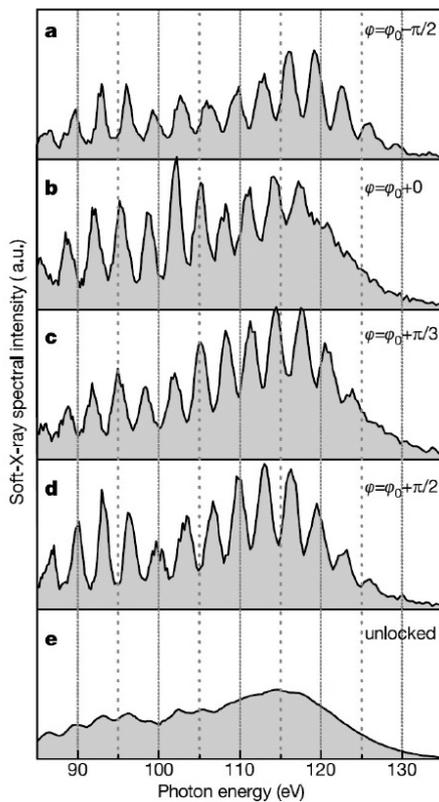


Abbildung 2.7: Abhängigkeit des harmonischen Spektrums von der CEO-Phase: bei einem Kosinus-Impuls enthält der fundamentale Laserimpuls nur ein Feldmaximum, das Spektrum ist am hochfrequenten Ende glatt (b). Dagegen ist es bei sinusförmigen Impulsen moduliert (a und d), wobei die Frequenz der Modulation dem Energieabstand der Harmonischen entspricht. Graphen (a) bis (d) zeigen Messungen mit phasenstabilisierten Laserimpulsen, während in (e) die CEO-Phase von Impuls zu Impuls variierte [Bal03]. (Zur Notation: die CEO-Phase wird in diesem Graphen abweichend vom Text nicht mit Φ_0 , sondern mit φ bezeichnet. $\varphi = \varphi_0$ entspricht einem Kosinus-Impuls.)

Energie des zurückkehrenden Elektrons und somit der harmonischen Strahlung lediglich zu einer einzigen Phase der Fundamentalen erreicht. Für diese Energie der Harmonischen wiederholt sich der Prozess von Ionisation, Beschleunigung im elektrischen Feld und Rekombination nicht mehr periodisch und es entsteht, entsprechend der Unschärferelation, ein breites, kontinuierliches Spektrum. Die fehlende zeitliche Periodizität äußert sich spektral also durch das Verwaschen der harmonischen Struktur.

Abbildung 2.7 erläutert diesen Sachverhalt. Streng genommen kann man in diesem Fall nicht mehr von harmonischer Strahlung sprechen, denn Harmonische im eigentlichen Sinn — Wellen die mit einem ganzzahligen Vielfachen der fundamentalen Frequenz schwingen — werden nur in einem periodisch oszillierenden Feld erzeugt [Bal03].

Im Gegensatz dazu enthält ein sinusförmiger single-cycle-Impuls zwei Feldmaxima, er ist also in gewissem Maße periodisch. Dementsprechend erhält man bei Verwendung eines derartigen Impulses zur Harmonischenerzeugung Modulationen auch im hochfrequenten Bereich des Spektrums, die die Struktur hoher Harmonischer widerspiegeln (vgl. Abbildung 2.7).

Der starke Einfluss der CEO-Phase erschwert das Experimentieren mit single-cycle-Impulsen, da sich Φ_0 von Impuls zu Impuls verändert (vgl. Abbildung 2.6). Um aussagekräftige Ergebnisse zu erzielen, müssen die Impulse des fundamentalen Lasers „phasenstabilisiert“ werden, so dass alle Impulse den gleichen Versatz zwischen Einhüllender und der Phase des elektrischen Feldes aufweisen [Gim06].

2.3.3 Experimentelle Bestätigung der Attosekundenstruktur harmonischer Strahlung

Bei der Diskussion der zeitlichen Struktur harmonischer Strahlung haben wir bisher stillschweigend angenommen, dass zwischen den verschiedenen Harmonischen eine feste Phasenbeziehung besteht. Denn nur wenn diese Bedingung erfüllt ist, bildet sich ein kurzer Impuls aus, andernfalls erhält man lediglich ein moduliertes DC-Signal [Spi01].

Mittels Simulationen einer Superposition von 10 Harmonischen aus dem Plateaubereich des Spektrums gelang es zu zeigen, dass unter gewissen Bedingungen die Harmonischen einer festen Phasenbeziehung unterliegen [Mil02]. Allerdings lässt sich dies nicht ohne weiteres experimentell nachweisen. Gängige Methoden zur Impulscharakterisierung wie Autokorrelation und SPIDER (vgl. Abschnitt 3.5.2 und [Bau02]) beruhen auf nichtlinearen optischen Effekten. Im Energiebereich um etwa 100 eV, in dem hohe Harmonische typischerweise liegen, sind jedoch keine ausreichend intensiven nichtlinearen Prozesse bekannt [Scr05a]. Man muss daher indirekte Methoden anwenden, um etwas über die Impulsdauer der Harmonischen zu erfahren.

Dies gelang erstmals 2001 P. M. Paul in Zusammenarbeit mit unter anderem P. Agostini und Ph. Balcou: sie charakterisierten einen Teil der HHG-Strahlung nach Frequenz und Phase und konnten daraus deren zeitliche Struktur genau berechnen [Pau01]. Die Phaseninformation erhielten sie durch Überlagerung einiger Harmonischer mit einem 40 fs langen, infraroten Laserimpuls. Beide Strahlen werden in eine Argonzelle fokussiert, so dass das Gas durch Absorption der hochenergetischen HHG-Photonen ionisiert. Aus dem Feld des infrarot-Impulses können die Photoelektronen zusätzlich Energie aufnehmen oder abgeben. Im Photoelektronenspektrum entstehen daher Seitenbänder, deren Abstand der Energie eines Photons des langwelligen Feldes entspricht. Eine zeitliche Verschiebung der beiden Impulse gegeneinander verändert die Amplitude der Seitenbänder, so dass diese als Maß für die relative Phase der Harmonischen zueinander fungiert. Paul und seine Mitarbeiter stellten mittels dieses Experimentes fest, dass fünf benachbarte Harmonische im Bereich von etwa 50 nm einer festen Phasenbeziehung

unterliegen und ermittelten für die einzelnen Impulse des XUV-Impulszugs eine Länge von 250 as. Eine Reihe weiterer Experimente bestätigte diese Ergebnisse [Tom00] [Dre01] [Ase03].

Kurze Zeit später gelang es der Forschungsgruppe um F. Krausz, mit single-cycle-Impulsen einzelne Attosekundenimpulse mit einer Dauer von zunächst 650 as, später 250 as zu erzeugen und zu charakterisieren [Hen01] [Kie04]. Darauf folgte mit einer Messung des Auger-Zerfalls in Krypton die erste Demonstration eines Experiments, welches die Impulse harmonischer Strahlung zur Untersuchung inneratomarer Prozesse mit einer zeitlichen Auflösung im Attosekundenbereich nutzte [Dre02].

Im Zuge einer zunehmend präzisen Charakterisierung der Attosekundenimpulse stellte sich heraus, dass die Impulse, die bei der Erzeugung hoher harmonischer Strahlung entstehen, gechirpt sind. Das heißt unterschiedliche Frequenzen werden nicht gleichzeitig, sondern mit einem kleinen zeitlichen Versatz zueinander emittiert. Dies bewirkt eine Verlängerung der Impulsdauer [Mai03] [Mai04]. Durch das Einfügen eines Mediums mit passender negativer Dispersion lässt sich dieser Chirp jedoch beheben. Auf diesem Weg gelang der Gruppe um A. L'Huillier die Erzeugung von Impulszügen, deren Einzelimpulse nur noch 170 as dauern [LM05].

Mit solch umfassenden Kenntnissen über die spektrale und zeitliche Struktur hoher harmonischer Strahlung, wie sie in den letzten Jahren erarbeitet wurden, stehen der modernen Forschung heute die nötigen Werkzeuge zur Verfügung, mit Attosekundenimpulsen die Dynamik in Atomen und Molekülen auf bisher unzugänglichen Zeitskalen zu untersuchen [Vra06].

Kapitel 3

Der experimentelle Aufbau

Der prinzipielle Aufbau eines Experimentes zur Erzeugung hoher harmonischer Strahlung ergibt sich aus den im vorigen Kapitel vorgestellten theoretischen Überlegungen und ist schematisch in Abbildung 3.1 dargestellt: Ein intensiver, gepulster Laserstrahl wird in ein Target aus Edelgas fokussiert. Durch nichtlineare Wechselwirkung zwischen elektromagnetischem Feld und Gasatomen wird harmonische Strahlung kohärent mit dem Feld des treibenden Lasers emittiert.

Um eine möglichst hohe Dichte im Gastarget zu erreichen, wird das zur Erzeugung der Harmonischen verwendete Edelgas in einem dünnen Röhrchen eingeschlossen; das Gas kann lediglich durch zwei Löcher von wenigen $100 \mu\text{m}$ Durchmesser, durch welche die Laserimpulse der Fundamentalen propagieren, entweichen. Für die geplanten atomphysikalischen Experimente ist es unerlässlich, die gesamte Erzeugung der Harmonischen in einer Vakuumkammer aufzubauen, da hochenergetische Photonen wie die der hohen harmonischen Strahlung beim

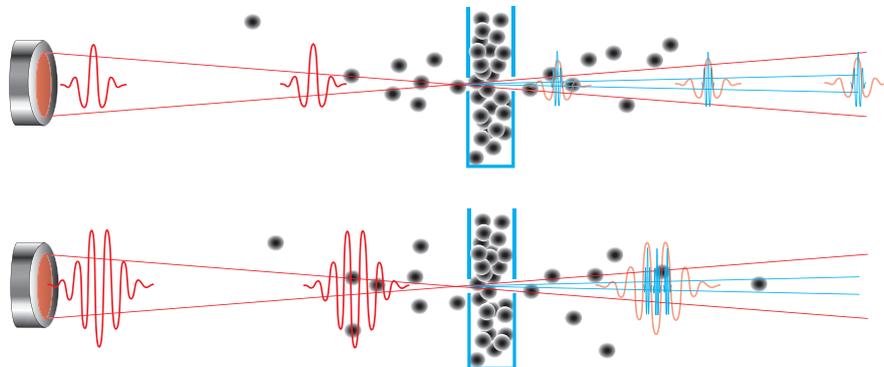


Abbildung 3.1: Prinzipieller Aufbau eines Experimentes zur Erzeugung hoher harmonischer Strahlung.

Durchlaufen eines Vakuumfensters absorbiert würden. Außerdem sollen auf diese Weise störende Einflüsse von Dispersion und Ionisation in Luft minimiert werden. Um den Druck in der Vakuumkammer möglichst niedrig zu halten, wird das Gastarget zusätzlich von einer inneren Kammer umschlossen. Die verschiedenen Teile des experimentellen Aufbaus werden im Folgenden detailliert erläutert.

3.1 Das Lasersystem

Die Experimente dieser Arbeit wurden mit einem kommerziellen Lasersystem durchgeführt, das ultrakurze Laserimpulse mit einer Repetitionsrate von 10 kHz und einer Zentralwellenlänge von ca. 800 nm liefert. Das gesamte Lasersystem ist schematisch in Abbildung 3.2 dargestellt.

Ausgangspunkt des Systems ist der Laseroszillator, hier das Modell MTS-I von Kapteyn-Murnane Laboratories [KML], ein modengekoppelter Titan-Saphir (Ti:Sa)-Laser mit durchschnittlich 650 mW Ausgangsleistung. Die Repetitionsrate beträgt 80 MHz, die Mittenfrequenz liegt bei etwa 800 nm bei einer spektralen Breite von ca. 65 nm. Der MTS-I wird von einem 6 W „Verdi“ von Coherent [Coh] gepumpt, einem frequenzverdoppelten Nd:YVO-Dauerstrichlaser. Der Verdi ist ein so genannter DPSS (Diode-Pumped-Solid-State)-Laser, das heißt er wird seinerseits von einem Laserdiodenarray gepumpt.

Um die Intensitäten zu erreichen, die für das vorliegende Experiment nötig sind, müssen die Lichtimpulse des Oszillators verstärkt werden. Der Verstärker ist ebenfalls von Kapteyn-Murnane Laboratories, das Modell „Dragon“. Dieser liefert bei einer Repetitionsrate von 10 kHz eine Ausgangsleistung von bis zu 8 W, bei den vorliegenden Experimenten wurde er jedoch meist bei 7 bis 7,5 W betrieben. Der Dragon verstärkt Laserimpulse nach dem Prinzip der „chirped-pulse amplification“ (CPA). Dabei wird der Lichtimpuls zunächst an einem Reflexionsgitter spektral zerlegt und durch das Erzwingen unterschiedlicher Laufweiten für die verschiedenen spektralen Komponenten des Impulses zeitlich gestreckt.

Mit einer Pockelszelle wird die Repetitionsrate von 80 MHz auf 10 kHz gesenkt; das Triggersignal für die Hochspannung der Pockelszelle wird dabei vom Oszillator abgeleitet. Anschließend wird der Impuls in einem kryogenisch gekühlten Ti:Sa-Kristall verstärkt. Die Kühlung des Kristalls findet in einem geschlossenen Helium-Kreislauf statt. Dadurch ist es möglich, die Kristalltemperatur bei etwa 60 Kelvin zu halten, so dass einerseits die erforderliche Besetzungsinversion besonders effizient erreicht wird und der Kristall andererseits im Bereich seiner maximalen Wärmeleitfähigkeit arbeitet. So wird die im Kris-

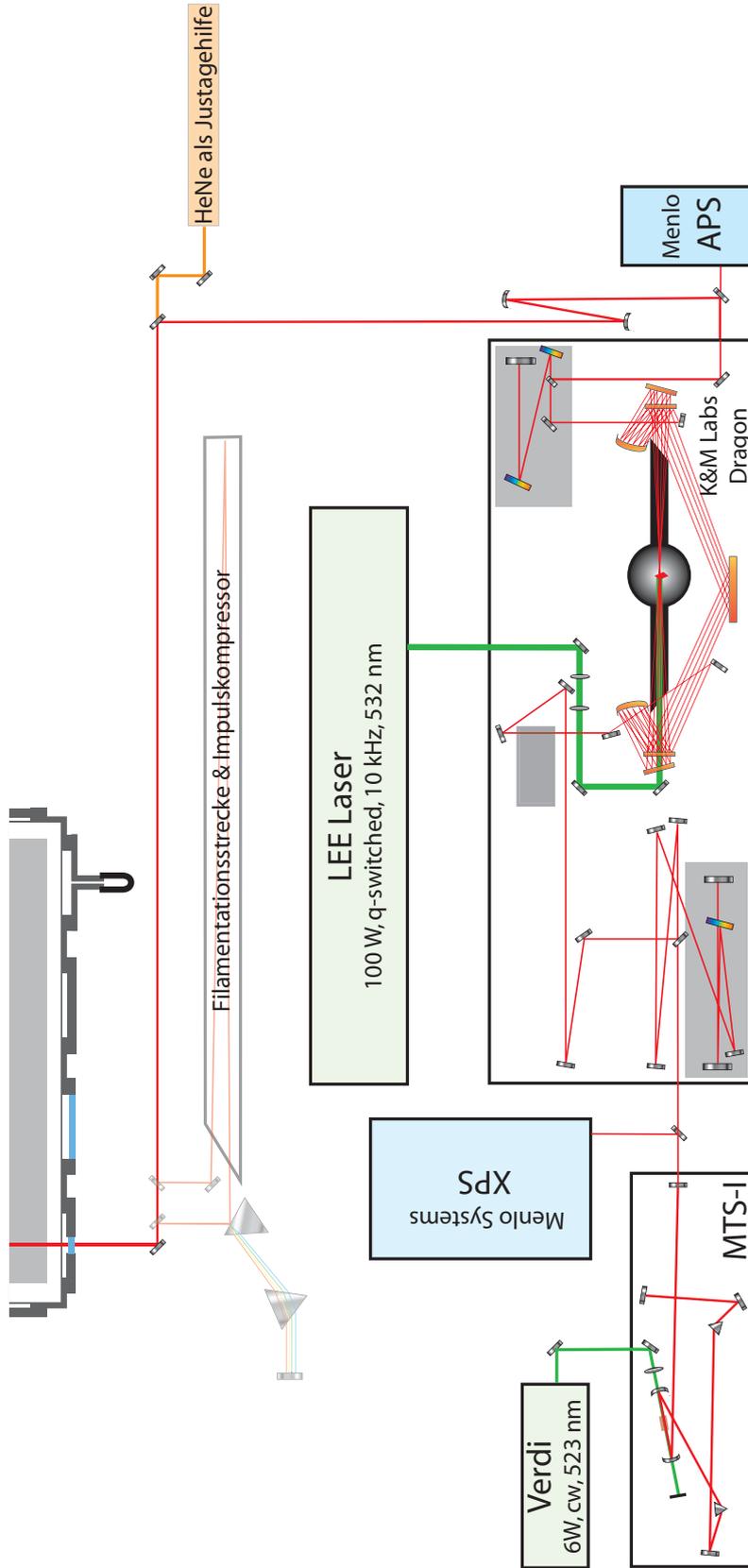


Abbildung 3.2: Das Lasersystem: links unten der MTS-I-Oszillator, gepumpt vom „Verdi“ Nd:YVO-Laser. Im Verstärker sind Impulsstrecker, Pockelszelle und Impulscompressor grau hinterlegt, die Kryozelle ist schwarz skizziert. Anstelle der eingezeichneten sechs Mal durchläuft der Laserimpuls im Experiment den Verstärkerkristall 13 mal. Hellblaue Kästen stellen optionale Phasenstabilisierung dar. Am oberen Bildrand ist ein Teil der Vakuumkammer zu sehen.

tall entstehende Wärme optimal abtransportiert und der Temperaturgradient im Kristall auf einem Minimum gehalten. Die Oszillator-Impulse durchlaufen den Verstärkerkristall 13 mal, danach werden sie in einem Gitterkompressor auf ca. 25 fs Impulsdauer komprimiert.

Der Titan-Saphir Kristall des Verstärkers wird von einem gütegeschalteten, frequenzverdoppelten 100 W Nd:YAG-Laser von Lee Lasers Inc. [Lee] bei 532 nm gepumpt. Auch das Triggersignal für die Güteschaltung wird vom Oszillator abgeleitet, so dass ein optimaler Überlapp zwischen Inversionsaufbau durch den Pumplaser-Impuls und stimulierter Emission durch den Oszillator-Impuls gewährleistet ist.

Das Lasersystem ist mit zwei zusätzlichen Modulen ausgestattet, die einen phasenstabilisierten Betrieb des Lasers ermöglichen. Man unterscheidet dabei zwischen der „schnellen“ Phasenstabilisierung (XPS), die die CEO-Phase des Oszillators regelt, und der „langsamen“ Phasenstabilisierung, die auf die CEO-Phase der verstärkten Laserimpulse wirkt.

Die Zentralfrequenz der Lichtimpulse des Dragon-Verstärkers liegt im nahen infraroten Spektralbereich, nur der kurzwellige Ausläufer ihres spektralen Profils ist als schwache dunkelrote Strahlung sichtbar. Die relativ große Einzelimpulsenergie (ca. 0,7 mJ pro Impuls) und die mit 10 kHz recht hohe Repetitionsrate machen die verstärkten Laserimpulse insbesondere für die Augen des Experimentators gefährlich, zumal der Strahlengang mit bloßem Auge kaum zu sehen ist. Daher wurde ein Helium-Neon (HeNe) Laser mit 5 mW Ausgangsleistung bei einer sichtbaren Wellenlänge von 632,8 nm zur Justage aller optischen Elemente nach dem Verstärker verwendet. Eine genaue Beschreibung der Justageprozedur findet sich in Kapitel 3.3.1.

3.2 Das Vakuumsystem: Kammer und „Cube“

Um Einflüsse von Dispersion und Absorption der harmonischen Strahlung in Luft zu minimieren, befindet sich der eigentliche Aufbau zur Erzeugung der harmonischen Strahlung in einer Vakuumkammer. Diese besteht aus einer inneren Targetkammer, in der das gasgefüllte Röhrchen montiert ist, und einer äußeren Kammer, die optische Komponenten zur Fokussierung und Justage sowie das Spektrometer beherbergt.

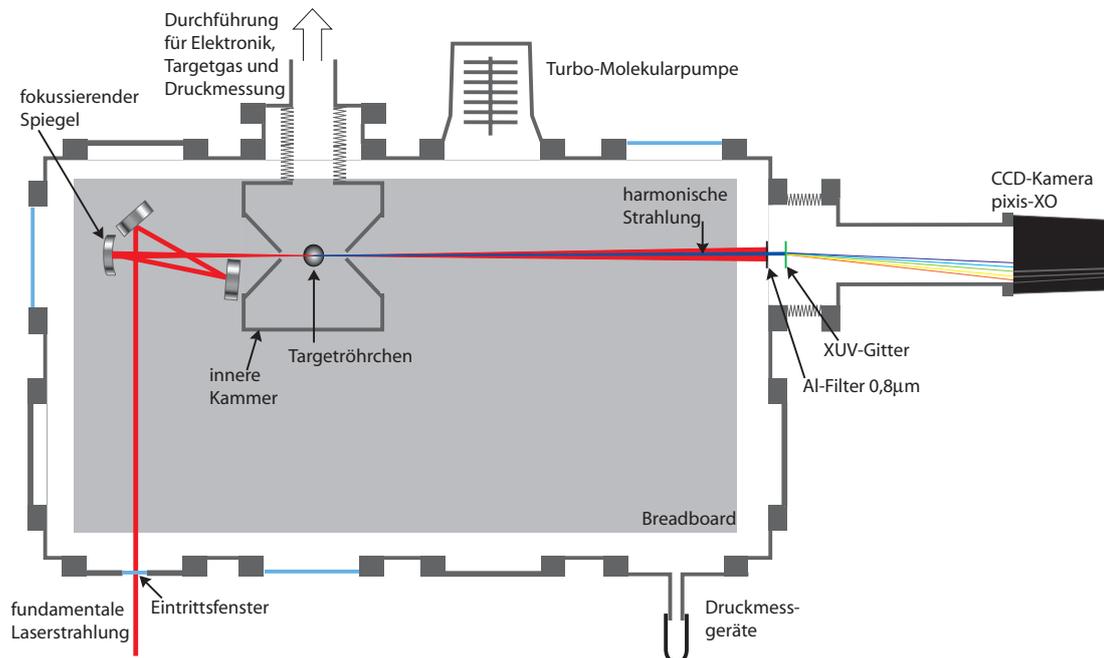


Abbildung 3.3: Vakuummutter für die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung. Die äußeren Abmessungen der Kammer betragen ca. $120 \times 65 \times 40 \text{ cm}^3$, das Breadboard ist $109 \times 49 \text{ cm}^2$ groß.

3.2.1 Die äußere Vakuummutter

Die Vakuummutter, mit der die vorliegenden Experimente durchgeführt wurden, ist schematisch in Abbildung 3.3 dargestellt. Sie wurde mit jeweils vier Flanschen an den Seiten und jeweils zwei Flanschen an den Stirnflächen (alle DN 150 CF) versehen, um größtmögliche Gestaltungsfreiheit beim Aufbau der inneren Komponenten zu gewährleisten. Die Kammer ist rechteckig ausgelegt, um Platz für eine handelsübliche Aluminiumplatte mit Bohrungsraster zur Befestigung optischer Komponenten (ein „Breadboard“) zu bieten. Diese steht mit drei Säulen auf dem optischen Tisch, auf dem auch das Lasersystem steht, und ist über Spannpratzen fest mit diesem verbunden. Um die Übertragung von Schwingungen von der Vakuummutter auf das Breadboard zu vermeiden, ist diese unabhängig auf einem Gerüst aus Aluminiumträgern [Ite] gelagert. Mit dem optischen Tisch und dem inneren Breadboard ist die Kammer nur über Membranfaltentbälge verbunden. In Abbildung 3.4 ist die mechanische Isolierung der Kammer von optischem Tisch und Breadboard schematisch dargestellt.

Zur Optimierung der Erzeugung hoher harmonischer Strahlung war es unumgänglich, die Vakuummutter häufig zu öffnen, um beispielsweise Änderungen an der Justageoptik vorzunehmen oder das Röhrchen, aus dem das Edelgas aus-

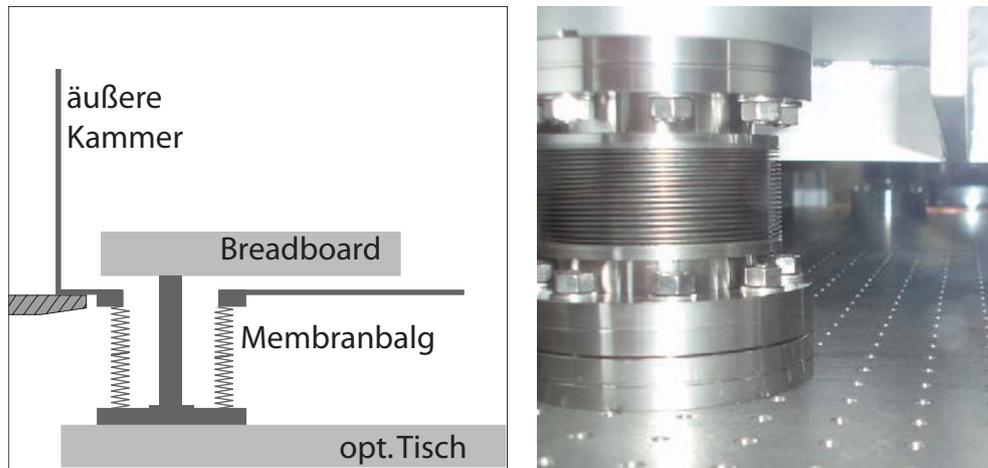


Abbildung 3.4: Die Schwingungsisolierung des Breadboards von der Kammer. Links ist schematisch dargestellt, wie das Breadboard über Säulen fest mit dem optischen Tisch verbunden ist, wohingegen die Vakuumkammer mechanisch isoliert vom optischen Tisch auf einem Aluminiumgerüst (schraffiert) gelagert ist. Auf dem Foto ist in der unteren Bildhälfte der optische Tisch und einer der drei Membranfaltensbälge zu sehen, darüber die Unterseite der Vakuumkammer.

strömt, zu wechseln. Um die häufigen Belüftungen zu erleichtern, ist der Deckel der Vakuumkammer zweigeteilt: die beiden Hälften lassen sich durch ihr geringeres Gewicht einzeln leichter abnehmen. Zur Abdichtung sind zwei Nuten vorhanden, so dass wahlweise ein Viton-O-Ring (für häufiges Öffnen im Anfangsstadium des Experiments) oder ein Indiumdraht (zuverlässige Dichtung bei längerem Betrieb der Kammer) verwendet werden kann.

3.2.2 Die innere Targetkammer

Die innere Targetkammer — der „Cube“ — ist in Abbildung 3.5 in einer Explosionsdarstellung zu sehen. Um den Konstruktionsaufwand in Grenzen zu halten, wurde ein Standard-Vakuumbauteil verwendet, ein DN 150 CF-Würfel. Die Bodenplatte ist eine Spezialanfertigung und wurde so gestaltet, dass sie die Befestigung des CF-Würfels symmetrisch zum Lochraster des Breadboards erlaubt. Eine minimale Auflagefläche auf dem Breadboard wird erreicht, indem die Platte an der Unterseite der Ecken um 1 mm erhöht wurde.

Auf die Seitenflansche werden austauschbare Koni aufgeschraubt, so dass einerseits die Größe der Blenden zwischen innerer und äußerer Kammer variierbar ist, andererseits der Koni bei eventueller Beschädigung durch den fundamentalen Laserstrahl leicht ausgetauscht werden kann. Die nach innen gerichteten

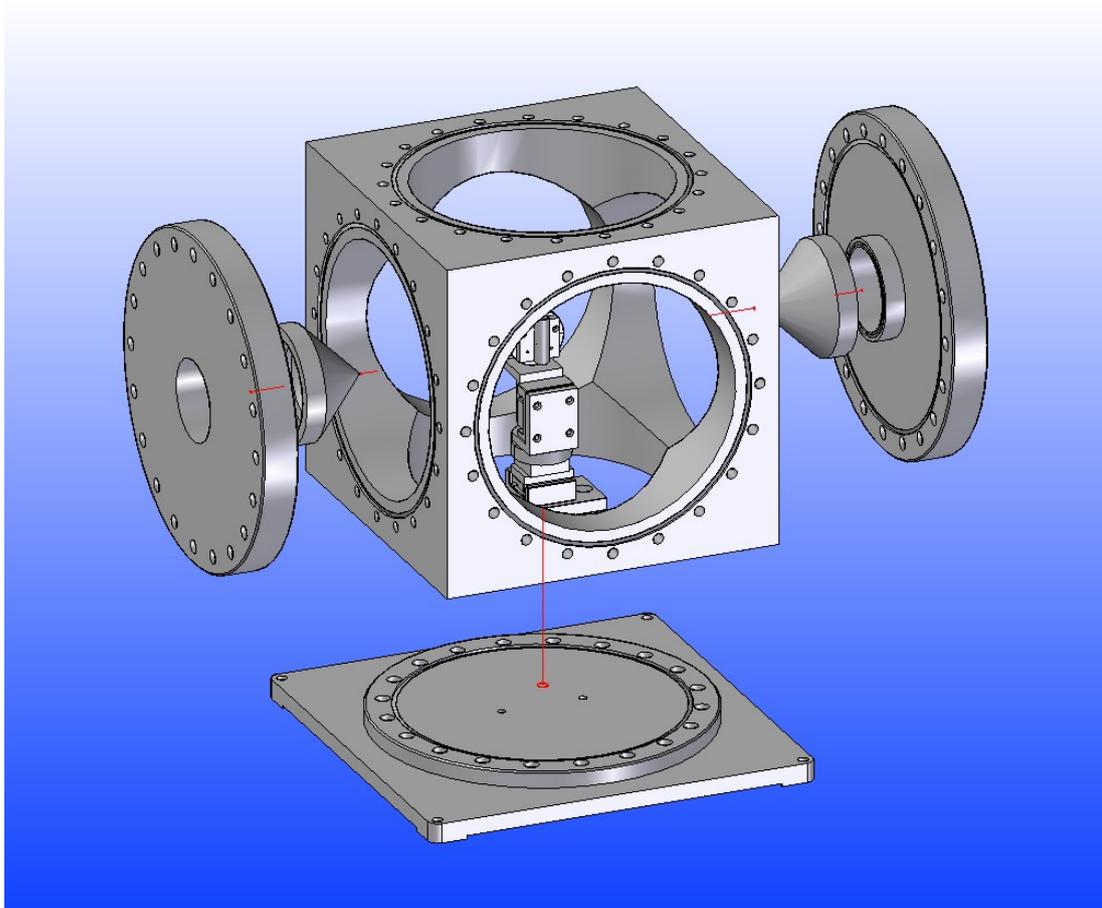


Abbildung 3.5: Die innere Targetkammer. Die Bodenplatte wurde so gestaltet, dass sie die Befestigung der Kammer symmetrisch zum Lochraster des Breadboards erlaubt. Auf die Seitenflansche können austauschbare Koni aufgeschraubt werden, so dass die Größe der Blenden zwischen innerer und äußerer Kammer variiert werden kann.

Koni bewirken darüber hinaus, dass Laserstrahl und harmonische Strahlung eine möglichst kurze Strecke im Gebiet höheren Drucks — der inneren Targetkammer — zurücklegen müssen. Der zur Kammerwand gerichtete Flansch (in Abbildung 3.5 hinten) wird für die Durchführung von Stromkabeln, eines „Schnüffelrohrs“ zur Druckmessung in der inneren Targetkammer (siehe auch Abschnitt 3.2.1), eines Silikonschlauchs für die Edelgaszufuhr und zum Abpumpen der inneren Kammer genutzt. Dazu wurde eine gemeinsame Durchführung für Strom, Druckmessung und Gaszufuhr konstruiert und angefertigt. Die verbleibenden Flansche, in Abbildung 3.5 an der Ober- und Vorderseite des CF-Würfels, wurden mit Schaugläsern versehen, wobei für die Oberseite eine vitongedichtete Schnellschlussstür verwendet wurde, die das häufige Öffnen der inneren Kammer für Veränderungen am Aufbau erleichtert.

Zur exakten Justage des Targetröhrchens ist dieses auf einem Stapel von vier Nanopositionierern mit Piezoantrieb [Owi] montiert. Die Positionierer ermöglichen das Verschieben des Röhrchens in x und y — also den beiden Richtungen senkrecht zur Strahlachse — über einen Verschiebeweg von 4,3 mm sowie die Drehung um diese beiden Achsen. Zur Montage der Piezotische und des Röhrchens wurden Adapterplatten aus Aluminium angefertigt. Der fertige Stapel ist in Abbildung 3.7 links zu sehen. Die Ansteuerung der Positionierer erfolgt außerhalb der Vakuumkammer über ein Handsteuergerät des selben Herstellers [Owi].

Im Lauf der Experimente wurde jedoch festgestellt, dass auf eine Verschiebung entlang der Propagationsachse des Lichtes nicht verzichtet werden kann, die Drehung um θ_x dagegen überflüssig ist. Daher wurde unter den Piezopositionierern ein zusätzlicher Verschiebetisch mit Mikrometerschraube angebracht, der überflüssige Drehtisch entfernt und der untere Teil des Stapels um 90° gedreht. Dieser neue Aufbau erlaubt zusätzlich eine Verschiebung des Röhrchens entlang der Strahlachse bei geschlossener Kammer. Der neue Aufbau ist in Abbildung 3.6 und in Abbildung 3.7 rechts dargestellt.

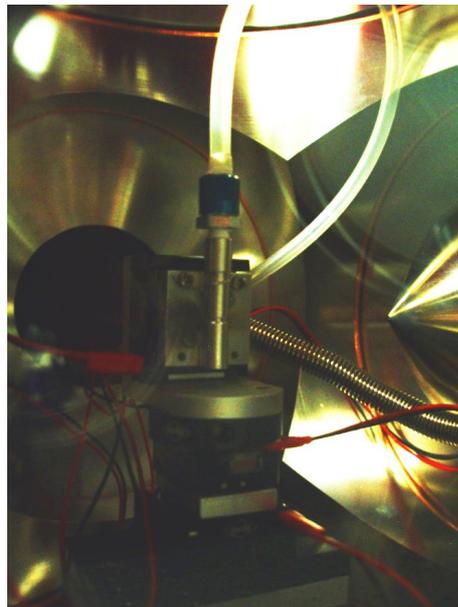


Abbildung 3.6: Das Targetröhrchen in der inneren Kammer. Die Gaszufuhr erfolgt über den hellen Silikonschlauch.

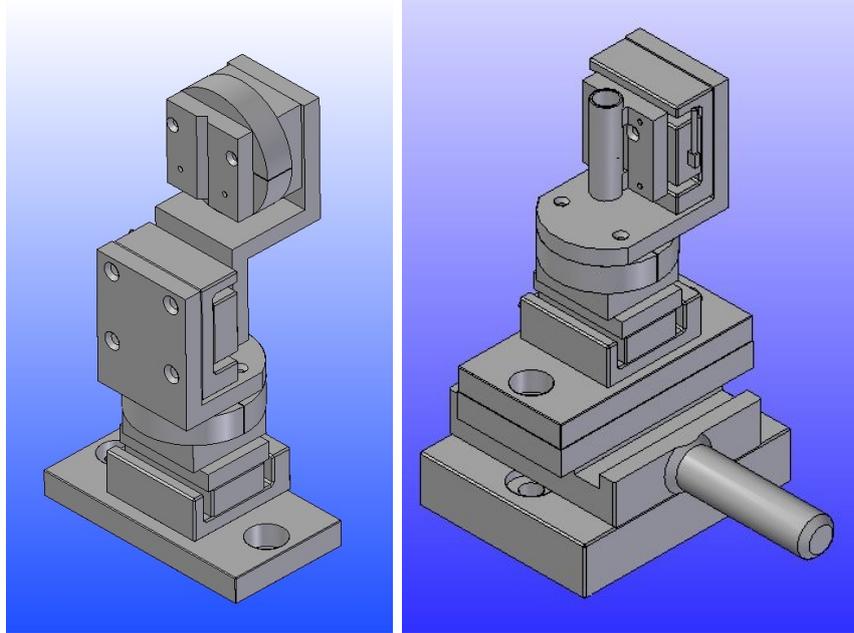


Abbildung 3.7: Der Vierachsentsch zur Justage des Röhrchens, links in der ursprünglichen Version mit zwei Drehtischen, rechts mit einer zusätzlichen Verschieberichtung.

3.2.3 Pumpensystem und Druckmessung

Besonderer Wert wurde beim Aufbau des Experimentes darauf gelegt, dass die Druckverhältnisse ständiger Kontrolle unterliegen. Daher wird über ein „Schnüffelrohr“ der Druck in der inneren Targetkammer mit einer Pirani-Messröhre gemessen, sowie derjenige im Targetröhrchen mit einem Membranmanometer kontrolliert. Letzterer lässt sich über ein Nadelventil sehr genau einstellen. Der Druck in der äußeren Kammer schließlich wird im Bereich zwischen 10^{-2} und 10^{-4} mbar mit einem Pirani-Messgerät, darunter mit einem Ionisations-Vakuummeter kontrolliert.

Die Druckmessung mit Pirani- und Ionisations-Vakuummetern ist im Gegensatz zur Messung mit einem Membranmanometer nicht unabhängig von der Gasart im Rezipienten. Das Pirani-Messgerät ermittelt den Druck im Rezipienten über die Wärmeleitfähigkeit des Restgases, ein Ionisations-Vakuummeter über den Ionenstrom zwischen zwei Elektroden. Die Geräte sind mit Stickstoff als Referenzgas kalibriert, für andere Gase muss man, um den wahren Druck zu erhalten, den abgelesenen Druck mit einem Korrekturfaktor multiplizieren. Die Abweichungen sind für Argon und Neon jedoch klein. Die Messung mit dem Pirani wird praktisch nur im Druckbereich über 1 mbar beeinflusst, bei der Verwendung

des Ionisations-Vakuummeters beträgt der Korrekturfaktor für Argon ca. 0,8, für Neon etwa 4,3 [Umr97].

Die äußere Vakuumkammer wird mit einer Turbo-Molekularpumpe abgepumpt, das nötige Vorvakuum erzeugt eine Scrollpumpe. Die innere Vakuumkammer wird separat mit einer schnell rotierenden „Seitenverdichterpumpe“ [Pfe] abgepumpt, die für hohe Gaslasten und einen weiten Druckbereich zwischen einer Atmosphäre und $< 10^{-5}$ mbar ausgelegt ist.

Anhand der Größe der Löcher im Targetröhrchen und dem Saugvermögen der Seitenverdichterpumpe lässt sich der theoretisch erreichbare Druck in der Targetkammer abschätzen. Dazu berechnet man zunächst den Leitwert L_s der Öffnungen. Dieser ist ein Maß für die Gasmenge, die ein bestimmtes Rohr oder eine Blende durchströmen kann und hängt im Fall einer dünnen Blende von deren Fläche A und der mittleren Geschwindigkeit der Gasteilchen \bar{v} ab [Wut00]:

$$(3.1) \quad L_s = \frac{\bar{v}}{4} \cdot A$$

mit

$$(3.2) \quad \bar{v} = \sqrt{\frac{8RT}{\pi M_{molar}}},$$

wobei R die allgemeine Gaskonstante ist, T die Temperatur des Gases in Kelvin, und M_{molar} die molare Masse des ausströmenden Gases. Für Argon bei $T = 290$ K erhält man $\bar{v}_{Ar} = 391,8$ m/s, für Neon $\bar{v}_{Ne} = 554,1$ m/s. Mit

$$A = 2 \cdot (100 \mu m)^2 \cdot \pi$$

erhält man den Leitwert zweier Löcher mit einem Durchmesser von jeweils ca. $200 \mu m$:

$$L_s(Ar) = 2,216 \cdot 10^{-2} \frac{m^3}{h}$$

$$L_s(Ne) = 3,133 \cdot 10^{-2} \frac{m^3}{h}$$

Der Druck in der Targetkammer p_i ist dann durch

$$(3.3) \quad p_i = \frac{L_s \cdot p_{Target}}{S_V}$$

gegeben. Darin ist p_{Target} der Druck im Targetröhrchen, L_s der Leitwert der beiden Öffnungen im Röhrchen, und S_V das Saugvermögen der Pumpe. Unter dem Saugvermögen S_V einer Pumpe versteht man die pro Zeiteinheit abtransportierte

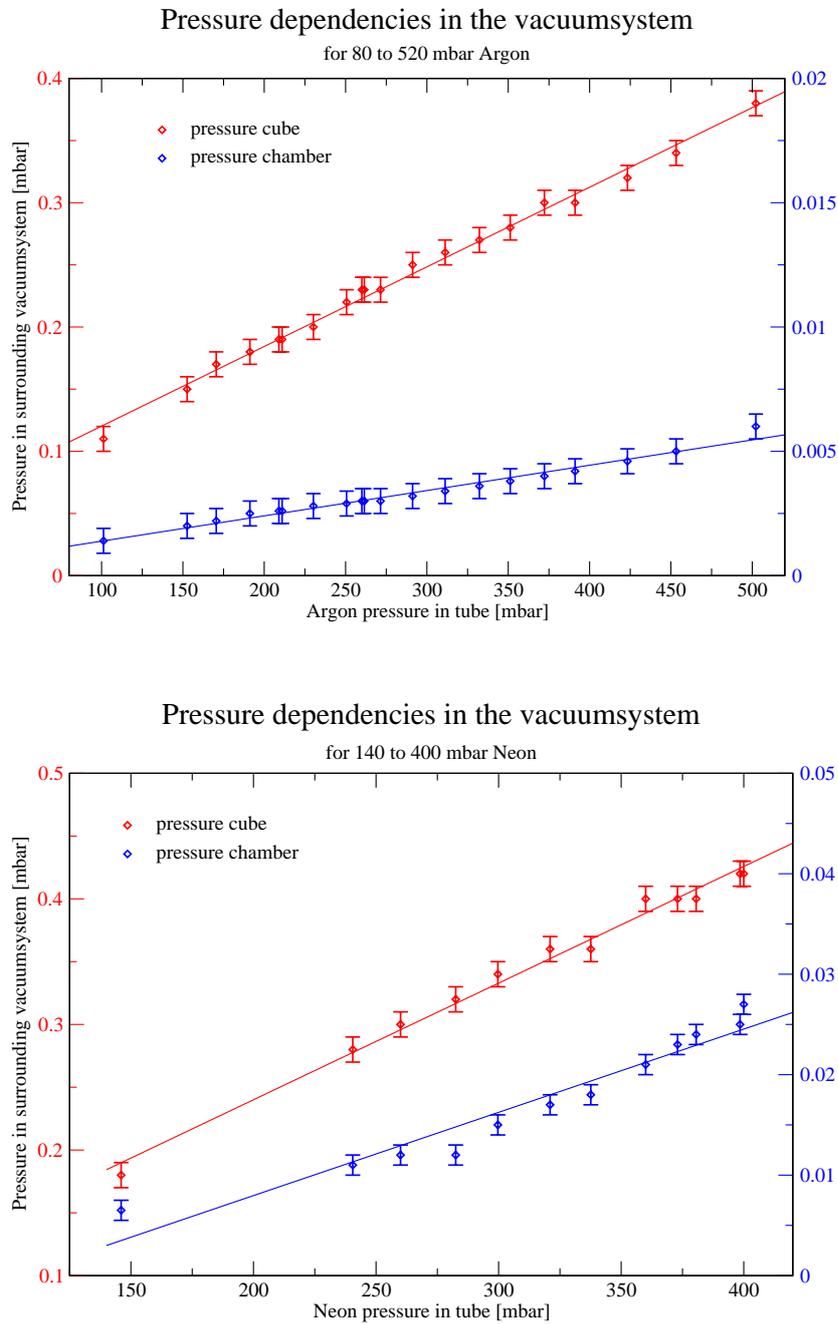


Abbildung 3.8: Druckverhältnisse im Vakuumsystem bei Zufuhr von Edelgas, oben für Argon, unten für Neon. Offenbar liegt die Pumpleistung bei Neon weit unter der für Argon, das heißt man muss beim Experimentieren mit Neon einen höheren Druck in der Kammer in Kauf nehmen.

Gasmenge $\frac{dV}{dt}$, sie wird dementsprechend in Litern pro Sekunde oder Kubikmetern pro Stunde angegeben.

Mit $p_{Target} \approx 300$ mbar und $S_V = 130 \text{ m}^3/\text{h}$ erhält man den erwarteten Druck in der inneren Targetkammer:

$$p_i(Ar) \approx 5 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$$

$$p_i(Ne) \approx 7 \cdot 10^{-2} \text{ mbar.}$$

Analog lässt sich der Druck in der äußeren Vakuumkammer abschätzen. Hier ist die Saugleistung der Turbopumpe $S_V = 300 \text{ l/s} = 1080 \text{ m}^3/\text{h}$ und der Leitwert der beiden Blenden (Durchmesser 1 mm und 2 mm) $L_s(Ar) = 1,385 \text{ m}^3/\text{h}$ und $L_s(Ne) = 1,958 \text{ m}^3/\text{h}$. Für den Druck p_a in der äußeren Vakuumkammer erhält man damit

$$p_a(Ar) \approx 6,5 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$$

$$p_a(Ne) \approx 1,3 \cdot 10^{-4} \text{ mbar.}$$

Der experimentell ermittelte Druck in der inneren Targetkammer fällt jedoch insbesondere bei Neon schlechter aus als berechnet. Das Pumpensystem ist zwar für Argon gut geeignet, Neon wird jedoch wesentlich weniger gut abgepumpt. Das liegt daran, dass das Kompressionsverhältnis k — also das Verhältnis der Drucks am Hochvakuumflansch zu dem am Vorvakuumflansch der Turbopumpe — bei Turbomolekularpumpen stark gasartabhängig ist. k steigt exponentiell mit dem Molekülgewicht, so dass das leichte Edelgas Neon um Größenordnungen schlechter abtransportiert wird als Luft oder gar Argon [Umr97]. Grundsätzlich gilt dies auch für die Seitenverdichterpumpe, dort kann man allerdings durch die Zufuhr von Schleppgas die Saugleistung bei leichten Gasen verbessern. Einen Überblick über die experimentellen Druckverhältnisse im Vakuumsystem in Abhängigkeit des Drucks im Targetröhrchen gibt Abbildung 3.8.

Bei dem skizzierten Aufbau ist die Verwendung optischer Komponenten im Vakuum unumgänglich. Dabei ist darauf zu achten, dass sämtliche Bauteile entlüftet sind, damit keine virtuellen Lecks entstehen. Als virtuelle Lecks bezeichnet man kleine Hohlräume, beispielsweise in Gewinden oder zwischen zwei aneinander liegenden Flächen. Diese Hohlräume verlängern die Abpumpzeit beträchtlich und verschlechtern im schlimmsten Fall sogar den erreichbaren Enddruck über lange Zeit hinweg. Um dies zu vermeiden, wurden die optischen Komponenten entlüftet, indem sie an ihren Auflageflächen angeschnitten wurden und Schrauben mit einer Nut am Gewinde oder einer zentralen Bohrung versehen wurden. So können die dort eingeschlossenen Luftmoleküle leichter entweichen, und die Abpumpzeit wird verkürzt.

3.2.4 Targetröhrchen aus Stahl und Aluminium

Da zu Beginn der Messungen noch nicht klar war, welche Targetdicke für die Erzeugung der harmonischen Strahlung am effizientesten ist, wurden Targetröhrchen mit Innendurchmessern von 1 mm, 3 mm, 5 mm, 7 mm und 9 mm bei einer Wandstärke von 0,5 mm aus Edelstahl hergestellt. Die Eintrittslöcher wurden mechanisch mit einem Durchmesser von ca. 200 μm , die Austrittslöcher direkt mit dem verstärkten Laser gebohrt. Die Bohrung mit dem Laser stellt sicher, dass einerseits die Austrittsbohrungen exakt den Eintrittslöchern gegenüberliegen, andererseits entstehen so sehr feine Löcher mit Durchmessern von 50 μm bis 100 μm , die mit einem mechanischen Bohrer nur sehr schwer herstellbar sind. Die Löcher wurden mit einem Mikroskop untersucht und vermessen.



Abbildung 3.9:
Ein Targetröhrchen.

An der Unterseite sind die Röhrchen mit einer passenden Endkappe aus Stahl verschlossen, an der Oberseite wurde ein Adapter mit einem M5-Innengewinde angelötet, der die Befestigung des Silikonschlauchs am Röhrchen erlaubt. Zur Abdichtung der Gewinde wird Teflonband, für die Edelgaszufuhr ein Silikonschlauch mit einer Nennweite von 3 mm verwendet. Als Verbindungselemente zu Durchführung und Röhrchen dienen handelsübliche Steckverschraubungen [Fes]. Ein typisches Röhrchen ist in Abbildung 3.9 zu sehen, hier mit einem Durchmesser von 5 mm.

Im Verlauf der Messungen erwiesen sich die Stahlröhrchen jedoch als wenig geeignet. Sie halten der Laserstrahlung kaum stand, was zu einer allmählichen Vergrößerung der Ein- und Austrittslöcher führt, so dass die Druckverhältnisse in der Targetkammer außer Kontrolle geraten. Darüber hinaus muss das Röhrchen nach jeder Messreihe gewechselt werden.



Abbildung 3.10: Edelstahlröhrchen, links vor dem Experiment ($\varnothing=5\text{mm}$), Mitte und rechts nach dem Experiment ($\varnothing=3\text{mm}$ bzw. 1mm).

Im schlimmsten Fall kann sich das Röhrchen so weit erhitzen, dass die gelöteten Verbindungen schmelzen. Abbildung 3.10 zeigt Targetröhrchen aus Edelstahl in

verschiedenen Durchmessern, links vor dem Experiment, Mitte und rechts nach Beschuss mit dem Laser.

Die Schwierigkeiten bei der Verwendung von Edelstahl-Röhrchen zwangen zur Entwicklung einer Alternative. Diese wurde in der Verwendung von Aluminium anstelle von Edelstahl gefunden. Aluminium hat den Vorteil, Licht im nahen Infrarot sehr gut zu reflektieren, so dass der Laserstrahl ein Aluminiumröhrchen praktisch nicht zerstören kann. Zu diesem Effekt trägt auch die um eine Größenordnung bessere Wärmeleitfähigkeit von Aluminium bei. Ein weiterer Vorteil von Aluminium ist, dass es sich leichter bearbeiten lässt als der viel härtere Edelstahl. Somit ist es möglich, das Targetröhrchen mit M5-Adapter und Verschluss an der Unterseite aus einem Stück zu fertigen.



Abbildung 3.11: Aluminiumröhrchen vor und nach dem Experiment.

Zwei der verwendeten Aluminiumröhrchen sind in Abbildung 3.11 zu sehen. Fertigungsbedingt haben die Aluminiumröhrchen eine wesentlich dickere Wandstärke. In der Mitte ist daher eine Nut eingezogen, so dass nur an der Stelle der Löcher für den Laserstrahl die Wandstärke knapp 1 mm beträgt. Man sieht bereits auf der Fotografie, dass das Eintrittsloch für den Laserstrahl durch den Laserbeschuss nicht signifikant vergrößert wurde: Das rechte Röhrchen im Bild wurde im Experiment verwendet, das linke war der Laserstrahlung noch nicht ausgesetzt. Untersuchungen mit dem Mikroskop bestätigen die Widerstandsfähigkeit dieser Röhrchen.

Nachteilig wirkt sich die schlechte Bearbeitbarkeit des Aluminiums jedoch beim Herstellen der Ein- und Austrittslöcher aus: es ist nicht möglich, diese Löcher bei einem Aluminiumröhrchen mit dem Laser zu bohren. Man muss also auf mechanische Bohrer zurückgreifen, mit denen selbst kleinste Löcher größer ausfallen als mit dem Laser. Messungen unter dem Mikroskop ergaben für die Aluminium-Targetröhrchen Lochdurchmesser von $250\ \mu\text{m}$ bis $400\ \mu\text{m}$.

3.3 Einkopplung des Lasers

Das nun folgende Kapitel befasst sich mit der Einkopplung des Lasers in die Vakuumapparatur sowie mit der Fokussierung des Laserstrahls in das Gastarget. Anhand der zur Fokussierung des fundamentalen Lasers verwendeten Brennweiten und der Kenngrößen des Verstärkers wird die zu erwartende Cutoff-Energie des Spektrums hoher harmonischer Strahlung abgeschätzt.

3.3.1 Justage des Aufbaus

Zur Justage des Laserstrahls vom Verstärker bis zum XUV-Gitter wurde ein Verfahren entwickelt, das sicher und einfach die gewünschten Resultate reproduzierbar wiedergibt. Dies ist nötig, weil der verstärkte Laserstrahl über eine Strecke von mehreren Metern kontrolliert durch sehr enge Blenden sowie die Ein- und Austrittslöcher der Targetröhrchen justiert werden muss. Außerdem möchte man verlässliche Anhaltspunkte für eine korrekte Justage schaffen, die auch bei geschlossener Kammer kontrolliert werden können. Nicht zuletzt muss beim Justieren des nur schwer sichtbaren Titan-Saphir-Lasers aufgrund des Gefahrenpotenzials besondere Vorsicht walten.

Zunächst wird ein HeNe-Hilfslaser präzise durch Eintrittsfenster, Justageoptik im Inneren der Kammer und die Konusblenden justiert. Zwei Blenden werden in möglichst großem Abstand außerhalb der Kammer so aufgestellt, dass sie exakt den Strahlengang des HeNe wiedergeben. Für alle folgenden Schritte definieren die Öffnungen der Koni den Strahlengang, da sie nicht justierbar sind: so muss das Targetröhrchen mithilfe der Piezopositionierer auf die durch die Koni definierte Achse aufgefädelt werden.

Anschließend blockiert man den Laserstrahl kurz vor dem Eintrittsfenster zur Kammer und legt mithilfe der Blenden den unverstärkten Ti:Sa präzise auf den Strahlenweg des HeNe. Zum Einkoppeln auf die Bahn des HeNe-Lasers dient ein dielektrischer Spiegel, der unter 45° Wellenlängen um 800 nm sehr gut reflektiert, das kurzwelligere Licht des HeNe jedoch passieren lässt (vgl. Abbildung 3.2). Zur Justage des Ti:Sa werden Spiegel verwendet, die noch vor dem Einkoppelspiegel stehen, weil diese den Strahlengang des HeNe ja unverändert lassen soll. Da nur der kurzwellige Ausläufer des Ti:Sa-Spektrums im Sichtbaren liegt, werden zur Beobachtung des Ti:Sa-Lichtes auf den Blenden Webcams, handelsübliche Internetkameras, verwendet. Diese sind infrarot-sensitiv und erlauben daher eine viel genauere Beurteilung der Position des Laserstrahls auf den Blenden.

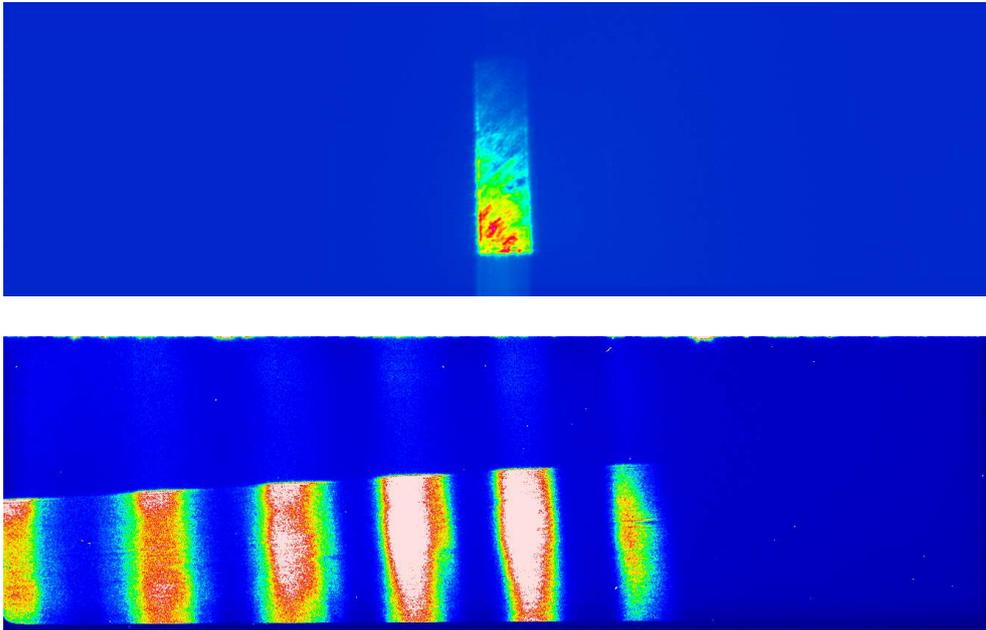


Abbildung 3.12: Das Signal der harmonischen Strahlung in nullter Ordnung (oben) und in erster Ordnung (unten). Die Kameraposition war 10° , das zur Erzeugung verwendete Edelgas Neon.

Der Ti:Sa ist nach diesen Schritten bereits hinreichend genau justiert, um hinter dem Röhrchen mit einer Webcam beobachtet werden zu können. Im nächsten Schritt optimiert man den Ti:Sa am Einkoppelspiegel auf maximale Helligkeit hinter dem Röhrchen. Daraus ergeben sich natürlich Abweichungen des Ti:Sa-Strahls von der HeNe-Bahn, die im darauf folgenden Schritt wieder mit den Spiegeln vor dem Einkoppelspiegel ausgeglichen werden. Das Verfahren wird iterativ so lange wiederholt, bis der Ti:Sa hinter der inneren Targetkammer optimal hell und symmetrisch erscheint.

Nach abgeschlossenem Justage-Procedere beobachtet man mit der CCD-Kamera des Spektrometers (siehe Abschnitt 3.4) die harmonische Strahlung in nullter und erster Ordnung. Abbildung 3.12 zeigt Rohdatenbilder, die einen guten Eindruck von den experimentellen Beobachtungen geben. Die beiden Rohdatenbilder sind hinsichtlich der Intensität normalisiert; anhand des stärkeren Rauschens in der ersten Ordnung erkennt man jedoch, dass das Signal dort erwartungsgemäß niedriger ausfällt.

Zur spektralen Zerlegung der harmonischen Strahlung dient ein XUV-Gitter aus einer dünnen Siliziummembran (siehe Abschnitt 3.4). Die Gittermembran ist in der Regel nicht vollständig ausgeleuchtet. Um eine Beleuchtung beider Membranen und eine damit verbundene Verwaschung der Spektren zu vermeiden (siehe

hierzu auch Kapitel 4.2.1), wird die harmonische Strahlung vor dem Aluminiumfilter mit einer Blende begrenzt. Dies hat zur Folge, dass zwar die seitlichen Ränder, nicht aber die volle Höhe des Gitters beobachtbar sind.

Im letzten Schritt der Justage wird das Targetröhrchen mit Hilfe des Piezopositionierers entlang der Propagationsachse des Lasers an die Stelle größtmöglicher Intensität harmonischer Strahlung verschoben. Das entspricht einer Verschiebung des Fokuspunktes in Bezug auf das Gastarget – ein sehr empfindlicher Parameter, da im steilen Druckgradienten des ausströmenden Gases mehrere Prozesse konkurrieren: zum einen die Selbstfokussierung der Laserstrahlung durch einen intensitätsabhängigen induzierten Brechungsindex, die Ionisierung des Gases und damit verbunden eine Defokussierung durch freie Elektronen, und nicht zuletzt die Absorption der harmonischen Strahlung im Gastarget selbst (siehe auch Abschnitt 4.2.1). Die Einflüsse der einzelnen Effekte sind quantitativ noch nicht vollständig verstanden. Die Druckabhängigkeit der Intensität der harmonischen Strahlung wird in Kapitel 4.1 näher erörtert.

3.3.2 Fokussierung

Wir verwenden zur Fokussierung der fundamentalen Laserimpulse Konkavspiegel mit Krümmungsradien von 750 und 500 mm, die Brennweite beträgt folglich 375 bzw. 250 mm. Der fokussierende Spiegel ist auf einem Verschiebetisch montiert, damit Fokalkanpassungen mit geringem Aufwand möglich sind. Der Strahldurchmesser des kollimierten Strahls beträgt ca. 7 mm. Daraus lässt sich der Fokaldurchmesser für einen gaußschen Strahl berechnen [Sil00]: mit

$$(3.4) \quad w_0 = \frac{\lambda f}{\pi w_r} \frac{1}{\sqrt{1 + \left(\frac{\lambda f}{\pi w_r^2}\right)^2}} \approx \frac{\lambda f}{\pi w_r}$$

wobei f die Fokallänge des fokussierenden Spiegels, λ die Laserwellenlänge, w_r der Strahldurchmesser am Ort des fokussierenden Spiegels und w_0 der Durchmesser des Fokus ist, erwartet man für einen gaußschen Strahl Fokalfokale von 14 bzw. 10 μm Durchmesser. Wir müssen allerdings davon ausgehen, dass der verstärkte Laserstrahl schon vor der Fokussierung weit entfernt von einem gaußschen Strahlprofil ist. Der M-Wert wird vom Hersteller mit 1,2 angegeben, allerdings bezieht sich dieser Wert auf den Verstärkerbetrieb bei 1 kHz.

Durch die Verwendung eines gekrümmten Spiegels zur Fokussierung des fundamentalen Laserlichts entsteht darüber hinaus ein Astigmatismus, das heißt der kollimierte Laserstrahl wird in den beiden Raumachsen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Lasers unterschiedlich stark fokussiert, der Fokuspunkt wird

zum Ellipsoid verzerrt. Um diesen störenden Effekt so gering wie möglich zu halten, muss der Winkel, unter dem das Laserlicht auf den Spiegel trifft, möglichst klein gehalten werden. Umgehen könnte man das Problem des Astigmatismus bei Verwendung einer fokussierenden Linse anstelle des gekrümmten Spiegels, jedoch müsste man in diesem Fall die Dispersion der Linse in Kauf nehmen.

Für die folgende Diskussion ist eine Abschätzung des Einflusses des Astigmatismus auf die Intensität des elektromagnetischen Feldes am Ort der Harmonischerzeugung aufschlussreich. Dabei kann man sich auf den Astigmatismus beschränken, der von dem ins Target fokussierenden Konkavspiegel hervorgerufen wird: da an dieser Stelle des experimentellen Aufbaus sowohl die kürzeste Fokallänge als auch der größte Auftreffwinkel auf einen gekrümmten Spiegel auftreten, kann man davon ausgehen, dass dessen Einfluss dominiert. Aus der Geometrie des Aufbaus wurde der Winkel α , unter dem der kollimierte Laserstrahl auf den fokussierenden Spiegel trifft, zu $\approx 11^\circ$ bestimmt. Die Brennweite f des Spiegels ist nun in den beiden Raumrichtungen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Lasers unterschiedlich [Jen57], sie beträgt

$$(3.5) \quad f_1 = f \cdot \cos \alpha$$

in der horizontalen und

$$(3.6) \quad f_2 = f \cdot \frac{1}{\cos \alpha}$$

in der vertikalen Richtung. Für $f = 250$ mm und $\alpha = 11^\circ$ erhält man damit minimale Strahldurchmesser in einer Entfernung von 245,4 mm und 254,7 mm vom fokussierenden Spiegel. Aufschlussreich ist ein Vergleich von $\Delta f = f_2 - f_1 = 9,3$ mm mit dem konfokalen Parameter $b = 2 \cdot z_R$, für welchen gilt

$$(3.7) \quad b = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda}.$$

Dabei ist w_0 der Radius des Fokalkpunktes für einen gaußschen Strahl, z_R die Rayleighlänge und λ die Wellenlänge der Laserstrahlung [Sil00]. Für $\lambda = 800$ nm und $w_0 = 10$ μ m erhält man $2 z_r = 0,8$ mm. Damit übersteigt die Distanz der Minima des Strahldurchmessers die Rayleighlänge um eine ganze Größenordnung. Für realistische Abschätzungen der Intensität im Fokus und der erwarteten Maximalenergien der harmonischen Strahlung verwendet man daher einen gegenüber dem Gauß-Strahl 10-fach vergrößerten Fokaldurchmesser.

Unter Annahme eines Fokaldurchmessers von etwa 100 μ m kann man die Maximalenergien der harmonischen Spektren abschätzen: Wie in den Kapiteln 2.2.1 und 2.2.2 erläutert, lautet die Faustformel für den sogenannten „Cutoff“ des Spektrums

$$(3.8) \quad E_{max} = I_p + 3,17 U_p$$

wobei E_{max} die Cutoff-Energie, I_p das Ionisationspotential des Targetgases und U_p die ponderomotive Energie des Laserfeldes ist, die sich wiederum mit

$$(3.9) \quad U_p = \frac{e^2 E^2}{4m\omega^2} = 9,3310^{-14} I \lambda^2 \text{eV}$$

abschätzen lässt. Hier ist λ die Wellenlänge in μm und I die Laserintensität in W/cm^2 . Damit erhält man die erwarteten Maximalenergien der Harmonischen zu ungefähr 90 eV für eine Brennweite von 375 mm und ≈ 180 eV für eine Brennweite von 250 mm. Diese Werte gelten allerdings zunächst einmal nur für die Dipolantwort eines einzelnen Atoms. Propagationseffekte und Phasenfehl Anpassung können diesen Wert noch signifikant beeinflussen, so dass der experimentelle Cutoff unter Umständen weitaus niedriger auftritt [L'H93b].

3.4 Das Spektrometer zur Charakterisierung der harmonischen Strahlung

Zur spektralen Charakterisierung der harmonischen Strahlung wurde ein Spektrometer aus folgenden Komponenten aufgebaut: ein dünner Filter aus Aluminium blockiert die fundamentale Laserstrahlung, so dass die hohen Harmonischen ohne den störenden Untergrund der Fundamentalen untersucht werden können. An einem XUV Transmissions-Gitter wird die harmonische Strahlung spektral zerlegt. Im Abstand $l = 360$ mm entfernt vom Gitter trifft das XUV-Licht auf einen CCD-Sensor, der die Intensität der einzelnen Harmonischen aufzeichnet. Abbildung 3.4 zeigt den Spektrometernaufbau schematisch.

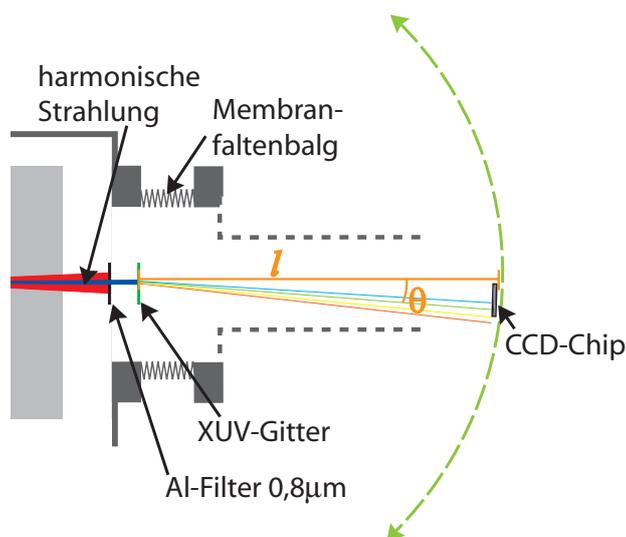


Abbildung 3.13: Schematische Darstellung des Spektrometers. Die Kamera ist mithilfe des Membranfaltenbalgs entlang des Rowlandkreises schwenkbar gelagert. Die für die Kalibrierung der Spektren relevanten Größen l und θ sind orange eingezeichnet.

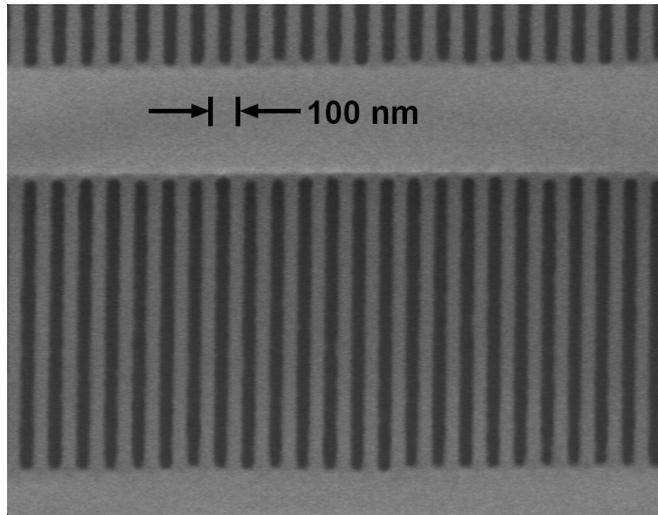


Abbildung 3.14: freistehendes Transmissions-XUV-Gitter aus einer Siliziumnitrid-Membran. Die Gitterperiode beträgt 100 nm bei einer Linienbreite von 40 nm. Zur Stabilisierung des Gitters sind zusätzlich horizontale Stützen im Abstand von 1,5 mm eingezogen [Sav].

3.4.1 XUV-Gitter und Filter

Zur spektralen Untersuchung der harmonischen Strahlung wird ein freistehendes XUV-Transmissionsgitter, bestehend aus einer 165 μm dicken Siliziumnitrid-Membran, verwendet. Abbildung 3.14 zeigt eine elektronenmikroskopische Aufnahme des Gitters, dessen Gitterperiode $g = (99,90 \pm 0,05)$ nm bei einer Linienbreite von 40 nm beträgt. Der Wert der Gitterperiode wurde vom National Institute for Standards and Technology (NIST) und vom Massachusetts Institute of Technology (MIT) bestimmt; die gleichen Gitter werden dort zur Kalibrierung von lithographischen Verfahren verwendet. Etwa 0,5 μm breite, horizontale Stützstreben im Abstand von 1,5 μm stabilisieren das Gitter [Sav]. Jeweils zwei Gittermembranen sind in einem Siliziumrahmen befestigt, die Abmessungen einer Membran betragen 1 mm \times 4,5 mm. Ein Siliziumrahmen mit Gittermembranen ist in Abbildung 3.15 zu sehen.

Für harmonische Strahlung im Wellenlängenbereich von 14 nm bis 40 nm erwarten wir entsprechend der Formel für die Beugung von Licht am Gitter

$$(3.10) \quad g \cdot \sin \theta = \lambda$$

Ablenkwinkel zwischen 8° und 24° , wobei θ der Ablenkwinkel ist, g die Gitterperiode und λ die Wellenlänge. Die Beugungseffizienz unserer Gitter liegt im

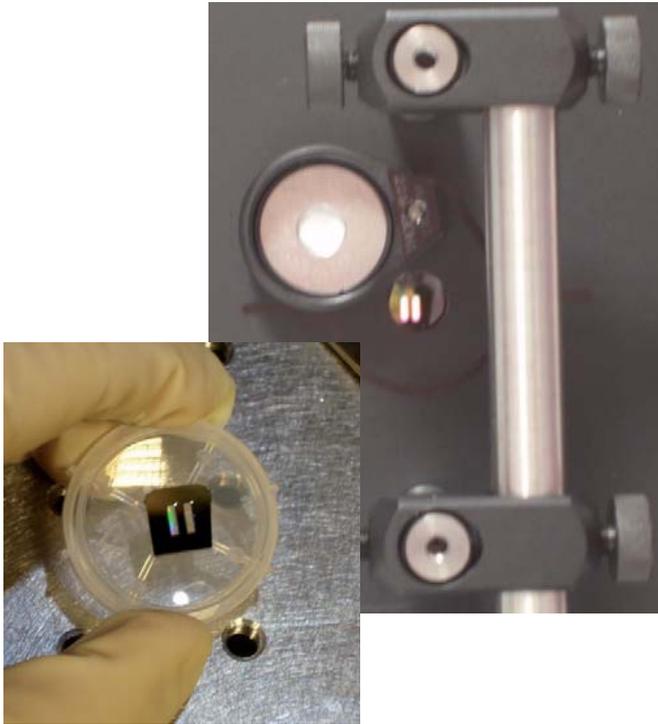


Abbildung 3.15: XUV-Gitter und Aluminium-Filter auf der justierbaren Halterung. Schwarz eloxierte Aluminium-Platten schützen die Kamera vor Streulicht.

relevanten Wellenlängenbereich für die erste Beugungsordnung zwischen 10% und 15% [Xra].

Ein dünner Aluminium-Filter vor dem Gitter, undurchsichtig für die Fundamentalwellenlänge, jedoch durchlässig in einem gewissen Wellenlängenbereich im XUV, blendet fundamentale Laserstrahlung ab. Ohne diesen Filter würde das CCD-Array der Kamera vom intensiven Licht der Fundamentalwellen so überstrahlt, dass die Harmonischen nicht beobachtbar wären. Darüber hinaus schützt er das Gitter vor Beschädigung durch die hochintensive fundamentale Laserstrahlung. Im vorliegenden Experiment wurden vier Aluminiumfolien von jeweils $0,2 \mu\text{m}$ Dicke übereinander verwendet. Da Folien mit Dicken unterhalb von etwa $2 \mu\text{m}$ stets feine Löcher, sogenannte „pinholes“, aufweisen, müssen immer mindestens zwei Folien übereinander verwendet werden, andernfalls ist der Filter nicht lichtdicht in Bezug auf die fundamentale Strahlung.

Filter und Gitter sind auf einer gemeinsamen Halterung justierbar montiert, die in Abbildung 3.15 zu sehen ist. Die CCD-Kamera muss jedoch nicht nur vor der direkten Strahlung der Fundamentalwellen geschützt werden. Auch das Streulicht der Fundamentalwellen stört die Messungen beträchtlich. Daher ist die Filter-Gitter-Halterung mit großen, schwarz eloxierten Aluminiumplatten ausgestattet, die das Streulicht praktisch vollständig eliminieren.

3.4.2 Die CCD-Kamera

Die für die Messungen verwendete XUV-Kamera ist eine pixis-XO von Princeton Instruments/Acton [Pia]. Sie erlaubt die direkte Detektion von Photonen mit Energien unter 30 eV bis etwa 10 keV. Der rückseitig beleuchtete Sensor besteht aus 400×1340 Bildpunkten (Pixeln), der Abstand von Pixelmitte zu Pixelmitte beträgt $20 \mu\text{m}$. Somit deckt der CCD-Chip eine Fläche von $8 \times 26,8 \text{ mm}^2$ ab. Um optimale Empfindlichkeit zu gewährleisten, wird der Chip während der Messungen mit einem Peltierelement auf $-80 \text{ }^\circ\text{C}$ gekühlt, die Quanteneffizienz beträgt dann im für dieses Experiment interessanten Wellenlängenbereich 41%. Zum Anschluss an das Vakuumsystem ist die Kamera mit einem drehbaren DN 63 CF-Flansch ausgestattet. Über einen Membranbalg und zwei Gelenke ist die Kamera schwenkbar an der Vakuumkammer angebracht, das Transmissionsgitter steht dabei genau im Drehpunkt des Kameraarms.

3.4.3 Kalibrierung der Spektren

Zur Auswertung werden die Rohdatenbilder vertikal, also in nichtdispersiver Richtung, „gebinnt“, d.h. man addiert die Signale aller 400 übereinander liegenden Pixel. Abbildung 3.16 zeigt auf diese Weise erzeugte Spektren.

Die Kalibrierung der Spektren erfolgt anhand der Spektrometerlänge l , der Chipbreite s und der jeweiligen Kameraposition Θ . Eine einfache geometrische Überlegung ergibt, dass auf die Kameramitte nach

$$(3.11) \quad g \cdot \sin \Theta = \lambda_0$$

Strahlung der Wellenlänge λ_0 fällt, wobei g die Gitterperiode ist. Zur Kalibrierung berechnen wir außerdem die Wellenlänge λ_1 , die bei gegebener Kameraposition auf dem äußersten Chippixel abgebildet wird. Für diese gilt

$$(3.12) \quad g \cdot \sin (\Theta + \delta) = \lambda_1.$$

Hier ist δ der halbe Raumwinkel, der vom Chip der Kamera erfasst wird. Letzterer lässt sich aus der Spektrometerlänge l und der Chipbreite s berechnen, denn es gilt

$$(3.13) \quad \tan \delta = \frac{s/2}{l}.$$

Mit $l = 360 \text{ mm}$ und $s = 26,8 \text{ mm}$ erhält man für δ den Wert $2,13169^\circ$. Nun sind die Positionen zweier Wellenlängen auf dem Chip der Kamera bekannt, die Wellenlängen der dazwischen liegenden Pixel werden linear interpoliert. Dabei nähert

man die tan-Funktion zwischen 0° und $2,13169^\circ$ linear. Fehler der Kalibrierung, die aus der Ungenauigkeit der Spektrometerlänge und der linearen Interpolation entstehen, werden in Kapitel 4.2.3 diskutiert.

Mit einer Chipbreite von 26,8 mm überdeckt die Kamera einen Winkel von $4,25^\circ$, das entspricht je nach Kameraposition 5 bis 7 nm. Folglich muss die Kamera zur Beobachtung des gesamten harmonischen Spektrums auf dem Rowlandkreis verschoben werden. Spektren, die bei verschiedenen Kamerapositionen aufgenommen wurden, müssen zur Auswertung aneinander gesetzt werden. Dazu kann die zur Kamera gehörige Software verwendet werden. Bedingt durch die relativ simple Skala, anhand der die Kameraposition manuell eingestellt wird, ist die Kameraposition jedoch nur auf etwa $0,3^\circ$ bekannt (siehe auch Fehlerabschätzung im Abschnitt 4.2.3). Daher müssen vor dem Zusammenfügen der Spektren die einzelnen Scans in einem Tabellenverarbeitungsprogramm übereinander gelegt und einzelne Spektren gegebenenfalls entlang der Wellenlängenachse verschoben werden. Ohne diese Korrekturen erhält man stark verschmierte Spektren mit Doppelpeakstrukturen, die von dem Versatz der Spektren gegeneinander herrühren.

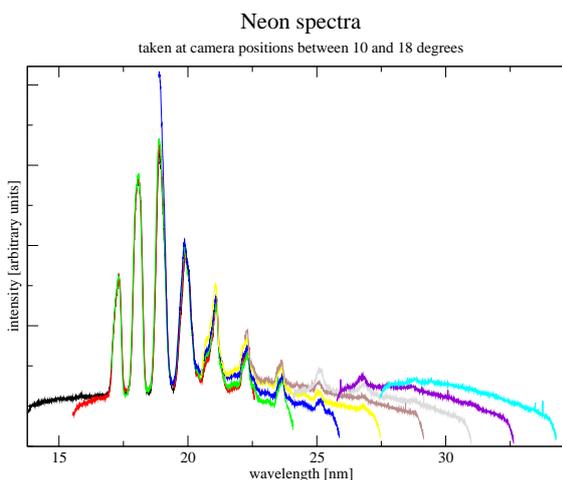


Abbildung 3.16: Einzelne Scans eines XUV-Spektrums, übereinandergelegt unter der Verwendung des Programmes „xm-grace“.

3.5 Verbesserungen und Erweiterungen des experimentellen Aufbaus

Im Folgenden werden Möglichkeiten zur Verbesserung des bestehenden Aufbaus zur Erzeugung harmonischer Strahlung vorgestellt und die geplante Weiterentwicklung des Experiments skizziert.

3.5.1 Methoden zur Steigerung der Intensität

Die im noch folgenden Kapitel 4 dargestellten Ergebnisse legen nahe, dass die Intensität des fundamentalen Laserfeldes noch gesteigert werden muss, um in den für die geplanten atomphysikalischen Experimente interessanten Wellenlängenbereich vorzustoßen. Dies lässt sich auf unterschiedlichen Wegen erreichen:

Stärkere Fokussierung: Die Verwendung von Spiegeln mit kürzerer Brennweite führt zu kleineren Foki und damit zu höheren Feldintensitäten am Fokuspunkt (vgl. Abschnitt 3.3.2). Allerdings wird es bei noch kürzeren Brennweiten immer schwieriger, den Auftreffwinkel auf dem fokussierenden Spiegel möglichst eng zu halten. Es liegt auf der Hand, dass der fokussierende Spiegel nicht beliebig nahe an die innere Targetkammer heran gestellt werden kann. Der Astigmatismus, der dadurch entsteht, kann den Effekt der kürzeren Brennweite wieder zunichte machen.

Strahlaufweitung vor der Fokussierung: Eine weitere Möglichkeit zur Verkleinerung des Fokuspunktes besteht darin, bei der Fokussierung von einem breiteren Strahlenbündel auszugehen. Bei den vorliegenden Experimenten betrug der Strahldurchmesser lediglich 7 mm, es gibt hier also noch Raum für Verbesserungen. Die Strahlaufweitung müsste allerdings in der Vakuumkammer implementiert werden, da der Strahl sonst am Eintrittsfenster abgeschnitten würde.

Astigmatismuskompensation: Bei der Fokussierung mit einem gekrümmten Spiegel entsteht aufgrund des endlichen Auftreffwinkels ein Astigmatismus, der den Fokuspunkt zum Ellipsoid verformt und dadurch die elektromagnetische Feldstärke am Fokus senkt (vgl. Abschnitt 3.3.2). Durch Kompensation des Astigmatismus, zum Beispiel mithilfe zweier weiterer gekrümmter Spiegel, könnte daher die Feldstärke erhöht werden.

Höhere Targetdichte: Die Ausbeute an harmonischer Strahlung kann, zumindest im Fall von Neon, auch durch eine höhere Targetdichte gesteigert werden (siehe dazu Abschnitt 4.1). Momentan ist der Druck im Targetröhrchen jedoch durch die Pumpleistung der Turbomolekularpumpe begrenzt. Durch Einsatz einer geeigneteren Pumpe könnte das Experiment also noch bessere Ergebnisse liefern.

3.5.2 Geplante Entwicklung des Experiments

Die vorliegende Arbeit beschreibt die erste Phase des Aufbaus eines Experiments zur Erforschung der Elektronendynamik in Atomen mit Attosekundenimpulsen. Die grundlegenden Komponenten zur Erzeugung der Attosekundenimpulse mittels hoher harmonischer Strahlung, welche die erforderlichen kurzen Wellenlängen über ein breites Spektrum mit fester Phasenbeziehung liefert, wurden im Rahmen dieser Arbeit erfolgreich geplant, aufgebaut und in Betrieb genommen. In den kommenden Monaten werden weitere Schritte zur Vervollständigung des experimentellen Aufbaus folgen, die an dieser Stelle kurz vorgestellt werden sollen.

Filamentation und Impulskompressor

Für die angestrebten atomphysikalischen Experimente genügen die Impulse des in Abschnitt 3.1 beschriebenen KM-Lasersystems nicht. Wie in Kapitel 2.3 erläutert wurde, benötigt man zum Erzeugen eines einzelnen, isolierten Attosekundenimpulses fundamentale Laserimpulse, die praktisch nur aus einem elektromagnetischen Schwingungszyklus bestehen. Die Impulse des bisherigen Aufbaus haben eine Dauer von etwa 25 fs; bei einer Trägerwellenlänge von 800 nm enthält ein Impuls also ca. 10 Schwingungen des elektromagnetischen Feldes.

Für eine Verkürzung der Laserimpulse auf 5 bis 6 Femtosekunden muss deren spektrales Profil zunächst verbreitert werden. Dies soll im vorliegenden Experiment durch Ausnutzen der Selbstphasenmodulation in einer gasgefüllten Filamentationsstrecke [Hau04] erreicht werden. Großer Vorteil dieser Methode ist, dass mit der Filamentation eine räumliche Filterung einhergeht [Bra95]. Anschließend durchlaufen die Laserimpulse einen Prismenkompressor. Ein nachgeschalteter Aufbau mit einem deformierbaren Spiegel eröffnet darüber hinaus die Möglichkeit, kleine, maßgeschneiderte Gangunterschiede zwischen den spektralen Komponenten des Lichtimpulses einzufügen, so dass die gesamte Dispersion des experimentellen Aufbaus optimal kompensiert werden kann.

SPIDER zur vollständigen Impulscharakterisierung

Informationen über den zeitlichen Verlauf der fundamentalen Laserimpulse können bisher nur indirekt gewonnen werden. So kann beispielsweise aus der spektralen Breite, der Form des Spektrums und der Helligkeit eines mit einer kurzbrennweitigen Linse erzeugten Plasmas lediglich die Länge des Impulses abgeschätzt werden. Sowohl für die atomphysikalischen Experimente als auch

für die Erzeugung der hohen harmonischen Strahlung ist es von nicht zu unterschätzendem Vorteil, die Laserimpulse der Fundamentalen vollständig charakterisieren zu können. Dafür steht seit einigen Jahren eine effiziente Methode zur Verfügung, die „Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction“, kurz SPIDER [Bau02].

Das Messprinzip des SPIDER beruht auf der Überlagerung zweier Repliken des unbekanntes Impulses mit einem bekannten, gechirpten Impuls in einem nichtlinearen Kristall. Das dabei entstehende Interferogramm wird algorithmisch ausgewertet und liefert sehr präzise Informationen über die zeitliche Entwicklung des Impulses. Eine Weiterentwicklung ist der sogenannte „Zero Additional Phase“-, kurz ZAP-Spider, der ohne bewegliche optische Komponenten auskommt und die Messung der Impulsform am Ort des spektroskopischen Experiments ermöglicht [Bau04]. Ein ZAP-Spider für das geplante Experiment befindet sich derzeit im Aufbau.

Das Reaktionsmikroskop

Zur Untersuchung der Attosekundendynamik in Atomen und Molekülen benötigt man neben geeigneten Pump- und Probe-Impulsen natürlich den eigentlichen Detektor. Dieser wird im Fall des vorliegenden Experimentes ein Reaktionsmikroskop sein, das die vollständige Vermessung der dreidimensionalen Impulse aller Fragmente und somit eine detaillierte Erforschung von Stoß- und Dissoziationsprozessen erlaubt (vgl. Kapitel 1). Experimente am Reaktionsmikroskop mit Femtosekundenimpulsen führten in den letzten Jahren bereits zu aufschlussreichen Einblicken in die Dynamik von Atomkernen in Molekülen [Erg06] [Rud06]. Ein neues Reaktionsmikroskop für die geplanten Experimente mit Attosekundenimpulsen wird zur Zeit aufgebaut.

Kapitel 4

Experimentelle Ergebnisse

Im Folgenden werden die experimentellen Ergebnisse einer systematischen Untersuchung und Charakterisierung der in Neon und Argon erzeugten hohen harmonischen Strahlung und deren Abhängigkeit vom Gasdruck des Targets diskutiert. Anschließend wird die Anzahl erzeugter XUV-Photonen anhand der Kamerastatistik abgeschätzt und systematische Fehler bei der Bestimmung der Energie der Harmonischen diskutiert.

4.1 Einfluss des Drucks des Targetgases auf die Intensität harmonischer Strahlung

Abbildung 4.1 zeigt Spektren harmonischer Strahlung, die bei Neon-Drücken zwischen 240 und 400 mbar im Targetröhrchen beobachtet wurden. Man erkennt eine deutliche Abhängigkeit der spektralen Intensität vom Druck des Targetgases, weshalb es unumgänglich ist, diesen Parameter bei der Optimierung der Intensität der harmonischen Strahlung einer bestimmten Ordnung mit einzubeziehen.

Bei einer systematischen Messung der Druckabhängigkeit der Intensität der harmonischen Strahlung ist es unbedingt notwendig, für jeden Druckwert die Justage des Verstärkers am Einkoppelspiegel und die z-Position des Targetröhrchens neu zu optimieren. Der Grund dafür liegt in den bereits in Abschnitt 3.3.1 erwähnten Effekten, die eine Verschiebung des Fokuspunkts hervorrufen. Erfreulicherweise stellten wir bei den Messungen fest, dass diese Optimierungen bei schrittweiser Druckerhöhung oder -erniedrigung immer in die selbe Richtung gehen: je höher der Druck im Targetröhrchen, desto näher am Eintrittskonus liegt die optimale Position des Röhrchens. Das ist plausibel, da mit steigendem

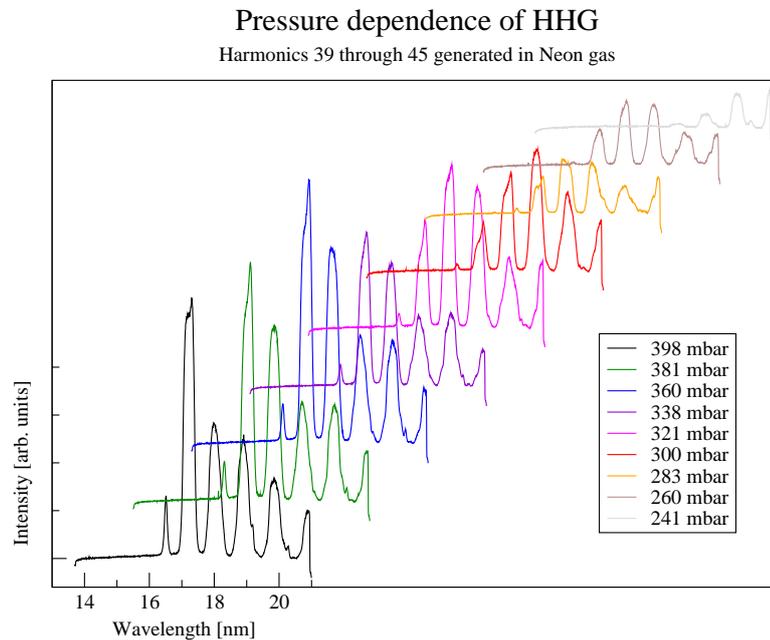


Abbildung 4.1: Einfluss des Druckes auf das Harmonischen-Signal. Die Spektren wurden vertikal und horizontal gegeneinander verschoben, um die druckbedingten Veränderungen deutlich zu machen. Die Wellenlängenskala bezieht sich auf das schwarze Spektrum (389 mbar), für die anderen Werte muss die Skala entsprechend mitverschoben werden.

Druck die Absorption der harmonischen Strahlung im Target selbst ansteigt, also ein dünneres Target vorteilhafter ist. Dem entspricht die Verschiebung des Röhrens zum Eintrittskonus hin, da dann nur ein kleiner Teil des Gastargets vor dem Fokuspunkt liegt und die XUV-Strahlung absorbiert. Darüber hinaus ist der Brechungsindex eines Gases linear vom Druck abhängig. Eine Druckerhöhung im Targetröhrchen bewirkt daher eine stärkere Fokussierung der fundamentalen Strahlung, der Fokuspunkt verschiebt sich zum Eintrittskonus hin. Abbildung 4.2 illustriert die Verschiebung des Targetröhrens.

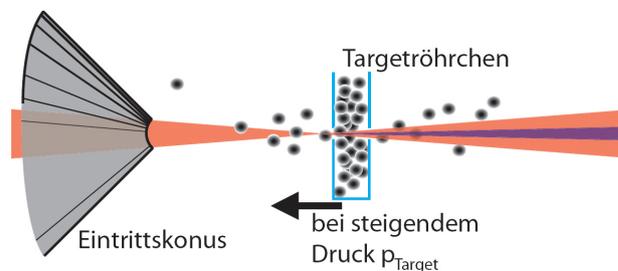


Abbildung 4.2: Bei steigendem Targetdruck muss das Röhrchen in Richtung Eintrittskonus verschoben werden.

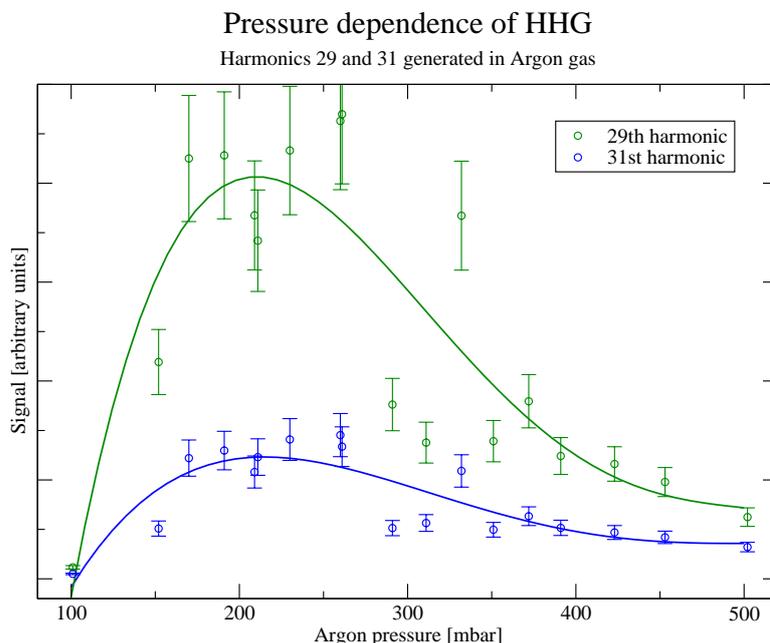


Abbildung 4.3: Druckabhängigkeit des Harmonischensignals mit Argon als Targetgas. Aufgrund starker Schwankungen der Laserintensität wurden Werte, die zu einem späteren Zeitpunkt aufgenommen wurden, korrigiert. Man erkennt ein klares Maximum bei ca. 230 mbar.

Abbildung 4.3 zeigt die beobachtete Abhängigkeit der Intensität zweier Harmonischer vom Druck im Targetröhrchen bei Erzeugung mit Argon. Aufgrund von Leistungsschwankungen des Verstärkers lagen Messwerte, die in der ersten Hälfte der Messreihe aufgenommen wurden (Drücke von 100 bis 260 mbar) deutlich über denen der zweiten Hälfte der Messreihe. Diese wurden deshalb um einen Faktor 6,25 nach oben skaliert. Dieser Korrekturfaktor wurde aus Messungen bei gleichem Druck vor und nach dem Leistungsabfall des Verstärkers gewonnen.

Nach der Korrektur zeigt die Druckkurve in Abbildung 4.3 ein klares Maximum bei ca. 230 mbar. Einleuchtend ist zunächst ein Anstieg des Harmonischensignals mit dem Druck im Targetröhrchen. Je dichter das Target, umso größer die Wahrscheinlichkeit nichtlinearer Wechselwirkung zwischen Strahlung und Gasatomen. Den Abfall der Signalintensität bei Drücken über 260 mbar kann man sich mit der im dichteren Gas stärkeren Absorption der harmonischen Strahlung plausibel machen. Die Einflüsse der einzelnen Effekte sind noch nicht ausreichend verstanden, um quantitative Aussagen treffen zu können [Kaz03].

Im Gegensatz zu dem klaren Maximum, das man bei der Druckabhängigkeit des Harmonischensignals bei der Erzeugung mit Argon beobachtet, ist bei der Erzeugung der Harmonischen mit Neon lediglich ein Trend erkennbar: je höher

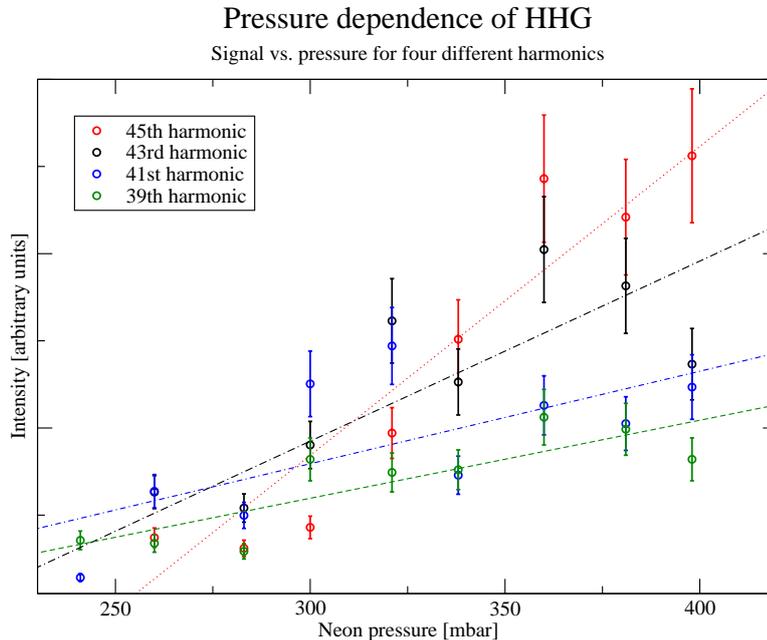


Abbildung 4.4: Druckabhängigkeit des XUV-Signals mit Neon als Targetgas.

der Druck im Targetröhrchen, desto intensiver das Signal der hohen harmonischen Strahlung. Abbildung 4.4 zeigt die Abhängigkeit vier Harmonischer vom Druck im Bereich zwischen 250 und 400 mbar. Leider konnte die Messung bei Neon nur in einem wesentlich kleineren Druckbereich als bei Argon durchgeführt werden. Die verminderte Pumpleistung vor allem der Turbomolekularpumpe, die schon in Kapitel 3.2.1 erläutert wurde, limitiert den Targetdruck in der Praxis auf etwa 300 mbar.

4.2 Charakterisierung der harmonischen Strahlung

Abbildung 4.5 zeigt typische Spektren hoher harmonischer Strahlung, erzeugt in Neon (links) bzw. Argon (rechts), oben in Abhängigkeit von der Wellenlänge, unten abhängig von der Photonenenergie. Vier Charakteristika fallen beim Vergleich der Spektren auf: zunächst einmal entsprechen die in der Energie äquidistanten Linien sowie die höheren Energien und kürzeren Wellenlängen bei Neon im Vergleich zu Argon den Erwartungen, die in den Kapiteln 2 und 3.3.2 diskutiert wurden.

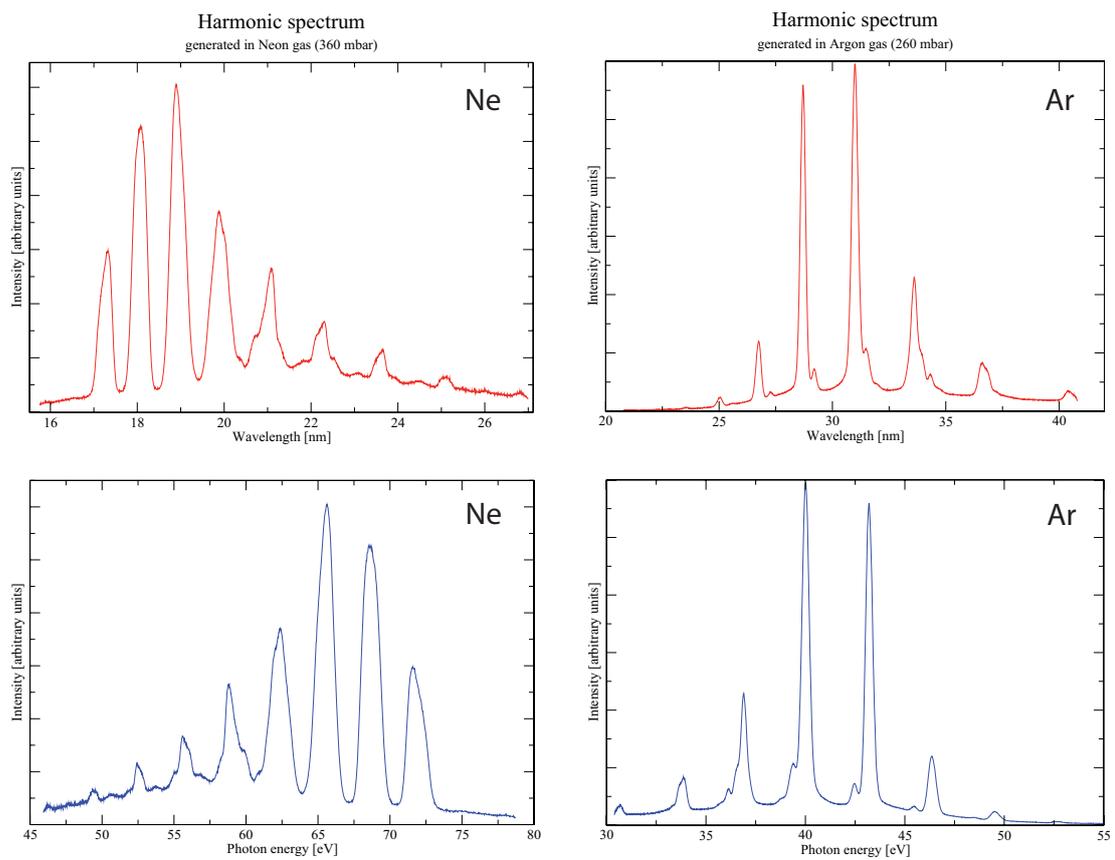


Abbildung 4.5: Typische Spektren harmonischer Strahlung erzeugt in Neon (links) und Argon (rechts), oben in Abhängigkeit von der Wellenlänge, unten in Abhängigkeit von der Energie. Auffallend sind der steile Abfall des Spektrums zu höheren Energien hin bei Neon, die breiteren Peaks bei Neon im Vergleich zu Argon, sowie die Doppelpeakstruktur, die vom Gitter herrührt.

Die Form des Spektrums fällt jedoch für Neon und Argon völlig unterschiedlich aus. Während das in Argon erzeugte Spektrum annähernd glockenförmig nach beiden Seiten abfällt, zeigt sich bei der Erzeugung mit Neon ein langsamer Anstieg von niedrigen Energien her und anschließend ein sehr steiler Abfall zu höheren Energien hin. Zunächst überraschend erscheint dabei die Tatsache, dass keine niedrigeren Harmonischen als die 19. im Fall von Argon und die 21. im Fall von Neon beobachtet werden. Darüber hinaus sind die in Neon erzeugten Harmonischen breiter als die Linien des Argonspektrums. Im Spektrum harmonischer Strahlung, das mit Argon erzeugt wurde, treten außerdem kleine Doppelpeaks an den langwelligen Flügeln der Peaks der Harmonischen auf. Diese Merkmale sollen im Folgenden diskutiert und erläutert werden.

4.2.1 Diskussion der Spektren

Abbildung 4.6 zeigt die im Rahmen dieser Arbeit beobachteten Spektren hoher harmonischer Strahlung. Erwartungsgemäß werden bei der Erzeugung mit Neon höhere Energien beobachtet. Allerdings ist die Differenz der Cutoff-Energien weitaus größer als Gleichung 3.8 vorhersagt. Bei gleichem ponderomotivem Potential würde man zunächst erwarten, dass der Cutoff bei Neon im Vergleich zu Argon bedingt durch das höhere Ionisationspotential um ca. 7 eV höher liegt. Darüber hinaus erwartet man entsprechend der Abschätzung in Abschnitt 3.3.2, dass sich das Plateau der Harmonischen je nach Brennweite bis 90 bzw. 180 eV erstreckt.

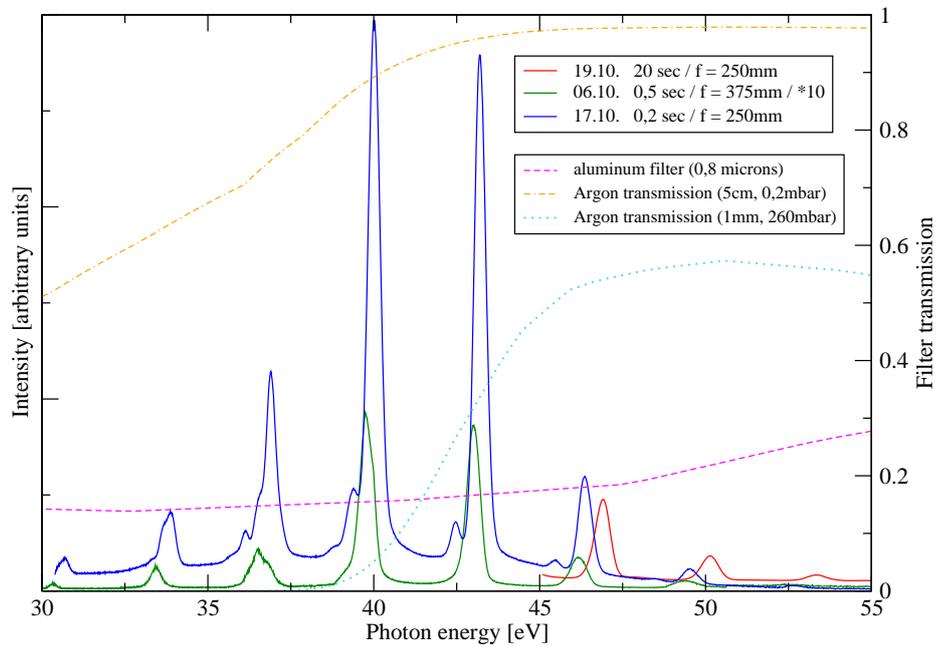
Davon weichen die beobachteten Spektren ab, insbesondere bei der Erzeugung in Argon: der experimentell bestimmte Cutoff liegt mit etwa 50 eV weitaus niedriger als erwartet. Die Ursachen hierfür liegen in der Propagation der harmonischen Strahlung durch das Medium. Eine harte Fokussierung wie in unserem Fall mit Brennweiten von 250 bzw. 375 mm führt dazu, dass die Erzeugung Harmonischer auf ein sehr kleines Volumen beschränkt ist. Ist dieses kleiner als die Targetlänge, treten Phasenfehlanpassungen auf, die mit der harmonischen Ordnung skalieren (vgl. [L'H93b]) und daher einen deutlich niedrigeren Cutoff bewirken.

Nach [L'H93b] lässt sich die Kohärenzlänge L_{koh} einer Harmonischen der Ordnung q folgendermaßen abschätzen:

$$(4.1) \quad L_{koh} = \frac{\pi b}{2(q-1)},$$

wobei b der konfokale Parameter ist. Wird L_{koh} kleiner als die Targetlänge, limitiert die Fokalgeometrie aufgrund schlechter Phasenanpassung die Erzeugung

Harmonic spectra generated with Argon



Harmonic spectra generated with Neon

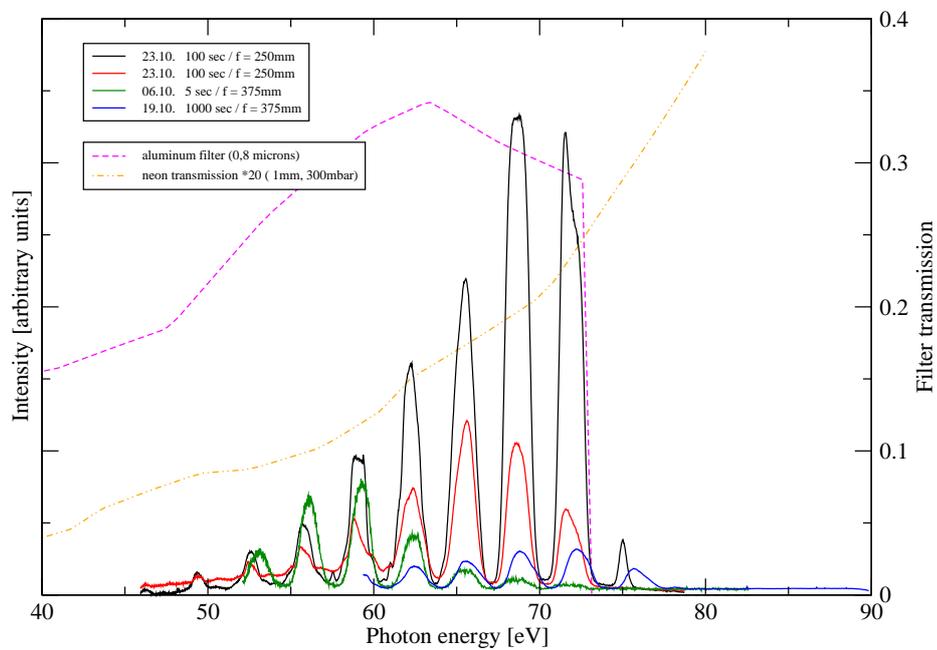


Abbildung 4.6: Spektren harmonischer Strahlung, in Argon (oben) und in Neon (unten) erzeugt. Alle Spektren wurden auf eine Belichtungszeit von 100 s im Fall von Neon und 20 s bei Argon normiert.

der Harmonischen. In unserem Fall liegt die Targetlänge zwischen 1 mm und 3 mm, der (durch Astigmatismus vergrößerte) konfokale Parameter beträgt nach Abschnitt 3.3.2 9,3 mm. Demnach wirkt sich die harte Fokussierung bereits auf Harmonische der Ordnungen größer als 15 aus. Beheben könnte man diesen Effekt durch eine schwächere Fokussierung mit einem entsprechend langbrennweitigen Spiegel. Allerdings reicht dann wiederum die Intensität des Lasers bei der aktuellen Impulslänge nicht aus, um hohe Harmonische zu erzeugen.

Diese Argumentation wird noch gestützt von unserer Beobachtung, dass nur bei der Verwendung von relativ dünnen Targetröhrchen die Erzeugung intensiver harmonischer Strahlung gelang. Die in Abbildung 4.6 und 4.5 präsentierten Messungen wurden mit Röhrchen mit Innendurchmessern von 1 bis 3 mm gemacht, beim Experimentieren mit dickeren Röhrchen konnten nur sehr schwache oder gar keine XUV-Signale beobachtet werden.

Ursache für die im Vergleich zu Argon verbreiterten Linien bei Neon ist die bedeutend längere Belichtungszeit beim Experimentieren mit Neon. Da die Intensität der Harmonischen bei Neon viel geringer ist als bei Argon (vgl. Abschnitt 4.3), ist eine entsprechend längere Belichtungszeit nötig. So entstanden die in 4.5 abgebildeten Spektren mit Belichtungszeiten von 0,5 s für Argon und 100 s für Neon. Dadurch wirken sich leichte räumliche Intensitätsfluktuationen der harmonischen Strahlung weitaus stärker auf das beobachtete Spektrum aus. Diese räumlichen Fluktuationen sind zudem bei Neon stärker als bei Argon, vermutlich weil bei Neon die Intensität des elektrischen Feldes gerade ausreicht, um Harmonische in dem beobachteten Energiebereich zu erzeugen. Im Gegensatz dazu ist das Signal bei Argon viel stabiler, die Intensität liegt hier deutlich über der kritischen Energie zur Erzeugung der harmonischen Strahlung.

Den scharfen Abfall des in Neon erzeugten spektralen Profils hoher Harmonischer bei 72 eV bewirkt der Aluminium-Filter, der zum Blockieren der fundamentalen Laserstrahlung vor dem XUV-Gitter dient. Dessen Transmittivität fällt bei 72 eV steil ab, so dass harmonische Strahlung mit Energien über dieser Schwelle nicht beobachtet werden kann (vergleiche Abschnitt 4.4). Zur Verdeutlichung dieses Sachverhalts ist in Abbildung 4.6 die Transmittivität des Aluminiumfilters eingezeichnet (rosa gestrichelte Linie, Skala rechts).

Analog verhält es sich mit Harmonischen niedrigerer Energie: sie werden vom Targetgas selbst durch Ionisation absorbiert, so dass sie auch in einem Wellenlängenbereich, in dem der Aluminiumfilter noch durchlässig ist, stark unterdrückt oder überhaupt nicht zu sehen sind. Die Transmittivität des jeweiligen Targetgases ist in Abbildung 4.6 eingezeichnet; man erkennt, dass der Abfall der Intensität der Harmonischen gut dem Verlauf der Transmittivität der Gastargets

folgt. Zur Absorption tragen sowohl das Gas im Targetröhrchen selbst bei einem Druck von 260 bzw. 300 mbar bei als auch das nicht vollständig abgepumpte Gas in der inneren Targetkammer mit einer Wechselwirkungslänge von ca. 5 cm (Mitte der Targetkammer bis Konusspitze) und Drücken von 10^{-1} bis 10^{-2} mbar.

Eine triviale Ursache haben die kleinen Peaks, die an den langwelligen Flügeln der Harmonischen im mit Argon erzeugten Spektrum auftreten: die jeweils verwendete Größe der Blende vor dem Aluminiumfilter, die der räumlichen Begrenzung der Harmonischen Strahlung auf eine der beiden Gittermembranen dient (vgl. Kapitel 3.4.3), muss vor dem Schließen der Vakuumkammer geschätzt werden, und kann bei geschlossener Kammer nicht mehr verändert werden. Daher war die Blende bei einigen der Messungen zu weit geöffnet, die zweite Gittermembran dadurch teilweise beleuchtet. Der kleine Teil harmonischer Strahlung, die von diesem Gitter gebeugt wird, zeigt sich als ein weiteres Maximum und damit in der Doppelpeakstruktur.

Aus dem gleichen Grund ist der Peak bei ca. 75 eV im Harmonischenspektrum in Abbildung 4.6 keine weitere Harmonische, sondern Artefakt teilweiser Beleuchtung der zweiten Gittermembran. Die bei Argon beobachtete Doppelpeakstruktur wird bei Neon jedoch durch die räumlichen Intensitätsfluktuationen weitgehend verwaschen.

4.2.2 Zusammenhang mit der Zentralwellenlänge der fundamentalen Laserstrahlung

Die beobachteten Spektren weisen aufgrund der annähernd äquidistanten Linien bereits eindeutig darauf hin, dass es sich tatsächlich um hohe harmonische Strahlung handelt. Zur Gegenprobe wurden die Photonenenergien der beobachteten Linien gegen die Ordnungszahl der zugehörigen Harmonischen aufgetragen. Wie in Abbildung 4.7 zu sehen, liegen die Harmonischen sehr genau auf einer Linie.

Ein linearer Fit ergibt, dass die Separation zwischen zwei einzelnen Harmonischen im Mittel $(1.595087 \pm 0.00537162)$ eV beträgt. Wir vergleichen das mit der Strahlung des Ti:Sa: Ein Photon der fundamentalen Laserfrequenz trägt die Energie E_γ

$$(4.2) \quad E_\gamma = h\nu = \frac{hc}{\lambda}$$

wobei h das Plancksche Wirkungsquantum, c die Vakuum-Lichtgeschwindigkeit, ν die Frequenz und λ die Wellenlänge des betreffenden Photons ist. Für $\lambda = 800\text{nm}$ erwartet man daher eine Energie von 1,55 eV. Die um ca. 0,04 eV größere Sepa-

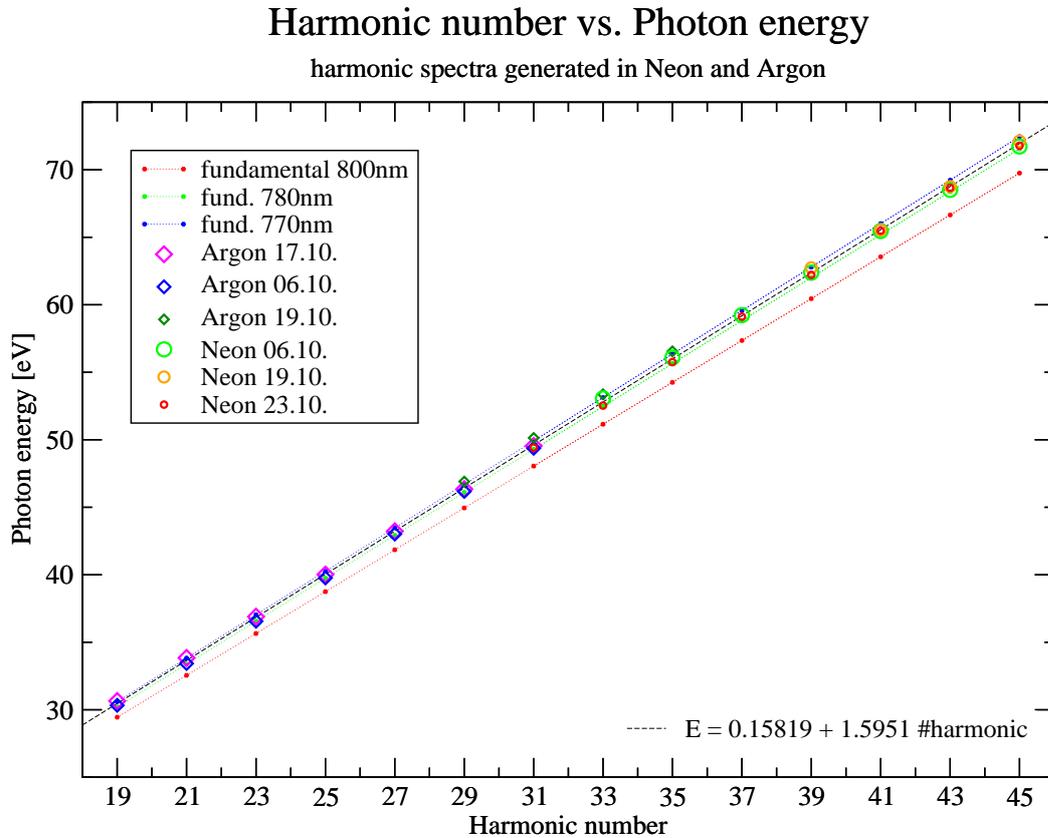


Abbildung 4.7: Zur Kontrolle der Ergebnisse wurden die Energien der harmonischen Strahlung gegen die Ordnungszahl der jeweiligen Harmonischen aufgetragen. Ein linearer Fit (schwarze gestrichelte Linie) ergibt, dass die Zentralwellenlänge der Fundamentalen nicht wie erwartet bei 800 nm liegt, sondern etwas darunter. Daraus resultiert eine etwas größere Separation zwischen den einzelnen Harmonischen.

ration der Harmonischen weist darauf hin, dass die Zentralwellenlänge der fundamentalen Laserimpulse nicht genau bei 800 nm liegt, sondern etwas darunter, bei $(777,4 \pm 2,6)$ nm, wie man unschwer anhand von Formel 4.2 berechnen kann. In Abbildung 4.7 sind zur Verdeutlichung dieses Sachverhalts die erwarteten Energien der Harmonischen bei verschiedenen Fundamentalwellenlängen zwischen 770 nm und 800 nm eingezeichnet (gepunktete Linien in rot, grün und blau).

Die Untersuchung des Spektrums des Dragon-Verstärkers bestätigt diesen Befund: Abbildung 4.8 zeigt das gemessene Spektrum der fundamentalen Laserstrahlung. Sowohl Schwerpunkt als auch höchste Intensität des Spektrums liegen deutlich unter 800 nm, die Mittenfrequenz wurde mit einem gaußförmigen Fit auf 779 nm bestimmt.

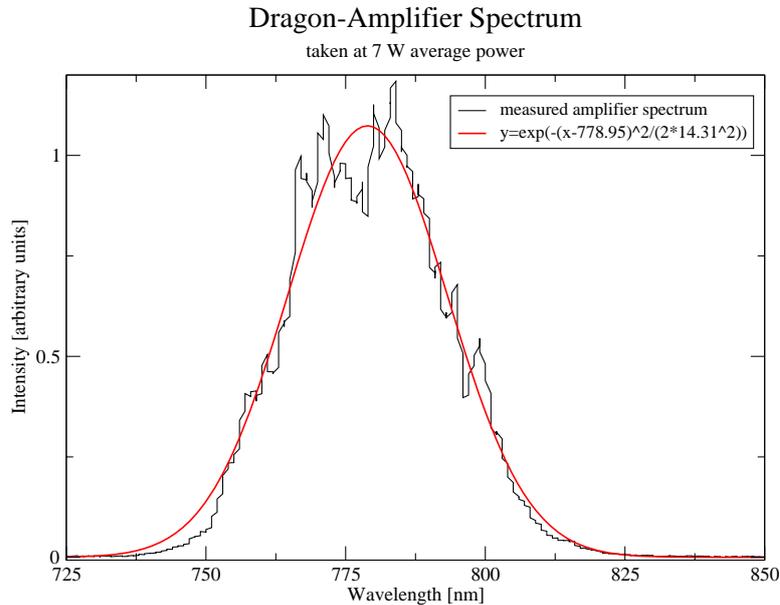


Abbildung 4.8: Das Spektrum des Dragon-Verstärkers.

4.2.3 Fehlerbetrachtung

Die Überlegungen im vorigen Abschnitt legen eine Fehlerabschätzung der Harmonischen-Energien nahe. Die wesentlichen Beiträge der Ungenauigkeit der Bestimmung von Frequenz beziehungsweise Energie der Harmonischen rühren von der Ablesegenauigkeit des Spektrometers, räumlichen Intensitätsfluktuationen sowie der Genauigkeit der zur Kalibrierung der Spektren verwendeten Länge des Kameraarms her.

Ablesegenauigkeit der Kameraposition

In Abschnitt 3.4.3 wurde bereits erwähnt, dass die Ablesegenauigkeit der Kameraposition aufgrund der einfachen Gestaltung des Spektrometers auf etwa $0,3^\circ$ begrenzt ist. Diese Ungenauigkeit liefert den größten Beitrag zum Fehler der Energie der harmonischen Strahlung.

Für eine Abschätzung des Fehlers verwenden wir

$$(4.3) \quad \frac{dE}{E} = -\frac{d\lambda}{\lambda}.$$

Diese Relation folgt aus

$$E(\lambda) = \frac{hc}{\lambda} \quad \Longrightarrow \quad \frac{dE}{d\lambda} = -\frac{hc}{\lambda^2} = -E\lambda^{-1} \quad \Longrightarrow \quad \frac{dE}{E} = -\frac{d\lambda}{\lambda}$$

Aus Gleichung 3.11 folgt $\frac{d\lambda}{d\theta} = \cos\theta \cdot g$ und daraus wiederum

$$(4.4) \quad \begin{aligned} \frac{dE}{d\theta} &= \frac{dE}{d\lambda} \cdot \frac{d\lambda}{d\theta} = -\frac{E}{\lambda} \cdot \cos\theta \cdot g = -\frac{E^2}{hc} \cdot \cos\theta \cdot g \\ &\implies \Delta E = -\frac{E^2}{hc} \cdot \cos\theta \cdot g \cdot \Delta\theta \end{aligned}$$

Für $\Delta\theta = 0,3^\circ$ erhält man im für die Kalibrierung relevanten Energiebereich Werte zwischen 1,2 eV und 2,05 eV für ΔE . Der relative Fehler liegt damit wellenlängenabhängig zwischen 1,4 und 3,0 Prozent.

Räumliche Intensitätsfluktuationen

Einen ähnlich großen Fehler wie die Ungenauigkeit beim Ablesen der Kameraposition rufen räumliche Intensitätsschwankungen der hohen harmonischen Strahlung hervor. Insbesondere bei längeren Belichtungszeiten machen sich diese Schwankungen bemerkbar (siehe dazu auch Abschnitt 4.2.1). Als obere Grenze für die räumliche Amplitude der Intensitätsfluktuationen wurde anhand aufeinanderfolgender Scans ein Wert von 60 Pixel bestimmt. Aus der Chipbreite von 1340 Pixeln, die einem Ablenkwinkel von $2 \cdot 2,13169^\circ$ entspricht, kann man dem einen Fluktuationswinkel ϑ zuordnen, für welchen gilt

$$(4.5) \quad \vartheta = \frac{60 \text{ Pixel}}{1340 \text{ Pixel}} \cdot 2 \cdot 2,13169^\circ = 0,1909^\circ.$$

Im Folgenden verfährt man genau wie bei der Abschätzung des Fehlers aus der Ablesegenauigkeit des Spektrometers. Für $\vartheta = 0,1909^\circ$ erhält man einen wellenlängenabhängigen Fehler ΔE von 0,3 eV bis 1,3 eV. Der relative Fehler liegt zwischen 0,7 und 1,8 Prozent.

Die wellenlängenabhängigen Fehler, die durch räumliche Intensitätsfluktuationen und die Ablesegenauigkeit der Spektrometerskala verursacht werden, sind in Abbildung 4.9 dargestellt.

Genauigkeit der Spektrometerlänge

Ein im Hinblick auf systematische Fehler sehr sensibler Punkt ist die Kalibrierung der Spektren anhand der Chipbreite der XUV-Kamera und der Länge des Spektrometers. Hier wirkt sich vor allem die Ungenauigkeit der Spektrometerlänge l aus, die zu (360 ± 3) mm bestimmt wurde. Bei der Kalibrierung wird l bei der Berechnung des Winkels δ , den die Kamera überdeckt, verwendet:

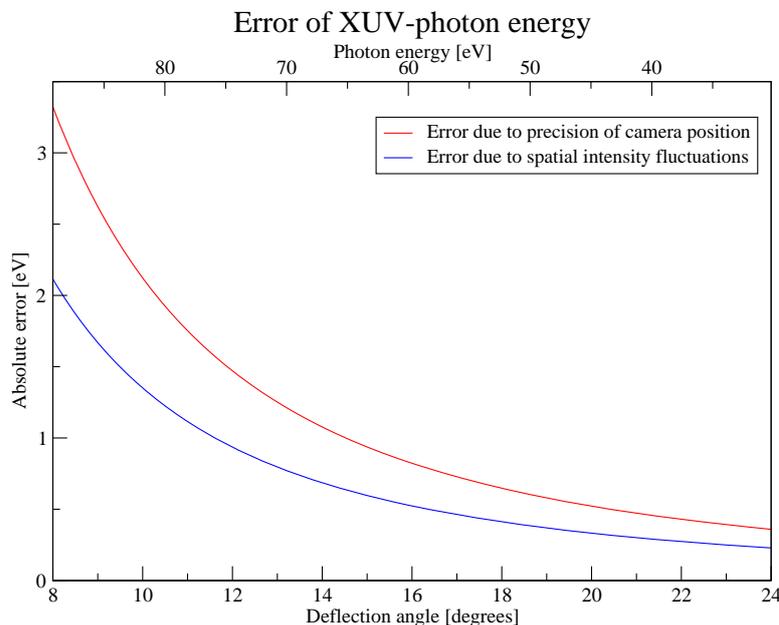


Abbildung 4.9: Wellenlängenabhängiger Fehler der experimentell bestimmten Photonenergien.

$\delta = \arctan \frac{s/2}{l}$, wobei s die Chipbreite ist (vgl. Kapitel 3.4.3). Für δ ergibt sich mit $l = (360 \pm 3)$ mm eine Ungenauigkeit von $\Delta\delta = \pm 0,018^\circ$. Daraus folgt

$$\lambda = \sin \theta + \delta \cdot g \approx (\theta + \delta) \frac{\pi}{180^\circ} \cdot g,$$

dabei wurde die Kleinwinkelnäherung verwendet, g ist die Gitterperiode. Für den Fehler von λ folgt

$$\frac{d\lambda}{d\delta} = \frac{\pi}{180^\circ} \cdot g$$

$$(4.6) \quad \Rightarrow \quad \Delta\lambda = \frac{\pi}{180^\circ} \cdot g \cdot \Delta\delta.$$

Mit $g = 99,90$ nm und $\Delta\delta = 0,018^\circ$ erhält man einen Fehler der Wellenlänge $\Delta\lambda$ von 0,031 nm. Für Wellenlängen der harmonischen Strahlung im Bereich 10 bis 40 nm bedeutet dies einen relativen Fehler von 0,8‰ bis 3‰.

Weitere Fehlerquellen

Darüber hinaus müssen noch vier weitere Quellen systematischer Fehler in Betracht gezogen werden, die sich jedoch als vernachlässigbar erweisen. Diese sollen im Folgenden diskutiert werden.

Abweichung vom Rowlandkreis Wie in Abschnitt 3.4.3 beschrieben, wurden bei der Kalibrierung der Spektren Wellenlängen, die zwischen den beiden exakt bekannten Punkten — der Chipmitte und dem Rand des Chips — abgebildet werden, linear interpoliert. Das entspricht einer linearen Näherung des Tangens zwischen 0° und der halben Chipbreite, die bei der Länge unseres Spektrometers $2,13169^\circ$ überdeckt. Diese Näherung ist als „Kleinwinkelnäherung“ sehr gebräuchlich. In dem für uns relevanten Winkelbereich beträgt die Abweichung der linearen Näherung von der exakten Tangensfunktion maximal $6,5 \cdot 10^{-6}$.

Schräges Gitter Abbildung 3.12 unten zeigt ein Rohdatenbild der ersten Ordnung hoher harmonischer Strahlung. Die schrägen Linien — gewissermaßen „Spaltbilder“ des Rahmens, in dem die Gittermembran befestigt ist — weisen darauf hin, dass die Linien des XUV-Gitters des Spektrometers bei dieser Messung nicht senkrecht montiert waren, sondern um einen kleinen Winkel β um die Propagationsachse des Lichtes verdreht.

Grund dafür ist die gemeinsame Aufhängung für Gitter und Filter (siehe Abschnitt 3.4.1), die anfangs nur schwer zu justieren war. Der Winkel, um den das Gitter verdreht ist, liegt bei den meisten Messungen zwischen 1° und $1,5^\circ$, der größte beobachtete Winkel war $3,5^\circ$. Die Drehung staucht die Spektren der harmonischen Strahlung um den Faktor $\cos \beta$, die Spektrallinien der einzelnen Harmonischen rücken näher zusammen. Der Einfluss des verdrehten Gitters ist jedoch gering; für den größten Winkel $\delta = 3,5^\circ$ ergibt sich ein Stauchungsfaktor von 0,9981, und damit verbunden ein relativer Fehler der errechneten Wellenlängen von unter 0,2%.

Fehler durch Summation vertikaler CCD-Kanäle Bei der Auswertung der Rohdatenbilder zu Spektren werden alle vertikal übereinanderliegenden Pixel des Chips summiert, um das dreidimensionale Profil der Rohdaten auf zwei Dimensionen, Ablenkwinkel gegen Intensität, zu reduzieren. Dieses Vorgehen ist nur dann gerechtfertigt, wenn die Schwerpunkte des jeweiligen Harmonischenstrahls im dreidimensionalen Rohdatenbild mit den aus der Summation resultierenden Peaks übereinstimmen. Dies wurde anhand einiger Spektren stichprobenartig überprüft. Die Abweichungen liegen im Bereich weniger Pixel, was einem Fehler von wenigen Hundertstel nm bei der Bestimmung der Wellenlänge entspricht.

Genauigkeit der Gitterperiode Nach Gleichung 3.11 geht die Gitterperiode in die Bestimmung der zu einem Ablenkwinkel θ gehörigen Wellenlänge ein. Ungenauigkeiten der Gitterperiode würden daher die Präzision der

Wellenlängenbestimmung beeinflussen. Nach Angaben des Herstellers [Sav] wurde die Gitterperiode elektronenmikroskopisch und spektrometrisch vermessen und zu $(99,90 \pm 0,05)$ nm bestimmt. Der relative Fehler der gemessenen Wellenlängen, der aus der Ungenauigkeit des Gitters erwächst, beträgt also 0,5‰ und ist damit eine bis zwei Größenordnungen kleiner als die oben diskutierten Fehler.

Alle diese Fehler sind wesentlich kleiner als die drei zu Anfang dieses Abschnittes berechneten und können daher vernachlässigt werden. Der gesamte Fehler der Bestimmung der Wellenlänge bzw. der Energie der hohen harmonischen Strahlung ergibt sich damit aus der Ablesegenauigkeit der Kameraposition, der Ungenauigkeit durch räumliche Intensitätsfluktuationen, und der Präzision der Spektrometertlänge nach gaußscher Fehlerfortpflanzung zu

$$\Delta E = \sqrt{\Delta_{\text{Ableseung}}^2 + \Delta_{\text{Fluktuationen}}^2 + \Delta_{\text{Spektrometer}}^2}$$

was einem Gesamtfehler von maximal 3,5% entspricht. Die beobachteten Linien können also eindeutig und unzweifelhaft Harmonischen der fundamentalen Laserfrequenz zugeordnet werden.

4.3 Abschätzung der Photonenzahl

Eine für die Planung atomphysikalischer Experimente entscheidende Größe ist die Anzahl XUV-Photonen $\#\gamma$, die pro Sekunde oder pro Laserimpuls erzeugt wird. Diese lässt sich folgendermaßen abschätzen:

$$(4.7) \quad \#\gamma = \frac{cts_{\text{signal}} - cts_{\text{background}}}{\#e \cdot QE \cdot T_{\text{Filter}} \cdot DE_{\text{Gitter}} \cdot \tau}$$

wobei cts_{signal} und $cts_{\text{background}}$ die Anzahl Zählerereignisse pro Pixel insgesamt bzw. im Untergrund ist, $\#e$ die Anzahl Elektronen, die ein XUV-Photon im CCD-Chip auslöst, QE die Quanteneffizienz des Chips (also die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon absorbiert wird), T_{Filter} die Transmittivität des Filters bei der entsprechenden Photonenenergie, DE_{Gitter} die wellenlängenabhängige Brechungseffizienz des XUV-Gitters und τ die Belichtungszeit der Kamera. Die Werte dieser Parameter sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

Für die höchsten beobachteten Harmonischen erhalten wir mit dieser Methode folgende Photonenzahlen für die in Neon erzeugte Strahlung:

| Parameter | Wert ($E = 40\dots 100\text{eV}$) | Erläuterung |
|---------------|-------------------------------------|---|
| $\#e$ | $E_{HHG}/3, 65\text{eV}$ | Anzahl ausgelöster Elektronen [Pia] |
| QE | 0, 41 | Quanteneffizienz des CCD-Chips [Pia] |
| T_{Filter} | 0, 15...0, 31 | Transmission des Aluminiumfilters [Xra] |
| DE_{Gitter} | 0, 10...0, 15 | Brechungseffizienz des Gitters [Xra] |

Tabelle 4.1: Zur Abschätzung der Photonenzahl $\#\gamma$ verwendete Parameter.

| Neon | | |
|------|------------|--------------------------------|
| H.O. | E_γ | $\#\gamma/s$ |
| 35 | 56,0 | $(1, 19 \pm 0, 50) \cdot 10^5$ |
| 37 | 59,2 | $(1, 83 \pm 0, 54) \cdot 10^5$ |
| 39 | 62,4 | $(2, 09 \pm 0, 39) \cdot 10^5$ |
| 41 | 65,5 | $(2, 69 \pm 0, 30) \cdot 10^5$ |
| 43 | 68,5 | $(4, 13 \pm 0, 25) \cdot 10^5$ |
| 45 | 71,7 | $(2, 93 \pm 0, 18) \cdot 10^5$ |

wobei die erste Spalte die Ordnungszahl der Harmonischen angibt, die zweite die zugehörige Energie in eV, und die dritte die errechnete Photonenzahl pro Sekunde und deren Fehler, der im Bereich von 25% bis 30% liegt. Analog erhalten wir für die in Argon erzeugte harmonische Strahlung:

| Argon | | |
|-------|------------|--------------------------------|
| H.O. | E_γ | $\#\gamma/s$ |
| 25 | 40,0 | $(2, 11 \pm 0, 31) \cdot 10^9$ |
| 27 | 43,2 | $(1, 56 \pm 0, 29) \cdot 10^9$ |
| 29 | 46,4 | $(2, 82 \pm 0, 62) \cdot 10^8$ |
| 31 | 39,5 | $(3, 94 \pm 0, 11) \cdot 10^8$ |

Auch aus diesen Ergebnissen ist ersichtlich, dass die beobachteten in Neon erzeugten Harmonischen noch im Bereich des Plateaus liegen. Sie weisen innerhalb der Fehlergrenzen annähernd gleiche Photonenzahlen auf. Dahingegen wird bei der Auswertung der Photonenzahlen der in Argon erzeugten harmonischen Strahlung deutlich, dass wir uns hier bereits im Cutoff-Bereich des Spektrums befinden. Die Anzahl erzeugter XUV-Photonen fällt hier zu höheren Ordnungszahlen der Harmonischen hin rapide ab.

In einem weiteren Schritt schätzen wir die Gesamtphotonenzahl des Harmonischenspektrums ab, indem wir mit der Anzahl beobachteter Harmonischer multiplizieren. Das Spektrum wird hierbei als konstant angenommen, d.h. der

steile Abfall des Spektrums innerhalb der ersten drei bis vier Harmonischen wird noch nicht berücksichtigt. Damit errechnet man als Abschätzung für die Gesamtphotonenzahl $\#\Gamma$

$$\#\Gamma_{Ar} \approx 3,6 \cdot 10^{10} \pm 5,4 \cdot 10^9 \text{ Photonen/s}$$

$$\#\Gamma_{Ne} \approx 9,2 \cdot 10^6 \pm 1,1 \cdot 10^6 \text{ Photonen/s.}$$

Interessant wird diese Zahl im Vergleich mit der Photonenzahl in einem fundamentalen Laserimpuls: Aus der Trägerwellenlänge $\lambda = 775 \text{ nm}$ des Lasers erhält man mit $E_\gamma = hc/\lambda = 1,60 \text{ eV}$ die Energie eines Laserphotons. Die mittlere Leistung des Lasers beträgt

$$(4.8) \quad 7,5 \text{ W} = 7,5 \text{ J/s} = 4,68 \cdot 10^{18} \text{ eV/s}$$

Mit der Energie der Laserphotonen erhält man daraus

$$(4.9) \quad \frac{4,68 \cdot 10^{18} \text{ eV/s}}{1,60 \text{ eV}} = 2,925 \cdot 10^{19} \text{ Photonen/s}$$

oder $2,925 \cdot 10^{15}$ Photonen pro Lichtimpuls.

Die theoretisch erreichbare Konversionseffizienz hoher harmonischer Strahlung liegt bei 10^{-6} bis 10^{-5} [Con99], und wurde in verschiedenen vergleichbaren Experimenten bereits beobachtet (z.B. [Kaz03] und [L'H93a]). Diese erreicht das vorliegende Experiment offenbar noch nicht, auch unter Berücksichtigung der um etwa zwei Größenordnungen intensiveren niedrigen Harmonischen. Der Grund dafür liegt in der Laserintensität am Ort der Wechselwirkung, die noch steigerungsfähig ist.

Darüber hinaus ist eine komplementäre Messung der Photonenzahl geplant: dabei durchläuft die harmonische Strahlung ein gasgefülltes Volumen, das sich zwischen zwei Kondensatorplatten befindet. Aufgrund der hohen Energie der harmonischen Strahlung werden Gasatome auf der Trajektorie der Harmonischen ionisiert. An den Kondensatorplatten liegt eine Spannung von einigen hundert Volt an, die sämtliche geladene Teilchen im Kondensatorvolumen absaugt. Der Entladungsstrom wird gemessen und kann mithilfe des Gasdrucks und der Absorptionswahrscheinlichkeit für ein UV-Photon in die Anzahl harmonischer Photonen umgerechnet werden. Dieses Experiment befindet sich derzeit im Aufbau; der Kondensator ist bereits vorhanden, allerdings fehlt die zur verlässlichen Messung der sehr geringen Ströme notwendige Beschaltung noch.

4.4 Messungen in anderen Spektralbereichen

Für die angestrebten atomphysikalischen Experimente ist nicht nur die harmonische Strahlung in dem bisher untersuchten Energiebereich bis 72 eV interessant, sondern der gesamte XUV-Bereich bis etwas über 100 eV. Wie in Abschnitt 4.2.1 diskutiert, könnte diese Strahlung in Neon erzeugt werden. Um XUV-Photonen mit Energien größer als 72 eV zu untersuchen und die Erzeugung harmonischer Strahlung in diesem Bereich zu optimieren, muss jedoch anstelle des Aluminiumfilters ein anderer Filter verwendet werden, der für entsprechende Wellenlängen durchlässig ist.

Abbildung 4.10 zeigt die Transmittivitäten verschiedener Metallfolien, die für die Untersuchung harmonischer Strahlung jenseits der Aluminium-Filterkante bei 72 eV in Frage kommen. Messungen mit einem ca. $1,8 \mu\text{m}$ dicken Zirkonium-Filter wurden bereits durchgeführt, dabei konnte jedoch keinerlei Signal hoher harmonischer Strahlung beobachtet werden. Das kann zwei Ursachen haben: entweder wurde nicht genügend harmonische Strahlung erzeugt, um bei der geringen Transmittivität des Zirkonium-Filters (in Abbildung 4.10 mit einem Faktor 10 skaliert) bei Belichtungszeiten von bis zu 1000 Sekunden ein signifikantes Signal hervorzurufen, oder der Cutoff des Spektrums liegt unter den gegebenen experimentellen Bedingungen nur wenige eV über der Aluminium-Filterkante. Dann würde im Energiebereich über 90 eV, in dem die maximale Transmittivität des Zirkoniumfilters liegt, gar keine harmonische Strahlung erzeugt.

Diese Frage kann geklärt werden, indem entweder ein dünnerer Filter oder ein anderes Filtermaterial verwendet wird. In Gegensatz zu den Aluminiumfiltern, die in Dicken von $0,2 \mu\text{m}$ am Institut bereits zur Verfügung standen, müssen Filter aus anderen Materialien allerdings aufwändig gewalzt werden.

Dieses Herstellungsverfahren limitiert die minimale Dicke der Filter auf $2 \mu\text{m}$: ausgehend von einer 5 bis $10 \mu\text{m}$ dicken Metallfolie werden die anfangs ca. 1 cm^2 großen Filter zwischen rotierenden Walzen aus gehärtetem Stahl gewalzt. Damit lassen sich Folien von etwas unter $1 \mu\text{m}$ Dicke herstellen. Zur Charakterisierung der harmonischen Strahlung müssen jedoch mindestens zwei Filter übereinander verwendet werden. Grund dafür ist, wie bereits erläutert, dass derart dünne Folien immer kleinste Löcher, sogenannte „pinholes“ aufweisen. Streulicht der Fundamentalen, das durch diese auf die Kamera fällt, macht die Beobachtung harmonischer Strahlung zunichte.

Daher musste nach einem anderen Material für die Charakterisierung der harmonischen Strahlung über 72 eV gesucht werden. Abbildung 4.10 kann man

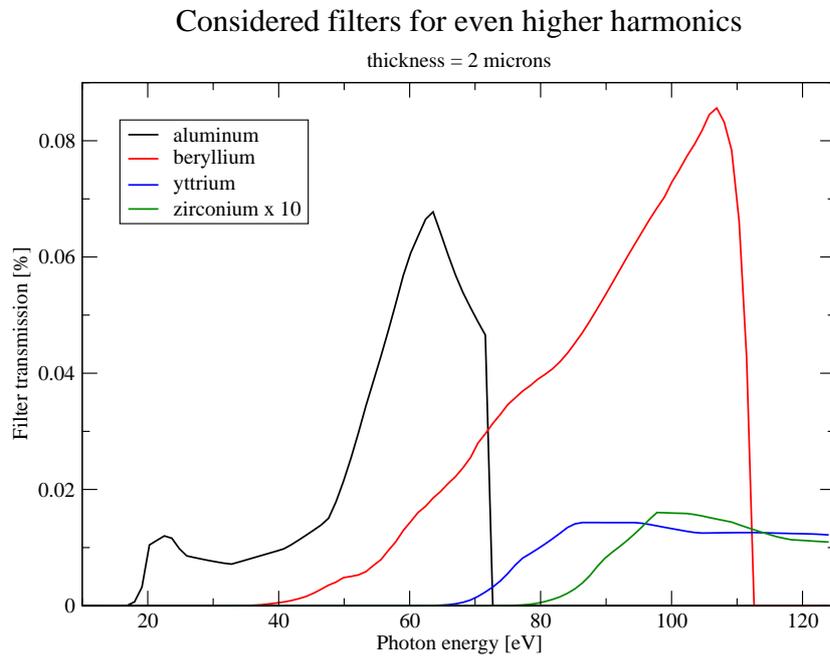


Abbildung 4.10: Transmittivität verschiedener Filter im XUV.

entnehmen, dass vor allem Beryllium eine vielversprechende Transmissionscharakteristik aufweist. Gegen die Verwendung von Beryllium spricht dessen Giftigkeit, als Alternative kommt Yttrium in Frage. Beide Materialien wurden bereits beschafft, Messungen mit Filtern aus Yttrium und Beryllium stehen allerdings noch aus.

Kapitel 5

Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit beschreibt den Aufbau einer Apparatur zur Erzeugung und Charakterisierung hoher harmonischer Strahlung. Diese soll für Pump-Probe-Experimente verwendet werden, welche Attosekunden-Lichtimpulse mit einem Reaktionsmikroskop kombinieren. Die Technologie des Reaktionsmikroskops ermöglicht es, alle geladenen Fragmente einer Reaktion, beispielsweise der Dissoziation eines Moleküls, in einem großen Energie- und Winkelbereich in Koinzidenz mit hoher Genauigkeit zu messen. Damit schließt das geplante Experiment an erfolgreiche Messungen an H_2 und D_2 in den letzten Jahren an, in welchen mittels Verwendung von Femtosekundenimpulsen die Abbildung der Vibrationen dieser Moleküle gelang. Mit der Verwendung von Attosekundenimpulsen geht man nun einen Schritt weiter, da diese eine weitaus genauere zeitliche Auflösung der Dynamik von Quantensystemen ermöglichen.

Grundlage der Erzeugung dieser kürzesten mit heutiger Technologie erreichbaren Impulse ist hohe harmonische Strahlung. Diese entsteht zum Beispiel, wenn intensives, gepulstes Laserlicht in ein Edelgas fokussiert wird. Dann wird gepulste, kohärente XUV-Strahlung geringer Divergenz kollinear mit den Impulsen des treibenden Lasers emittiert. Die Wellenlängen, die auf diese Weise erzeugt werden, reichen abhängig vom ponderomotiven Potential des Laserfeldes und dem Ionisationspotential des verwendeten Gases bis in den Spektralbereich extrem ultravioletter und weicher Röntgenstrahlung.

Als erster Schritt der Umsetzung des neuen Experimentes wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Apparatur zur Erzeugung hoher harmonischer Strahlung geplant, aufgebaut und in Betrieb genommen. Es ist gelungen, mit diesem Aufbau hohe harmonische Strahlung in Neon und Argon zu erzeugen. Diejenigen Bauteile, die eine Spezialanfertigung oder Nachbearbeitung erforderten, wurden mit

einem CAD-Programm konstruiert. Zur Erzeugung der Harmonischen wurde ein kommerzielles Lasersystem mit einem Titan-Saphir-Verstärker verwendet, dessen Impulse etwa 25 fs dauern. Die Mittenfrequenz liegt bei etwa 800 nm, die Durchschnittsleistung beträgt 7 bis 7,5 W bei einer Repetitionsrate von 10 kHz. Für zukünftige Messungen sollen die Laserimpulse mittels einer Filamentationsstrecke auf etwa 7 fs komprimiert werden, zusätzlich soll eine vollständige Charakterisierung der Impulse nach dem SPIDER-Verfahren ermöglicht werden.

Ferner wurde in dieser Arbeit der Einfluss wichtiger Parameter wie der Druck des Gastargets und die Position des Fokalkpunktes relativ zum Target untersucht und das Signal hoher harmonischer Strahlung unter den gegebenen experimentellen Bedingungen optimiert.

Anschließend folgte die spektrale Charakterisierung der erzeugten XUV-Strahlung, und die Anzahl erzeugter Photonen wurde abgeschätzt. Bei der Erzeugung in Neon wurden Photonenenergien bis 72 eV gemessen, in Argon entsprach die höchste beobachtete Harmonische einer Photonenenergie von 50 eV. Die obere Grenze ist im Fall von Neon durch die Transmittivität des zur Separation der Fundamentalen von der XUV-Strahlung verwendeten Aluminiumfilters gegeben. Das heißt, dass sicherlich noch höhere Harmonische in Neon erzeugt wurden, diese aber aufgrund des Filters nicht beobachtet werden konnten. Verwendet man Beryllium oder Zirkonium als Filtermaterial, könnte auch Strahlung über 72 eV gemessen werden, allerdings gelang dies im Rahmen dieser Arbeit aus zeitlichen Gründen nicht mehr.

Mit 10^9 Photonen pro Sekunde beim Experimentieren mit Argon und 10^6 Photonen pro Sekunde bei Neon arbeitet die Apparatur derzeit noch nicht am theoretischen Konversionslimit. Dennoch sind die Ergebnisse vielversprechend, da die Ausbeute an harmonischer Strahlung momentan lediglich durch die Intensität der Laserimpulse am Ort der Wechselwirkung, also die Leistungsdichte, limitiert ist. Bei der Verwendung der mittels Filamentation auf etwa 7 fs verkürzten Impulse ist mit einer deutlichen Steigerung der Ausbeute zu rechnen. Verschiedene Möglichkeiten zur weiteren Steigerung der Ausbeute an harmonischer Strahlung wurden aufgezeigt. Der Aufbau hat sich somit als grundsätzlich geeignet für die geplanten Experimente erwiesen.

In naher Zukunft soll das Reaktionsmikroskop für die Pump-Probe-Messungen in Betrieb genommen werden, SPIDER und Filamentationsstrecke mit Impulskompressor befinden sich ebenfalls bereits im Aufbau und werden in Kürze einsatzbereit sein.

Das in dieser Arbeit geschilderte Experiment wird dann eines der ersten sein, das hochauflösende Spektroskopie im gesamten Impulsraum mit der zeitlichen Präzision, die sich mit Attosekundenimpulsen eröffnet, kombinieren wird. Bisher unzugängliche Bereiche der Dynamik von Quantensystemen können damit erschlossen werden, so rückt beispielsweise die direkte Abbildung der Bewegung von Elektronen in ihren Orbitalen und ähnlich schneller Prozesse in Atomen und Molekülen in greifbare Nähe, wodurch viele grundlegende Fragen der Wechselwirkung von starken Feldern mit Materie geklärt werden können.

Literaturverzeichnis

- [Ago04] P. Agostini, L. F. DiMauro, *The physics of attosecond light pulses*, Reports on Progress in Physics **67**, 813–855 (2004).
- [Ant96] P. Antoine, A. L’Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, B. Carré, *Theory of high-order harmonic generation by an elliptically polarized laser field*, Physical Review A **53**, 1725–1745 (1996).
- [Ase03] S. A. Aseyev, Y. Ni, L. J. Frasinski, H. G. Muller, M. Vrakking, *Attosecond Angle-Resolved Photoelectron Spectroscopy*, Physical Review Letters **91**, 223902 (2003).
- [Bal03] A. Baltuška, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. Yakoviev, A. Scrinzi, T. Hänsch, F. Krausz, *Attosecond control of electronic processes by intense light fields*, Nature **421**, 611–615 (2003).
- [Bau02] P. Baum, S. Lochbrunner, L. Gallmann, G. Steinmeyer, U. Keller, E. Riedle, *Real-time characterization and optimal phase control of tunable visible pulses with a flexible compressor*, Applied Physics B [Suppl.] **74**, 219–224 (2002).
- [Bau04] P. Baum, S. Lochbrunner, E. Riedle, *Zero-additional-phase SPIDER: full characterization of visible and sub-20-fs ultraviolet pulses*, Optics Letters **29**, 210–212 (2004).
- [Bec90] W. Becker, S. Long, J. K. McIver, *High-harmonic production in a model atom with short-range potential*, Physical Review A **41**, 4112–4115 (1990).
- [Bec94] W. Becker, A. Lohr, M. Kleber, *Effects of rescattering on above-threshold ionization*, Journal of Physics B **27**, L325–L332 (1994).

- [Bec97] W. Becker, A. Lohr, M. Kleber, M. Lewenstein, *A unified theory of high-harmonic generation: Application to polarization properties of the harmonics*, Physical Review A **56**, 645–656 (1997).
- [Bha01] Y. Bhattacharjee, *Measuring the immeasurable*, Nature **412**, 474–476 (2001).
- [Bra95] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, G. Mourou, *Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air*, Optics Letters **20**, 73–75 (1995).
- [Cha97] Z. Chang, A. Rundquist, H. Wang, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, *Generation of Coherent Soft X Rays at 2.7 nm Using High Harmonics*, Physical Review Letters **79**, 2967–2970 (1997).
- [Chr01] I. P. Christov, R. Bartels, H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, *Attosecond Time-Scale Intra-atomic Phase Matching of High Harmonic Generation*, Physical Review Letters **86**, 5458–5461 (2001).
- [Coh] Coherent (Deutschland) GmbH, D-64807 Dieburg, www.coherent.de.
- [Con99] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mevel, C. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, A. Agostini, *Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment*, Physical Review Letters **82**, 1668–1671 (1999).
- [Cor93] P. B. Corkum, *Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization*, Physical Review Letters **71**, 1994–1997 (1993).
- [Dre01] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. Reider, P. Corkum, F. Krausz, *X-ray Pulses Approaching the Attosecond Frontier*, Science **291**, 1923–1927 (2001).
- [Dre02] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. Reider, P. Corkum, F. Krausz, *Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy*, Nature **419**, 1923–1927 (2002).
- [Erg06] T. Ergler, A. Rudenko, B. Feuerstein, K. Zrost, C. Schröter, R. Moshammer, J. Ullrich, *Spatiotemporal Imaging of Ultrafast Molecular Motion: Collapse and Revival of the D_2^+ Nuclear Wave Packet*, physical Review Letters **97**, 193001 (2006).
- [Fes] Festo AG & Co.KG, 73734 Esslingen-Berkheim, www.festo.de.

- [Fra61] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, G. Weinreich, *Generation of Optical Harmonics*, Physical Review Letters **7**, 118–120 (1961).
- [Gim06] H. Gimpel, *Erzeugung und Anwendung intensiver ultrakurzer Lichtpulse mit stabiler Träger-Einhüllenden-Phase*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität, Heidelberg (2006).
- [Hau04] C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert, U. Keller, *Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation*, Applied Physics B **79**, 637–677 (2004).
- [Hen01] M. Hentschel, R. Keinberger, C. Spielmann, G. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, *Attosecond metrology*, Nature **414**, 509–513 (2001).
- [Ite] Item Industrietechnik und Maschinenbau GmbH, D- 42699 Solingen, www.item.info.
- [Jen57] F. Jenkins, H. White, *Fundamentals of Optics* (McGraw-Hill Book Company, New York, 1957).
- [Kaz03] S. Kazamias, D. Douillet, F. Weihe, C. Valentin, A. Rousse, G. Grillon, F. Augé, D. Hulin, P. Balcou, *Global Optimization of High Harmonic Generation*, Physical Review Letters **90**, 193901 (2003).
- [Kel65] L. V. Keldysh, *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, Soviet Physics JETP **20**, 1307–1314 (1965).
- [Kie04] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, *Atomic transient recorder*, Nature **427**, 817–821 (2004).
- [KML] Kapteyn-Murnane Labs Inc., Boulder, CO 80301 USA, www.kmlabs.com.
- [Kra92] J. L. Krause, K. J. Schafer, K. C. Kulander, *High-Order Harmonic Generation from Atoms and Ions in the High Intensity Regime*, Physical Review Letters **68**, 3535–3538 (1992).
- [Kuc87] M. Y. Kuchiev, *Atomic antenna*, Pis'ma Zh. Eksp. Teor. Fiz. **45**, 319–321 (1987), (JETP Letters, Vol. 45, p. 404-406, 1987).

- [Kul93] K. C. Kulander, K. J. Schafer, J. L. Krause, *Super Intense Laser-Atom Physics*, Band 316 von *NATO Advanced Study Institutes B* (Plenum Press, New York, 1993).
- [Lee] LEE Lasers Inc. Orlando, Florida 32809 USA, www.leelaser.com.
- [Lew94] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L'Huillier, P. B. Corkum, *Theory of high harmonic generation by low-frequency laser fields*, *Physical Review A* **49**, 2117–2132 (1994).
- [Lew95] M. Lewenstein, K. C. Kulander, K. J. Schafer, P. H. Bucksbaum, *Rings in above-threshold ionization: A quasiclassical analysis*, *Physical Review A* **51**, 1495–1507 (1995).
- [L'H91] A. L'Huillier, K. J. Schafer, K. C. Kulander, *High-order harmonic Generation in Xenon at 1064 nm: The Role of Phase Matching*, *Physical Review Letters* **66**, 2200–2203 (1991).
- [L'H92] A. L'Huillier, P. Balcou, S. Candel, K. J. Schafer, K. C. Kulander, *Calculations of high-order harmonic-generation processes in xenon at 1064 nm*, *Physical Review A* **46**, 2778–2790 (1992).
- [L'H93a] A. L'Huillier, P. Balcou, *High-Order Harmonic Generation in Rare Gases with a 1-ps 1053-nm Laser*, *Physical Review Letters* **70**, 774–777 (1993).
- [L'H93b] A. L'Huillier, M. Lewenstein, P. Salières, P. Balcou, *High-order harmonic-generation cutoff*, *Physical Review A* **48**, R3433–R3436 (1993).
- [Lin06] C. D. Lin, X. M. Tong, T. Morishita, *Direct Experimental Visualization of Atomic and Electron Dynamics with Attosecond Pulses*, *Journal of Physics B* **39**, S419–S426 (2006).
- [LM05] R. López-Martens, K. Varjú, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salières, M. Gaarde, K. J. Schafer, A. Persson, S. Svanberg, C. G. Wahlström, A. L'Huillier, *Amplitude and Phase Control of Attosecond Light Pulses*, *Physical Review Letters* **94**, 033001 (2005).
- [Mac93] J. J. Macklin, J. D. Kmetec, C. L. Gordon, *High-Order Harmonic Generation Using Intense Femtosecond Pulses*, *Physical Review Letters* **70**, 766–769 (1993).

- [Mai03] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovačev, R. Taieb, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini, P. Salières, *Attosecond Synchronization of High-Harmonic Soft X-rays*, *Science* **302**, 1540–1543 (2003).
- [Mai04] Y. Mairesse, A. de Bohan, L. J. Frasinski, H. Merdji, L. C. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovačev, T. Augustine, B. Carré, H. G. Muller, P. Agostini, P. Salières, *Optimization of Attosecond Pulse Generation*, *Physical Review Letters* **93**, 163901 (2004).
- [Mil02] N. Milosevic, A. Scrinzi, T. Brabec, *Numerical characterization of high harmonic attosecond pulses*, *Physical Review Letters* **88**, 093905 (2002).
- [Mor03] U. Morgner, *Nichtlineare Optik*, Vorlesungsskript, TH Karlsruhe (2003).
- [Mos96] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, H. Schmidt-Böcking, *A 4π recoil-ion electron momentum analyzer: A high-resolution 'microscope' for the investigation of the dynamics of atomic, molecular and nuclear reactions*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B* **108**, 425–445 (1996).
- [Owi] OWIS GmbH, D-79219 Staufen, www.owis-staufen.de.
- [Pau01] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. G. Muller, P. Agostini, *Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation*, *Science* **292**, 1689–1692 (2001).
- [Pfe] Pfeiffer Vacuum GmbH, 35614 Asslar, www.pfeiffer-vacuum.net.
- [Pia] Princeton Instruments Inc., Trenton, NJ 08619, USA, www.piacon.com.
- [Rud06] A. Rudenko, T. Ergler, B. Feuerstein, K. Zrost, C. Schröter, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Real-time observation of vibrational revival in the fastest molecular system*, *Chemical Physics* **329**, 193–202 (2006).
- [Sav] T. Savas, the Nanostructures Laboratory (NSL) at MIT - private Mitteilung.
- [Sch98] M. Schnürer, C. Spielmann, P. Wobrauschek, C. Streli, N. H. Burnett, C. Kan, F. Krausz, R. Koppitsch, Z. Cheng, T. Brabec, *Coherent 0.5-keV X-Ray Emission from Helium Driven by a Sub-10-fs Laser*, *Physical Review Letters* **80**, 3236–3239 (1998).

- [Scr05a] A. Scrinzi, *Attosecond physics*, Lecture notes, LMU München (2005).
- [Scr05b] A. Scrinzi, M. Y. Ivanov, R. Kienberger, D. M. Villeneuve, *Attosecond physics*, Journal of Physics B **39**, R1–R37 (2005).
- [Ser05] J. Seres, E. Seres, A. J. Verhoef, G. Tempea, C. Strelt, P. Wobrauschek, V. Yakovlev, A. Scrinzi, C. Spielmann, F. Krausz, *Source of coherent kiloelectronvolt X-rays*, Nature **433**, 596 (2005).
- [She84] Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics* (Wiley, New York, 1984).
- [Sil00] W. T. Silfvast, *Laser Fundamentals* (Cambridge University Press, Cambridge, 2000).
- [Spi97] C. Spielmann, N. H. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, F. Krausz, *Generation of Coherent Soft X-rays in the Water Window Using 5-Femtosecond Laser Pulses*, Science **278**, 661–664 (1997).
- [Spi01] C. Spielmann, *Lichtblicke bei Lichtblitzen*, Physikalische Blätter **57**, 7/8, 20–21 (2001).
- [Tom00] E. Toma, H. Muller, *Ponderomotive streaking of the ionization potential as a method for measuring pulse durations in the XUV domain with fs resolution*, Physical Review A **62**, 061801 (2000).
- [Ull03] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, L. P. H. Schmidt, H. Schmidt-Böcking, *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*, Reports on Progress in Physics **66**, 1463–1545 (2003).
- [Umr97] W. Umrath, *Grundlagen der Vakuumtechnik* (Leybold Vacuum GmbH, Köln, 1997).
- [Vra06] M. Vrakking, *Direct and indirect methods to study attosecond timescale electron dynamics*, Physica Scripta **73**, C36–C41 (2006).
- [Wut00] M. Wutz, H. Adam, W. Walcher, K. Jousten, *Handbuch Vakuumtechnik* (Vieweg Wiesbaden, 2000).
- [Xra] X-Ray-tools, Center of X-Ray Optics (CXRO) at Lawrence Berkeley national Laboratory (LBNL), www-cxro.lbl.gov.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all denjenigen meinen Dank aussprechen, die zum Gelingen dieser Diplomarbeit beigetragen haben.

Dieser Dank gilt vor allem meinem Betreuer Konstantin Simeonidis, der mich während meiner gesamten Zeit als Diplomandin unterstützt hat und mich für das Forschungsgebiet an der Schnittstelle von Laser, Optik und Atomphysik begeisterte.

Prof. Joachim Ullrich danke ich für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, die mir die Durchführung dieser Diplomarbeit ermöglichte. Ich habe im vergangenen Jahr durch die Mitarbeit an einem spannenden und äußerst aktuellen Forschungsgebiet viel gelernt.

Die Mitglieder der Gruppe Ullrich werden mir dank der freundschaftlichen Atmosphäre, ihrer Hilfsbereitschaft in allen Dingen und ihrer Begeisterung für die Forschung stets in Erinnerung bleiben. Sie machten es mir leicht, Spaß an der Diplomarbeit zu finden. Besonders hervorheben möchte ich Nicole Haag, Georg Gademann, Katharina Kubicek, Volkhard Mäckel und Ulrich Wiedemann, denen ich für die moralische Unterstützung in allen Phasen der Diplomarbeit dankbar bin.

Ganz besonders möchte ich an dieser Stelle auch meinen Eltern danken, die mir das Studium der Physik ermöglicht und mich immer nach Kräften unterstützt haben. Ebenso gilt mein Dank allen Freunden, die mich durch eine wunderbare Studienzeit begleitet haben.

Erklärung:

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

Heidelberg, den 15. Januar 2007,

.....

Helga Rietz

