

Erzeugung und Charakterisierung von ultrakurzen Laserimpulsen im VUV-Bereich

Diplomarbeit
vorgelegt von
Nathanael Nielsch

Duisburg im September 2011

Betreut durch Prof. Dr. Uwe Bovensiepen

Zusammenfassung

Die Forschung der physikalischen Eigenschaften der Festkörper, mit der sich die Photoemissionsspektroskopie beschäftigt, wurde in den letzten Jahrzehnten durch die Entdeckung und Weiterentwicklung der Grundlagen der Laserphysik sehr stark beeinflusst. Besonders durch Laserquellen, die sehr kurze Laserpulse erzeugen, können dynamische Prozesse im Inneren und an Oberflächen eines Festkörpers sichtbar gemacht werden, wenn die Dauer eines solchen Puls auf derselben Zeitskala liegt wie diese dynamischen Prozesse.

Durch die kurze Pulsdauer lassen sich aber unter anderem auch aufgrund der hohen elektrischen Feldstärke der Strahlungen Effekte erzeugen, die aufgrund der Wechselwirkung zwischen der Strahlung und den kollektiven Atomareigenschaften in einem Medium entstehen, die durch die nichtlineare Optik beschrieben werden.

Die vorgelegte Diplomarbeit soll die Grundlage für einer gepulste Strahlenquelle sein, die Anwendung in der zeitaufgelösten Photoemissionsspektroskopie erhalten soll und deren erzeugte kurze Laserpulse eine Energie von 9 eV aufweisen, dass einer Wellenlänge von 133 nm entspricht.

Durch die Verwendung eines Titan-Saphir-Lasersystems mit Zentralwellenlänge von 800 nm mit einer Pulsdauer von 50 fs und Wiederholungsrate von 1 KHz wird die Strahlung unter Ausnutzung von nichtlinearen Effekten bei großen Intensitäten erzeugt. Durch Frequenzverdopplung (2. Harmonische) in einem BBO-Kristall wird durch anschließende Frequenzverdreifung (3. Harmonische) in den Edelgasen Argon und Xenon diese ultrakurze Strahlung erzeugt.

Die Anwendung in der Photoemissionsspektroskopie fordert aber aufgrund von Raumladungseffekten der Elektronen eine niedrige Pulsenergie, damit nur eine geringe Zahl an Elektronen herausgelöst werden. Deswegen soll in dieser Arbeit die Erzeugung der 9 eV -Strahlung durch einen Laserpuls mit sehr geringer Energie bis hin zu $1\text{ }\mu\text{J}$ im Vordergrund stehen.

Die Erzeugung von Harmonischen lässt sich aber nur über die Anpassung der Phase der erzeugten Harmonischen untereinander durchführen. Dies wird meistens durch Fokussierung in einem Gasjet, einer Hohlfaser und einer Gaszelle im negativen Dispersionsbereich einer Resonanz des Mediums erreicht. Diese Arbeit beruht hingegen auf der Verwendung einer Gaszelle, wobei die Erzeugung der 9 eV -Strahlung nicht in einer Resonanz erfolgt, um die Verlängerung der Pulsdauer durch anormale Dispersion zu vermeiden. Unter dieser Konfiguration soll die Phasenanpassung in dieser Arbeit geklärt und untersucht werden. Die daraus resultierende Effizienz dieses Konversionsprozesses gibt Aufschluss über die Photonenzahl der 9-eV -Strahlung und ist ebenfalls von großer Bedeutung für dieses Experiment.

Für die Untersuchung wird ein Vakuumspektrometer verwendet, der die erzeugte 9 eV -Strahlung von der Fundamentalstrahlung, die den Erzeugungsprozess auslöst, separiert. Durch einen Detektor lässt sich die erzeugte Strahlung darstellen und messen. Die erfolgreiche Erzeugung der 9 eV -Strahlung bei $130,3\text{ nm}$ und einer spektralen Breite von $2,1\text{ nm}$ wird im Folgenden dargestellt.

Außerdem wird eine Konversionseffizienz von $\eta = 5 \cdot 10^{-8}$ ermittelt und die Photonenzahl von unter 10^6 gemessen. Im Anschluss wird die Phasen Anpassung von Xenon und Argon experimentell wie theoretisch ermittelt, und aufgezeigt, dass es einen weiteren Beitrag zum Brechungsindex geben muss, der durch die Existenz eines Filamentes begründbar ist. Abschließend wird die Energieabhängigkeit der 9 eV -Strahlung untersucht bis zu Werten von unter $10\ \mu\text{J}$ und die Anzahl der Photonen abgeschätzt. Außerdem wird ein Unterschied zur I^q -Abhängigkeit aufgezeigt.

Diese vorliegende Arbeit ist in 7 Teile unterteilt. Der erste Teil beschäftigt sich einleitend mit der Motivation für das Experiment, das der vorliegenden Arbeit zugrunde liegt. Der zweite Teil befasst sich mit den physikalischen Grundlagen der Erzeugung der 9 eV -Strahlung und der dritte Teil behandelt den experimentellen Aufbau. Die drei Kapitel 4, 5 und 6 zeigen die Resultate der Messungen. Das 7. und abschließende Kapitel fasst die Ergebnisse zusammen und gibt Ausblicke auf zukünftige Möglichkeiten. Diese Arbeit wurde an der physikalischen Fakultät der Universität Duisburg-Essen unter Betreuung von Prof. Dr. Uwe Bovensiepen im Zeitraum von einem Jahr angefertigt.

Abstract

The research of the physical properties of solid state materials is concerned with photoemissionspectroscopy and was influenced heavily by the developments in laser research during the last decades. Dynamic processes on the surface and in bulk can be made visible by short laser pulses if the pulse duration is on the same time scale as the processes. Furthermore, effects of nonlinear optics result from the ultra short pulse duration due to the interaction of radiation and a nonlinear medium.

This thesis is meant as a basis for ultra-short pulsed light source and could be used in the time resolved photoemissionspectroscopy. These pulses have a photon energy of 9 eV which corresponds to a wavelength of 133 nm . This thesis uses a titan-sapphire laser with a wavelength of 800 nm , pulse duration of 50 fs and a repetition rate of 1 KHz . The radiation is generated by using nonlinearity effects at high intensities. The ultrashort radiation is generated by frequency doubling (2nd harmonic) in a BBO crystal and frequency tripling (3rd harmonic) in rare gases like argon and xenon. Low pulse energy is necessary for the photoemission spectroscopy due to space charge effect of emitted electrons. Therefore, the crucial point of this thesis is the generation of 9 eV radiation using a laser pulse with low energy below $1\text{ }\mu\text{J}$.

The generation of harmonics can only be executed efficiently by phase matching of the harmonics. In most published works, phase matching is done using gasjets and hollow fibre in negative dispersion of the medium. Opposed to this, this thesis makes use of a gas cell and generates the harmonics in positive dispersion of the medium to avoid the elongation of the pulse due to anomalous dispersion.

Using this configuration, this thesis also investigates the phase matching of the harmonics. The resulting efficiency of the conversion gives information about the number of photons and is also crucial for the experiment.

A vacuum-spectrometer is used for separating the harmonics from the fundamental radiation and a detector is used to visualize and measure the radiation.

This thesis will report the successful generation of the 9 eV -Radiation at wavelength of 130.3 nm and a spectral width of 2.1 nm . It will be shown a conversion efficiency $\eta = 5 \cdot 10^{-8}$ and the corresponding numbers of photons below 10^6 per pulse. Also, the measurement of the optimal gas pressure will be reported and compared with the theory of phase-matching. Therefore, it is necessary to add an additional contribution to the refractive index, due to the existence of a filament to simulate the theoretical phase-matching.

Finally, the energy-dependency of 9 eV radiation will be measured below an energy of $10\text{ }\mu\text{J}$ and also a difference to the I^q law will be reported.

This thesis consists of seven chapters. The first chapter describes the motivation for the experiment underlying the thesis. The second chapter presents the physical theory of harmonic generation, and the third chapter describes the experimental setup. The results are revealed in chapters 4, 5 and 6. The seventh and last chapter summarizes the results and gives an outlook to upcoming prospects.

This thesis was developed during the course of one year at the faculty of Physics at Duisburg-Essen University. It was supervised by Prof. Dr. Uwe Bovensiepen.

Inhaltsverzeichnis

| | | |
|----------|--|-----------|
| 1 | Einleitung | 1 |
| 2 | Physikalische Grundlagen | 7 |
| 2.1 | Polarisation: Übergang von linearer zu nichtlinearer Optik | 8 |
| 2.1.1 | Anharmonisches Potenzial | 8 |
| 2.1.2 | Nichtlineare Wellengleichung | 9 |
| 2.2 | Erzeugung der zweiten Harmonischen in einem Kristall | 11 |
| 2.2.1 | Intensität der 2. Harmonischen | 13 |
| 2.2.2 | Phasenanpassung der zweiten Harmonischen | 15 |
| 2.3 | Erzeugung der dritten Harmonischen in Gas | 16 |
| 2.3.1 | Intensität der 3. Harmonischen | 17 |
| 2.3.2 | Phasenanpassung über Druck | 18 |
| 2.3.3 | Resonanzen nahe eines atomaren Übergangs | 20 |
| 2.3.4 | Berechnung des Brechungsindex | 21 |
| 3 | Experimenteller Aufbau | 23 |
| 3.1 | CPA-Lasersystem | 23 |
| 3.2 | Nichtlineare Medien | 26 |
| 3.2.1 | BBO-Kristall | 26 |
| 3.2.2 | Gaszelle und Gassystem | 30 |
| 3.3 | Detektion der 9 eV-Strahlung | 31 |
| 3.3.1 | Erzeugung eines Vakuums | 32 |
| 3.3.2 | Torodiales Gitter | 32 |
| 3.3.3 | Blende und Filter | 36 |
| 3.3.4 | Szintillator | 37 |
| 3.3.5 | Detektor | 38 |
| 3.4 | Der gesamte experimenteller Aufbau | 40 |
| 4 | Erzeugung und Charakterisierung der VUV-Strahlung | 43 |
| 4.1 | Auswertung der VUV-Signale | 43 |
| 4.2 | Auswertung des Spektrums | 45 |
| 4.3 | Bestimmung der Fluenz | 46 |
| 4.3.1 | Abschätzung | 46 |
| 4.3.2 | Detektion mit Photodiode | 46 |

| | | |
|----------|--|-----------|
| 4.4 | Spektrum der VUV-Strahlung | 48 |
| 4.5 | Fazit | 48 |
| 5 | Phasenanpassung der VUV-Strahlung | 51 |
| 5.1 | Erste Ergebnisse | 51 |
| 5.2 | Druckabhängigkeit der VUV-Strahlung | 52 |
| 5.3 | Druckabhängigkeit bei unterschiedlicher Fokussierung | 54 |
| 5.4 | Simulation der Phasenanpassung | 56 |
| 5.4.1 | Gültigkeit des theoretischen Modells | 57 |
| 5.4.2 | Entstehung eines Filamentes und Ionisation | 58 |
| 5.4.3 | Länge des Filamentes bei Energieänderung | 60 |
| 5.4.4 | Simulation | 61 |
| 5.5 | Fazit | 63 |
| 6 | Energieabhängigkeit der VUV-Strahlung | 65 |
| 6.1 | Energieabhängigkeit | 65 |
| 6.2 | Energieabhängigkeit bei veränderter Fokussierung | 68 |
| 6.3 | Fazit | 70 |
| 7 | Schlussfolgerungen | 73 |
| 7.1 | Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse | 73 |
| 7.2 | Ausblicke | 74 |
| 7.2.1 | Messung der Pulsdauer der 3. Harmonischen | 75 |
| 7.2.2 | Exkurs: Ein interessantes Phänomen | 76 |
| | Literaturverzeichnis | 82 |
| | Erklärung | 83 |
| | Danksagung | 85 |
| A | Anhang | 87 |
| A.1 | Abschätzung der spektralen Breite der Harmonischen | 87 |
| A.2 | Fokussierung von Gaußstrahlen | 88 |

Abbildungsverzeichnis

| | | |
|-------|--|----|
| 1.0.1 | Ferminiveau | 2 |
| 1.0.2 | Die kinetische Energie in Abhängigkeit mit k_{\parallel} bei unterschiedlichen Winkeln | 3 |
| 2.1.1 | Anharmonisches Potenzial | 9 |
| 2.2.1 | Erzeugung der 2. Harmonischen: 3 Wellen Prozess | 12 |
| 2.2.2 | Sinc-Funktion | 13 |
| 2.2.3 | Intensität der 2. Harmonischen mit der Kohärenzlänge L_{coh} | 14 |
| 2.2.4 | Winkelabhängigkeit bei doppelbrechenden Kristallen | 15 |
| 2.2.5 | Brechungsindex ordentlichen und außerordentlichen Strahls | 16 |
| 2.3.1 | Brechungsindex von Xenon im Wellenlängenbereich von 129 nm-170 nm | 22 |
| 3.0.1 | Grundidee des experimentellen Aufbaus | 23 |
| 3.1.1 | Schematischer Aufbau des verwendeten CPA-Laser-Systems | 24 |
| 3.1.2 | Spektrum der Fundementalen für 800 nm | 26 |
| 3.2.1 | Energieabhängigkeit der 2. Harmonischen | 27 |
| 3.2.2 | Kalibrierung des Energiemonitors | 28 |
| 3.2.3 | Strahlprofil bei verschiedenen Fokussen | 29 |
| 3.2.4 | Foto der neuen Gaszelle | 30 |
| 3.2.5 | Dichtigkeit der verschiedenen Gaszellen | 31 |
| 3.3.1 | Rowlandkreis | 34 |
| 3.3.2 | Fokusse auf dem Rowlandkreis | 34 |
| 3.3.3 | Transmission des VUV-Bandpass-Filters | 37 |
| 3.3.4 | Abhängigkeit der Belichtungszeit mit Signal | 39 |
| 3.3.5 | Schaltbild der Fluenzmessung | 40 |
| 3.4.1 | Experimenteller Aufbau | 41 |
| 4.1.1 | Bild der 9 eV Strahlung am Detektor | 43 |
| 4.1.2 | Screenshot des Auswertungsprogrammes | 44 |
| 4.1.3 | Auswertung der VUV-Signale | 45 |
| 4.3.1 | Ergebnis der Fluenzmessung | 47 |
| 4.4.1 | Spektrum des VUV-Signals | 48 |
| 5.1.1 | VUV-Signalstärke in Abhängigkeit vom Druck in Argon | 51 |
| 5.1.2 | VUV-Signalstärke in Abhängigkeit vom Druck in Xenon | 52 |

| | | |
|-------|--|----|
| 5.2.1 | VUV-Photonenzahl pro Puls in Abhängigkeit vom Druck in Argon . . . | 53 |
| 5.2.2 | VUV-Photonen pro Puls in Abhängigkeit vom Druck in Xenon | 54 |
| 5.3.1 | VUV-Photonenzahl in Abhängigkeit vom Druck in Argon bei doppel- tem Strahldurchmesser | 55 |
| 5.3.2 | VUV-Photonenzahl in Abhängigkeit vom Druck in Xenon bei doppel- tem Strahldurchmesser | 56 |
| 5.4.1 | Bild des Filamentes | 58 |
| 5.4.2 | Messung der Blauverschiebung | 59 |
| 5.4.3 | Abhängigkeit der Filamentlänge von der Intensität in Argon mit Ple- xiglasszelle | 60 |
| 5.4.4 | Simulation der Phasen Anpassung mit dem Druck für Argon | 61 |
| 5.4.5 | Simulation der Phasen Anpassung mit dem Druck für Xenon | 62 |
| 5.4.6 | Simulation der Phasen Anpassung mit dem Druck für Argon bei ver- änderte Fokussierung | 62 |
| 5.4.7 | Simulation der Phasen Anpassung mit dem Druck für Argon bei ver- ändeter Fokussierung | 63 |
| 6.1.1 | VUV-Photonenzahl in Abhängigkeit von der Intensität in Argon und Xenon | 65 |
| 6.1.2 | VUV-Photonenzahl in Abhängigkeit mit der Intensität in Argon und Xenon (kleiner Intensitätsbereich) | 66 |
| 6.1.3 | Signalstärke von Argon bei $18,6 \mu J$ | 67 |
| 6.1.4 | Signalstärke von Xenon bei $14 \mu J$ | 67 |
| 6.2.1 | VUV-Photonenzahl in Abhängigkeit von der Intensität in Argon und Xenon | 68 |
| 6.2.2 | VUV-Photonenzahl in Abhängigkeit mit der Intensität in Argon und Xenon (kleiner Intensitätsbereich) | 69 |
| 6.2.3 | Signalstärke von Argon bei $7,8 \mu J$ | 69 |
| 6.2.4 | Signalstärke von Xenon bei $6,4 \mu J$ | 70 |
| 7.2.1 | Ein interessantes Phänomen | 77 |
| A.2.1 | Schematische Darstellung von Gaußstrahlen | 88 |
| A.2.2 | Transformation von Gaußstrahlen durch eine Linse | 90 |

1. Einleitung

Ein großer Schwerpunkt der aktuellen Physik ist die Festkörperphysik. Wenn sich einzelne Atome aus energetischen Gründen zu einem festen Material vereinen und die einzelnen Atome feste Positionen haben, sind die Eigenschaften der einzelnen Elemente und Verbindungen sehr unterschiedlich. Die elektronischen Eigenschaften wie die Ladungsträgerbeweglichkeit, die effektive Masse und die charakteristischen Eigenschaften des Valenz- und Leitungsbandes [9] lassen sich durch die Bandstruktur des Festkörpers ermitteln. Die Bandstruktur beschreibt die energetische Verteilung der Elektronen im reziproken Raum, dem sogenannten k -Raum und entspricht dem Wellenvektor des quantenmechanischen Teilchens. Um die Bandstruktur näher untersuchen zu können, erweist sich die Photoemissionsspektroskopie als hilfreiches Werkzeug. Diese beruht auf dem von Einstein beschriebenen äußeren Photoeffekt. Wird ein Elektron im Festkörper durch ein Photon mit der Energie

$$E_p = \hbar\omega \quad (1.1)$$

angeregt, so kann es bei ausreichender Energie den Festkörper verlassen und detektiert werden. Dabei entspricht \hbar dem reduzierten planckschen Wirkungsquantum und ω der Frequenz des Photons. Betrachtet man nun die Energiebilanz zwischen der Photonenenergie E_p , der Austrittsarbeit E_A , der Bindungsenergie E_B und kinetischen Energie E_{kin} , so lassen sich Aussagen über die Herkunft des Elektrons machen:

$$E_{kin} = E_p - E_A - E_B \quad (1.2)$$

Die Austrittsarbeit ist definiert als:

$$E_A = E_{vac} - E_F \quad (1.3)$$

wobei E_F das Fermi-niveau bezeichnet, welches den höchst besetzten Zustand bei der Temperatur $T = 0K$ beschreibt. Bei den meisten Metallen liegt die Austrittsarbeit bei $4 - 5 eV$ [20]. Die Bindungsenergie beschreibt die Energie zwischen Energie des Elektrons und der Fermienergie. Es wird also eine Strahlung mit einer Energie von mindestens $4 eV$ benötigt, um ein Elektron über die Vakuum-Energie zu bringen. Jedoch verfügt das Elektron dann über keine kinetische Energie, um zu einem Detektor zu gelangen. Unter Berücksichtigung der Dispersion des freien Elektronengases kann man

nur einen freien Zustand erhalten, wenn man beim Durchwandern der Brillouinzone den parabolischen Verlauf miteinbezieht.

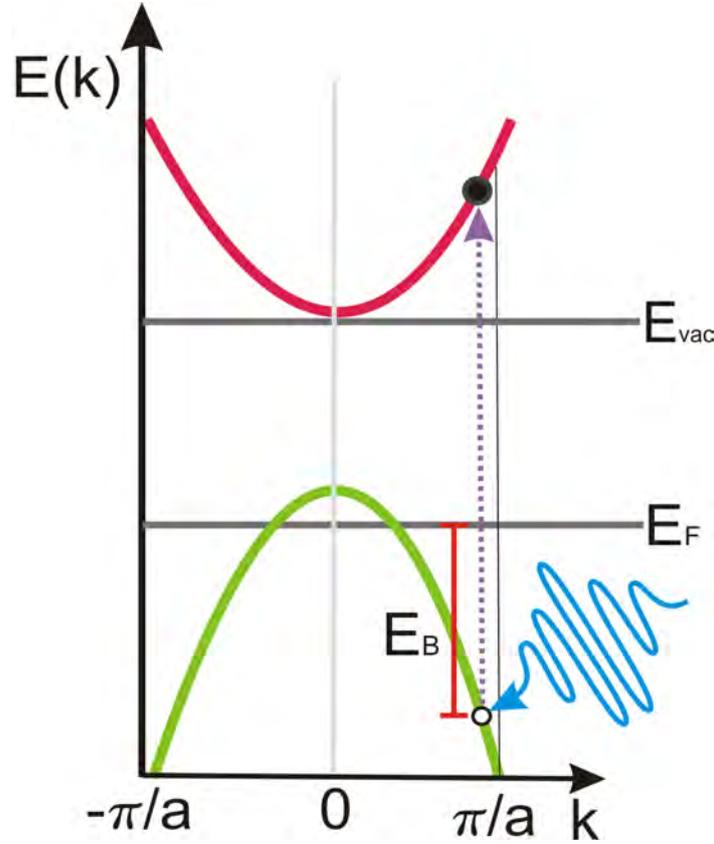


Abbildung 1.0.1.: Betrachtet man die Dispersion des freien Elektronengases, so ergibt sich eine größere Energie als die Austrittsarbeit

Durch Lichtquellen wie Gasentladungslampen, Synchrotronstrahlung, aber auch Laserstrahlung und deren höhere Harmonische, lassen sich Photonen mit genügend ausreichender Energie erzeugen [9]. Hat das herausgelöste Elektron genügend kinetische Energie, so kann es zu einem Detektor gelangen und kann einem k -Wert zugeordnet werden. Es ist aber zu berücksichtigen, dass nur die Vektorkomponente k_{\parallel} zur Oberfläche eine Erhaltungsgröße ist, die nicht durch die Einstrahlung des Photons beeinflusst wird [16]. Die Messung muss winkelabhängig erfolgen, um erfolgreich Elektronen zu detektieren, die einen großen Impuls parallel zur Oberfläche haben. Diese Messung wird als ARPES (engl. für Winkelauflöste Photoemissionsspektroskopie) bezeichnet.

Für die Vektorkomponente parallel zur Oberfläche gilt:

$$k_{\parallel} = \frac{\sqrt{2mE_{kin}}}{\hbar} \sin(\theta) \quad (1.4)$$

Dabei ist m die Ruhemasse der Elektronen und θ der Winkel zwischen der Flächennormale der Probe und der Austrittsrichtung der Elektronen. Wie man mit der Gleichung

1.4 sehen kann, wird der Winkel θ kleiner, wenn sich die kinetische Energie erhöht. Um Elektronen an der Fermikante, die nahe der Brillouin-Zonengrenze liegen, winkelaufgelöst zu untersuchen, eignet sich eine Strahlung von 9 eV , da man sich einem freien Zustand im Vakuum nahe der Brillouin-Zonen-Grenze nähern kann [9]. Eine Strahlung von 9 eV entspricht einer Wellenlänge von 133 nm und liegt im VUV-Bereich (Vakuum Ultra Violet) des elektromagnetischen Spektrums.

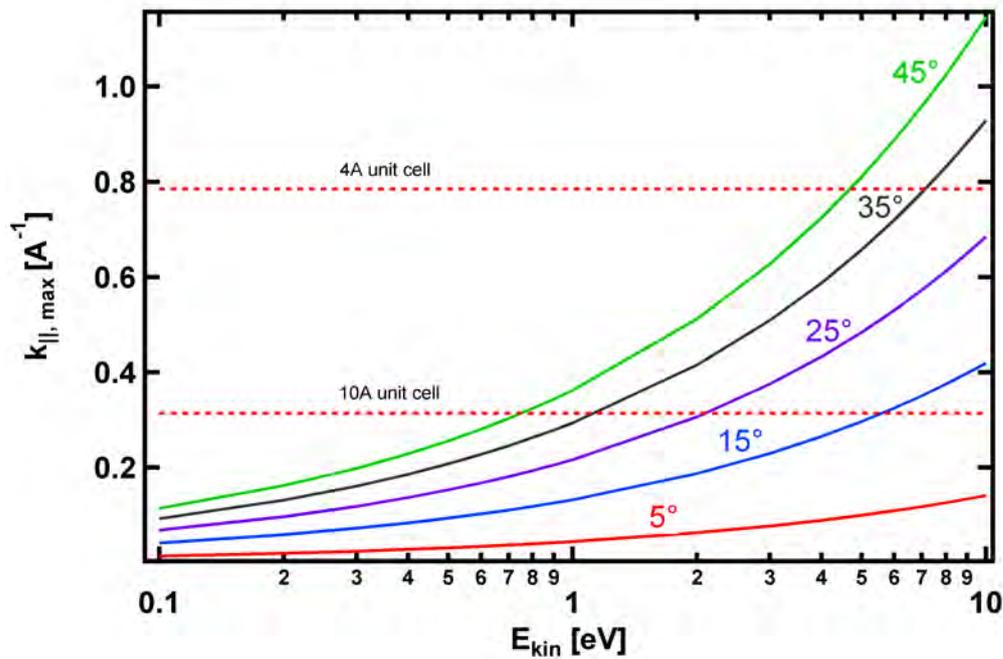


Abbildung 1.0.2.: Diese Abbildung zeigt die Abhängigkeit von k_{\parallel} mit der kinetischen Energie für verschiedene Winkel. Die rotgestrichelten Geraden stehen für die Größe der Einheitszelle in Angström ($\text{\AA} = 10^{-10}\text{ m}$). Für eine kinetische Energie von 9 eV sind kleine Einheitszellen und große Winkelbereiche möglich. Berücksichtigt werden muss aber noch die Energiedifferenz aus Gleichung 1.2. Mit freundlicher Genehmigung von Dr. Manuel Ligges

Will man dynamische Prozesse wie Elektron-Elektron-Streuung, Elektron-Spin-Transfer oder Elektronen-Phonon-Streuung untersuchen [9], so braucht man eine gepulste Lichtquelle, deren Pulsdauer im Femtosekundenbereich liegt, da diese Prozesse auch auf dieser Zeitskala erfolgen.

Dadurch ist es möglich, zeitaufgelöste und winkelaufgelöste Photoemissionsspektroskopie (engl. trARPS) zu betreiben, die mittlerweile eine wichtige Untersuchungsmethode für dynamische Prozesse darstellt [9]. Es handelt sich um ein sogenanntes Anrege-Abfrage-Experiment. Dabei werden zwei Pulse verwendet. Der erste Puls erzeugt eine Anregung der Elektronen und der zweite löst die Elektronen aus dem Festkörper aus, die dann detektiert werden können. Durch zeitliche Verzögerung der Pulse lassen sich

Änderungen im Spektrum beobachten und Rückschlüsse auf die Verweildauer der Elektronen in den unbesetzten Zuständen ziehen.

Aktuell gibt es an der Universität Duisburg/Essex, an der Fakultät für Experimentelle Physik in der Arbeitsgruppe von Prof. Dr. Bovensiepen eine solche Anlage, die aber nur mit einer Abfrage-Strahlung von 6 eV arbeitet.

Dass es möglich ist, Photoemissionsspektroskopie mit Strahlung von etwa 9 eV durchzuführen, zeigt eine Arbeit aus dem Jahre 2003 von T. Munakata *et al.* [27]. Dabei wurde eine Strahlung eines Titan-Saphir-Lasers von 840 nm mit einer Repetitionsrate von 250 kHz frequenzverdoppelt und anschließend in Xenon-Gas frequenzverdreifacht und somit eine Strahlung von 140 nm generiert. Bei der Frequenzvervielfachung werden die Effekte der Nichtlinearen Optik ausgenutzt, die durch hohe Feldstärken des Laserpulses hervorgerufen werden. In dieser Arbeit steht die Realisierung und Anwendung bei der Photoemissionsspektroskopie im Vordergrund

Als aktuelles Beispiel ist eine Arbeit von Akiyoshi Hishikawa [14] aus dem Jahre 2011 zu nennen. Dabei wurde zeitaufgelöste Photoemissionsspektroskopie mit Photoenergie von etwa 15 eV (80 nm) genutzt. Die Strahlung wurde in Krypton durch die 5. Harmonische von 400 nm hergestellt bei einer Repetitionsrate von 1 kHz und einer Pulsenergie von $180\text{ }\mu\text{J}$. Auch diese Arbeit beschäftigt sich schwerpunktmäßig mit der Photoemissionsspektroskopie, weniger mit den Bedingungen für die Herstellung der harmonischen Strahlung. Eine gute Grundlage, die die Bedingung zur Frequenzverdreifachung in Xenon und Quecksilberdampf beschreibt, ist die Arbeit von H. Zacharias *et al.* an der Universität Münster aus dem Jahre 1997 [41]. Dabei wurde ein Nd:YLF-Laser-System mit Wiederholungsrate von 1 kHz bei Pulsenergien von $2, 5\text{ mJ}$ und einer Pulsdauer von 70 ps ($\text{ps} \hat{=} 10^{-12}\text{ s}$) verwendet. Diese Arbeit basiert auf der Erzeugung bei hohen Pulsenergien.

Wenn man Photoemissionsspektroskopie betreibt, eignet sich eine Strahlung mit niedriger Pulsenergie und einer hohen Repetitionsrate. Durch die hohe Repetitionsrate verkürzt sich die Messdauer der Spektren und durch die geringe Pulsenergie werden nur wenige Elektronen aus der Probe herausgelöst. Bei großen Pulsenergien wird eine große Anzahl von Elektronen angeregt. Durch die Wechselwirkung der Elektronen untereinander entstehen Raumladungseffekte [43], die die Spektren verfälschen können.

Deswegen werden im Rahmen dieser Diplomarbeit die Details nicht-resonanter Erzeugung harmonischer Strahlung im Gas bei niedriger Energie untersucht. Die Erzeugung der gepulsten 9 eV -Strahlung erfolgt über die 6. Harmonische eines Laserpulses mit Zentralwellenlänge von 800 nm durch zwei unterschiedlichen Konversionsprozesse. Zuerst erfolgt eine Frequenzverdoppelung (2. Harmonische) auf 400 nm in einem BBO-Kristall und anschließend eine Frequenzverdreifachung (3. Harmonische) auf 133 nm in Xenon- und Argongas.

„Wie effizient lässt sich die 3. Harmonische von 400 nm bei niedrigen Pulsenergien, bis hin zu $1\text{ }\mu\text{J}$, erzeugen?“

Dies ist die zentrale Frage, die in der vorliegenden Arbeit behandelt wird. Um sich dieser Frage anzunähern und somit eine effiziente Erzeugung zu ermöglichen, wird die 3. Harmonische mit Pulsenergien erzeugt, bei denen die Effekte nachweislich vorhanden sind. Nach genauer Untersuchung der besten Erzeugungsbedingungen wird die Pulsenergie anschließend verringert. In dieser Arbeit wird ein Titan-Saphir-Laser mit Zentralwellenlänge von 800 nm bei einer maximalen Pulsenergie von $1,7\text{ mJ}$ und einer Repetitionsrate von 1 KHz verwendet. Die so erzeugte VUV-Strahlung wird über ein Gitter spektral aufgefächert und anschließend detektiert. Von Relevanz für diese Arbeit ist die Druckabhängigkeit, die Energieabhängigkeit des Signales, die Photonenzahl und die Konversionseffizienz des 9 eV -Signales.

2. Physikalische Grundlagen

Durch die Entdeckung des Laser im Jahre 1959 tat sich gleichzeitig ein völlig neues Feld auf, das der nichtlinearen Optik. Seit 1961 durch P.A. Franken *et al.* zum ersten Mal von der Frequenzverdopplung an einer Quarzplatte durch die Einstrahlung eines Rubinlasers berichtet wurde [13], sind viele spektakuläre Entdeckungen gemacht worden. Die nichtlineare Optik beschreibt eine besondere Form der Wechselwirkung von sehr intensiver optischer Strahlung mit einem Medium wie Gas, Flüssigkeit oder Festkörper und die Antwort der Ladungen, die als Polarisierung \vec{P} bezeichnet wird und eine makroskopische Größe ist. Die lineare Polarisierung, die aus der Elektrodynamik bekannt ist, beschreibt die bei großen Feldstärken auftretenden Effekte nicht mehr zufriedenstellend.

Die nichtlineare Optik berücksichtigt höhere Ordnungen der Polarisierung. Betrachtet man folgende Relation [33]

$$\left| \frac{P^{(n+1)}}{P^{(n)}} \right| \approx \left| \frac{E}{E_{at}} \right| \quad (2.1)$$

wobei E_{at} das elektrische Feld des Atomes ist und dessen typische Werte bei $3 \cdot 10^{10} \text{ V/m}$ [33] liegen, so werden Terme höherer Ordnung umso signifikanter, je größer das elektrische Feld E der einstrahlenden Welle wird. Durch den Pulsbetrieb eines Lasers lassen sich auf Grund der kurzen Pulsdauer enorm hohe Intensitäten erzeugen. Technisch lässt sich die Pulsdauer der Laserstrahlung heutzutage soweit verkürzen, dass Laserpulse von unter 100 Attosekunden (10^{-18} s) [10] als Singlecycle-Pulse¹ realisierbar sind.

Besitzt ein Puls eine Dauer von etwa 50 fs und eine Energie pro Puls von $100 \mu\text{J}$, so erhält man eine Strahlungsleistung von $2 \cdot 10^9 \text{ W}$ pro Puls. Bündelt man nun diese kurzen Impulse zum Beispiel mit einer Linse auf einen Fokus von $300 \mu\text{m}^2$, so erhält man eine Intensität von $6,3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Dann folgt mit

$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E_0^2 \quad (2.2)$$

eine Feldstärke E von etwa $5 \cdot 10^8 \text{ V/m}$, wobei ϵ_0 die elektrische Feldkonstante des Vakuums und c die Vakuumlichtgeschwindigkeit ist. Das entspricht 1/100 des atoma-

¹Als Singlecycle bezeichnet man einen Puls der einen oder wenige optischen Zyklen beinhaltet. Bei einer Wellenlänge von 800 nm entspricht das einer Pulslänge von $1,5 \text{ fs}$ [9]. Die Erzeugung von Attosekundenpulsen erfolgt über Frequenzvervielfachung (höhere Harmonische: HHG).

ren Feldes E_{at} . Um nachweislich Effekte höherer Ordnung hervorzurufen, genügt eine Feldstärke $1/1000$ von E_{at} .

2.1. Polarisation: Übergang von linearer zu nichtlinearer Optik

Um die Effekte der nichtlinearen Optik verstehen zu können, soll nun der Erzeugungsmechanismus für sehr große Feldstärke betrachtet werden. Von besonders großem Interesse sind dabei die Bedingungen für die effiziente Erzeugung.

Durch ein äußeres elektrische Feld werden die Elektronen eines Mediums, die um den Atomkern kreisen, aus ihrer Ruhelage ausgelenkt. Auf ein Atom bezogen entsteht ein mikroskopischer Dipolmoment $\vec{\rho}$ für den gilt:

$$\vec{\rho} = -\alpha \vec{E} \quad (2.3)$$

wobei α der Polarisierbarkeit der Atome entspricht. Für die makroskopische Polarisation \vec{P} ist die Aufsummierung aller elektrischen Dipolmomente in einem Einheitsvolumen V :

$$\vec{P} = \sum_i \vec{\rho}_i / V \quad (2.4)$$

Durch die Oszillation des elektrischen Feldes der Strahlung oszillieren auch die Elektronen mit der Frequenz der Strahlung. Die Antwort der Ladungen auf ein äußeres elektrisches Feld ist die Polarisation. Bei hinreichend kleinen Feldstärken ist die Oszillation eine harmonische Bewegung. Dann ergibt sich folgender Zusammenhang zwischen dem elektrischen Feld und der oszillierenden Polarisation:

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (2.5)$$

Dabei bezeichnet χ die Suszeptibilität, die eine Materialeigenschaft ist, von der Frequenz abhängt und das Ausmaß der Polarisation bestimmt.

2.1.1. Anharmonisches Potenzial

Durch die Einstrahlung mit sehr großen Feldstärken werden die Elektronen soweit ausgelenkt, dass sie die Anharmonizität des Atompotenzials spüren. Es entsteht eine anharmonische Bewegung. Die Polarisation ist nicht mehr linear; stattdessen werden jetzt Terme höherer Ordnungen signifikant. Durch eine Taylorentwicklung erhält man

für die i -te Vektorkomponente ($i=x,y,z$) einen Ausdruck für die nichtlineare Polarisation

$$P_i = \epsilon_0(\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots) \quad (2.6)$$

Dabei muss man $\chi^{(q)}$ als einen Tensor der $q + 1$ -Stufe behandeln, d. h.: χ^2 entspricht einer $3 \times 3 \times 3$ -Matrix.

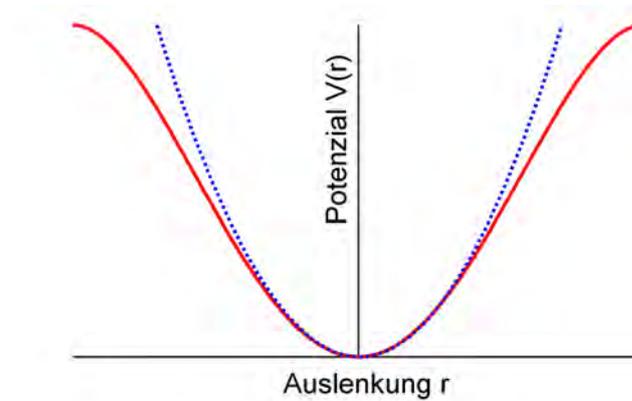


Abbildung 2.1.1.: Bei kleinen Feldstärken ist die Auslenkung quadratisch, bei größeren Feldern treten Terme höherer Ordnung auf und das Potenzial ist anharmonisch

Suszeptibilität

Die Suszeptibilität ist eine sehr schwer bestimmbare Größe und für jedes Material unterschiedlich. Terme höherer Ordnung weisen sogar eine Abhängigkeit mit der Intensität der einfallenden Strahlung auf. Aufgrund der Suszeptibilität höherer Ordnung entsteht Polarisation höherer Ordnung. Die Suszeptibilität, die ja frequenzabhängig ist, muss jetzt auch die Abhängigkeiten der Frequenzen aller beteiligter Wellen berücksichtigen:

$$\chi^{(q)} = \chi^{(q)}(-\omega_q, \omega_1, \omega_2, \dots) \quad (2.7)$$

Diese Arbeit beschränkt sich auf die vereinfachte Darstellung $\chi^{(q)}$, soweit es nicht von besonderer Bedeutung ist. Die Berechnung der Suszeptibilität erfolgt im Allgemeinen quantenmechanisch. Die Messung der Suszeptibilität lässt sich zum Beispiel durch Raman-Streuung durchführen und lässt sich technisch schwer realisieren. Die Suszeptibilität wird im weiteren Verlauf dieser Arbeit als nicht bestimmbare Größe angesehen.

2.1.2. Nichtlineare Wellengleichung

Die Bedingungen für effiziente Erzeugung lässt sich am Besten durch Betrachtung der Intensität der konversiven Prozesse zeigen. Durch die Kenntnis der Feldstärke einer optischen Welle lässt sich die Intensität nach Gleichung 2.2 berechnen. Durch die

Maxwellgleichungen kann man die Propagation einer optischen Welle in Materie beschreiben. Dabei lässt sich bei der nachfolgenden Rechnung nur eine einfache Näherung machen, bei der die Absorption vernachlässigt wird. Die ausführliche Rechnung muss quantenmechanisch erfolgen, wobei der Hamiltonoperator störungstheoretisch gelöst wird. Die Näherung erfolgt im CGS-System. Unter der Annahme, dass das Medium nicht leitend, nicht magnetisch ist und dass es keine freie Ladungen gibt, lässt sich folgender Ansatz herleiten:

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2} - \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2} \quad (2.8)$$

Die Gleichung 2.8 ist aus der Elektrodynamik als Wellengleichung bekannt. Das Problem lässt sich in eine Summe von nichtlinearen und linearen Termen separieren:

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL} \quad (2.9)$$

Betrachtet man jetzt nur den nichtlinearen Teil

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial z^2} - \left(\frac{n}{c}\right)^2 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{P}^{NL}}{\partial t^2} \quad (2.10)$$

wobei n den frequenzabhängigen Brechungsindex des Mediums bezeichnet, so bietet sich als Lösungsansatz eine Summe von ebenen zeitabhängigen Wellen mit unterschiedlichen Frequenzen an, die sich nach dem Superpositionsprinzip überlagern. Für ein Gesamtfeld, welches sich in z -Richtung ausbreitet, ergibt sich dann:

$$E(z, t) = \frac{1}{2} \left[\sum_i A_i(z, t) e^{-i(\omega_i t - k_i z)} + A_i^*(z, t) e^{i(\omega_i t - k_i z)} \right] \quad (2.11)$$

Dabei ist A_i die Amplitude des Feldes und k_i die Wellenzahl, die mit $k_i = 2\pi n/\lambda$ mit der Wellenlänge und dem Brechungsindex verknüpft ist. Der zweite Term entspricht dem komplex Konjugierten. Diese Annahme ist nur gültig, wenn es keine Überlappungen der einzelnen Feldkomponenten im Frequenzspektrum gibt.

Die Polarisation lässt sich analog folgendermaßen darstellen:

$$P^{NL} = \frac{1}{2} \left[\sum_j P_j e^{-i(\omega_j t - k_j^P z)} + P_j^* e^{i(\omega_j t - k_j^P z)} \right] \quad (2.12)$$

Die Wellenzahl k_j^P kann sich bei gleichen Frequenzen von der Wellenzahl k_i des optischen Feld unterscheiden. Dies ergibt sich aus den unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten des optischen Feldes und der Polarisation. Das hat zur Folge, dass der Energiefluss verändert wird [30].

Durch Einsetzen von 2.11 und 2.12 in 2.10 erhält man einen Satz von Differenzialglei-

chungen für die Feldamplitude A_i . Für die q -te Komponente gilt:

$$\frac{\partial^2 A_q}{\partial z^2} + 2ik_q \left[\frac{\partial A_q}{\partial z} + \frac{n_q}{c} \frac{\partial A_q}{\partial t} \right] = \frac{4\pi\omega_q^2}{c^2} P_q(z) e^{i\Delta kz} \quad (2.13)$$

unter Verwendung folgender Definition:

$$\Delta k := k_q - qk_1 \quad (2.14)$$

die als Phasenfehlanpassung bezeichnet wird. Dabei haben die erzeugten Wellen eine Phasendifferenz zueinander und es kommt zu konstruktiver und destruktiver Interferenz, wenn eine Teilwelle beim Propagieren durch das Medium auf eine weitere gerade erzeugte Teilwelle trifft.

Für die Gleichung 2.13 lässt sich die Näherung einer langsam veränderlichen Amplitude (slow varying amplitude approximation [30]) anwenden, die sich im Bereich einer Wellenlänge sehr langsam verändert:

$$\frac{\partial^2 A_q}{\partial z^2} \ll k_q \frac{\partial A_q}{\partial z} \quad (2.15)$$

Die Ortsableitung der 2. Ordnung kann daher vernachlässigt werden. Die Polarisation der q -ten Harmonischen lässt sich schreiben als

$$P_q(z) = \frac{\chi^{(q)}}{2^{q-1}} A_1^q \quad (2.16)$$

A_1 ist die Amplitude des elektrischen Feldes der Grundwelle. Dann erhält man:

$$\frac{\partial A_q}{\partial z} = i \frac{2\pi\omega_q}{cn_q} \chi^{(q)} A_1^q e^{i\Delta kz} \quad (2.17)$$

Mit dieser Gleichung lässt sich die Feldstärke für ein beliebiges q ausdrücken. Aus der Feldstärke lässt sich die Intensität der q -Harmonischen berechnen. Die Lösung für $q = 2$, die die Frequenzverdopplung in Kristallen beschreibt und $q = 3$, die die Frequenzverdreifung in Gas beschreibt, wird in den folgenden Kapiteln im Einzelnen behandelt.

2.2. Erzeugung der zweiten Harmonischen in einem Kristall

Die Erzeugung der 2. Harmonischen in einem Kristall ist der erste Erzeugungsprozess der 9 eV-Strahlung. Die Effizienz dieses Prozesses beeinflusst daher die Erzeugung der 3. Harmonischen.

In einem Kristall haben die Atome feste Positionen. Sie sind gegenüber einer Translation invariant. Wenn dieses Medium auch kein Inversionszentrum aufweist, so ergibt sich folgende Symmetrieeigenschaft:

$$P(E) \neq -P(-E) \quad (2.18)$$

Durch Einstrahlung zweier optischer Wellen, die die Frequenz ω_1 haben, wird die herkömmliche Welle in eine neue Welle mit der Frequenz ω_2 umgewandelt. Dieser Prozess wird auch Drei-Wellen-Prozess bezeichnet, da insgesamt drei Wellen beteiligt sind. Die neue Welle hat die doppelte Frequenz und es ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$\omega_2 = 2\omega_1 \quad (2.19)$$

Der Vollständigkeit halber sei erwähnt, dass die Erzeugung der 2. Harmonischen nur ein Sonderfall für einen Drei-Wellen-Prozess ist. Weitere Prozesse wie Wellenmischprozesse sind möglich, auch lassen sich Prozesse höherer Ordnung finden². Die Symmetrieeigenschaft ist nicht für alle Kristalle beschränkt, denn es lassen sich auch Kristalle finden, bei denen ein Inversionszentrum zu finden ist. Dann treten nur Terme ungerader Ordnung auf, siehe dazu 2.3.

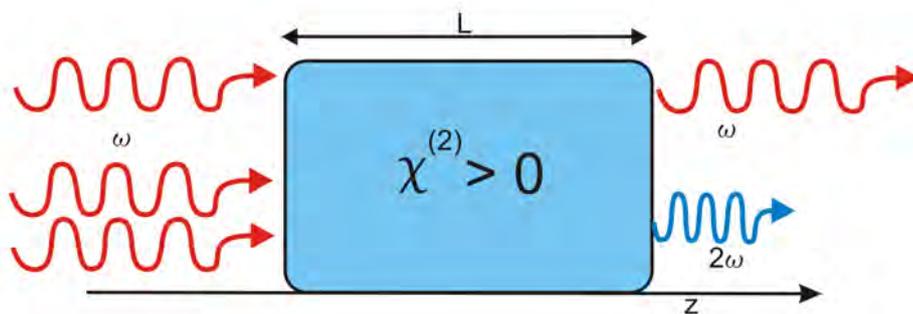


Abbildung 2.2.1.: Bei der Erzeugung der 2. Harmonischen wird aus 2 Wellen eine neue Welle erzeugt, die die doppelte Frequenz hat. Ein Teil der einfallenden Strahlung bleibt aber unbeeinflusst.

²Eine Auflistung aller wichtigen Prozesse und Materialien lässt sich unter [31] in den Tabellen II,III und IV finden

2.2.1. Intensität der 2. Harmonischen

Die Intensität der 2. Harmonischen lässt sich mit 2.13 berechnen, wenn eine Integration über z unter Berücksichtigung der Randbedingung $|A_2(0)| = 0$ durchgeführt wird. Dann erhält man mit 2.2

$$I_2 = \frac{cn_2}{2\pi} |A_2(2\omega)|^2 \quad (2.20)$$

Dabei beschreibt n_2 den Brechungsindex bei Frequenz ω_2 und n_1 den Brechungsindex bei Frequenz ω_1 . Durch weitere Umformung erhält man für die Intensität der 2. Harmonischen folgenden Ausdruck [31]:

$$I_2 = \frac{6\pi^3 d_{eff}^2}{n_2 n_1^2 c \lambda_1^2} L^2 I_1^2 \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (2.21)$$

Die Größe d_{eff} ist ein Skalar und beschreibt die effektive Suszeptibilität. Man erhält d_{eff} , wenn man nur Einträge, die ungleich Null sind, und die Projektionskomponenten des elektrischen Feldes auf die Kristallgeometrie berücksichtigt [31]. Der maximale Wert von z ist die Länge L des Kristalls. Diese Formel gilt aber nur, wenn die Intensität der Fundamentalen konstant bleibt. Die Intensität der Harmonischen hängt in erster Linie quadratisch von der Intensität der Fundamentalen ab und steigt quadratisch mit der Länge L an. Die quadratische Oszillation in Gleichung 2.21 beschreibt die sogenannte sinc-Funktion ($\text{sinc} = \sin(x)/x$).

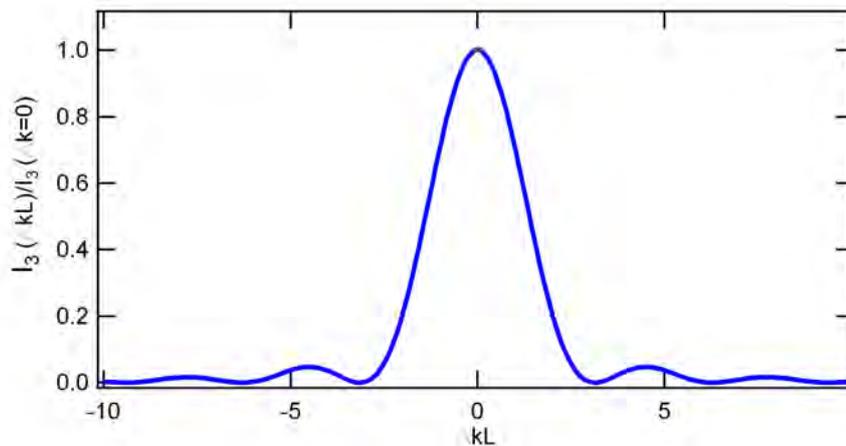


Abbildung 2.2.2.: Grafische Darstellung der sinc^2 -Funktion. Für $\Delta k = 0$ ist die Intensität maximal

Es stehen nun 2 mögliche Fälle für die Phasenfehlpassung Δk zur Betrachtung:

1. Für $\Delta k = 0$ kommt es nur zu konstruktiver Interferenz. Dann gibt es einen quadratischen Anstieg mit der Intensität der einfallenden Welle. Sie wird nur durch Absorptionsprozesse begrenzt, die hier vernachlässigt werden.

2. Für $\Delta k \neq 0$ steigt die Intensität der Harmonischen an. Durch konstruktive und destruktive Interferenz, die durch die langsam entstehende Phasendifferenz zwischen Polarisation und elektrischem Feld der Harmonischen entsteht, ergeben sich Oszillationen mit 2ω .

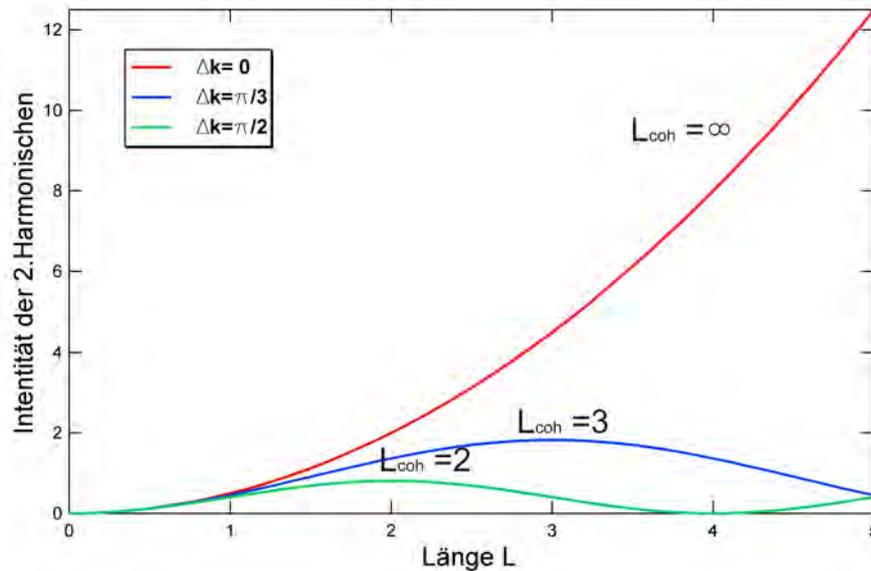


Abbildung 2.2.3.: Die Intensität steigt quadratisch an, wenn es zur Phasenanpassung kommt. Bei Phasenfehlanspassung baut sich das Signal über eine Länge von L_{coh} auf, oszilliert aber dann mit $\sin^2(\Delta k L/2)/(\Delta k L/2)$

Es empfiehlt sich eine weitere Größe L_{coh} einzuführen, die Kohärenzlänge genannt wird:

$$L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k} \quad (2.22)$$

Das Signal baut sich über die Länge L_{coh} auf. Aufgrund von $\Delta k \neq 0$ beginnt das Signal zu oszillieren. Mit der Beziehung 2.14 und $k = \frac{2\pi c}{\lambda}$ erhält man:

$$L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k} = \frac{\lambda}{2(n_2 - n_1)} \quad (2.23)$$

Die Kohärenzlänge wird umso größer, je kleiner die Differenz der Brechungsindizes ist. Zur Phasenfehlanspassung kommt es aufgrund der natürlichen Dispersion des Brechungsindex, die in jedem Material auftritt [31]. Die Effizienz des 2. Harmonischen Prozesses lässt sich also durch die Länge L , der Intensität der Fundamentalen und durch die Phasenanpassung beeinflussen.

2.2.2. Phasenanpassung der zweiten Harmonischen

Wieviel der ursprünglichen Strahlung in harmonische Strahlung umgewandelt wird, beschreibt die Konversionseffizienz. Diese wird maximal, wenn es zur Phasenanpassung kommt, also $\Delta k = 0$. Die Phasenanpassung kann über verschiedene Prozesse erfolgen. In dieser Arbeit wird jedoch nur auf die Phasenanpassung Typ I in einem doppelbrechenden Kristall eingegangen, da nur diese eine Relevanz für das zu Grunde liegende Experiment hat.

Bei einem doppelbrechenden Kristall gibt es eine optische Vorzugsrichtung, die als optische Achse bezeichnet wird. Durch diese wird die Ausbreitungsgeschwindigkeit für einen Teil des einfallenden elektrischen Feldes verändert. Der Brechungsindex n ist mit der Ausbreitungsgeschwindigkeit v verknüpft.

Die einfallende Welle sei beliebig optisch polarisiert. Die Komponente des elektrischen Feldes, die senkrecht zur optischen Achse schwingt, behält die Ausbreitungsgeschwindigkeit bei. Diese Teilwelle verlässt den Kristall linear polarisiert und wird als ordentliche (o=ordinary) Welle bezeichnet. Die Komponente des elektrischen Feldes, die parallel zur optischen Achse schwingt, wird aufgrund der Projektion auf die optische Achse verändert. Dadurch verändert sie der Brechungsindex in diese Richtung, was wiederum eine Geschwindigkeitsänderung zur Folge hat. Diese Teilwelle ist auch linear polarisiert, steht aber senkrecht zur ordentlichen Welle orientiert und wird außerordentliche (e=extrordinary) Welle genannt. Die Veränderung des Brechungsindex hat eine Änderung der Ausbreitungsrichtung zur Folge. Es entsteht ein Versatz zwischen der ordentlichen Welle und der außerordentlichen Welle.

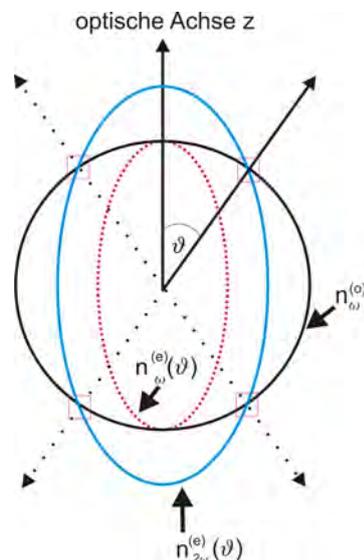


Abbildung 2.2.4.: Der Winkel zwischen Schnittpunkt der beiden Brechungsindizes und optischen Achse wird Phasenanpassungswinkel genannt. In diesem Bild gibt es vier Schnittpunkte, die als rote Quadrate eingezeichnet sind. Der Brechungsindex des ordentlichen Strahls für 2ω wurde nicht eingezeichnet, da er keine Relevanz für die Phasenanpassung hat.

Der Brechungsindex der ordentlichen Welle ist in allen Raumrichtungen gleich und lässt sich als Kreis darstellen. Bei der außerordentlichen Welle besteht eine Winkelabhängigkeit des Brechungsindexes, da dieser bezüglich der optischen Achse elliptisch ist.

Wenn die Frequenz der beiden Teilwellen, die den Kristall verlassen, gleich ist, so gibt es keinen Schnittpunkt, d. h. es gibt keinen gemeinsamen Brechungsindex. Hat der außerordentliche Strahl die doppelte Frequenz, so ist auch sein Brechungsindex größer. Dadurch gibt es einen Schnittpunkt der beiden Brechungsindizes. Der Winkel zwischen der optischen Achse und dem Schnittpunktvektor variiert zwischen 0° - 90° und wird Phasen Anpassungswinkel θ genannt. Bei diesem Winkel haben die ordentliche Welle und die außerordentliche Welle den selben Brechungsindex. Es gilt:

$$\frac{1}{n_{2\omega}} = \frac{\cos^2(\theta)}{n_{2\omega}^o} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_{2\omega}^e} \quad (2.24)$$

Betrachtet man den Brechungsindex in Abhängigkeit der Frequenz, so lässt sich die Phasen Anpassung so interpretieren:

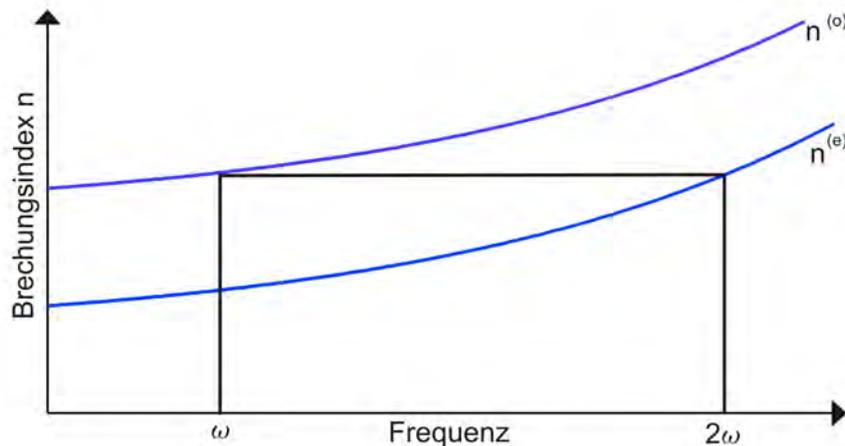


Abbildung 2.2.5.: Der Brechungsindex des außerordentlichen und ordentlichen Strahls muss für effektive Phasen Anpassung derselbe sein.

Der Phasen Anpassungswinkel ist von der Wellenlänge abhängig. So ist es nicht möglich, Phasen Anpassung zu erreichen, wenn die Wellenlänge der erzeugten Strahlung einen größeren Phasen Anpassungswinkel als 90° fordert.

2.3. Erzeugung der dritten Harmonischen in Gas

Die 2. Harmonische ist nun die Fundamentale bei der Erzeugung der 3. Harmonischen. Betrachtet man nun ein Medium wie zum Beispiel Gas, dessen Atome nicht an festen

Gitterpositionen sind, so gibt es ein Inversionszentrum aufgrund der Rotationssymmetrie. Unter Verwendung der Gleichung 2.6 erhält man unter Berücksichtigung der Inversionsbedingung $\vec{P}(\vec{E}) = -\vec{P}(-\vec{E})$ nur ungerade Ordnungen der Entwicklung. So ist es möglich, die 3. Harmonische $q = 3$ und höhere Harmonische $q \geq 5$ zu erzeugen. Das Wirkungsprinzip bei der Erzeugung der höheren Harmonischen erfolgt durch Wechselwirkung von Strahlung und Elektronen, die sehr weit vom Atom entfernt sind. Dabei handelt es sich um freie Elektronen, die im Laserfeld Energie aufnehmen und durch Rekombination mit dem Atom die aufgenommene Energie in Strahlung abgeben. Der Prozess der 3. Harmonischen erfolgt aber über die Dipolwechselwirkung von Elektronen, die am Kern gebunden sind und ausgelenkt werden. Dabei verspüren sie die Anharmonizität aufgrund der hohen Feldstärke der Strahlung [30]. Dieser Prozess ist analog zur 2. harmonischen Erzeugung.

Wenn man Gase als Konversionsmedium benutzt, so ergeben sich einige Vorteile:

- Ein homogenes Medium mit großen Längen ist einfach zu realisieren.
- Das Medium ist selbstreparierend.
- Durch die niedrigere Dichte bei Gasen ist die Absorptionslänge viel größer.
- Der Brechungsindex lässt sich durch den Druck beeinflussen, d. h. die Phasenanpassung wird über die Änderung des Gasdruckes erreicht.
- Transparenz von atomaren Gasen für fast alle Frequenzen unterhalb der Ionisationsgrenze bis auf diskrete Absorptionslinien [33] ist vorteilhaft.

Auf Grundlage der Transparenz lässt sich die Verwendung von Edelgasen begründen, da sie als atomare Gase vorliegen und chemisch inaktiv gegenüber anderen Elementen sind. Zudem ist die Ionisierbarkeit dieser Spezies sehr hoch, was für die Erzeugung von Harmonischen vorteilhaft ist. Dies wird im Kapitel 2.3.2 genauer erklärt.

2.3.1. Intensität der 3. Harmonischen

Unter Betrachtung der Intensität der 3. Harmonischen lassen sich die Bedingungen für die effiziente Erzeugung verdeutlichen. Die Erzeugung der 3. Harmonischen bezeichnet ein 4-Wellenprozess. Aus drei Wellen mit der Frequenz ω_1 entsteht durch den Konversionsprozess eine Welle mit der Frequenz ω_3 mit der Beziehung

$$\omega_3 = 3\omega_1 \quad (2.25)$$

Betrachtet man die Gleichung 2.13 mit $q = 3$, so erhält man mit der Näherung, dass das einstrahlende Feld nach der Wechselwirkung nicht sehr abgeschwächt ist (Weak-Pump-Fields [30]) und Integration von $z = 0$ bis $z = L$ nach [30] folgende Lösung:

$$A_3(z) = i \frac{3\pi^2}{n_3 \lambda_1} \chi^{(3)} A_1^3 \frac{(1 - e^{-i\Delta k L})}{i\Delta k} \quad (2.26)$$

wobei $\chi^{(3)} = \chi^{(3)}(-3\omega_1, \omega_1, \omega_1, \omega_1)$ und n_3 der Brechungsindex bei ω_3 ist. Die Phasenfehlanpassung lautet

$$\Delta k = k_3 - 3k_1 = \frac{6\pi}{\lambda_1} \Delta n \quad (2.27)$$

wobei $\Delta n = (n_3 - n_1)$ die Differenz der Brechungsindizes ist. Mit der Gleichung 2.2 erhält man für die Intensität der 3. Harmonischen:

$$I_3 = \frac{576\pi^6}{n_3 n_1^3 c^2 \lambda_1^2} |\chi^{(3)}|^2 I_1^3 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k L/2)}{(\Delta k L/2)^2} \quad (2.28)$$

Die Intensität der 3. Harmonischen verhält sich proportional zu I_1^3 . Gleichzeitig gibt es wie bei der Intensität der 2. Harmonischen eine Proportionalität zu L^2 und der quadratischen Sinc-Funktion, die von Δk abhängt. Die maximale Intensität ist erreichbar, wenn der Sinus gegen Null läuft, also wenn $\Delta k = 0$ ist.

2.3.2. Phasenanpassung über Druck

Die Phasenanpassung erfolgt wie bei der Erzeugung der 2. Harmonischen über die Modulation des Brechungsindex, der bei gasförmigen Medien druckabhängig ist. Die Phasenfehlanpassung setzt sich aber aus verschiedenen Beiträgen zusammen [28]:

$$\Delta k = \Delta k_{Plasma} + \Delta k_{Dispersion} + \Delta k_{Geometrie} \quad (2.29)$$

- Jedes Medium hat eine unterschiedliche Dispersion bei unterschiedlichen Wellenlängen und somit Einfluss auf den Brechungsindex [28]:

$$\Delta k_{Dispersion} = 3p(1 - \eta) \frac{2\pi}{\lambda_1} (\Delta n + \bar{n}_2) \quad (2.30)$$

mit der Differenz der Brechungsindizes bei einem bestimmten Druck p der Fundamentalen und der 3. Harmonischen Δn , dem Ionisationsgrad η und dem intensitätsabhängigen Brechungsindex $\bar{n}_2 = n_2 I$ (Kerr-Effekt).

Unter der Anahme, dass der Ionisationsgrad sehr gering ist und der Beitrag des Kerreffektes vernachlässigt werden kann, lässt sich folgende Vereinfachung von 2.30 verwenden:

$$\Delta k = \frac{6\pi}{\lambda_1} \frac{p}{1000} \Delta n \quad (2.31)$$

- Durch die hohe Feldstärke kommt es zur teilweisen Ionisation des Gases. Es entstehen freie Elektronen, die einen wesentlichen Beitrag zum Brechungsindex haben.

$$\Delta k_{Plasma} = 3\eta N_0 \frac{8}{3} r_e \lambda_1 \quad (2.32)$$

dabei ist r_e der klassische Elektronenradius, für den gilt

$r_e = e^2/4\pi\epsilon_0 m_e c^2 = 2,818 \cdot 10^{-15} \text{ m}$, N_0 die Dichte der neutralen Teilchen und η der Ionisierungsgrad. Dieser Beitrag ist größer Null. In dieser Arbeit wird dieser Anteil vorerst als vernachlässigbar angesehen. Eine Abschätzung des Ionisationsgrades erfolgt in Kapitel 5.4.2.

- Das Medium, in dem sich die Strahlung ausbreitet, liefert einen geometrischen Faktor. Dieser entsteht durch die Fokussierung der Gaszelle. Eine genauere Betrachtung erfolgt im nächsten Kapitel. Für zwei Sonderfälle lassen sich entsprechende Lösungen angeben. Dabei ist b der konfokale Parameter eines Gaußstrahls (siehe Anhang A.2) und L ist die Länge der Gaszelle.

- Im Falle einer sehr starken Fokussierung ($b \ll L$) erhält man nach [7] [30] [25] als Lösung

$$\Delta k_{Geometrie} = +\frac{2}{b} \quad (2.33)$$

- Im Falle einer sehr schwachen Fokussierung ($b \gg L$) erhält man nach [7] [30] [25] als Lösung

$$\Delta k_{Geometrie} = +\frac{4}{b} \quad (2.34)$$

Dieser Beitrag ist nicht abhängig vom Druck und ist größer als Null. Würde man statt einer Gaszelle eine Hohlzelle verwenden, so wäre dieser Beitrag kleiner Null [28].

Phasenanpassung mit fokussiertem Strahl

Die nachfolgende Herleitung ist nur für eine Laserintensität kleiner als $I = 10^{14} \text{ W/cm}^2$ gültig [7] [30] [42]. Betrachtet man einen Strahl mit Gaußprofil (siehe Anhang A.2), so ergibt sich für die Amplitude des elektrischen Feldes der Fundamentalen

$$A_1(r, z) = \frac{A_{10}}{(1 + i\xi)} e^{-k_1 r^2 / b(1 + i\xi)} \quad (2.35)$$

Dabei ist b der konfokale Faktor, r die räumliche Ausbreitung der Welle, $\xi = (z - z_0)/b$ eine renormierte Größe, z_0 die Position der Strahlmitte und A_{10} die Amplitude der Fundamentalen des unfokussierten Strahls. Durch Einsetzen in Gleichung 2.13 und

der Annahme $\Delta k \ll k_3, k_1$ lässt sich die elektrische Feldstärke der 3. Harmonischen berechnen. Dann lässt sich die Leistung der 3. Harmonischen nach [30] berechnen:

$$P_3 = \frac{768\pi^6}{n_1 n_2 \lambda_1^4 c^2} |\chi^{(3)}|^2 P_{10}^3 |F_1(\xi', \xi, b\Delta k, b/L)|^2 \quad (2.36)$$

Dabei ist P_{10} die Leistung der Fundamentalen, $-\xi'$ bis ξ die Ausdehnung des Mediums als renormierte Größe und $|F_1(\xi', \xi, b\Delta k, b/L)|$ beschreibt das sogenannte Phasenanpassungsintegral

$$|F_1(\xi', \xi, b\Delta k, b/L)|^2 = \left| \int_{-\xi'}^{\xi} \frac{e^{-ib\Delta k \xi''}}{(1 + i\xi'')^2} d\xi'' \right|^2 \quad (2.37)$$

Betrachtet man nun zwei Sonderfälle, so lässt sich nach [7] das Phasenanpassungsintegral berechnen:

1. Für einen Strahl, der mittig in dem Medium fokussiert ist, also $L = (-\xi' = \xi = L/2)$ und der konvokale Parameter b ist viel größer als die Länge L des Mediums, also $b/L = \infty$ erhält man für $|F_1|^2$ folgenden Ausdruck:

$$|F_1|^2 = \frac{4L^2 \sin^2[(\Delta k + 4/b)L/2]}{b^2 [(\Delta k + 4/b)L/2]} \quad (2.38)$$

Die Phasenanpassung erfolgt nicht bei $\Delta k = 0$, sondern bei

$$\Delta k = -\frac{4}{b} \quad (2.39)$$

Die Verschiebung der Phasenanpassung ist typisch für fokussierte Strahlen [7].

2. Nimmt man eine starke Fokussierung an, d. h. wenn der konfokale Parameter b viel kleiner ist als die Länge L des Mediums, also $b/L = 0$, so lässt sich Gleichung 2.37 mit unendlicher Ausdehnung ausdrücken als:

$$|F_1|^2 = \begin{cases} \pi^2 (b\Delta k)^4 e^{b\Delta k} & \text{für } \Delta k < 0 \\ 0 & \text{für } \Delta k \geq 0 \end{cases} \quad (2.40)$$

2.3.3. Resonanzen nahe eines atomaren Übergangs

Die Konversionseffizienz bei der Erzeugung der 3. Harmonischen ist viel kleiner als bei der Erzeugung der 2. Harmonischen. Bei Xenon liegt sie etwa bei $10^{-5} - 10^{-6}$ [41] für Nanosekundenpulse. Ein $|\chi^{(3)}|$ -Prozess (typische Werte: $10^{-12} - 10^{-15}$ esu) ist viel kleiner als ein $|\chi^{(2)}|$ -Prozess ($10^{-7} - 10^{-9}$ esu) [33]. Bei Gasen ist er noch geringer als in Flüssigkeiten oder Festkörpern. Man erhält aber eine erhöhte Suszeptibilität nahe

einer Resonanzlinie. Aufgrund der viel schärferen atomaren Übergänge in Gas ergibt sich eine deutlich größere Verstärkung der harmonischen Erzeugung [33].

Zusätzlich zur Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität erhält man bei Frequenzen, die einer Energiedifferenz zweier atomarer Niveaus entsprechen, eine anormale Dispersion.

Auf der anderen Seite sind gasförmige Medien für die meisten Wellenlängen im UV-Bereich transparent, da wenige atomare Übergänge in diesem Bereich liegen.

Hohe Konversionseffizienz kann durch hohe Lasersintensität und durch die Länge der Gaszelle erreicht werden. Durch die hohe Intensität entstehen aber Effekte, die den Prozess maßgeblich beeinflussen [33]:

- Nichtlineare Absorption bei ω und 3ω .
- Mehrfach-Absorptionen bei sehr hoher Intensität.
- Änderung des Brechungsindex durch verschiedene Prozesse aufgrund der hohen Laserintensität, z. B. Ionisation des Gasmediums.

Es eignen sich für die Erzeugung der 3. Harmonischen atomare Gase, die einen Übergang nahe einer Frequenz der beteiligten Wellen aufweisen. Xenon hat Absorptionslinien bei $129,5 \text{ nm}$ und bei $147,9 \text{ nm}$ [2], die für die Strahlung von 133 nm relevant sind. Argon hat drei Absorptionslinien bei $399,4 \text{ nm}$, $401,3 \text{ nm}$ und $403,2 \text{ nm}$ [2] im Bereich von 400 nm .

2.3.4. Berechnung des Brechungsindex

Betrachtet man die Übergänge eines Atoms als einen harmonischen Oszillator [8], so lässt sich eine inhomogene Differenzialgleichung 2. Ordnung aufstellen. Durch die Lösung dieser Gleichung erhält man die spezielle Dielektrizitätskonstante ϵ in einem Realteil und einem Imaginärteil. Diese sind mit dem Brechungsindex verknüpft. Der Realteil der Dielektrizitätskonstante beschreibt die Dispersion und der Imaginärteil beschreibt die Absorption. Diese haben nach [12] folgende Gestalt:

$$\text{Re } \epsilon = n^2(1 - \kappa^2) = 1 + \sum_h \frac{\rho_h(\omega_h^2 - \omega^2)}{(\omega_h - \omega) + \omega^2/\tau_h^2} \quad (2.41)$$

$$\text{Im } \epsilon = n^2\kappa^2 = \sum_h \frac{\rho_h\omega/2\tau_h}{(\omega_h^2 - \omega^2)^2 + \omega^2/\tau_h^2} \quad (2.42)$$

dabei ist ω_h eine Resonanzfrequenz des Atoms, ω die Frequenz der einfallenden Welle, κ die Absorption und τ_h die Lebensdauer, die zu der Resonanzfrequenz des Überganges gehört. Die Größe ρ_h lässt sich auch schreiben als

$$\rho_h = \frac{Ne^2}{m_e\epsilon_0} \quad (2.43)$$

und ist druckabhängig, denn für die Teilchenzahldichte N gilt

$$N = \frac{p}{k_B T} \quad (2.44)$$

Die Lebensdauer τ_h beschreibt die Stärke der Resonanz und wird stark durch die Dopplerverbreiterung sowie die Stoßverbreiterung beeinflusst. Die Dopplerverbreiterung ist nur abhängig von der Temperatur [40], während die Stoßverbreiterung von der Temperatur und dem Druck abhängt. Ist die Frequenz der Strahlung weit weg von der Eigenfrequenz des Atoms, so vereinfacht sich die Gleichung 2.42 zu

$$n^2 = 1 + \sum_h \frac{\rho_h}{(\omega_h - \omega) + \omega^2/\tau_h^2} \quad (2.45)$$

Das Medium ist weitweg einer Resonanz transparent.

Unter Anwendung der Gleichung 2.42 lässt sich für Xenon im Bereich der Resonanzen bei 129,5 nm und 146,9 nm folgender Verlauf darstellen:

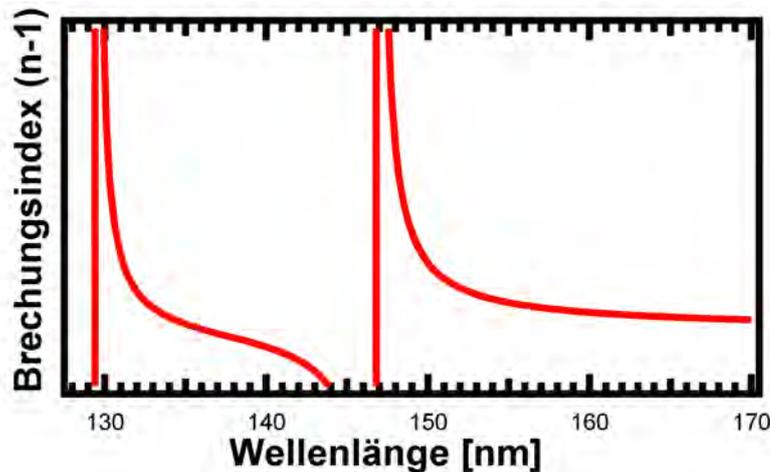


Abbildung 2.3.1.: Beispielkurve für den Brechungsindex von Xenon im Wellenlängenbereich zwischen 129 nm und 170 nm. Die Resonanzen liegen bei 129,5 nm und 146,9 nm. Der Brechungsindex kann im Bereich der Resonanz sehr stark vom Brechungsindex im transparenten Bereich abweichen. Für die Berechnung des Brechungsindexes ist die Kenntnis aller Resonanzen erforderlich, da diese alle einen Beitrag zum Brechungsindex haben. Bei dieser Abbildung wurden nur die beiden genannten Resonanzen berücksichtigt.

Der genaue Verlauf des Brechungsindexes lässt sich unter [6] betrachten ³.

³Die von [6] verwendete Funktion für den Brechungsindex von Xenon enthält einen Fehler und kann deswegen nicht rekonstruiert werden

3. Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel werden die einzelnen Komponenten des experimentellen Aufbaus genauer beschrieben und ihre Möglichkeiten aufgezeigt. Um den experimentellen Aufbau besser zugänglich zu machen, lässt sich folgende Einteilung machen.

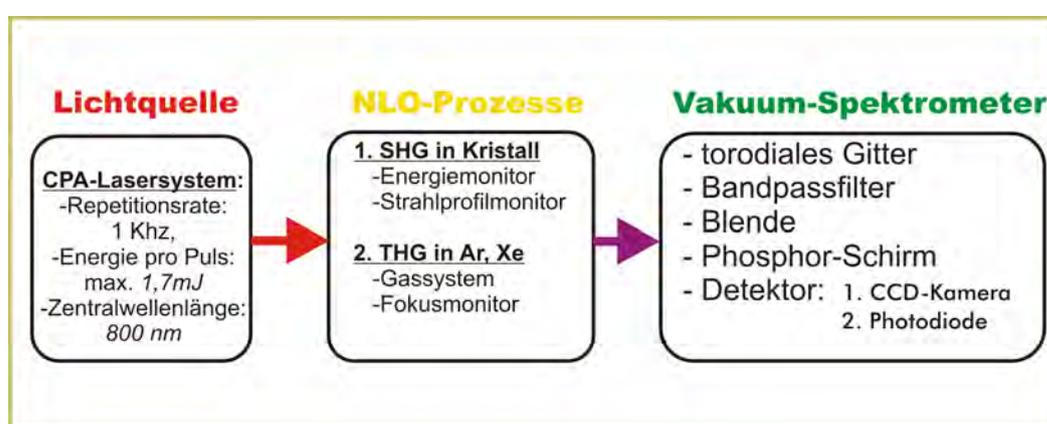


Abbildung 3.0.1.: Die Grundidee des experimentellen Aufbaus

Der Strahl eines gepulsten Lasers wird in einem Kristall frequenzverdoppelt. Anschließend wird die konvertierte Strahlung in eine Gaszelle mittels Linse fokussiert, in der die 3. Harmonische erzeugt wird. Die Gaszelle ist an einer Vakuumkammer befestigt, die als Vakuumspektrometer dient. Mittels eines Gitters in der Vakuumkammer wird die 3. Harmonische von der übrigen Strahlung separiert. Durch einen Detektor wird die Strahlung nachgewiesen. Die einzelnen Komponenten werden jetzt genauer vorgestellt. Am Ende dieses Kapitels befindet sich eine Darstellung des schematischen experimentellen Aufbaus.

3.1. CPA-Lasersystem

Die hohen Intensitäten, die benötigt werden um nichtlineare Effekte zu erzeugen, liefert ein CPA-Lasersystem (engl. Chirped Pulse Amplifier). Ein Laserpuls mit sehr kurzer Impulsdauer (20 fs) wird nach Verlassen des Resonators durch eine Gitteranordnung (Stretcher) spektral aufgeweitet. Dadurch vermindert sich die Spitzenintensität des Pulses und dieser kann nun verstärkt werden, ohne dass dies zu Beschädigung von

optischen Elementen führt. Nach der Verstärkung erfolgt die Rekompresseion des Pulses in einem Kompressor.

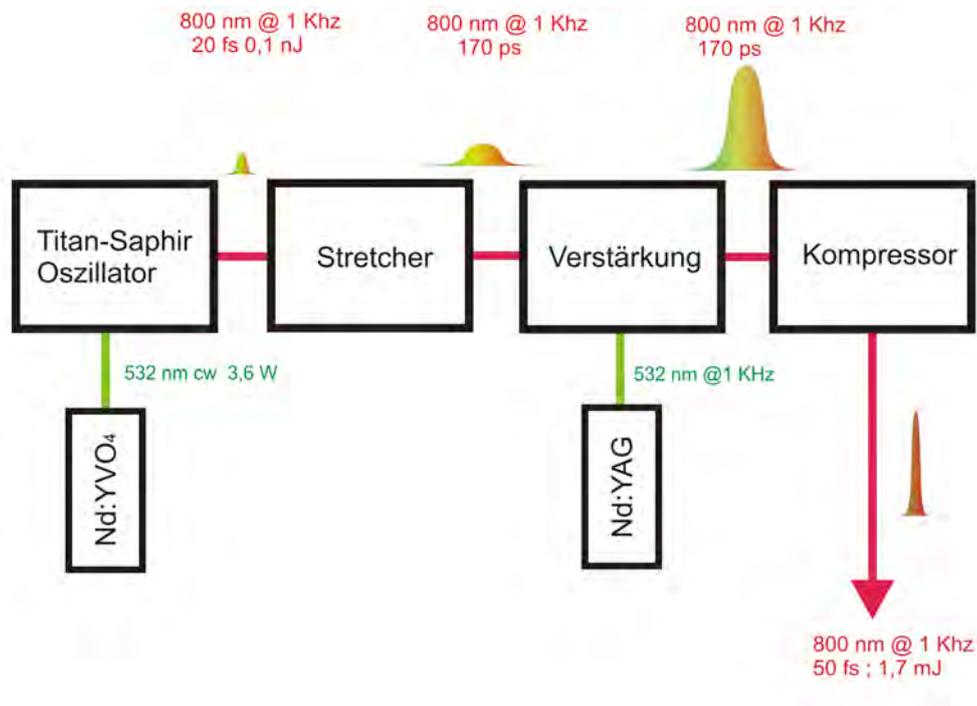


Abbildung 3.1.1.: Der schematische Aufbau des verwendeten Lasersystems.

Zur Herstellung von fs-Laserpulsen bedient man sich in der Regel der Modenkopplung (engl. Modelocking). Im Fall eines Titan-Saphir-Lasersystems erfolgt dies durch das sogenannte Kerr-Lens-Modelocking: Die axialen Resonatormoden sind im Allgemeinen unabhängig voneinander. Die Phasenbeziehung untereinander schwankt statistisch. Gelingt es, Moden so zu beeinflussen, dass sie eine feste Phasenbeziehung zueinander haben, so entsteht ein sehr kurzer und intensiver Puls, der von der Anzahl der beteiligten Moden abhängt.

1. Oszillator:

Ein frequenzverdoppelter kontinuierlicher $Nd:YVO_4$ -Laser (Spektra Physics Millennia) mit einer Zentralwellenlänge von 532 nm pumpt einen Titan-dotierten Saphir-Kristall ($T^{3+}:Al_2O_3$), der sich in einem Resonator befindet. Ein Titan-Saphir-Kristall hat ein sehr breites Emissionsspektrum ($670\text{-}1070 \text{ nm}$), was für die Erzeugung von kurzen Pulsen notwendig ist. Außerdem besitzt ein Titan-Saphir-Kristall eine sehr hohe Wärmeleitfähigkeit und eine hohe Zerstörschwelle [32]. Die Modenkopplung entsteht durch den intensitätsabhängigen Brechungsindex (Kerr-Effekt), der bei einem Titan-Saphir-Kristall sehr hoch ist [32]:

$$n(I) = n_0 + n_2 I \quad (3.1)$$

Es kommt zu einer Selbstfokussierung. Die Modulation des Brechungsindex, der für achsennahe axiale Moden größer ist als für achsenferne Moden und der wie eine Linse wirkt (Kerr-Linse), entsteht infolge des Gaußprofils des Strahls. Durch eine einfache Blende lassen sich die intensitätsarmen Moden unterdrücken und es kommt zur Modenkopplung [11]. Durch Mehrfachdurchläufe des Resonators wird der entstandene Puls verstärkt und anschließend ausgekoppelt. Der Puls hat eine Zentralwellenlänge von 800 nm , eine Pulsenergie von $0,1\text{ nJ}$ und eine Pulsdauer von 20 fs bei einer Wiederholungsrate von 1 kHz [24].

2. **Stretcher** Bevor der Puls gestreckt wird, wird dieser durch ein *Dazzler*TM-System der Firma Fastlite moduliert. Dieser Prozess ist auch bekannt als „Puls-shaping“. Durch eine Gitteranordnung wird der Puls zeitlich aufgeweitet, die Pulsdauer beträgt jetzt etwa 170 ps [24]. Dadurch wird die Spitzenleistung vermindert.
3. **Verstärkung** Die Verstärkung wird durch weitere Lasermedien erreicht. Durch den einfallenden Puls kommt es zu einer Entvölkerung der Besetzungsinversion. Es gibt zwei verschiedene Methoden der Verstärkung:

Regenerativer Verstärker: Der zu verstärkende Puls wird mit einer Pockelzelle in einem weiteren Resonator, indem sich ein weiterer Titan-Saphir-Kristall befindet, der durch einen weiteren Laser (Nd:YAG frequenzverdoppelt, gepulst mit einem 1 Khz : Coherent Evolution) gepumpt wird, eingekoppelt. Dabei muss der zu verstärkende Puls mit dem Pumpimpuls synchronisiert werden. Durch Mehrfachumläufe wird der Puls regenerativ verstärkt, bis eine Sättigung erreicht wird. Anschließend wird der Puls durch dieselbe Pockelzelle ausgekoppelt.

Multipass Verstärker: Der Puls wird auf verschiedenen geometrischen Wegen in einem weiteren Titan-Saphir-Kristall verstärkt, der durch denselben Laser wie bei der regenerativen Verstärkung gepumpt wird. Die Mehrfachumläufe werden durch eine Anordnung von Spiegeln erreicht, so dass der Strahl nach jeder Reflexion wieder durch den Verstärkerkristall geht. Anschließend wird der Puls ausgekoppelt.
4. **Kompression** Der Puls besitzt nach der Verstärkung immer noch einen großen Chirp. Durch eine Anordnung von zwei Gittern, die sich gegenüberstehen, wird der Puls komprimiert. Durch die Dispersion der Gitter lässt sich die Gruppengeschwindigkeit beeinflussen (GDV: engl. **Group-Velocity-Dispersion**) [15]. Der Puls besitzt nun eine kurze Pulsdauer und hat eine hohe Spitzenintensität. Die Pulsdauer kann mit einem Frog-System (engl. **F**requency **R**esolved **O**ptical **G**ating) ermittelt werden. Die maximale Energie pro Puls beträgt $1,7\text{ mJ}$ am Ausgang ¹.

¹Die angegebenen Quellen [24] und [15] haben mit demselben Laser-System gearbeitet, doch seitdem wurden einige Veränderungen vorgenommen, so dass einige Einzelheiten vom jetzigen Stand abweichen können

Das Spektrum des Lasers bei 800 nm wurde mittels eines Spektrometers (Ocean Optics) aufgenommen und hat eine Halbwertsbreite (FWHM: Full Width at Half Maximum) von 28 nm.

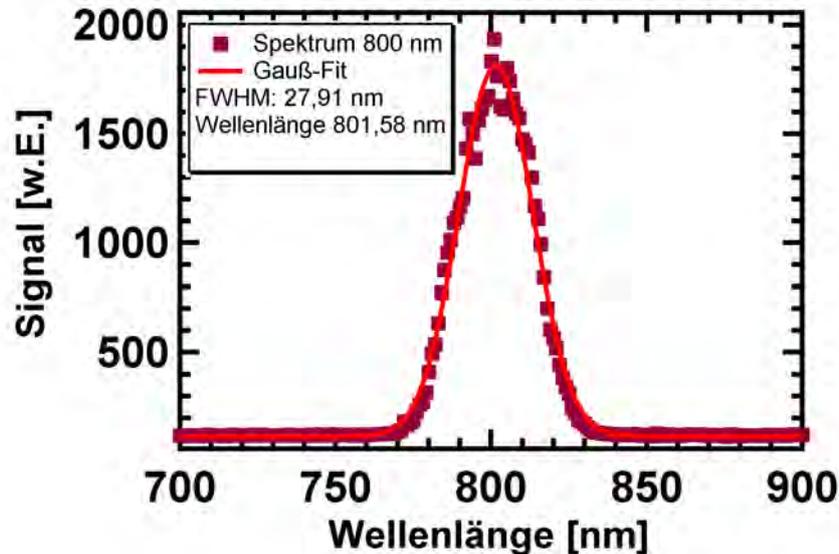


Abbildung 3.1.2.: Das Spektrum der Fundamentalen bei 800 nm. Die FWHM beträgt 28 nm und die Wellenlänge liegt bei 801,58 nm

3.2. Nichtlineare Medien

Die Erzeugung der 6. Harmonischen wird in zwei verschiedenen Prozessen vollzogen. Durch Frequenzverdopplung in einem BBO-Kristall wird die Fundamentale von 800 nm in 400 nm konvertiert. Durch einen Spiegel (45° für 400 nm) wird die Strahlung von 800 nm separiert und anschließend geblockt. Die „neue“ Fundamentale von 400 nm wird in einer Gaszelle fokussiert und erzeugt dort die 3. Harmonische.

3.2.1. BBO-Kristall

Die Verdopplung der Frequenz von 800 nm auf 400 nm erfolgt durch einen Beta-Bariumborat-Kristall ($\beta - BaB_2O_4$), kurz BBO. Dieser zeichnet sich durch eine hohe Transparenz für den Wellenlängenbereich von 210-2100 nm und durch seine effiziente Nichtlinearität aus. Der Kristall hat ein einachsiges trigonales System und eine hohe Zerstörschwelle (5 GW/cm^2) [35]. Der im Experiment benutzte Kristall hat eine Länge L von 0,2 mm. Der Phasenanpassungswinkel von $29,2^\circ$ wurde mit dem Programm SNLO [35] berechnet.

Wie in Kapitel 2.2.1 dargestellt, erwartet man bei korrekter Phasenanpassung einen parabolischen Verlauf der Intensität der 2. Harmonischen in Abhängigkeit der Fundamentalen.

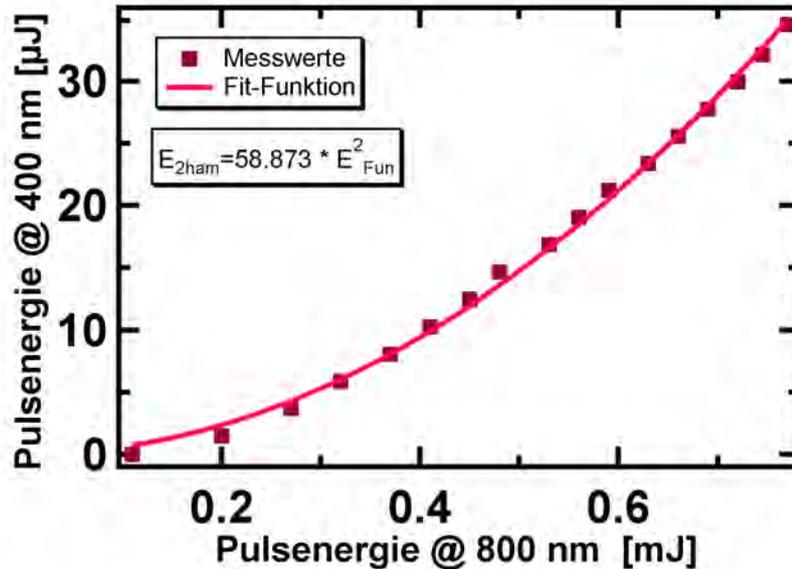


Abbildung 3.2.1.: Die Energie der 2. Harmonischen als Funktion der Energie der Fundamentalen ist proportional zur Intensität. Deutlich sichtbar ist der parabolische Verlauf. Die Energie der 2. Harmonischen steigt quadratisch mit der Energie der Fundamentalen.

Die Energie der 2. Harmonischen wurde mittels eines Energiemonitors bestimmt. Die Energiekonversion zwischen Fundamentale und 2. Harmonische lautet:

$$\frac{E_{2ham}}{E_{Fun}} = 58,879 \cdot E_{Fun} \quad (3.2)$$

Energiemonitor

Um die Intensität der 2. Harmonischen immer aktuell messen zu können, wurde mittels einer Quarzglasplatte ein kleiner Teilstrahl separiert und auf eine Photodiode gebracht. Die Intensität wurde mit Filtern so weit minimiert, dass es zu keiner Übersteuerung oder Beschädigung der Photodiode kommen konnte. Das Signal wurde in einem ADC (engl. für Analog Digital Konverter) digitalisiert. Die gemessenen Werte des ADC werden als „Counts“ dargestellt (willkürliche Einheit). Die Ausgabe der „Counts“ erfolgt durch einen Rechner. Es ist notwendig, eine Kalibrierung durchzuführen, um die Energie als „Counts“ ausdrücken zu können. Sobald Änderungen im optischen Versuchsaufbau vorgenommen werden, muss die Kalibrierung erneut durchgeführt werden.

Die lineare Abhängigkeit zwischen der Energie der 2. Harmonischen und den “Counts“ wurde überprüft. Die Kalibrierung wurde mittels eines Leistungsmessgerätes vorgenommen. Die Leistung lässt sich durch die Repetitionsrate in Impulsenergie umrechnen.

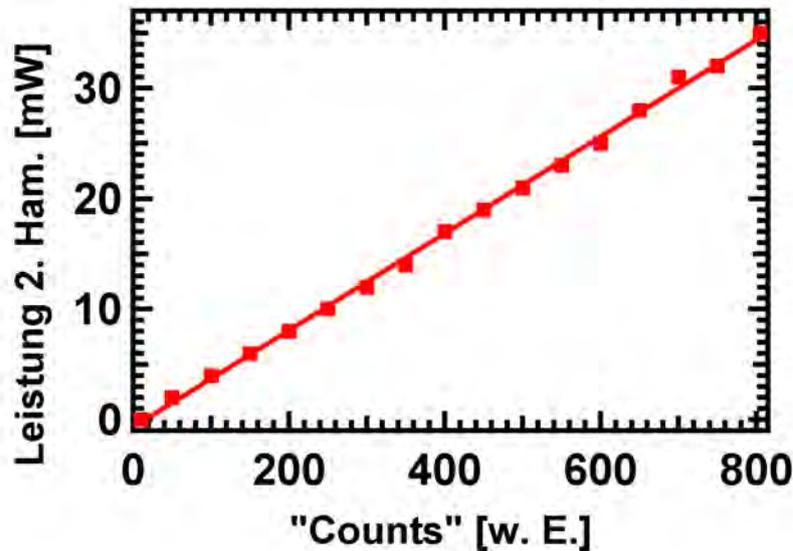


Abbildung 3.2.2.: Beispielleichkurve: Die Leistung der 2. Harmonischen in Abhängigkeit der Counts des ADCs. Nach jedem Umbau wurde die Kalibrierung neu vorgenommen. Die Umrechnung von Leistung in Energie erfolgt durch die Anzahl der Ereignisse (Repetitionfrequenz). Aus der Geradengleichung des linearen Fits erhält man den Umrechnungsfaktor, hier $E = -0,69 \text{ mJ} + 0,01 \text{ mJ} * \text{“counts“}$

Außerdem stellt der Energiemonitor eine Referenz dar, um die Laserparameter wie Kompression, Strahlposition oder Synchronisation des Lasers zu optimieren.

Strahlprofil der 2. Harmonischen

Ein weiterer Teilstrahl wurde mittels einer weiteren Quarzglasplatte separiert und mit einer Linse auf den Chip einer USB-CCD-Kamera (The Imaging Source DMK-21AU04 [36]) fokussiert. Hier muss besonders darauf geachtet werden, dass ausreichend Filterung vorgenommen wird, da es sonst zu Beschädigung des Chips kommt. Durch die Abmaße des Fokus auf dem Chip in horizontaler und vertikaler Richtung mit einem Bildprogramm konnte unter der Kenntnis der Pixellänge die Fläche des Fokus bestimmt werden. Die Pixellänge horizontal sowie vertikal beträgt für die verwendete Kamera $5,6 \mu\text{m}$ [36]. Zugleich lassen sich die Struktur des Strahls, die Position des Intensitätsschwerpunktes und die Geometrie darstellen.

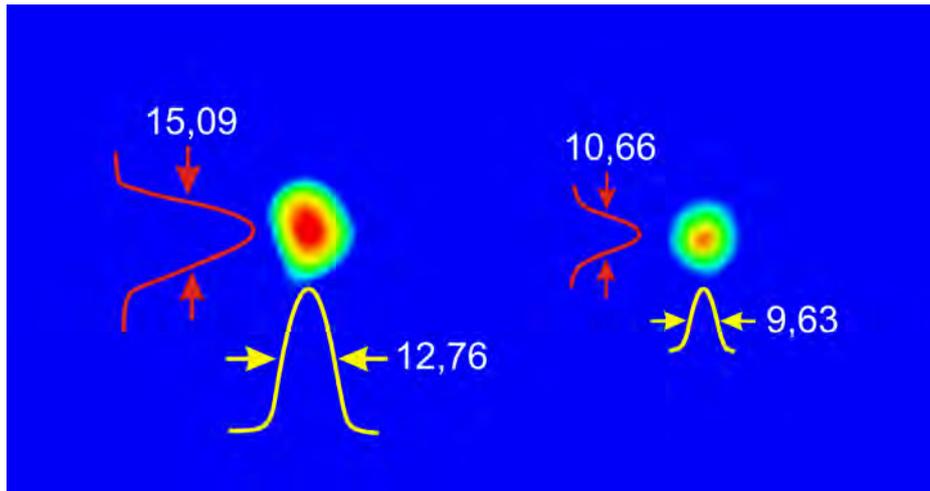


Abbildung 3.2.3.: links: Strahlprofil bei einer Fokussierung mit einer Linse mit $f = 450$ mm, dadurch erreicht man eine Divergenz des Strahls ; rechts: Strahlprofil bei Fokussierung mit doppeltem Strahldurchmesser. Durch ein Teleskop wurde der Durchmesser des Strahls um den Faktor zwei vergrößert. Dies entspricht einer Fokussierung mit einer Linse von $f = 225$ mm. Die Angaben entsprechen der Pixelzahl der FWHM.

Intensitätsbestimmung

Aus dem Strahlprofil lässt sich die Intensität der 2. Harmonischen ermitteln. Durch die Angabe von Energie pro Puls, der Fläche des Fokus und der Pulsdauer lässt sich die Intensität [W/cm^2] bestimmen.

Die Genauigkeit der im Experiment verwendeten Linsen reichte nicht aus, um eine Auswertung vorzunehmen, da maximal 3-4 Pixel auf der CCD-Kamera ausgeleuchtet wurden. Deswegen wurde die Divergenz w des Strahls mit einer Linse mit Brennweite von 450 mm und 225 mm gemessen und die entsprechenden Strahldurchmesser D mit der Formel $D = w * f$ berechnet.

An dieser Stelle werden alle wichtigen Parameter für die im Experiment benutzten Linse dargestellt. Die nachfolgende Tabelle enthält alle relevanten Strahlparameter, auf die teils im weiteren Verlauf dieser Arbeit Bezug genommen wird.

| Brennweite f [mm] | 40 | 50 | 80 |
|------------------------------|----------------------|----------------------|----------------------|
| Fläche F [m^2] | $9,2 \cdot 10^{-10}$ | $1,04 \cdot 10^{-9}$ | $1,42 \cdot 10^{-9}$ |
| Strahltaile w_0 [m] | $1,71 \cdot 10^{-5}$ | $1,82 \cdot 10^{-5}$ | $2,12 \cdot 10^{-5}$ |
| Rayleighlänge z_R [m] | $2,29 \cdot 10^{-3}$ | $2,61 \cdot 10^{-3}$ | $3,54 \cdot 10^{-3}$ |
| konfokaler Parameter b [m] | $4,6 \cdot 10^{-3}$ | $5,22 \cdot 10^{-3}$ | $7,09 \cdot 10^{-3}$ |

3.2.2. Gaszelle und Gassystem

Die Strahlung der 2. Harmonischen wird im Folgenden als die Fundamentale der 3. Harmonischen angesehen. Mittels einer Linse wird der Strahl in einer Gaszelle fokussiert. Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurde zuerst eine Eigenkonstruktion der Zelle benutzt. Diese bestand aus zwei durchbohrten CF-40-Flanschen, deren Schneidkanten nach außen zeigten. Zwischen den Flanschen wurde ein Plexiglasrohr eingepasst und mittels Vakuumkleber befestigt. Durch eine Bohrung an der Außenkante eines Flansches wurde ein Rohransatz eingeschweißt, um in die Zelle Gas einfüllen zu können. Gleichzeitig wurde ein Ansatz mit Gewinde auf der Schneidkantenseite angeschweißt. Das Gegenstück des Gewindes war ein durchgebohrter Deckel, in dem mittels Gummidichtungen ein CaF_2 -Fenster verschraubt wurde. Dieses ist für Strahlung von 133 nm transparent. Die Absorptionskante von CaF_2 liegt bei etwa 120 nm und hat eine Transmission von etwa 60% [29] für Strahlung von 133 nm . So ist es möglich, die Gaszelle von der Vakuumkammer zu trennen. Die vakuumkammerferne Seite wurde mittels eines CF-40-Fensterflansches verschlossen.

Im Experiment wurde schließlich festgestellt, dass die Dichtigkeit der Gaszelle entscheidend für die harmonischen Erzeugung ist. Da es zu Undichtigkeiten an den Klebestellen des Plexiglases kam, wurde die Gaszelle mittels eines kommerziellen Glas-Metall-Flansches (MDC-Vacuum) modifiziert, so dass die Undichtigkeiten minimiert wurden. Gleichzeitig wurde ein Absperrventil am Gaseinlass angebracht, um die verwendeten Gase in der Kammer einschließen zu können.

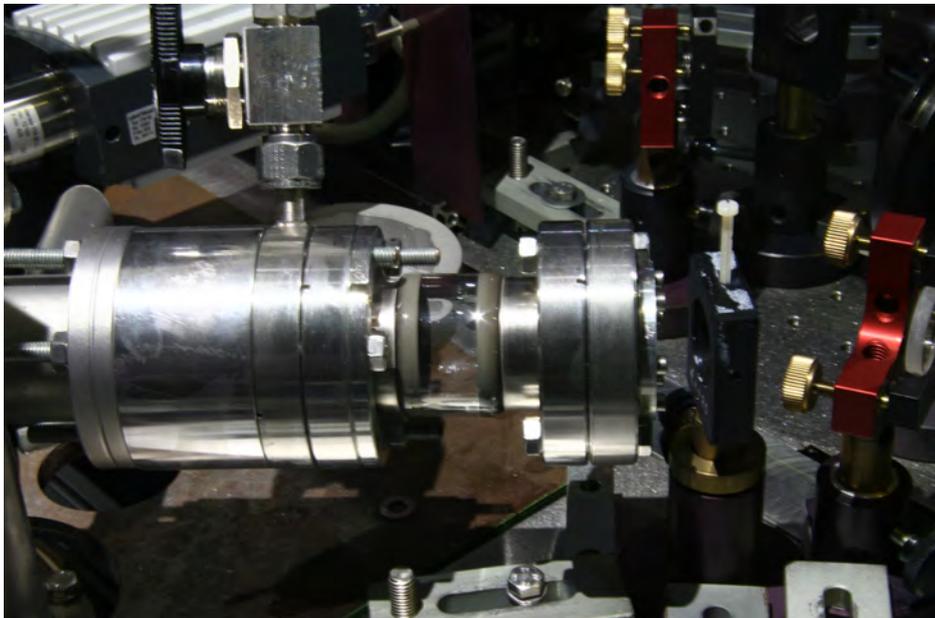


Abbildung 3.2.4.: Foto der neue Gaszelle. Auf der rechten Seite wird der Strahl fokussiert in die Gaszelle eingeführt. Auf der linken Seite ist die Zelle mit der Vakuumkammer verbunden, dort verlässt der Strahl die Zelle.

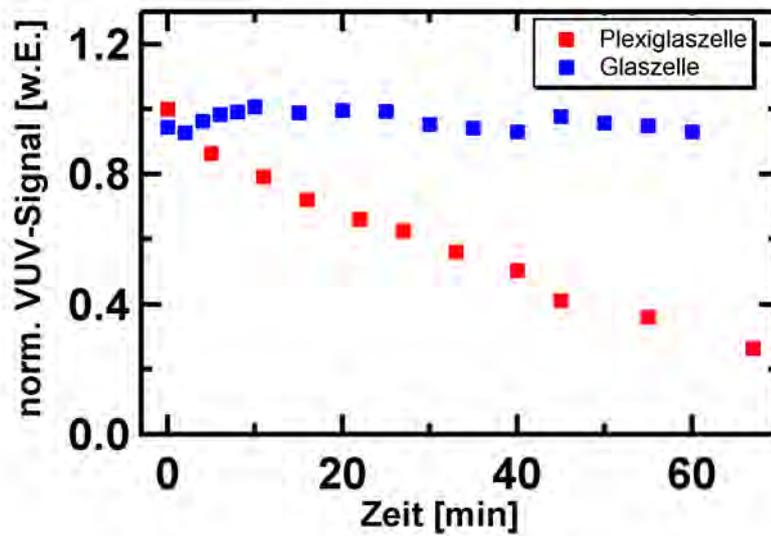


Abbildung 3.2.5.: Die Problematik mit der selbstkonstruierten Plexiglaszelle zeigt die rote Kurve. Die Signalstärke der VUV-Strahlung nimmt auf Grund von Verunreinigung mit Umgebungsluft sehr schnell ab.

Die Versuchsgase wurden mittels eines Gassystems in die Zelle eingefüllt oder evakuiert. Der Gasvorrat wurde mit Hilfe eines Dosierventils dem Gassystem zugeführt. Durch einen Druckmesser (Pfeifer APR 250), der speziell für Edelgase geeicht² war, konnte ein bestimmter Druck eingestellt werden. Durch ein weiteres Dosierventil konnte das Gas mit einer Drehschieberpumpe (Varian SD 230) abgepumpt werden. So war es möglich, einen Druck zwischen 1 *mbar* und 1000 *mbar* präzise einzustellen. In dieser Arbeit wird die Druckeinheit *mbar* der SI-Einheit *Pascal* vorgezogen, da ein Großteil der Literatur und Messgeräte erstere verwendet. Mit einer weiteren CCD-Kamera an der Gaszelle konnte ein Fokusmonitor eingerichtet werden.

3.3. Detektion der 9 *eV*-Strahlung

Die Detektion einer Strahlung von 133 *nm* muss im Vakuum erfolgen, da sonst die Strahlung durch Reabsorptionen nicht mehr oder nicht ausreichend am Detektor nachgewiesen werden kann. Die Detektion erfolgt indirekt. Ein Phosphorschirm emittiert Strahlung einer bestimmten Wellenlänge, wenn der Phosphor mit energiereicher Strahlung angeregt wird. Die Strahlung des Phosphors wird mit einer CCD-Kamera beobachtet.

² Bei der Verwendung von Edelgasen, wie Argon muss einem speziellen Druckmesser verwendet werden, da der Druck sonst falsch angezeigt wird.

3.3.1. Erzeugung eines Vakuums

Die Kammer, in der sich das Gitter befand, wurde durch eine Turbomolekularpumpe (Pfeifer TPU-240) evakuiert. Das Vorvakuum wurde durch eine Drehschieberpumpe (Varian SD 230) hergestellt. Die Druckkontrolle erfolgte mittels eines *Full – Range*-Manometers (Leybold Ionivac). Dieses hat zwei unterschiedliche Messköpfe, einen für den Grob/Feinvakuumbereich (Bayard-Alpert-Manometer) und einen für den Ultra-hochvakuumbereich (Ionisationsmanometer). Um einen effektiven Nachweis zu gewährleisten, wurde ein Druck von $10^{-7} - 10^{-8}$ mbar angestrebt, da die Reabsorptionslänge bei solchen Drücken sehr groß ist und somit der Großteil der Strahlung am Detektor ankommt.

3.3.2. Torodiales Gitter

Es wurde ein tordiales Reflexionsgitter verwendet. Durch seine dispersiven Eigenschaften lässt sich Strahlung nach unterschiedlichen Wellenlängen separieren, während zugleich die Eigenschaften eines Hohlspiegels durch die toroide Bauweise gegeben sind. Die technischen Daten des Gitters sind wie folgt:

- Arbeitsbereich: 15 – 150nm
- Striche pro mm: 550
- spektrales Auflösungsvermögen: 0,57 nm
- Abmessung: 31x31x15 mm
- Objektabstand: 320 mm
- Abbildungsabstand: 320 mm
- Einfallswinkel: 72°
- Hersteller: Yobin Yvon

Die Drehung des Gitters erfolgte durch eine Drehdurchführung von außerhalb der Vakuumkammer, die im Folgenden als Rotator bezeichnet wird.

Gittergleichung und Winkeldispersion

Die Berechnung des Winkels für ein Reflektionsgitter erfolgt über die Gittergleichung:

$$m\lambda = g(\sin(\phi_1) + \sin(\phi_2)) \quad (3.3)$$

wobei m die Beugungsordnung ist und g die Gitterkonstante. Das Gitter ist für einen festen Umlenkwinkel konstruiert. So ergibt sich für die Summe von Einfallswinkel ϕ_e und Ausfallswinkel ϕ_a einen fester Winkel von 144° . Die Drehung des Gitters wird über einen Winkel α ausgedrückt. Daraus folgt:

$$\phi_1 = \phi_e - \alpha \text{ und } \phi_2 = \phi_a + \alpha \quad (3.4)$$

Durch Anwendung der Additionstheoreme lässt sich folgende Form für den gesuchten Verschiebewinkel finden:

$$\alpha = \arcsin\left(\frac{\lambda}{2 \cdot g \cdot \cos(72^\circ)}\right) \quad (3.5)$$

Der Winkel für eine Strahlung von 133 nm beträgt $6,79^\circ$.

Unter Berücksichtigung der Winkeldispersion für ein Gitter

$$\frac{\partial \alpha}{\partial \lambda} = \frac{1}{g \cdot \cos(\phi_2)} \quad (3.6)$$

lässt sich der spektrale Bereich für einen bestimmten Winkel bestimmen.

Der Rowlandkreis

Bei der Verwendung eines torodialen Gitters liegen die Fokuse aller Strahlen auf einem Kreis, dem Rowlandkreis. Der Radius des Rowlandkreises entspricht der Hälfte des Krümmungskreises des Gitters $r_{\text{Rowland}} = 1/2 \cdot r_{\text{Gitter}}$. Bei der Strahlführung in die Kammer muss gewährleistet sein, dass der Fokus des einfallenden Strahls auf dem Rowlandkreis liegt.

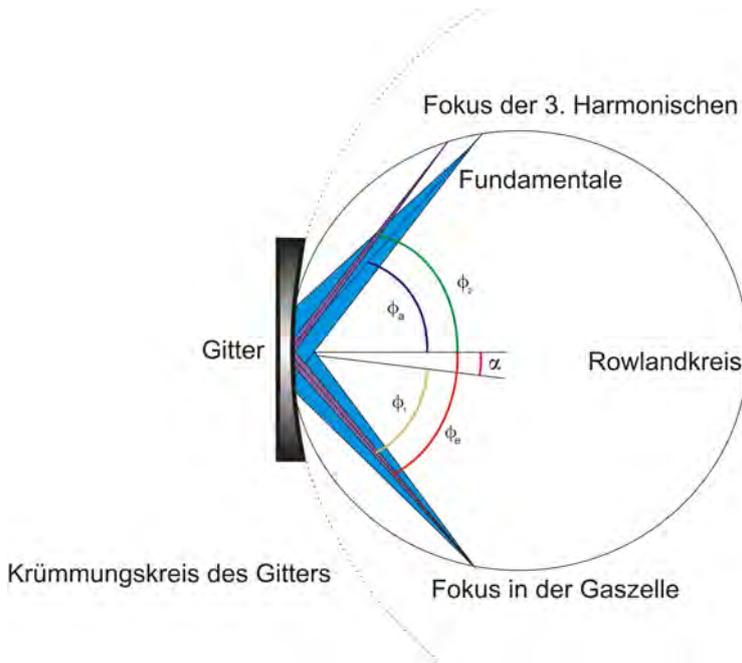


Abbildung 3.3.1.: Anschauliche Darstellung des Rowlandkreises bezogen auf den verwendeten Versuchsaufbau. Die Winkelrelationen sind unter 3.4 aufgeführt. Dies ist nur eine bildliche Veranschaulichung und entspricht nur qualitativ dem physikalischen Sachverhalt. Durch die Drehung würde auch der Rowlandkreis gedreht werden. Dies wird hier, wie im Experiment, vernachlässigt, da der Winkel sehr klein ist.

Der Abbildungsabstand entspricht einem Punkt auf dem Rowlandkreis und hat dieselbe Länge wie der Objektabstand. Der Detektor, bzw. der Phosphorschirm muss sich genau an diesem Punkt befinden, um eine 1:1 Abbildung zu gewährleisten. Wenn der Fokus des einfallenden Strahls nicht auf dem Rowlandkreis liegt, so kann es zu Astigmatismus kommen.

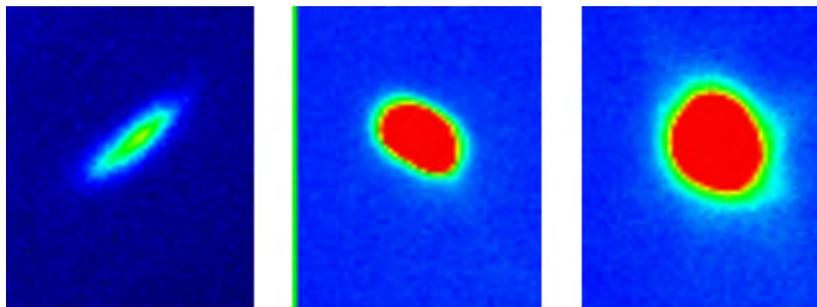


Abbildung 3.3.2.: Fokusse der Fundamentale: links: Außerhalb des Rowlandkreises => Fundamentale ist nach links geneigt, Mitte: Innerhalb des Rowlandkreises => Fundamentale ist nach rechts geneigt, rechts: Auf dem Rowlandkreis = Größe, Position und Geometrie entsprechen denen ohne Linse. Die Bilder wurden bei unterschiedlicher Intensität aufgenommen. Deswegen sind die Bilder in der Mitte und Rechts übersteuert.

Die Justage der Linse ist für den Versuch von entscheidender Wichtigkeit. Die grundlegenden Maßnahmen sollen hier kurz dargestellt werden:

1. Durch Drehen des Gitters auf die 0. Ordnung lässt sich die Abbildung der Fundamentalen auf dem Detektor sichtbar machen. Die Intensität muss so gering wie möglich sein, um keine Beschädigung am Detektor zu verursachen.
2. Der Strahlengang wird erst ohne Linse justiert. Dabei sollte der Strahl mittig durch das Eintrittsfenster gehen, mittig auf dem Gitter sowie auf dem Detektor sein.
Die Position auf dem Gitter sollte mit einer CCD-Kamera überwacht werden. Dies lässt sich durch eine CCD-Kamera (Strahlpositionsmonitor) realisieren, die sich außerhalb der Vakuumkammer befindet, wenn oberhalb des Gitters ein Fensterflansch montiert ist.
3. Position und Größe der Fundamentalen werden durch Legen eines ROI (engl. Bereich der Interesse) festgehalten.
4. Das Einbringen der Linse muss so erfolgen, dass der Strahl mittig durch die Linse geht und dass die Abbildung auf dem Detektor an derselben Position ist wie vor Einbringen der Linse.
5. Ziel ist es, den Brennpunkt exakt auf dem Rowlandkreis abzubilden. Falls nicht, erhält man abhängig von der Lage eine Ellipse wie in Abbildung 3.3.2 gezeigt.
6. Feinjustage: Die Größe des Brennpunktes wird durch Verschiebung der Linse entlang der Strahlrichtung beeinflusst. Die horizontale Breite des Brennpunktes kann durch eine Kombination von Verschiebung der Linse in horizontaler Richtung und entlang der Strahlrichtung minimiert werden. Analog erfolgt dies für die vertikale Breite
7. Die Prozedur von Punkt 6 soll so lange durchgeführt werden, bis sich der Brennpunkt an derselben Position befindet wie ohne Linse und sollte rund auf dem Schirm abgebildet werden.

Auflösungsvermögen des Spektrometers

Die maximale Unterscheidbarkeit zweier benachbarter Wellenlängen lässt sich durch die Auflösung des Spektrometers ausdrücken. Die maximale Auflösung kann über die Halbwertsbreite der Fundamentalen bestimmt werden. Die Wellenlängendifferenz $\Delta\lambda$ lässt sich durch folgende Beziehung ausdrücken:

$$\Delta\lambda = \Delta\phi \cdot \left(\frac{\partial\alpha}{\partial\lambda}\right)^{-1} \quad (3.7)$$

Mit der Halbwertsbreite bei optimal eingestelltem Strahlengang von $3,757 \text{ mrad}$ der Fundamentalen und der Winkeldispersion für 133 nm erhält man eine maximale Auflösung von $1,32 \text{ nm}$ für diesen spektralen Bereich.

Eichung des Gitters

Um einen Winkel genau bestimmen zu können, muss das Spektrometer geeicht werden. Dazu verwendet man den Winkel von zwei bekannten Wellenlängen. Dies erfolgte über die Winkelposition der 3. Harmonischen von 800 nm (267 nm) und 0. Ordnung der Fundamentalen (800 nm). Der genaue Winkel betrug $13,74^\circ$.

3.3.3. Blende und Filter

Bei der experimentellen Durchführung ergaben sich anfängliche Probleme mit Streulicht der Fundamentalen. Durch Reflexionen der Fundamentalen wurde die 3. Harmonische überdeckt. Um dieses Problem zu minimieren, wurde eine Schlitzblende konstruiert und in das Nachweisrohr eingebaut. Die Schlitzbreite muss mindestens der spektralen Breite der 3. Harmonischen entsprechen. So konnte das Streulicht soweit unterdrückt werden, dass die 3. Harmonische sichtbar wurde.

Die aufgenommenen Spektren wiesen aber einen hohen Untergrund auf, der von der Reflexion der Fundamentalen verursacht wurde.

Durch Einbau eines VUV-Bandpassfilters für $129,5 \text{ nm}$ (Pehlham Research: Broadband-VUV-Filter) konnte der Untergrund maßgeblich reduziert werden. Der Filter besteht aus CaF_2 , der mit einer metallischen Multilagenschicht bedampft wurde. Die Transmission für $129,5 \text{ nm}$ beträgt 37% .

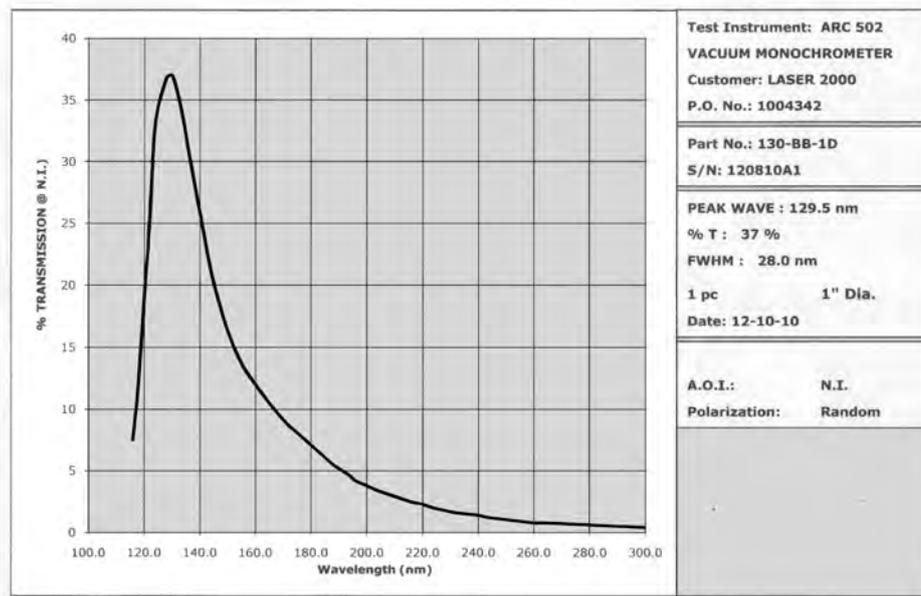


Abbildung 3.3.3.: Vom Hersteller gemessene Transmission des VUV-Filters für den Wellenlängenbereich von 100 nm - 300 nm. Kurve wurde digitalisiert.

Für die Transmission des Bandpassfilter für die 400 nm wurde durch Messung mit einem Spektrometers (Pelkin) einen Wert von 0,3 % ermittelt.

3.3.4. Szintillator

Die VUV-Strahlung ist mit optischen Instrumenten schwer zu detektieren. Um die Strahlung von 133 nm nachweisen zu können, braucht man einen Prozess, der die Strahlung für den Detektor sichtbar macht. Dies erfolgte durch Verwendung von Phosphor³. Durch die Einstrahlung von Strahlung hoher Energie werden Elektronen auf ein höheres Energieniveau gehoben und relaxieren anschließend wieder. Dies erfolgt aufgrund der Auswahlregeln für Dipolübergänge aber nicht auf dem direkten Weg, sondern über Zwischenniveaus. Ein atomarer Übergang entspricht einer Frequenz im grünen Spektrum. Die einstrahlende Strahlung muss eine Mindestenergie aufweisen, die über der emittierten Strahlung des Phosphors liegt.

Als Szintillatormaterial wurde im Experiment pulverförmiges *Gadolinium-Oxisulfid-dotiertes Terbium* ($Gd_2O_2S : Tb$), besser bekannt unter dem Name P43 (Hersteller: Sylvania, Type 2611) [15] verwendet. Durch Auftragen in einer Ethanollösung auf einen Fensterflansch ist dieser Szintillator nicht nur vakuumtauglich, sondern auch kostengünstig und einfach in der Handhabung. Ein Nachteil bei dieser Art des Nachweises ist die Intensitätsabnahme bei zu großer Schichtdicke, die bei jedem Phosphor auftritt.

³Die Bezeichnung Phosphor ist sehr irreführend, weil die Szintillatoren meist chemisch keinen Phosphor aufweisen. Auch ist der Wirkmechanismus bei chemischem Phosphor ein anderer (chemischer Prozess). Der Grund ist eher historischer Natur.

3.3.5. Detektor

Durch die Einstrahlung der Harmonischen leuchtet der Phosphor grün. Durch eine CCD-Kamera, die außerhalb der Vakuumkammer am Phosphorschirm steht, kann der leuchtende Bereich dargestellt werden.

In diesem Experiment wurde eine lichtempfindliche Kamera der Firma Hamamatsu (C4742-95)[1] (Auflösung 512×512) mit einem 16 mm Objektiv verwendet. Vor dem Objektiv wurde ein weiterer Filter (800/400 nm Reflektionsbeschichtung) eingebracht, um das Streulicht, das von der Fundamentale verursacht wurde, zu unterdrücken. Um das Umgebungslicht zu minimieren, wurde das Umfeld der Kamera abgedunkelt. Die Steuerung der Kamera wurde über einen Rechner mit geeigneter Software vorgenommen (HPD-TA-Ver.3.9 der Firma Hamamatsu). So konnten folgende Parameter gesteuert werden:

Belichtungszeit, Verstärkung, Vergrößerung und histogrammische Parameter (Es lassen sich Bereiche des Histogramms ausblenden).

Mit der Software konnten die aufgenommenen Bilder gespeichert werden. Die Kamera arbeitet mit einer 10 bit Auflösung, d. h. das aufgenommen Bild kann in $2^{10} = 1024$ Abstufungen unterschieden werden.

Abhängigkeit der Intensität mit der Belichtungszeit

Für die Reduzierung der Pulsenergie der Fundamentalen ist es erforderlich, die Belichtungszeit zu erhöhen. Die Änderung der Belichtungszeit hat Einfluss auf die Signalstärke, da sich erstere proportional zur letzteren verhält, wenn das Signal nicht sättigt. So lässt sich die Signalstärke bei unterschiedlichen Belichtungszeiten sehr einfach auf vergleichbare Werte umrechnen.

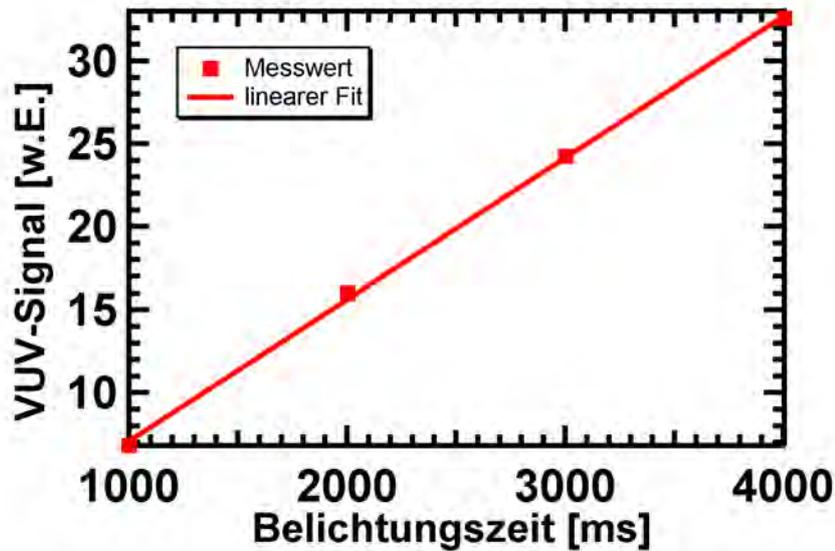


Abbildung 3.3.4.: Durch Änderung der Belichtungszeit ändert sich die Signalstärke linear. Durch Normierung des Signals auf eine einheitliche Belichtungszeit sind die unterschiedlichen Signalstärken vergleichbar.

Photodiode

Um die Fluenz der 3. Harmonischen besser abschätzen zu können, wurden die CCD-Kamera und der Szintillator entfernt und durch eine Photodiode (AXUV20-HS1-BNC) ersetzt ⁴. Diese wurde direkt ins Vakuum in das Nachweisrohr eingebaut. Der Durchmesser der Photodiode beträgt 5 mm [18] und ist für die Detektion der 3. Harmonischen ausreichend. Die Gesamtbreite des Signals auf dem Phosphor wurde etwa auf 3 mm berechnet. Der VUV-Bandpass-Filter wurde unmittelbar vor der Photodiode befestigt. Durch einen BNC-Anschluss (50 Ω) an der Atmosphärenseite konnte die Photodiode über einen einfachen elektrischen Verstärker an ein Oszilloskop (Lecroy Wavepro 7300 A, 3 GHz) angeschlossen werden. Als Trigger wurde das Signal des Energiemonitors verwendet. Die Messung erfolgte in Sperrrichtung der Diode. Um die Detektion der 3. Harmonischen zu gewährleisten, wurde diese vor dem Umbau mittig auf den Phosphorschirm positioniert. Der Umbau wurde unmittelbar durchgeführt.

⁴nicht in Abbildung 3.4.1 eingezeichnet.

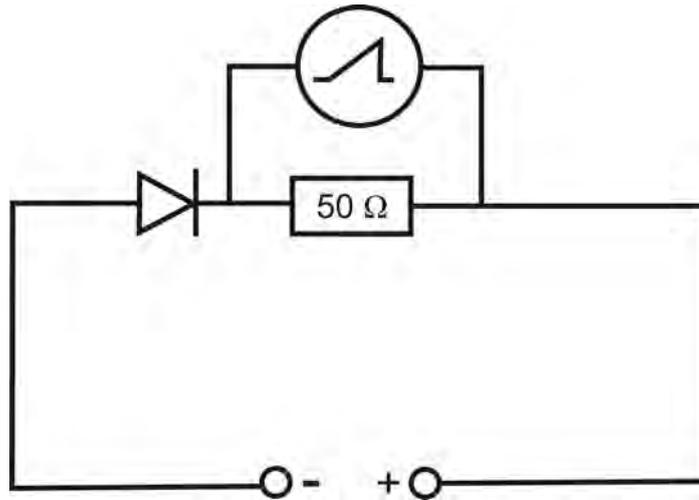


Abbildung 3.3.5.: Schaltbild der Fluenzmessung mit der Photodiode. Die Messung erfolgte in Sperrrichtung.

Die Quanteneffizienz, die das Verhältnis von Photonen zu Elektronen angibt, entspricht für den Wellenlängenbereich von 130 nm etwa $0,14\text{ [A/W]}$ bzw. $[Q/J]$ [18]. Durch die Integration des Spannungsverlaufs kann Ladung Q berechnet werden.

$$Q = \frac{\int V(t)dt}{50\Omega} \quad (3.8)$$

Dadurch lässt sich die Energie des VUV-Pulses bestimmt werden.

Für ein Zeitintervall von 1 ns (wie in Abbildung 4.3.1) lässt sich das Integral vereinfachen zu $V_0 \cdot 1\text{ ns}$ und man erhält dann

$$V_0 = \frac{0,14\text{ [Q/J]} \cdot E_{133}\text{[J]} \cdot 50\Omega}{1\text{ns}} = 1 \cdot 10^{-8} \frac{\text{V}}{\text{Photon}} \quad (3.9)$$

3.4. Der gesamte experimenteller Aufbau

Unter Vernachlässigung einiger Details lässt sich der gesamte experimentelle Aufbau schematisch darstellen. Die Messung der Fluenz und die Strahlaufweitung sind nicht eingezeichnet. Auch wurden Blenden, die die Strahlposition fixieren, aufgrund der Übersichtlichkeit nicht eingezeichnet.

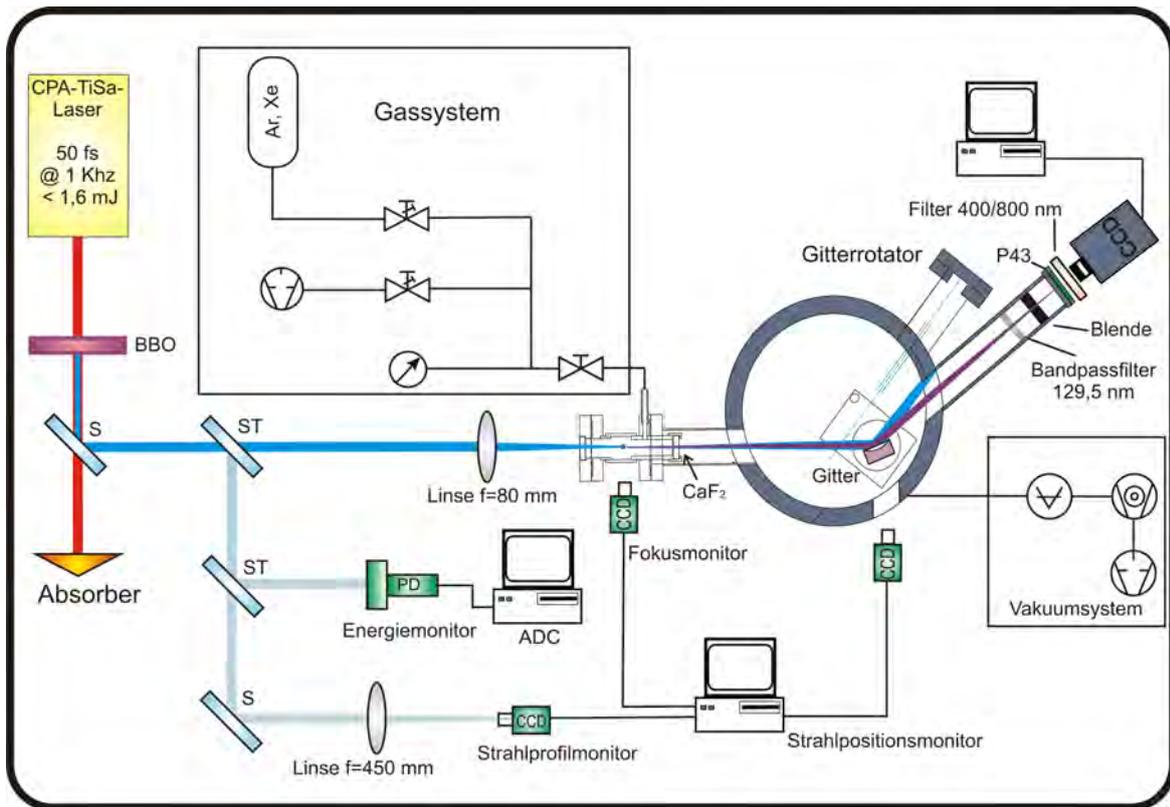


Abbildung 3.4.1.: Der gesamte schematische experimentelle Aufbau. *ST* steht für Strahlteiler, *S* steht für Spiegel und *PD* steht für Photodiode. Alle weiteren Komponenten wurden in diesem Kapitel vorgestellt.

4. Erzeugung und Charakterisierung der VUV-Strahlung

In den nächsten drei Kapiteln werden die Messergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst dargestellt und mit den theoretischen Modellen verglichen. Anschließend werden die Messergebnisse diskutiert und denen bestehender Arbeiten gegenübergestellt. Die Erzeugung der 3. Harmonischen wurde in den Edelgasen Argon und Xenon erfolgreich vorgenommen. Dieses Kapitel beschäftigt sich zunächst mit der erfolgreichen Detektion der 9 eV-Strahlung, mit der Darstellung des Spektrums und mit der Messung der Fluenz der 9 eV-Strahlung.

4.1. Auswertung der VUV-Signale

Mit der Kenntnis des genauen Winkels konnte das Spektrometer so eingestellt werden, dass die VUV-Strahlung erfolgreich detektiert werden konnte. Das Signal der CCD-Kamera wird als Matrix, deren Spalten und Zeilen die einzelnen Pixel repräsentieren, gespeichert. Jeder einzelne Pixel kann einen Wert zwischen 0 und 1024 „Counts“ annehmen. Die „Counts“ der Kamera sind proportional zu den Ladungen, die durch die Einstrahlung im Pixel erzeugt werden. Die Matrixeinträge können grafisch dargestellt werden, indem die Anzahl der „Counts“ einer Farbe zugeordnet werden.

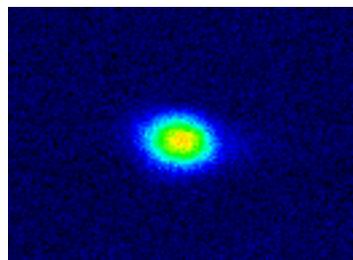


Abbildung 4.1.1.: Die aufgenommenen Messdaten als grafische Darstellung. Die Erzeugung wurde in Argon vorgenommen. Die Energie der 2. Harmonischen betrug $86 \mu J$. Das Spektrum wird durch die horizontale Richtung und die räumliche Verteilung auf dem Gitter durch die vertikale Richtung repräsentiert.

Mit der Software Labview[©] aus dem Hause National Instruments wurde ein Programm namens „UED 4.1“ zur Auswertung der aufgenommenen Messdaten verwendet. Dieses Programm wurde ursprünglich von Dr. Ping Zhou für die Elektronenbeugung geschrieben. Die Funktionalität des Programmes ist sehr umfangreich und für die Auswertung der Messdaten dieser Arbeit mehr als ausreichend.

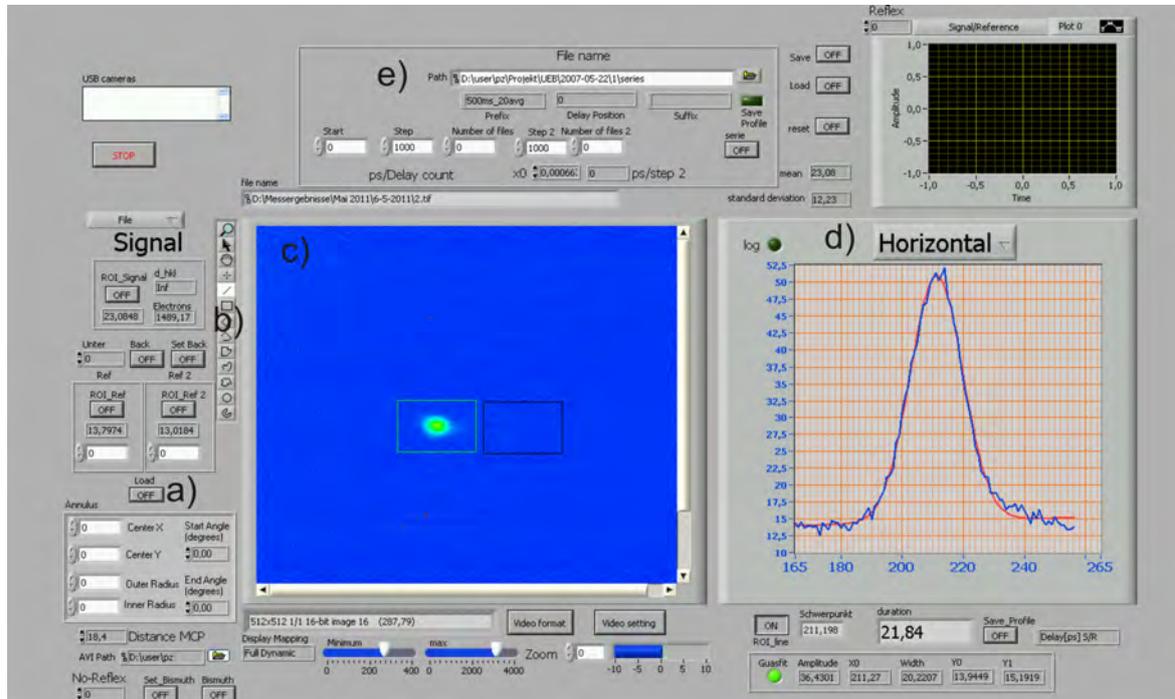


Abbildung 4.1.2.: Screenshot des Programms UED 4.1. a) Laden der Messdaten als Bild b) Verschiedene Tools wie *Zoom*, *Schnitt*, *ROI*, usw. c) Darstellung als Bild. d) Darstellung eines Schnittes oder eines ROI in vertikaler oder horizontaler Richtung. e) Serienfunktion um Messreihen auswerten zu können.

Wie in Abbildung 4.1.2 zu sehen ist, wird ein „Kasten“ um das Signal gelegt, um dieses qualitativ auswerten zu können. Dieser „Kasten“ wird als **Region of Interest** (Bereich des Interesse) bezeichnet. In vertikale Richtung wird das Signal für jeden horizontalen Pixel gemittelt. Der Untergrund, auf dem sich das Signal befindet, kommt durch den „Offset“ der Kamera zustande. Es fließt ein Dunkelstrom, der auch ohne Einfluss von Lichteinfall existiert. Die relative Schwankung des Untergrundes nimmt mit der Anzahl der Ereignisse N , die den Pixeln in vertikaler Richtung entsprechen, wurzelförmig ab. Durch die Aufsummierung der Bildpixel in horizontaler Richtung kann die Fläche unterhalb des Signals bestimmt werden, die ein Maß für die Signalstärke darstellt. Dieser Wert wird anschließend noch durch die Anzahl der Pixel in vertikaler Richtung dividiert. Durch Legen eines zweiten „ROI“ direkt neben dem Signal mit derselben Größe kann der Mittelwert des Untergrundes bestimmt und anschließend vom Gesamtsignal abgezogen werden.

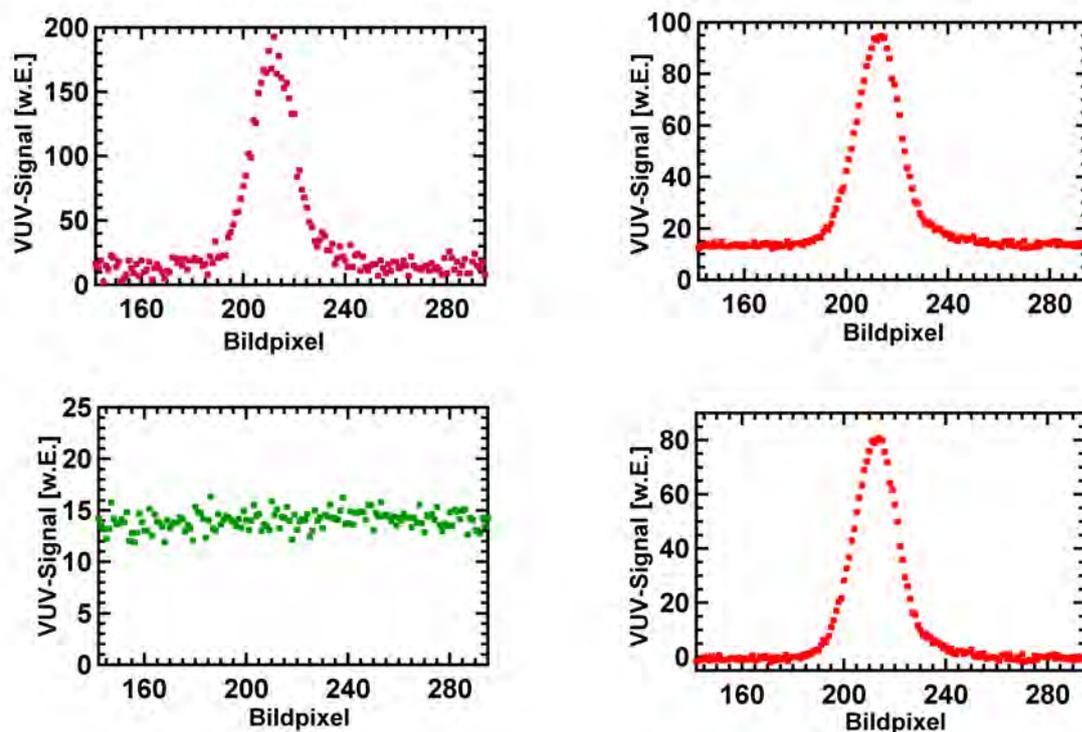


Abbildung 4.1.3.: Auswertung der VUV-Signale: *oben links:* Einfacher Schnitt durch das Signal. Signal und Untergrund unterliegen großen Schwankungen, hier etwa um den Wert 20; *oben rechts:* Durch Mittelung in vertikaler Richtung nimmt die Schwankung des Untergrundes mit \sqrt{N} ab, hier etwa 30 Pixel; *unten links:* Auswertung des Untergrundes; Nach Mittelung nimmt die relative Schwankung ab, hier $20/\sqrt{30} = 3,6$; *unten rechts:* Durch Abzug des Untergrunds erhält man das „reine“ Signal. Durch Berechnung des Flächeninhaltes erhält man ein Maß für die Signalstärke.

4.2. Auswertung des Spektrums

Um den spektralen Ausschnitt um das Signal zu bestimmen, wird zunächst der Winkel des Gitters bestimmt. Der ermittelte Winkel für die 9 eV-Strahlung betrug $6,66^\circ$ und mit Gleichung 3.5 erhält man die Wellenlänge von $130,5 \text{ nm}$ für den Schwerpunkt des Maximums. Mit der Winkeldispersion aus Gleichung 3.6 lässt sich folgende Beziehung herleiten:

$$\frac{\partial \lambda}{\partial \text{pixel}} = g \cdot \cos(\phi_2) \frac{\partial \phi}{\partial \text{pixel}} \quad (4.1)$$

Aus der Auswertung des Bildmaterials ergab sich eine Beziehung für

$$\frac{\partial \phi}{\partial \text{pixel}} = 2,8 \cdot 10^{-4} \frac{\text{nm}}{\text{pixel}} \quad (4.2)$$

Mit diesen Angaben lässt sich das Spektrum der detektierten Strahlung bestimmen.

4.3. Bestimmung der Fluenz

Mit der Kenntnis der Fluenz [mJ/cm^2] der 3. Harmonischen lässt sich mit der Pulsdauer die Intensität bestimmen. So lässt sich die Konversionseffizienz des Prozesses bestimmen. Daraus lässt sich dann die Anzahl der Photonen am Detektor abschätzen und das VUV-Signal als Intensität identifizieren. Der experimentelle Aufbau wurde, wie in Kapitel 3.3.5 beschrieben, dafür modifiziert.

4.3.1. Abschätzung

Mit einer einfachen Abschätzung lässt sich die Photonenzahl der Fundamentalen bestimmen. Die Anzahl der Photonen n pro Puls lässt sich durch folgende Formel ermitteln:

$$E = n\hbar\omega = \frac{nhc}{\lambda} \Leftrightarrow n = \frac{E\lambda}{hc} \quad (4.3)$$

Für 400 nm bei 85 μJ erhält man dann $1,9 \cdot 10^{14}$ Photonen pro Puls. Dabei wurden Absorptionsprozesse vernachlässigt.

In der Diplomarbeit von O. Heinz [15] wurde die Effizienz des Phosphors bezogen auf die „Counts“ der verwendeten Hamamatsu Kamera abgeschätzt. Ein „Count“ auf der Kamera entspricht 2400 Photonen. Wenn man die Gesamtanzahl der „Counts“ in einem ROI bestimmt, erhält man etwa $2 \cdot 10^5$ Photonen pro Puls, unter Berücksichtigung der Filterung (CaF_2 : = 60 % und VUV-Filter: = 37 %). Daraus folgt eine Konversion von $5 \cdot 10^{-8}$. Dabei wurden Reflektivität von Gitter und an Oberflächen des CaF_2 nicht berücksichtigt.

4.3.2. Detektion mit Photodiode

Die Abschätzung basiert auf der Annahme, dass die Kalibrierung richtig durchgeführt wurde. Eine direkte Messung ist erforderlich, um die Abschätzung zu bestätigen. Deswegen wurde versucht, mit einer Photodiode die erzeugte VUV-Strahlung direkt zu messen. Dabei wurde die Photodiode in den Nachweis als Detektor eingebaut. Das detektierte Signal entsprach etwa 10^6 Photonen.

Wie sich herausstellte, handelte es sich bei dem Signal, das von der Photodiode gemessen wurde, größtenteils um Streulicht der 400 nm-Strahlung. Durch Drehung des Gitters hin zur 0. Ordnung nahm das Signal auf dem Oszilloskop zu und beim Drehen weg von der 0. Ordnung ab. Es wurden einige Versuche unternommen, das VUV-Signal vom Untergrund zu separieren. Es wurde zunächst versucht, das VUV-Signal in der

2. Ordnung zu messen, weil dort der Winkel so groß war, dass kein Streulicht mehr auftrat. Aufgrund geringer Beugungseffizienz konnte im Winkelbereich um den theoretischen Winkel von $13,58^\circ$ kein Signal identifiziert werden.

Eine weitere vielversprechende Möglichkeit bestand darin, dass Signal am Detektor zu verstärken und eine Messung des Signals als Funktion des Druckes von Argon vorzunehmen. Wenn das Streulicht konstant bleibt, lässt sich das 9 eV -Signal durch den Verlauf, wie z. B. in Abbildung 5.2.1 zu sehen ist, mit dem Druck identifizieren.

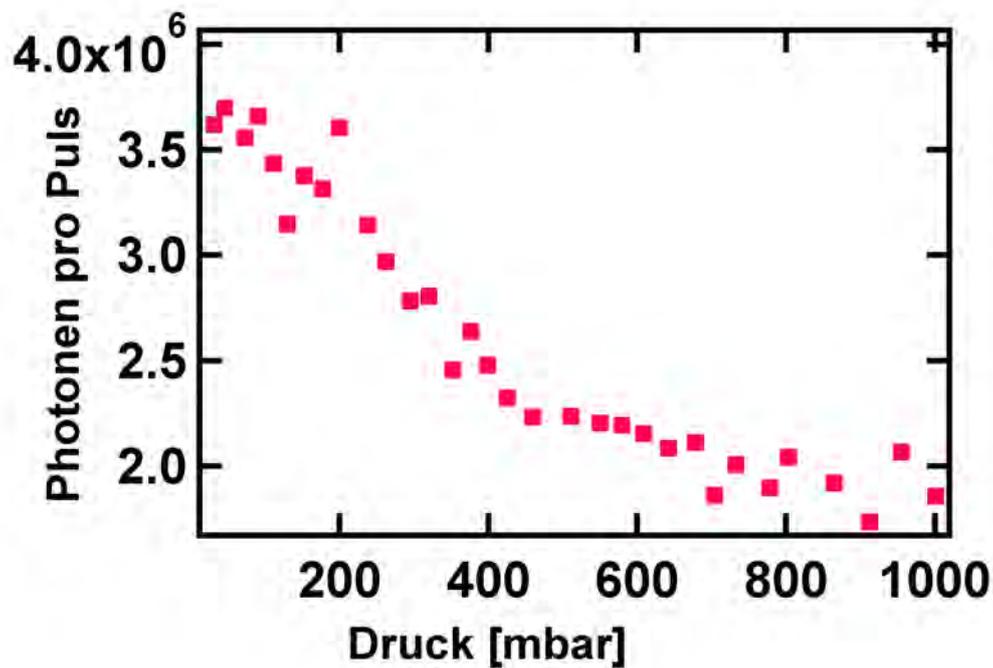


Abbildung 4.3.1.: Der Flächeninhalt unter der Oszillator-Kurve wurde mit Gleichung 3.8 bestimmt. Das Zeitintervall betrug 1 ns . Die Messung wurde in Argon durchgeführt. Bei dieser Messung sollte die Abhängigkeit der Strahlung mit dem Druck gemessen werden, wie in 5.2.1 zu sehen ist.

Bei zunehmendem Druck fällt die Anzahl der Photonen ab. Zu erwarten wäre ein minimales Signal bei 1 mbar , ein maximales Signal bei 300 mbar und ein mittleres Signal bei 1000 mbar .

Durch den Druckanstieg wurde die Intensität der Fundamentalen verringert. Dies könnte durch den Anstieg von Streuprozessen der Strahlung mit den Gasmolekülen erklärt werden. Um das Signal vom Streulicht zu trennen, müsste das Streulicht konstant bleiben.

Die 9 eV -Strahlung konnte somit nicht erfolgreich vom Untergrund getrennt werden.

4.4. Spektrum der VUV-Strahlung

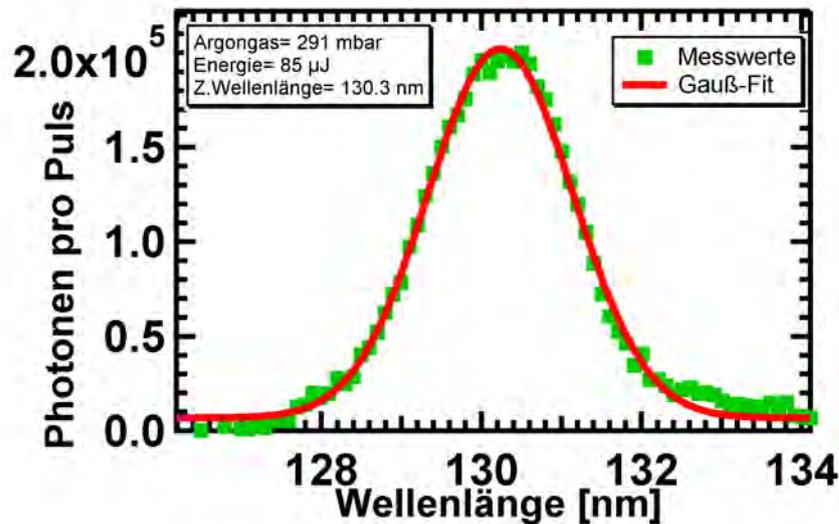


Abbildung 4.4.1.: Das Spektrum des detektierten Signals. Die Zentralwellenlänge liegt bei $130,3 \text{ nm}$ und die spektrale Breite des FWHM bei $2,1 \text{ nm}$. Die Erzeugung wurde in Argon bei 291 mbar vorgenommen. Die Energie der 2. Harmonischen betrug $85 \mu\text{J}$

Es gibt aber eine spektrale Verschiebung um etwa 3 nm . Die Wellenlänge liegt bei $130,5 \text{ nm}$ und entspricht einem Winkel von $6,66^\circ$. Das entspricht einer Winkeldifferenz von $0,13^\circ$. Die Verschiebung der Wellenlänge lässt sich durch die Eichung erklären. Die zur Eichung benutzte 3. Harmonische von 800 nm hat eine sehr große Spektralbreite, die einen großen Winkelbereich einnimmt. Mit der Abschätzung für die spektrale Breite des Spektrums in Anhang A.1 erhält man einen Wert von $1,9 \text{ nm}$.

4.5. Fazit

Die 9 eV -Strahlung konnte erfolgreich nachgewiesen werden und liegt bei einer Wellenlänge von $130,3 \text{ nm}$. Eine bessere Eichung des Spektrometers mit einem bekannten Linienspektrum müsste noch erfolgen, z. B. Heliumdampfampe oder Höhere Harmonische.

Die abgeschätzte spektrale Breite von $1,9 \text{ nm}$ lässt sich in Bezug auf die gemessene spektrale Breite von $2,1 \text{ nm}$ als gutes Ergebnis betrachten.

Im Rahmen dieser Arbeit konnte die Fluenzmessung nicht erfolgreich abgeschlossen werden, da das Streulicht der Fundamentalen in diesem Winkelbereich zu groß war. Die Tatsache, dass bei 1 mbar immer noch ein Signal zu sehen ist, kann daraus geschlossen werden, dass es sich um Strahlung von 400 nm handelt. Dies bestätigt auch

die Messung des VUV-Bandpassfilters, die eine Transmission von 0,3 % ergab. Die Fluenzmessung könnte unter Verwendung eines zweiten VUV-Bandpassfilter verbessert werden. Durch Ersetzen des CaF_2 -Fensters in der Gaszelle mit solch einem Filter würde ein Großteil der Fundamentalen unterdrückt werden. Durch den zweiten Filter direkt vor dem Detektor würde die Strahlung der 3. Harmonischen besser detektiert werden können. Bei der Verwendung eines zweiten Filters muss aber berücksichtigt werden, dass die Transmission der 3. Harmonischen nur bei etwa 10 % liegt. Aus der Messung der Fluenz ergibt sich nur die Feststellung, dass die Anzahl der Photonen der 3. Harmonischen unter 10^6 liegt. Die Abschätzung des Phosphors mit den Werten aus [15] bestätigen das Ergebniss der Fluenzmessung. Der abgeschätzte Wert ist aber nur eine Näherung. Es muss berücksichtigt werden, dass die Konversion des Phosphors von [15] für die 21. (32 eV) und 23. Harmonische (35 eV) ermittelt wurde. In dieser Arbeit wurde die Quanteneffizienz des Phosphors als konstant angenommen. Für die Quanteneffizienz lässt sich aber sagen, dass diese für Strahlung von 35 eV höher ist als für 9 eV [4]. Die ermittelte Konversionseffizienz von $\eta = 5 \cdot 10^{-8}$ lässt sich als mögliches Ergebnis verstehen. Zwar liegt für Xenon die Konversionseffizienz bei $\eta = 10^{-6} - 10^{-5}$ [17] für negative Dispersion, aber die Arbeit von Zacherias *et. al.* [41] zeigt, dass mit einem Puls mit einer Energie von 357 μJ und einer Pulsdauer von 50 ps die 3. Harmonische mit Photonenzahl von $4 \cdot 10^4$ bei einer Konversionseffizienz von $\eta = 10^{-10}$ in positiver Dispersion erzeugt werden konnte. In dieser Arbeit erfolgt die Erzeugung der 3. Harmonischen - wie in der Arbeit von Zacherias - in positiver Dispersion. Dieser Sachverhalt wird im nächsten Kapitel genauer beschrieben.

5. Phasenanpassung der VUV-Strahlung

Für die effiziente Erzeugung ist, wie in den Grundlagen vorgestellt, eine erfolgreiche Phasenanpassung essentiell. Da die Phasenanpassung bei gasförmigen Medien vom Druck abhängt, ist die Intensitätsabhängigkeit der 3. Harmonischen von dem Gasdruck von großer Bedeutung. Abschließend wird der Vergleich mit dem theoretisch Modell angestrebt, wobei sich dies nicht ohne weiters durchführen lässt.

5.1. Erste Ergebnisse

Die ersten Messungen wurden mit der Plexiglaszelle gemacht. Mit dieser war eine Fokussierung mit einer 50 mm Linse möglich. Der Einfluss der Fokussierung auf das VUV-Signal wird im nachfolgenden Kapitel genauer betrachtet. Für Argon ergab sich folgender Verlauf:

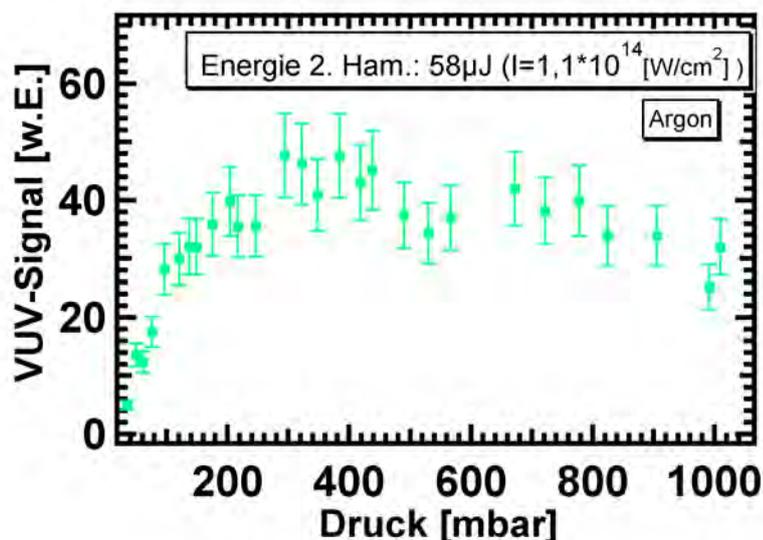


Abbildung 5.1.1.: Abhängigkeit des VUV-Signals vom Druck in Argon. Die Fokussierung erfolgte mit einer 50 mm Linse ($b=0,522$ cm). Die Messung wurde noch mit der Plexiglaszelle gemacht. Das Signalmaximum liegt bei etwa 300 mbar

Bei Argon sieht man einen Anstieg auf ein maximales Signal bei einem Druck von 300 *mbar*. Danach nimmt das Signal kontinuierlich ab, kann aber noch über 1 *bar* nachgewiesen werden. Die Fehlerbalken wurden aus dem Verlauf aus Abbildung 3.2.5 errechnet. Diese enthält alle relevanten Fehlerquellen, wie Undichtigkeit, Intensitätsschwankungen des Lasers und den Fehler, der durch die Kamera verursacht wird. Es wurde ein Fehler aus der Messung mit der Plexiglaszelle für etwa 20 *min* bestimmt. Dieser betrug etwa 15 %.

Für Xenon ergab sich folgender Verlauf für die Signalstärke in Abhängigkeit vom Druck.

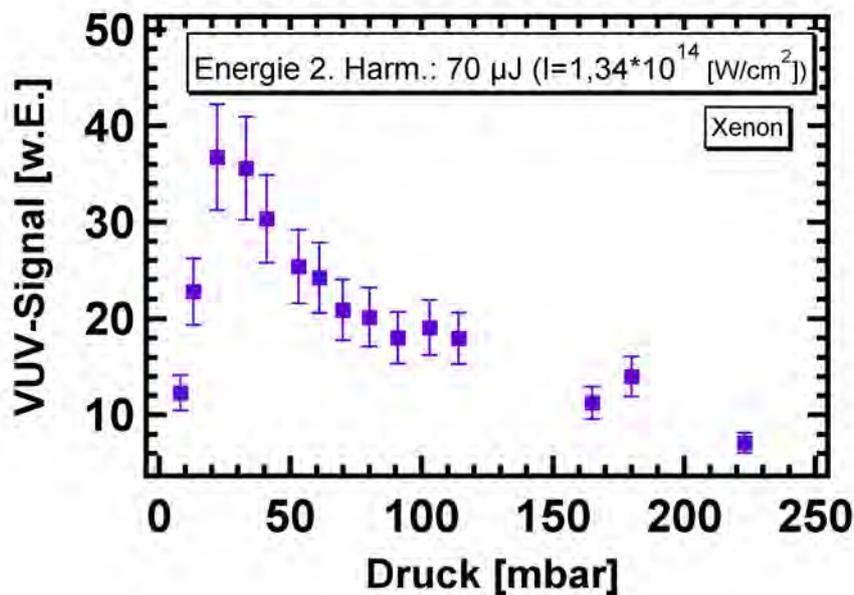


Abbildung 5.1.2.: Abhängigkeit des VUV-Signals vom Druck in Xenon. Die Fokussierung erfolgte mit einer 50 *mm* Linse ($b=0,522$ *cm*). Die Messung wurde noch mit der Plexiglaszelle gemacht. Bei etwa 40 *mbar* wird das Signal maximal.

Das Signal steigt sehr schnell und hat sein Maximum bei einem Druck von 30-40 *mbar*. Danach fällt das Signal sehr schnell ab, kann aber im Vergleich zu Argon ab einem Druck von 250 *mbar* nicht mehr nachgewiesen werden.

5.2. Druckabhängigkeit der VUV-Strahlung

Durch den Austausch der Plexiglaszelle mit einer Glaszelle konnten die Messungen verbessert werden. Wie in Abbildung 3.2.5 zu sehen ist, konnte durch die Modifikation

das Signal der 3. Harmonischen für einen langen Zeitraum konstant gehalten werden. Die Fokussierung musste aber verändert werden. Durch die etwas größeren Abmaße der Glaszelle konnte als kleinst mögliche Fokussierung nur eine 80 mm Linse verwendet werden.

Die gemessenen „Counts“ der Kamera wurden mit der ermittelten Photonenzahl aus Kapitel 4.3.1 umgerechnet. Diese lässt sich aber nicht als absolute Photonenzahl verstehen, sondern nur als Näherung.

Der Fehler, der aus der Messung mit Glaszelle (siehe Abbildung 3.2.5) ermittelt wurde, lag bei etwa $\pm 3\%$. Die sich daraus ergebenden Fehlerbalken wurden aufgrund der geringen Größe nicht eingezeichnet.

Für Argon wurde mit der Glaszelle folgender Verlauf gemessen:

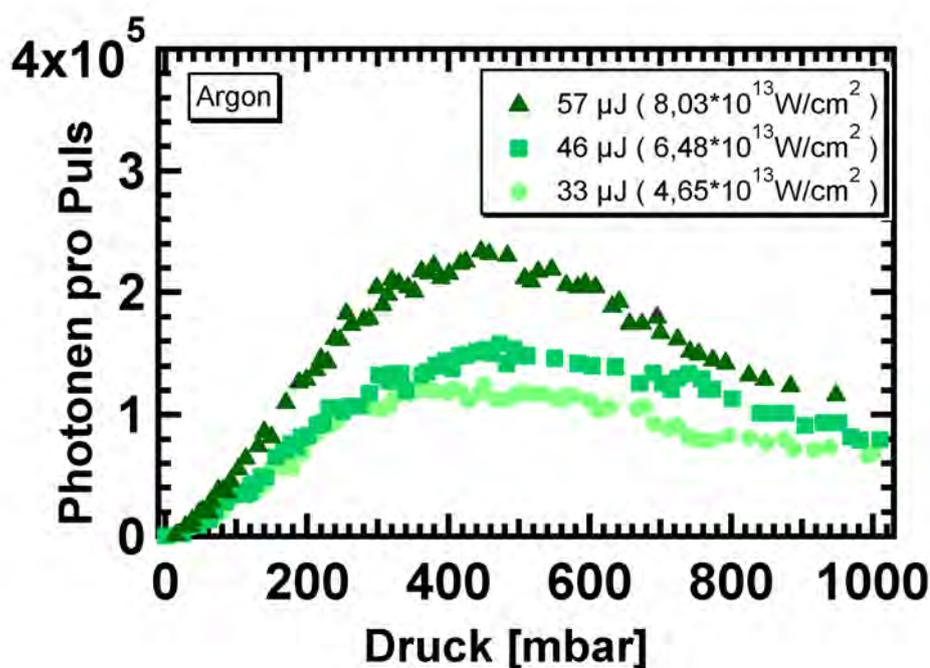


Abbildung 5.2.1.: Abhängigkeit der Anzahl der VUV-Photonen vom Druck in Xenon für unterschiedliche Energien bzw. Intensitäten. Die Fokussierung erfolgte mit einer 80 mm Linse ($b=0,709\text{ cm}$). Die Maxima liegen etwa bei 400-450 mbar.

Durch die Änderung der Fokussierung wurde die Lage der Maxima verändert. Der Einfluss der Fokussierung wird im nachfolgenden Kapitel genauer betrachtet. Bei einem Druck von weniger als 1 mbar lassen sich keine Photonen nachweisen. Das Maximum der Photonenzahl pro Puls liegt etwa bei 400-450 mbar, flacht dann ab, lässt sich jedoch noch über 1000 mbar nachweisen. Bei unterschiedlichen Energien liegen die Maxima etwa bei demselben Druck.

Die Messung für Xenon ergab folgenden Verlauf:

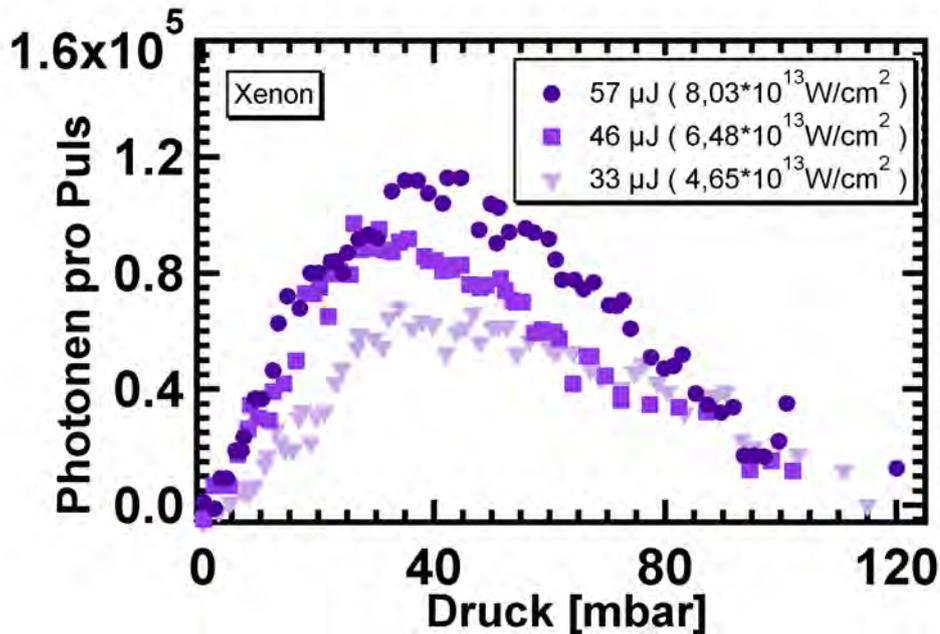


Abbildung 5.2.2.: Abhängigkeit der Anzahl der VUV-Photonen vom Druck in Xenon für unterschiedliche Intensitäten. Die Fokussierung erfolgte mit einer 80 mm Linse ($b = 0,709 \text{ cm}$). Die Maxima liegen zwischen 25 und 40 mbar für unterschiedliche Energien.

Bei einem Druck von unter 1 mbar sind keine Photonen nachweisbar. Die Photonenzahl steigt sehr schnell an und hat bei 30 mbar - 40 mbar den höchsten Wert, fällt dann aber schnell wieder ab. Bei einem Druck von 120 mbar sind keine Photonen mehr nachweisbar.

Bei kleiner und großer Energie liegen die Maxima bei demselben Druck. Nur bei mittlerer Energie liegt das Maximum bei einem Druck von 25 mbar.

5.3. Druckabhängigkeit bei unterschiedlicher Fokussierung

Nach dem Phasen Anpassungsintegral aus Gleichung 2.37 hängt die Phasen Anpassung auch vom konfokalen Parameter b ab. Deswegen wurde eine erneute Messung der Druckabhängigkeit des Signals vorgenommen, nachdem die Fokussierung verändert wurde. Der experimentelle Aufbau ließ aber keine stärkere Fokussierung zu, weil der

Fokus bei Verwendung einer Linse mit geringerer Brennweite nicht mehr auf dem Rowlandkreis lag. Der Strahldurchmesser des Fokus eines Gaußstrahls ist nach Gleichung A.21 umgekehrt proportional zum Strahldurchmesser des durch die Linse einfallenden Strahls. Es wurde eine Strahlaufweitung mit einem Teleskop um Faktor zwei vorgenommen. Dabei wurden eine Streulinse ($f=-100\text{ mm}$) und eine Sammellinse ($f=200\text{ mm}$) (nicht eingezeichnet in Abbildung 3.4.1) verwendet.

Die Fokussierung in der Gaszelle erfolgte wieder mit einer 80 mm -Linse. Bei doppeltem Strahldurchmesser des einfallenden Strahls wird angenommen, dass diese einer Fokussierung mit 40 mm Brennweite bei nicht aufgeweitetem Strahl entspricht.

Für Argon wurde folgender Verlauf ermittelt:

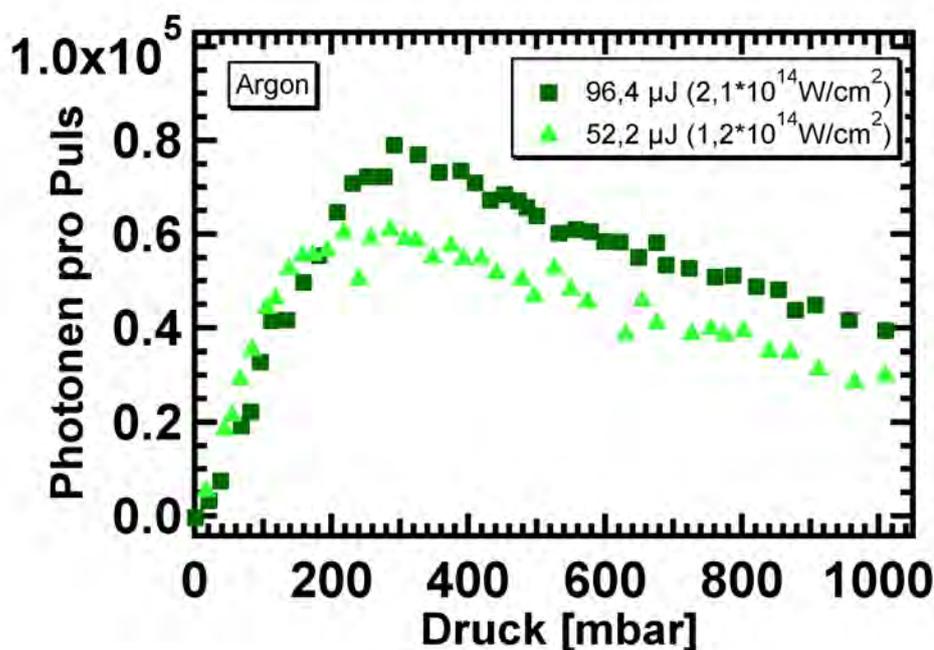


Abbildung 5.3.1.: Abhängigkeit der Photonenzahl vom Druck in Argon bei doppeltem Strahldurchmesser. Die Fokussierung erfolgte mit einer 80 mm Linse bzw. 40 mm ($b=0,46\text{ cm}$). Die Phasen Anpassung liegt etwa bei $250\text{-}300\text{ mbar}$.

Die Photonenzahl steigt mit zunehmendem Druck schnell an und hat ihr Maximum etwa bei einem Druck von 300 mbar . Danach flacht die Photonenzahl ab, aber es sind noch genug Photonen bis über 1 bar nachweisbar. Auch hier lässt sich keine Änderung der Maximalage für verschiedene Energien feststellen. Die Lage der Maxima hat sich aber in Bezug auf eine Fokussierung mit einer Linse mit Brennweite von 80 mm von etwa 400 mbar Druck auf 300 mbar verschoben.

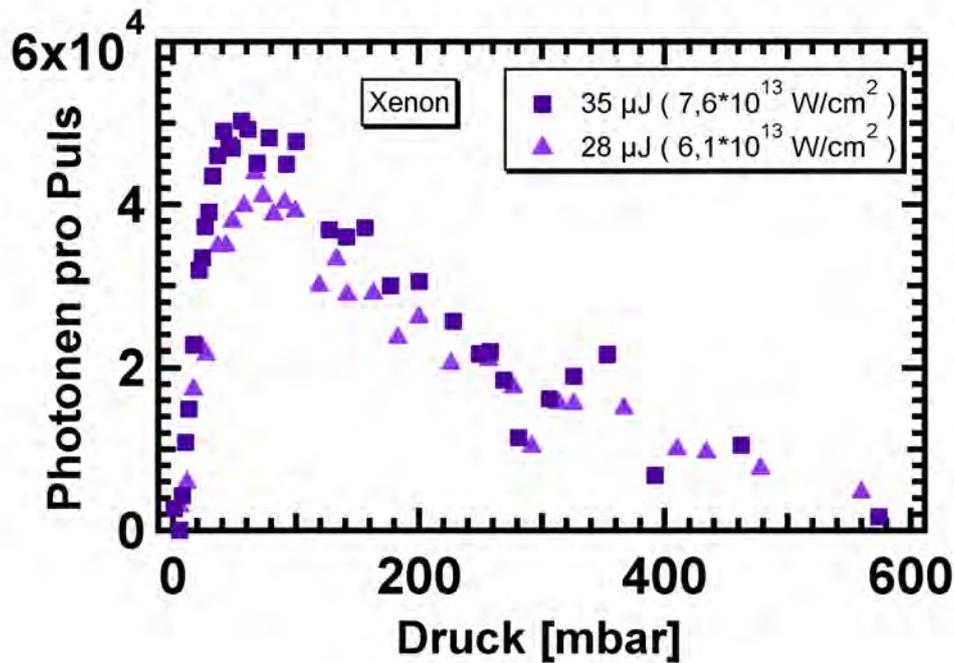


Abbildung 5.3.2.: Abhängigkeit des VUV-Signals vom Druck in Xenon bei doppelten Strahldurchmesser bei verschiedenen Energien. Die Fokussierung erfolgte mit einer „40 mm“ Linse ($b=0,46\text{ cm}$). Das Maximum der Photonenzahl liegt etwa bei 65 mbar

Die Anzahl der Photonen steigt mit dem Druck schnell an. Das Maximum liegt etwa bei 65 mbar. Danach fällt die Photonenzahl wieder ab, aber es lassen sich Photonen bis zu einem Druck von 500 mbar nachweisen. Die Messungen bei unterschiedlichen Energien zeigen keine Änderungen der Lage der Druckmaxima.

Betrachtet man die Lage des Maximums von Xenon bei unterschiedlicher Fokussierung, so sieht man eine deutliche Verschiebung des Maximums bei einem Druck von 40 mbar auf 65 mbar durch Änderung der Fokussierung von 80 mm auf 40 mm Brennweite.

5.4. Simulation der Phasen Anpassung

An dieser Stelle ließe sich eine Simulation der Phasen Anpassung durchführen. Die in dieser Arbeit erworbenen Erkenntnisse lassen sich aber nicht einfach auf das theoretische Modell anwenden. Für die Phasen Anpassung ist die Kenntnis der Brechungsindizes des Gases für die jeweiligen Wellenlängen erforderlich, da deren Differenz die Phasen Anpassung beeinflusst. Für Argon sind die Brechungsindizes bei den verwendeten Wellenlänge wie folgt:

| Argon | Brechungsindex $(n - 1) \times 10^{-4}$ |
|--------------------------|---|
| 133 nm $\hat{=}$ 9,25 eV | 4.527 [19] |
| 400 nm $\hat{=}$ 3,08 eV | 2,8704 [39] |

Daraus ergibt sich eine Differenz der Brechungsindizes von $\Delta n = 1,65 \cdot 10^{-4}$. Für Xenon lauten die Brechungsindizes:

| Xenon | Brechungsindex $(n - 1) \times 10^{-4}$ |
|--------------------------|---|
| 133 nm $\hat{=}$ 9,25 eV | 14 [6] |
| 400 nm $\hat{=}$ 3,08 eV | 7,013 [39] |

und es ergibt sich eine Differenz der Brechungsindizes von $\Delta n = 6,98 \cdot 10^{-4}$. Diese Werte beziehen sich alle auf einen Druck von 1 atm (Atmosphäre) \approx 1 bar. Für beide Gase ist die Differenz der Brechungsindizes Δn positiv.

5.4.1. Gültigkeit des theoretischen Modells

Die theoretische Grundlage, die die Phasen Anpassung bei fokussiertem Gaußstrahl in einem Medium beschreibt [7], ist ein viel benutztes theoretisches Modell, denn sie beschreibt die Phasen Anpassung bei negativer Dispersion sehr gut. Wenn man aber, wie in dieser Arbeit, in positiver Dispersion arbeitet, würde das Phasen Anpassungintegral 2.40 bei starker Fokussierungsgeometrie null ergeben, und somit würde sich auch Gleichung 2.36 zu null ergeben. Die Konsequenz daraus ist, dass bei positiver Dispersion keine Harmonische erzeugt wird. Diese Annahme wird gemacht, weil eine erzeugte Harmonische vor dem Fokus sich aufgrund von Symmetrie destruktiv mit einer erzeugten Harmonischen hinter dem Fokus interferiert.

Das es möglich ist, Harmonische in positiver Dispersion zu erzeugen, zeigen aber viele Arbeiten der letzten Jahre [26] [3] [23] [37]. Eine mögliche Erklärung wurde von G. Marcus *et al.* dargestellt [26]. Aufgrund einer intensitätsabhängigen Phasenmodulation entsteht ein nichtlinearer Beitrag zum Brechungsindex, der zur Veränderung der Phasen Anpassung führt. Dieser Beitrag ist material- und intensitätsabhängig. Eine weitere Erklärung könnte nach [26] sein, dass ein effektiver positiver nichtlinearer Brechungsindex eine Selbstfokussierung der Fundamentalen zur Folge haben könnte. Dadurch käme es zu einer Veränderung des Profils und der Ausbreitung des Strahls, so dass dieser sich auf die Erzeugung der 3. Harmonischen auswirkt. Der fokussierte Strahl verhält sich im Fokus nicht mehr wie ein Gaußstrahl.

Durch die Selbstfokussierung entsteht eine hohe Intensität, die wiederum zur Folge hat, dass es zur Selbstdefokussierung kommt. Die Effekte der Selbstfokussierung und der Selbstdefokussierung führen zu einer Anwesenheit eines Filamentes [34]. Das in

dieser Arbeit verwendete theoretische Modell vernachlässigt diese Effekte wie Selbstphasenmodulation, Selbstfokussierung und Selbstdefokussierung.

Im Rahmen dieser Arbeit lässt sich die theoretische Betrachtung der aufgezeigten Effekte nicht ausführlich darstellen, da es bis jetzt kein quantitatives Modell gibt. Um die Auswirkung von Selbstphasenmodulation, Selbstfokussierung und Selbstdefokussierung bei der Harmonischen-Erzeugung zu bestätigen, wurden unterschiedlichen Untersuchung durchgeführt.

5.4.2. Entstehung eines Filamentes und Ionisation

Durch die Fokussierung in einer Gaszelle mit hohen Intensitäten entsteht ein leuchtendes Filament im Fokusbereich. Durch die disperisiven Eigenschaften entsteht Selbstphasenmodulation der Fundamentalen, die wiederum zur Selbstfokussierung führt. Dadurch kommt es zur teilweisen Ionisation des Gases, das wiederum ein Plasma erzeugt [5]. Aufgrund der Selbstfokussierung hervorgerufene noch größere Intensität kommt es dann zu Selbstdefokussierung.

Die Anwesenheit eines Filamentes konnte im Experiment bestätigt werden.

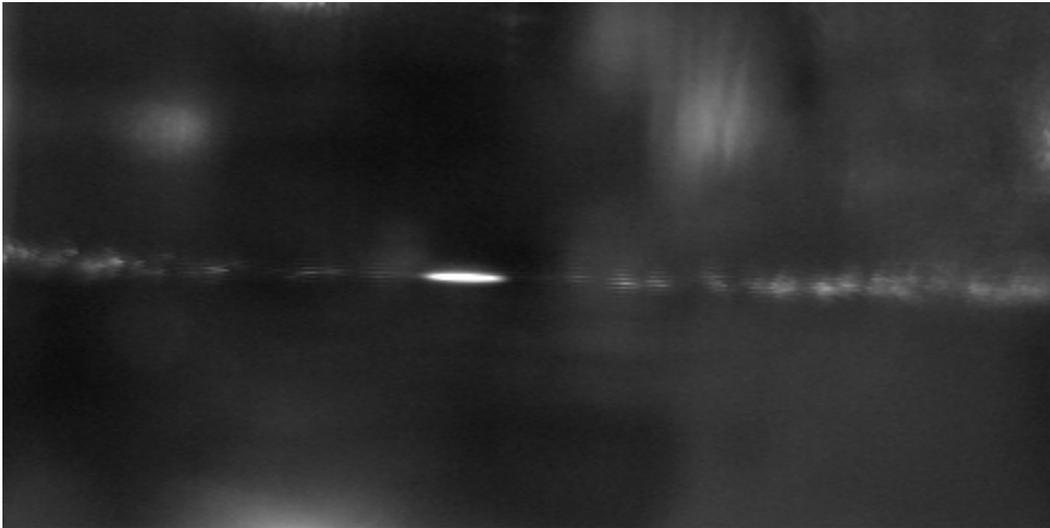


Abbildung 5.4.1.: Bild des Filamentes in der Plexiglaszelle. Die Fokussierung erfolgte mit einer 50 mm Linse ($b=0,522\text{ cm}$).

Aufgrund der hohen Intensität im Fokus kommt es zu Ionisationsprozessen. Eine Abschätzung des Ionisationsgrades kann Aufschluss geben, wieviele der Atome durch die Strahlung ionisiert werden.

Durch die zeitliche Änderung der Elektronendichte kommt es zu einer Verschiebung der Fundamentalen in den blauen Spektralbereich. Aus der sogenannten Blauverschiebung

lässt sich nach [41], [38] die Elektronendichte der freien Elektronen bestimmen

$$N_e = \frac{2\pi m c^3 \tau}{\lambda^3 e^2 L} \delta\lambda \quad (5.1)$$

dabei ist $\delta\lambda$ die Blauverschiebung, τ die Pulsdauer des Lasers und L die Länge des Mediums, in unserem Fall $L = 75 \text{ mm}$. Die Berechnung erfolgt im CGS-System.

Die Messung der Blauverschiebung wurde durch ein Spektrometer vorgenommen, welches sich nach dem Erzeugungsprozess der 3. Harmonischen befand. Durch Messung des Spektrums der Fundamentalen bei großer und kleiner Energie der Fundamentalen lässt sich die Blauverschiebung ermitteln.

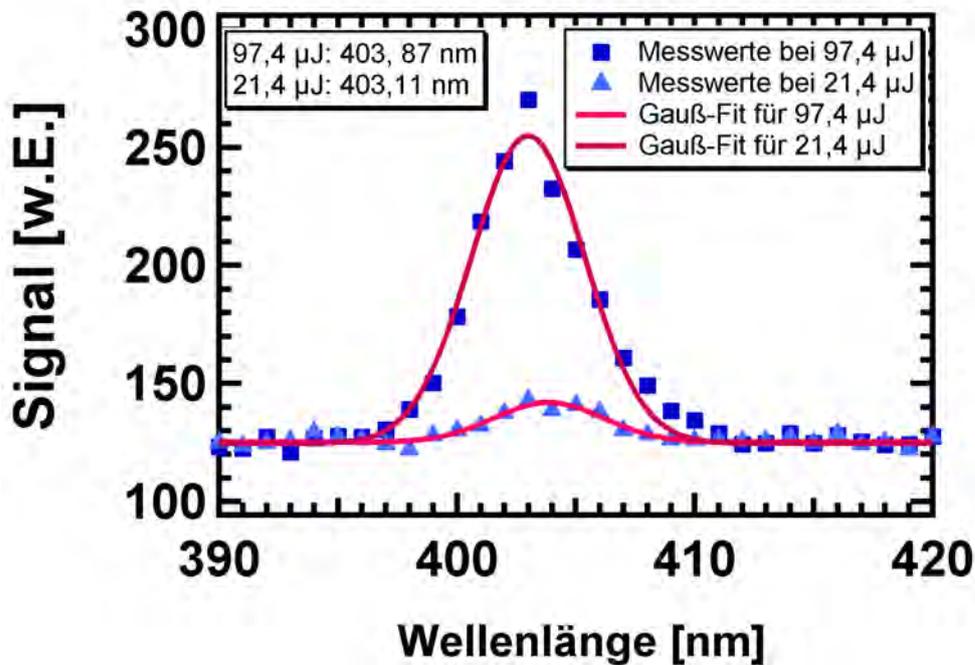


Abbildung 5.4.2.: Der Ionisationsgrad lässt sich aus der Blauverschiebung bestimmen. Messung erfolgte nach dem Konversionsprozess. Bei hohen Energien verschiebt sich die Wellenlänge in den blauen Spektralbereich aufgrund von Ionisation. Die Verschiebung beträgt $\Delta\lambda = 0,76 \text{ nm}$ bei einem Druck von 300 mbar

Es wurde eine Blauverschiebung von $0,76 \text{ nm}$ bestimmt und mit Gleichung 5.1 lässt sich die Elektronendichte von $N_e = 3,32 \cdot 10^{19} \text{ 1/m}^3$ für 300 mbar berechnen. Mit der Dichte der neutralen Atome bei 300 mbar lässt sich ein Ionisationsgrad von $1,038 \cdot 10^{-5}$ für den im Experiment maximalen Druck von 1 bar berechnen. Mit der Kenntnis der Elektronendichte N_e lässt sich damit die Plasmafrequenz ω_p ermitteln

$$\omega_p = \sqrt{\frac{N_e e^2}{\epsilon_0 m_e}} \quad (5.2)$$

Für den Brechungsindex lässt sich folgende Formel anwenden

$$n = \sqrt{1 - \frac{\omega_p}{\omega}} \quad (5.3)$$

Dann erhält man eine Brechungsindexänderung für den Plasmaanteil von $6,35 \cdot 10^{-9}$. Dieser Beitrag ist sehr gering.

5.4.3. Länge des Filamentes bei Energieänderung

Die Länge des Filamentes wies auch eine Abhängigkeit von der Energie der Fundamentalen auf. Durch den installierten Fokusmonitor konnte die Länge des Filamentes gemessen werden. Die Messung wurde noch mit der Plexiglaszelle durchgeführt. Mit der Glaszelle konnte das Filament aufgrund der Abmaße der Zelle nicht mehr mittig fokussiert werden. Die Kamera konnte nicht mehr so aufgebaut werden, dass eine genaue Beobachtung des Filamentes möglich war.

Da sich aber das Filament mit der Fokusgröße verändert, ist eine Betrachtung der Intensität eher von Bedeutung.

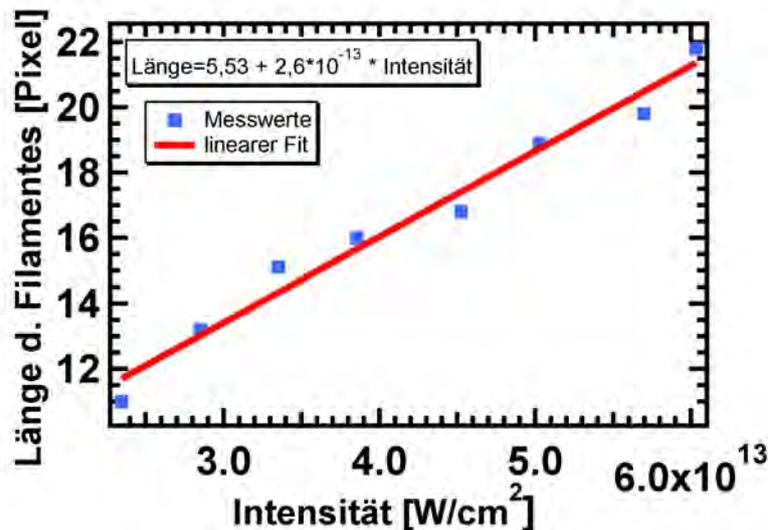


Abbildung 5.4.3.: Abhängigkeit der Filamentlänge mit unterschiedlicher Intensität in Argon. Die Fokussierung erfolgte mit einer 50 mm Linse ($b=0,522$ cm). Die Angabe in Pixel erfolgt nur, weil für die verwendete Kamera keine Daten für die Pixelgröße gefunden wurde.

Die Länge des Filamentes verhält sich linear zur Intensität.

5.4.4. Simulation

Die in diesem Kapitel dargestellte Abhängigkeit der Photenzahl von dem Druck lässt auf Phasen Anpassung schließen. Obwohl die verwendete theoretische Grundlage die Erzeugung von Harmonischen in positiver Dispersion nicht beschreibt, wird dieses Modell hier verwendet, um das Verhalten der gezeigten Kurven zu beschreiben.

Mit einer Abschätzung von Gleichung 2.36 unter Verwendung von einem konfokalen Parameter $b = 0,709 \text{ cm}$ (siehe Kapitel 3.2.1) und Gleichung 2.27, unter Verwendung der Brechungsindizes aus diesem Kapitel, lässt sich die Phasen Anpassung in diesem Modell bei negativer Dispersion beschreiben.

Durch Einführung eines zusätzlichen Beitrag zum Brechungsindex Δn_S , der für die erwähnten Effekte von Selbstfokussierung, etc. steht, lässt sich ein effektiver Brechungsindex Δn^* einführen, für den gilt:

$$\Delta n^* = \Delta n + \Delta n_S \quad (5.4)$$

Durch Normierung der Simulation und Messdaten lässt sich die Phasen Anpassung simulieren.

Für Argon ließe sich die Phasen Anpassung wie folgt simulieren:

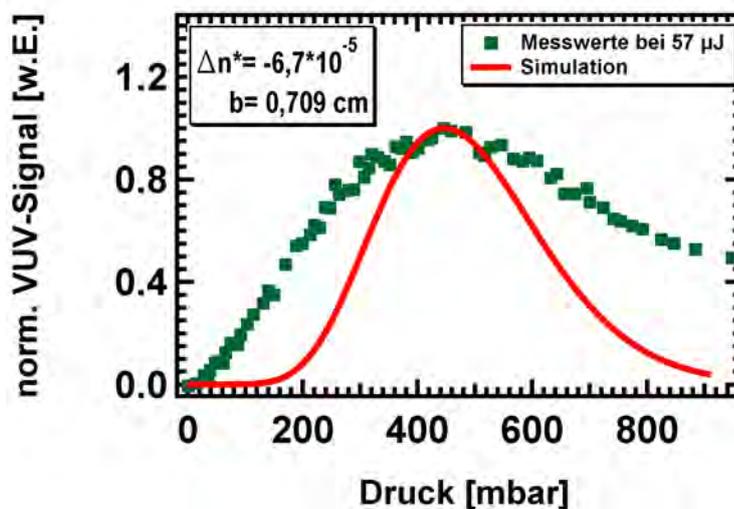


Abbildung 5.4.4.: Die Simulation der Phasen Anpassung mit dem Druck für Argon bei einer Energie von $57 \mu\text{J}$ ($I = 8,03 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$) und Fokussierung $b = 0,709 \text{ cm}$. Dabei wurde ein effektiver Brechungsindex von $\Delta n^* = -6,7 \cdot 10^{-5}$ verwendet.

Um eine Phasen Anpassung bei etwa 400 mbar zu erhalten müsste $\Delta n^* = -6,7 \cdot 10^{-5}$ lauten. Daraus folgt, dass $\Delta n_S = -2,34 \cdot 10^{-4}$ sein müsste.

Für Xenon würde sich eine Phasen Anpassung ergeben, wenn $n^* = -6,9 \cdot 10^{-4}$ betragen würde:

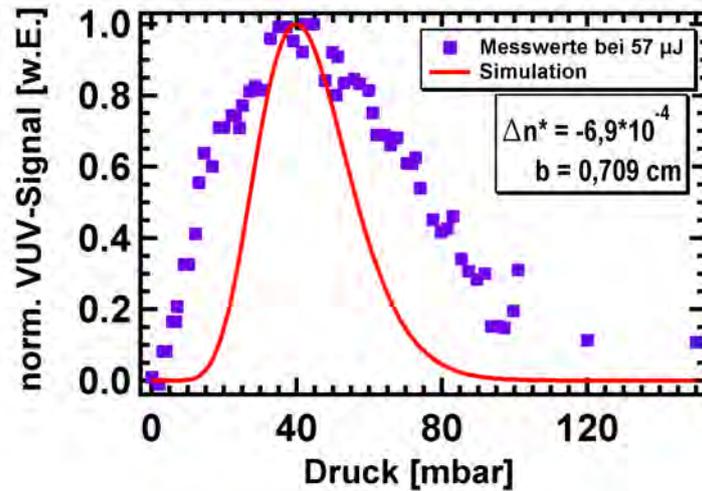


Abbildung 5.4.5.: Die Simulation der Phasen Anpassung mit dem Druck für Xenon bei einer Energie von $57 \mu J$ ($I = 8,03 \cdot 10^{13} W/cm^2$). Die Fokussierung erfolgt mit einer $80 mm$ Linse ($b=0,709 cm$).

Die verwendete effektive Differenz der Brechungsindizes Δn^* entspricht der Differenz der Brechungsindizes Δn nur mit negativen Vorzeichen. Daraus folgt, dass $\Delta n_S = -1,396 \cdot 10^{-3}$

Für die veränderte Fokussierung mit konfokalen Parameter $b = 0,46 cm$ ließe sich Phasen Anpassung in Argon simulieren, wenn $\Delta n^* = -1,65 \cdot 10^{-4}$ wäre:

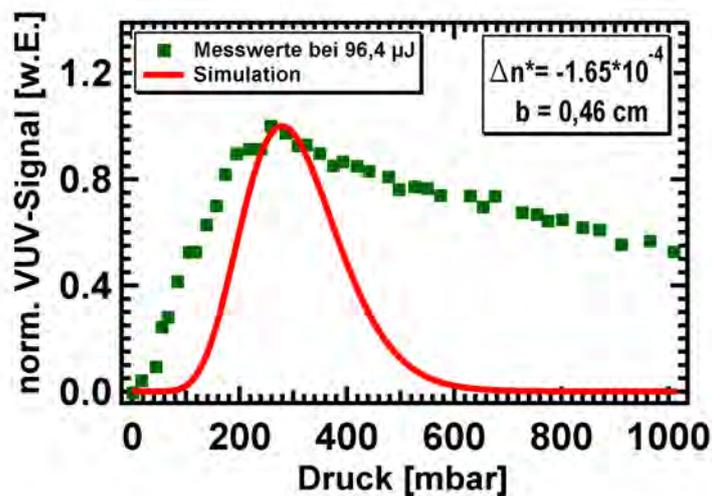


Abbildung 5.4.6.: Die Simulation der Phasen Anpassung mit dem Druck für Xenon bei Energie von $96,4 \mu J$ ($I = 2,01 \cdot 10^{14} W/cm^2$). Dabei wurden ein konfokaler Parameter $b = 0,46 cm$ und $\Delta n^* = -1,65 \cdot 10^{-4}$ verwendet.

Mit einem konfokalen Parameter $b = 0,46 cm$ und der Differenz der Brechungsindizes von $\Delta n = -1,65 \cdot 10^{-4}$ würde der Phasen Anpassungsdruck bei etwa $300 mbar$ liegen.

Dies entspräche zwar dem negativen Wert von Δn , aber es folgt für $\Delta n_S = -3,3 \cdot 10^{-4}$, der ein anderer Wert ist als bei konfokalen Parameter $b = 0,709 \text{ cm}$. Für Argon lässt sich für unterschiedliche Fokussierung kein gemeinsamer Wert Δn_S finden.

Für Xenon ließe sich folgender Verlauf simulieren, wenn $\Delta n^* = -6,98 \cdot 10^{-4}$ betragen würde:

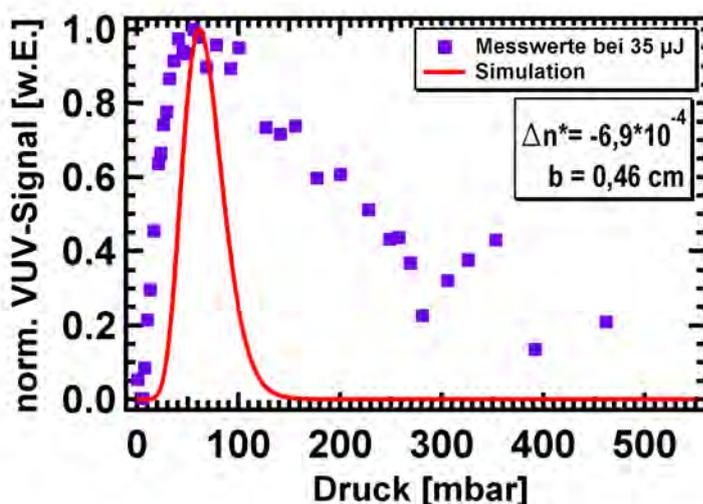


Abbildung 5.4.7.: Die Simulation der Phasen Anpassung mit dem Druck für Xenon bei Energie von $35 \mu\text{J}$ ($I = 7,6 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$). Die Fokussierung erfolgt mit einer 40 mm Linse ($b=0,46 \text{ cm}$).

Der Wert von Δn^* entspricht dem negativen Wert der Differenz der Brechungsindizes Δn . Der zusätzliche Brechungsindex Δn_S entspricht demselben Wert wie bei dem konfokalen Parameter $b = 0,709 \text{ cm}$

5.5. Fazit

Durch die Messung der Druckabhängigkeit von der Photonenzahl der 3. Harmonischen konnte der ideale Druck für Argon und Xenon experimentell ermittelt werden. Für Xenon wurde ein ähnlicher Verlauf für das 129 nm Signal von Zacherias *et. al.* bei positiver Dispersion gemessen.

In dieser Arbeit erfolgt die Erzeugung der 3. Harmonischen auch bei positiver Dispersion. Die Photonenzahl für Argon ist bei großen Energien bzw. Intensitäten größer als die von Xenon. Das theoretische Modell, was 1975 von Borklund [7] vorgestellt wurde, beschreibt nur die Phasen Anpassung bei negativer Dispersion. Dass es aber experimentell möglich ist, Phasen Anpassung in positiver Dispersion zu erreichen, beschreiben die erwähnten Arbeiten. Der Vergleich von der Theorie mit dem Experiment zeigt, dass

ein weiterer Beitrag zur Differenz der Brechungsindizes den positive Beitrag der Dispersion ausgleichen könnte. Daraus ließe sich schlussfolgern, dass die Erzeugung der 3. Harmonischen nur bei Existenz von Selbstphasenmodulation, Selbstfokussierung und Selbstdefokussierung, die eine Filamentbildung zur Folge haben, bei positiver Dispersion durchführbar ist.

Die Anwesenheit des Filamentes war während der Messungen ein guter Indikator für die Erzeugung der 3. Harmonischen. Wenn kein Filament erzeugt wurde, z. B. aufgrund verunreinigter Spiegel, so wurde auch kein Signal der 9 eV-Strahlung nachgewiesen.

Die experimentellen Werte für den idealen Druck bei der Erzeugung konnten ermittelt werden. Argon und Xenon zeigen ein unterschiedliches Verhalten bei Änderung der Fokussierung. Für Argon verschiebt sich das Maximum bei größerer Fokussierung zu kleineren Drücken, also von 400 mbar auf etwa 300 mbar, für Xenon verschiebt sich das Maximum von 40 mbar auf 65 mbar. Eine Erklärung für das unterschiedliche Verhalten konnte in dieser Arbeit nicht gefunden werden.

Die Simulation der Phasen Anpassung ist nur durchführbar, wenn der Differenz der Brechungsindizes Δn ein weiterer Beitrag hinzugefügt wird. Dieser Beitrag lässt sich zwar durch die Anwesenheit eines Filamentes begründen, ist aber theoretisch noch nicht völlig simulierbar.

Für Xenon lässt sich der theoretische Phasen Anpassungsdruck mit $\Delta n^* = -6,98 \cdot 10^{-4}$ für die gegebene Fokussierungen simulieren.

Für Argon aber lässt sie sich nur durch Einführen unterschiedlicher Beiträge für Δn_S simulieren.

6. Energieabhängigkeit der VUV-Strahlung

6.1. Energieabhängigkeit

Das Ziel dieser Arbeit ist die Erzeugung der 3. Harmonischen im niedrigen Energiebereich. Ob die gewonnene Kenntnis sich auf niedrige Pulsenergie übertragen lässt, soll in diesem Kapitel geklärt werden.

Nach Bestimmung des idealen Druckes wurde die Energie der 2. Harmonischen in gleichmässigen Schritten gesenkt. Bei der Messung mussten unterschiedliche Belichtungszeiten verwendet werden. Bei großen Energiewerten wurde eine Belichtungszeit von 3 Sekunden, bei kleinen Werten wurden Belichtungszeiten bis zu 400 Sekunden verwendet. Die VUV-Signale wurden für die Auswertung auf einen Wert von 1 Sekunde normiert und in Photonanzahl umgerechnet. Die Messungen für Xenon und Argon wurden in derselben Messreihe durchgeführt und sind somit vergleichbar.

Da hier auch die Fokussierung eine wichtige Rolle spielt, ist es besser, die Energie in Intensitäten umzurechnen.

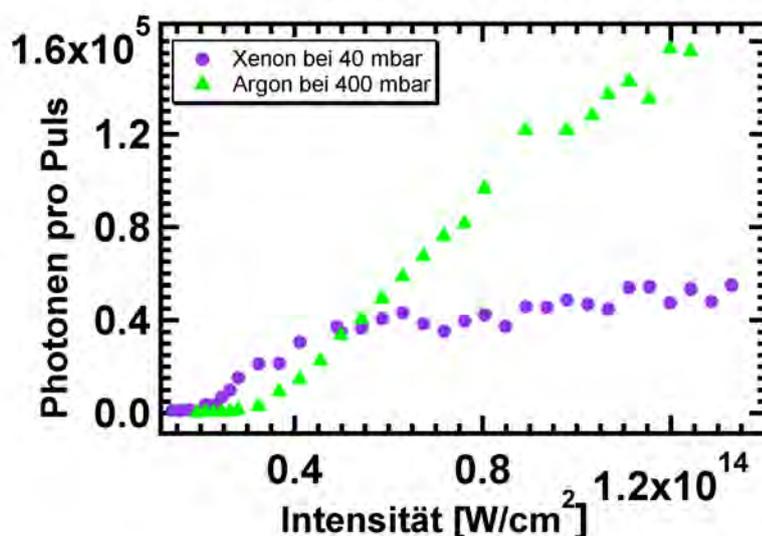


Abbildung 6.1.1.: Abhängigkeit der VUV-Photonenzahl von der Intensität für Xenon und Argon. Die Fokussierung erfolgte mit einer 80 mm Linse ($b=0,709$ cm).

Die Photonenzahl bei gleicher Intensität ist für Argon größer als die für Xenon im Bereich hoher Intensitäten. Der Verlauf für Xenon ist flacher, aber lässt sich für geringere Energien bzw. geringere Intensität nachweisen. Der Kurvenverlauf der Energieabhängigkeit ist annähernd linear, bzw. für Xenon ist dieser annähernd wurzelförmig.

Da der niedrige Intensitätsbereich für diese Arbeit von großem Interesse ist, wird dieser vergrößert dargestellt.

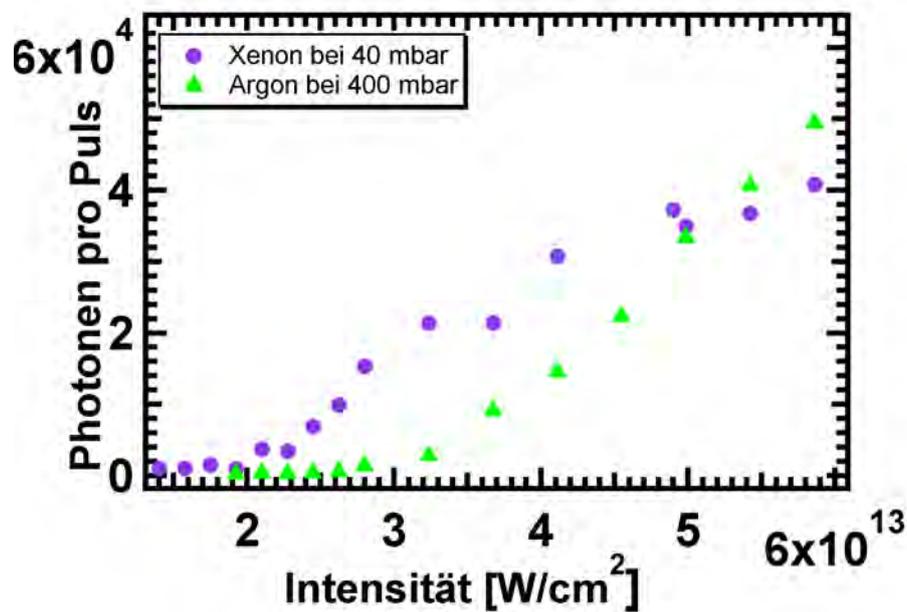


Abbildung 6.1.2.: Abhängigkeit des VUV-Signals mit dem Druck in Xenon und Argon bei kleinen Intensitäten. Die Fokussierung erfolgte mit einer 80 mm Linse ($b=0,709$ cm).

Die geringe Photonenzahl bei sehr kleiner Intensität lässt sich mit den langen Belichtungszeiten erklären.

Für Argon konnten Photonen bis zu einer Intensität von $2,6 \cdot 10^{13}$ [W/cm²] (etwa 18,6 μ J) nachgewiesen werden. Dabei wurden Belichtungszeiten von bis zu 200 Sekunden verwendet.

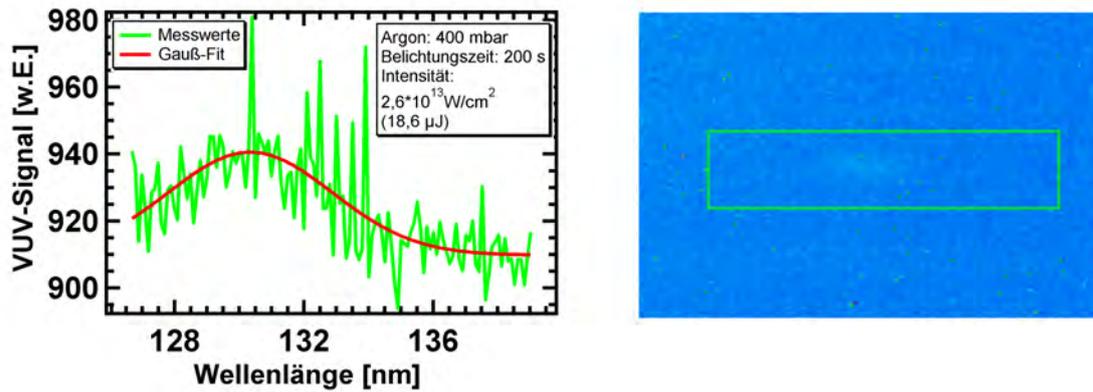


Abbildung 6.1.3.: VUV-Signal bei 18,6 μJ in Argon. Die Fokussierung erfolgte mit einer 80 mm Linse ($b=0,709 \text{ cm}$). links: Auswertung der Bilddaten rechts: Rohdaten der Messung. Die „Counts“ der Kamera wurden nicht in Photonenzahl umgerechnet, auch wurde nicht der Untergrund abgezogen, um das Verhältnis von Untergrund und Signal zu verdeutlichen.

Für Xenon konnten Photonen bis zu einer Intensität von $1,9 \cdot 10^{13} \text{ [W/cm}^2]$ (etwa 14 μJ) nachgewiesen werden.

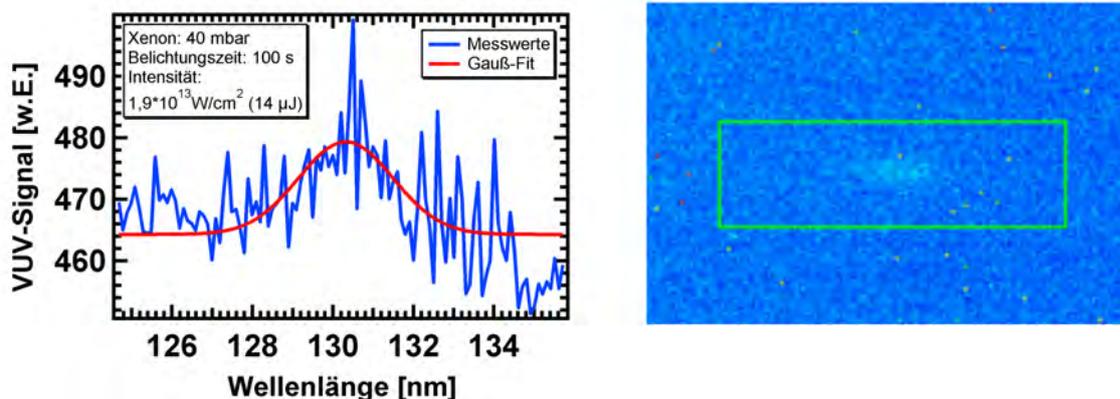


Abbildung 6.1.4.: VUV-Signal bei 14 μJ in Xenon. Die Fokussierung erfolgte mit einer 80 mm Linse ($b=0,709 \text{ cm}$). links: Auswertung der Bilddaten rechts: Rohdaten der Messung. Die „Counts“ der Kamera wurden nicht in Photonenzahl umgerechnet, auch wurde nicht der Untergrund abgezogen, um das Verhältnis von Untergrund und Signal zu verdeutlichen.

Die Fragestellung dieser Arbeit konnte mit den durchgeführten Messungen noch nicht zufriedenstellend beantwortet werden. Das Signal der 9eV-Strahlung konnte bei Argon bis auf eine Energie der Fundamentalen von etwa 18 μJ und bei Xenon bis zu einer Energie von 14 μJ bei einer Fokussierung von $b = 0,709 \text{ cm}$ nachgewiesen werden. Das entspricht etwa einer Intensität von $2 \cdot 10^{13} \text{ [W/cm}^2]$.

6.2. Energieabhängigkeit bei veränderter Fokussierung

Die Leistung der Harmonischen hängt, wie in Gleichung 2.36 dargestellt ist, auch von der Fokussierung des Strahles ab. So ist zu erwarten, dass die Leistung der Harmonischen steigt, wenn der konfokale Parameter kleiner wird; also wenn eine stärkere Fokussierung vorgenommen wird.

Da die vorangegangenen Messungen das erklärte Ziel dieser Arbeit nicht erreichen konnten, wurde die Fokussierung geändert.

Die Fokussierung wurde nicht mit einer anderen Linse gemacht, sondern der Strahldurchmesser der Fundamentalen wurde, wie schon in Kapitel 5 beschrieben, mit einem Teleskop um den Faktor zwei vergrößert. Mit der Annahme, dass dies einer Fokussierung mit einer Linse mit Brennweite von 40 mm entspricht, erhält man einen konfokalen Parameter $b = 0,46\text{ cm}$.

Bei dieser Messung wurden wieder Belichtungszeiten von 4 bis 400 Sekunden verwendet. Bei der Auswertung wurden alle Signale auf einen Wert von 1 Sekunde normiert und in Photonenzahl umgerechnet, um sie vergleichen zu können.

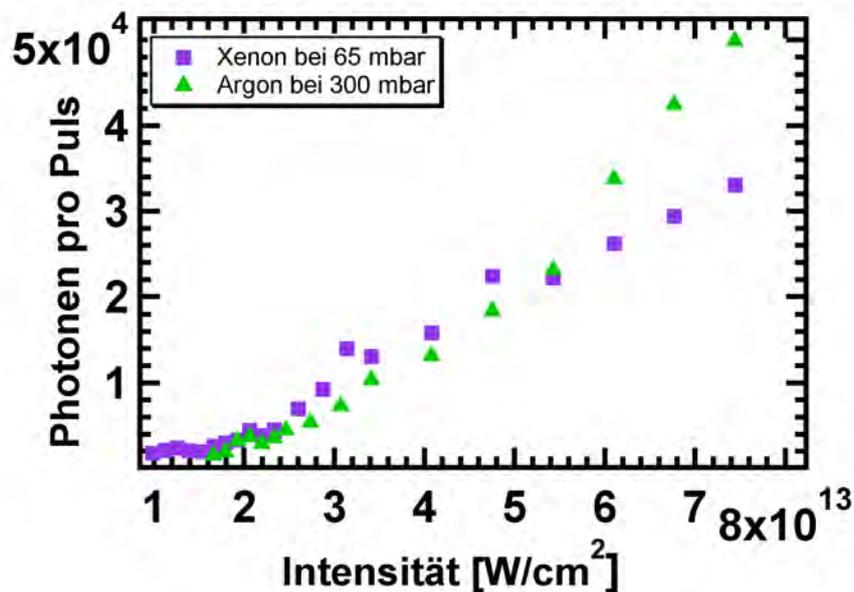


Abbildung 6.2.1.: Abhängigkeit der VUV-Photonenzahl von der Intensität in Argon und Xenon bei veränderter Fokussierung. Die Fokussierung erfolgte mit einer „ 40 mm “ Linse ($b=0,46\text{ cm}$).

Die Photonenzahlen von Argon und Xenon zeigen auch bei stärkerer Fokussierung einen linearen Verlauf mit der Intensität. Die Photonenzahl für Argon ist bei größerer In-

intensität größer als bei Xenon. Für den kleinen Intensitätsbereich lässt sich Abbildung 6.2.1 vergrößert darstellen.

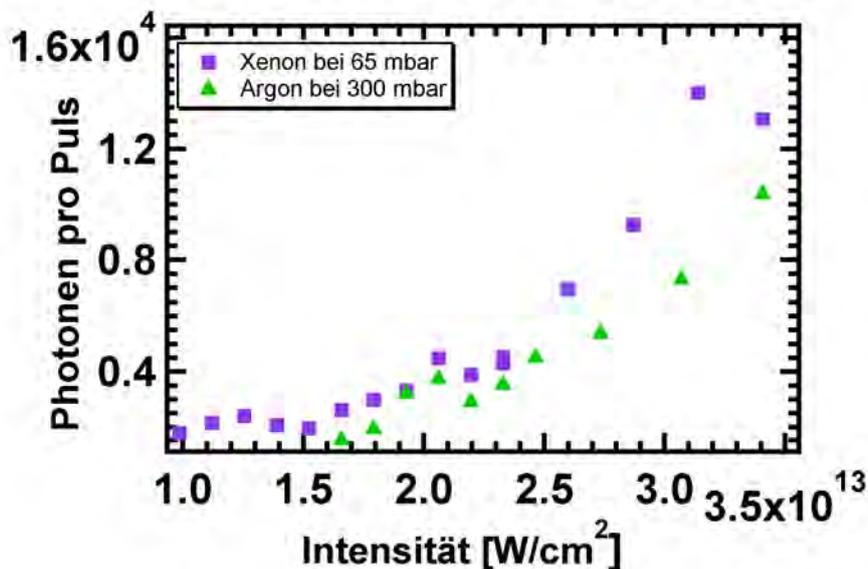


Abbildung 6.2.2.: Abhängigkeit der VUV-Photonenzahl von der Intensität in Argon und Xenon bei doppelter Strahltaile im kleinen Intensitätsbereich. Die Fokussierung erfolgte mit einer „40 mm“ Linse ($b=0,46\text{ cm}$).

Für Xenon lassen sich 9 eV -Photonen bei kleinerer Intensität nachweisen als bei Argon. Für Argon lässt sich das Vorhandensein von 9 eV -Photonen noch unter einem Wert von $2 \cdot 10^{13}\text{ W/cm}^2$ nachweisen. Das entspricht bei einem konfokalen Parameter $b = 0,46\text{ cm}$ einer Energie von unter $9\text{ }\mu\text{J}$.

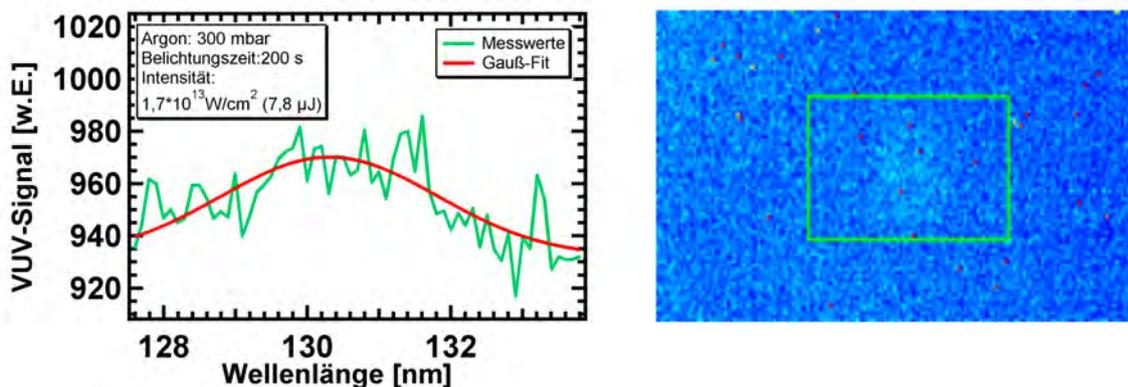


Abbildung 6.2.3.: VUV-Signal bei $7,8\text{ }\mu\text{J}$ in Argon. Die Fokussierung erfolgte mit einer 40 mm Linse ($b=0,46\text{ cm}$). links: Auswertung der Bilddaten rechts: Rohdaten der Messung. Die „Counts“ der Kamera wurden nicht in Photonenzahl umgerechnet, auch wurde nicht der Untergrund abgezogen, um das Verhältnis von Untergrund und Signal zu verdeutlichen.

Der kleinste Energiewert, der für Argon ermittelt wurde, betrug $7,8 \mu J$ bei Belichtungszeiten von $200 s$. Die letzte Messung von Argon wurde mit $400 s$ durchgeführt, aber es konnte kein Signal identifiziert werden.

Für Xenon konnte $9 eV$ -Photon bis zu einem Wert von unter $1,5 \cdot 10^{13} W/cm^2$ nachgewiesen werden. Das entspricht einem Energiewert von unter $7 \mu J$ bei einer Fokussierung mit einer $40 mm$ Linse.

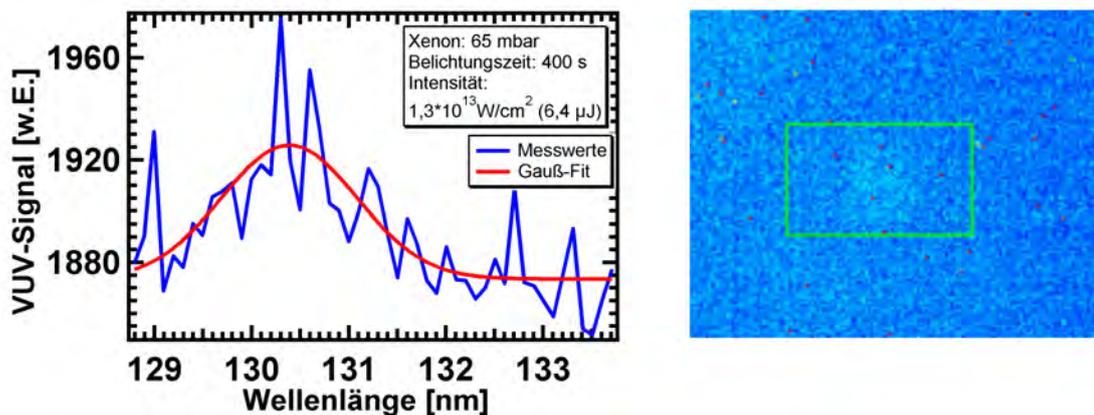


Abbildung 6.2.4.: VUV-Signal bei $6,4 \mu J$ in Xenon. Die Fokussierung erfolgte mit einer $40 mm$ Linse ($b=0,46 cm$). links: Auswertung der Bilddaten rechts: Rohdaten der Messung. Die „Counts“ der Kamera wurden nicht in Photonenzahl umgerechnet, auch wurde nicht der Untergrund abgezogen, um das Verhältnis von Untergrund und Signal zu verdeutlichen.

Der kleinste Energiewert, der in Xenon ermittelt wurde, lag bei $6,4 \mu J$.

Die Intensitäten bei unterschiedlicher Fokussierung sind vergleichbar. Mit der verwendeten Kamera lässt sich die $9 eV$ Strahlung bis zu einem Wert von etwa $2 \cdot 10^{13} [W/cm^2]$ darstellen.

6.3. Fazit

Die Messung der Energieabhängigkeit der $9 eV$ -Strahlung wurde erfolgreich durchgeführt. Aus den Messungen lässt sich mit der Umrechnung aus Kapitel 4 die Photonenzahl ermitteln. Die Photonenzahl ist bei kleiner Intensität für Xenon größer als bei Argon. Da Xenon die niedrigste Ionisationsenergie aller Edelgase hat, lässt es sich nach [42] leichter polarisieren. Das würde zu einer höheren Konversionseffizienz führen. Dies konnte aber bei höherer Eingangsintensität nicht bestätigt werden.

Die nach der Theorie zu erwartende I^q -Abhängigkeit konnte nicht bestätigt werden. Der lineare Verlauf der $9 eV$ -Strahlung mit der Energie der Fundamentalen wurde aber auch von Zacherias *et. al.* [42] gezeigt.

Die Energieabhängigkeit der Photonenzahl bei veränderter Fokussierung lässt sich mit der Energieabhängigkeit im wie in Abbildung 6.1.1 und 6.1.2 gezeigten Verlauf vergleichen. Auch hier lässt sich die Abhängigkeit mit I^q nicht, wie theoretisch zu erwarten wäre, zeigen.

Eine mögliche Erklärung lässt sich durch die Existenz eines Filamentes und des linearen Verlaufes von der Größe des Filamentes mit der Intensität aus Abbildung 5.4.3 aufzeigen. Für die Erzeugung der 3. Harmonischen ist nicht nur die Pulsenergie entscheidend, sondern die Fokussierung und somit die Intensität. Die Pulsenergie lässt sich bei stärker Fokussierung reduzieren, um eine vergleichbare Photonenzahl für die 9 eV-Strahlung zu erhalten.

Die durchgeführten Messungen zeigen aber, dass kein Schwellenwert für die Erzeugung der 3. Harmonischen festzustellen ist. Für Argon und Xenon wurden 9 eV-Photonen bis zu einer Intensität von $2 \cdot 10^{13} [W/cm^2]$ nachgewiesen. Es konnte für Argon ein maximaler Energiewert von $7,8 \mu J$ und für Xenon von $6,4 \mu J$ nachgewiesen werden. Die zu erwartende Photonenzahl bei Energien von unter $10 \mu J$ liegt für Argon und Xenon etwa bei 10^3 Photonen pro Puls.

7. Schlussfolgerungen

In diesem abschließenden Kapitel werden alle Ergebnisse noch einmal dargestellt und zusammengefasst. Anschließend werden Möglichkeiten aufgezeigt, wie die Messungen verbessert werden könnten. Weiterhin wird sich mit den möglichen Ausblicken und offenen Fragen beschäftigt.

7.1. Zusammenfassung der experimentellen Ergebnisse

In dieser Arbeit wurde die erfolgreiche Erzeugung der 9 eV-Strahlung in einer Gaszelle unter Anwesenheit positiver Dispersion des Mediums dargestellt. Im Laufe der Experimente wurde einiges im Aufbau verbessert. Durch den VUV-Bandpassfilter konnte die erzeugte Harmonische vom Untergrund getrennt werden. Durch Modifikation der Gaszelle konnte die Signalstärke konstant gehalten werden, da die 9 eV-Strahlung sehr anfällig auf Umgebungsluft reagiert.

Mit Hilfe der Quanteneffizienz des Phosphors konnte eine Konversionseffizienz von $5 \cdot 10^{-8}$ für Argon abgeschätzt werden. Dies entspricht etwa 1-2 Größenordnungen weniger, als die angegebenen Konversionseffizienzen von [33] und [17] für Xenon mit ps-Pulsen in negativer Dispersion und 2 Größenordnungen mehr als im Nicht-Resonanzfall [41].

Das Ergebnis der Messung der Fluenz ist, dass die Anzahl der Photonen der 9 eV-Strahlung unter einem Wert von 10^6 Photonen pro Puls liegen muss.

Die Phasenanpassung wurde experimentell erfolgreich für unterschiedliche Fokussierungen bestimmt. Gleichzeitig konnte die Abweichung der Theorie aufgezeigt werden, die nur für die Erzeugung der Harmonischen in Medien mit negativer Dispersion gültig ist. Durch die Anwesenheit eines Filamentes konnte die Möglichkeit eines zusätzlichen Beitrages zum Brechungsindex dargestellt werden, der die Phasenanpassung ermöglichen könnte. Die Entstehung des Filamentes ist möglicherweise Voraussetzung für die Erzeugung der 3. Harmonischen in Medien mit positiver Dispersion.

Durch Einführung eines weiteren Beitrages zum Brechungsindex ist es möglich, die Phasenanpassung für Xenon zu simulieren; für Argon hängt dieser Beitrag von der Fokussierung ab. Die Existenz von Ionisation und Filament wurden bei weiteren Untersuchungen bestätigt. Ein Ionisationsgrad von $1,04 \cdot 10^{-5}$ wurde aus der Blauverschiebung

der Fundamentalen für den maximalen Druck von 1 *bar* abgeschätzt. Die Energieabhängigkeit für die 9 *eV*-Strahlung konnte experimentell dargestellt werden und eine Abweichung zu dem I^q -Verlauf aufgezeigt werden. Die Möglichkeit der Reduzierung der Energie der Fundamentalen wurde durch Veränderung der Strahldurchmesser erfolgreich demonstriert und VUV-Photon von 10^3 bei einer Eingangsenergie von 6,4 μJ nachgewiesen. Dem angestrebten Ziel dieser Arbeit konnte sich angenähert werden, aber die effiziente Erzeugung bis hin zu 1 μJ konnte wegen nicht ausreichender Detektierempfindlichkeit und niedriger Wiederholungsrate nicht bestätigt werden.

Die folgende Tabelle enthält alle wichtigen experimentellen Werte zusammengefasst:

| | | | |
|--------------|------------------------|---|--|
| Argon | Fokussierung | 80 <i>mm</i> ($b = 0,709 \text{ cm}$) | 40 <i>mm</i> ($b = 0,46 \text{ cm}$) |
| | kleinster Energiewert | 18,6 μJ ($2,6 \cdot 10^{13} [\frac{W}{cm^2}]$) | 7,8 μJ ($1,7 \cdot 10^{13} [\frac{W}{cm^2}]$) |
| | optimaler Druck (exp.) | 400-450 <i>mbar</i> | 250-300 <i>mbar</i> |
| Xenon | Fokussierung | 80 <i>mm</i> ($b = 0,709 \text{ cm}$) | 40 <i>mm</i> ($b = 0,46 \text{ cm}$) |
| | kleinster Energiewert | 14 μJ ($1,9 \cdot 10^{13} [\frac{W}{cm^2}]$) | 6,4 μJ ($1,5 \cdot 10^{13} [\frac{W}{cm^2}]$) |
| | optimaler Druck (exp.) | 30-40 <i>mbar</i> | 60-65 <i>mbar</i> |

7.2. Ausblicke

Das angestrebte Ziel dieser Arbeit, eine Strahlung von 9 *eV* bis zu einer Energie bis zu 1 μJ effizient zu erzeugen, konnte nicht ganz erreicht werden. Das Detektionsvermögen der verwendeten Kamera war nicht ausreichend, um die 9-*eV*-Strahlung bei einer Eingangsenergie unterhalb 6,4 μJ zu detektieren. Das Ziel über einen stärkeren Fokus zu erreichen, war aufgrund des experimentellen Aufbaus bedingt möglich. Durch die Strahlaufweitung konnte man sich dem Ziel jedoch annähern.

Durch einige Veränderungen könnte das angestrebte Ziel erreicht werden:

1. Eine noch stärkere Fokussierung: Durch Kombination von Strahlaufweitung und Verwendung von Linsen mit Brennweiten von unter 40 *mm* würde man eine noch stärkere Fokussierung erhalten. Dafür müsste der Objektstand zwischen Gaszelle und Gitter verändert werden, so dass der Fokus in der Gaszelle immer noch auf dem Rowlandkreis liegt.
2. Minimierung des Streulichtes der Fundamentalen: Die Reflexionen der Vakuumkammerwände müssten verringert werden. Dies ist in der Umsetzung aufgrund des Vakuums schwierig.
3. Minimierung des Streulichtes für die Fluenzmessung: Durch die Verwendung eines zweiten VUV-Bandpass-Filters könnte das Streulicht der Fundamentalen reduziert werden. Das CaF_2 -Fenster (siehe Abbildung 3.4.1) könnte durch einen dieser Filter ersetzt werden, so dass die Fundamentale sehr abgeschwächt auf das

Gitter treffen würde.

Durch Verwendung eines anderen dispersiven Mediums, dessen Winkel zwischen Fundamentale und 9 eV-Strahlung größer ist, könnten Reflexionen minimiert werden.

4. Erhöhung der Photonrate: Als Lichtquelle zur Erzeugung der 3. Harmonischen wird ein Lasersystem mit höherer Repetitionsrate verwendet.
5. Änderung des Detektors: Statt die 9 eV-Strahlung mit einer Kamera zu detektieren, könnte man den experimentellen Aufbau in ein Photoemissionsspektroskopie-Experiment integrieren. Durch die Detektion von Elektronen einer bestimmten Energie/bzw. Winkel könnte der Nachweis erbracht werden. Dabei würden nur eine geringe Anzahl an freien Elektronen gebraucht werden.

Die letzten beiden Punkte beziehen sich auf den in der Einleitung dargestellten Sachverhalt. Die Ergebnisse dieser Arbeit sollen die Grundlage für eine gepulste Strahlungsquelle liefern, die für die Photoemissionsspektroskopie verwendet werden soll. Ob mit dieser Strahlungsquelle erfolgreich Photoemissionsspektroskopie durchgeführt werden kann, muss die Praxis zeigen.

Die Erzeugung der 3. Harmonischen erfolgt in positiver Dispersion. Das verwendete theoretische Modell erklärt eine Zunahme der Konversion, wenn eine negative Dispersion vorliegt. Bei Xenon würde man eine höhere Effizienz erwarten, wenn bei der erzeugten 3. Harmonischen eine negative Dispersion vorliegen würde. Die Wellenlänge von 133 nm liegt bei Xenon zwischen zwei Resonanzen. Durch eine Verschiebung der Wellenlänge der 3. Harmonischen in den Resonanzbereich könnte die Effizienz gesteigert werden. Die höchste Effizienz ist nach [22] für eine Wellenlänge von 140 nm zu erwarten. Dies könnte durch die Verwendung einer Fundamentalen von 420 nm erreicht werden. Dies würde aber zur Folge haben, dass die Pulsdauer der 9-eV-Strahlung sich aufgrund der Dispersion vergrößern würde.

7.2.1. Messung der Pulsdauer der 3. Harmonischen

Wie schon in der Einleitung erwähnt, ist nicht nur die Energie der Strahlung von Relevanz, sondern um dynamische Prozesse untersuchen zu können, muss die Pulsdauer dieser Strahlung sehr gering sein. Deswegen ist eine Messung der Pulsdauer erforderlich. Zwar lässt sich die Pulsdauer theoretisch mit Gleichung A.1 auf einen Wert von 20,4 fs berechnen, aber der theoretische und experimentelle Wert können sehr stark voneinander abweichen. Wie aber lässt sich die Pulsdauer einer 9 eV-Strahlung bestimmen? Ein Antwort lässt sich in einer Arbeit von Krausz *et. al.* am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in München aus dem Jahre 2010 finden [21]. Durch eine Autokorrelationsmessung lässt sich die Pulsdauer von Laserpulsen ermitteln. Die generierte VUV-Strahlung muss so gefiltert werden, dass keine Strahlung der Fundamentalen

mehr vorhanden ist. Die VUV-Strahlung wird durch zwei Spiegel dispersionsfrei in zwei Teilstrahlen mit vergleichbarer Intensität aufgespalten. Einer der Spiegel lässt sich durch einen Schrittmotor verschieben, so dass eine zeitliche Verzögerung der beiden Pulse stattfindet ($0,1 \text{ fs}$). Die beiden Teilstrahlen werden durch eine Linse in ein Gasmedium fokussiert, wobei der räumliche und zeitliche Überlapp der beiden Teilstrahlen gewährleistet sein muss.

Hier ist die Wahl eines geeigneten Gases entscheidend. Es eignen sich besonders Edelgase, die ein hohes Ionisationspotenzial I_P haben. Im Fall von einer 9 eV -Strahlung würden sich Neon ($I_P=21,6 \text{ eV}$ [Quelle]) oder Helium ($I_P=24,6 \text{ eV}$) eignen.

Nach der Fokussierung im zu ionisierenden Gas gelangen die beiden Teilstrahlen auf einen Detektor, bestehend aus einem Phosphorschirm und einer CCD-Kamera, wo die Interferenz der beiden Teilstrahlen abgebildet wird. Die Pulsdauer lässt sich auf zwei verschiedenen Wegen ermitteln:

1. Durch doppeltlogarithmische Auftragung der UV-Energie gegen die Ionenkonzentration erhält man aus der Steigung der Geraden die Pulsdauer.
2. Durch Auftragung der Verzögerung der beiden Teilstrahlen gegen die Ionenkonzentration erhält man aus der Halbwertsbreite der Kurve die Pulsdauer.

7.2.2. Exkurs: Ein interessantes Phänomen

Während der Experimente zu dieser Arbeit wurde ein interessantes Phänomen beobachtet. Da dieses Phänomen keine Relevanz für die Fragestellung dieser Arbeit hat, wurde es nicht weiter untersucht. Wurde das Gas aus der Gaszelle evakuiert, entstand kurzzeitig ein Durchbruch. Der Druckbereich lag etwa zwischen 1 bar und 200 mbar und wurde in Argongas beobachtet.

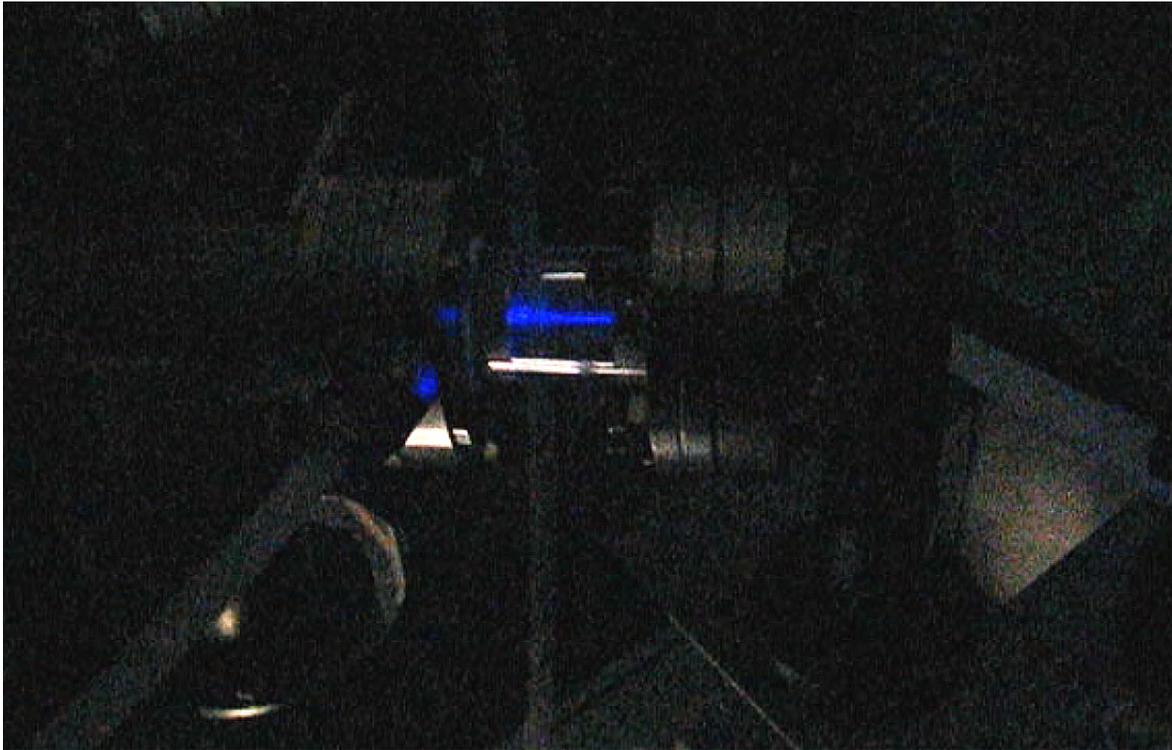


Abbildung 7.2.1.: Beim Abpumpen des Versuchsgases aus der Gaszelle gab es für einen kurzen Moment einen optischen Durchbruch. Dieses Phänomen trat vorwiegend bei Argon auf.

Eine plausible Erklärung für dieses Phänomen wurde bis jetzt nicht gefunden.

Literaturverzeichnis

- [1] *Hamamatsu C4742-95-10 bit Camera Manual*.
<http://sales.hamamatsu.com/assets/pdf/hpspdf/C4742-95-12G04.pdf>. Stand 09-2011.
- [2] <http://physics.nist.gov/physrefdata/handbook/tables/argontable2.htm>. Stand 2008.
- [3] S. Backus, J. Peatross, Z. Zeek, A. Rundquist, G. Taft, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. 16-fs, 1-myj ultraviolet pulses generated by third-harmonic conversion in air. *Optical Letters*, Vol. 21. No. 9:6365–668, 1996.
- [4] E.L. Benitez, D. E. Husk, S.E. Schnatterly, and C. Tarrio. A surface recombination model applied to large features in inorganic phosphor efficiency measurements in the soft x-ray region. *J. Appl.Phys.*, Vol. 70, No. 60:3256–3260, 1991.
- [5] L. Berge, S. Skupin, R. Nuter, J. Kasparian, and J. P. Wolf. Ultrashort filaments of light in weakly ionized optically transparent media. *Rep. Prog. Phys.*, Vol. 70:1633–1713, 2007.
- [6] A. Bideau-Mehu, Y. Guern, R. Abjean, and A. Johannin-Gilles. Measurement of refractive indices of neon, argon, krypton and xenon in the 253.7-140.4 nm wavelength range. dispersion relations and estimated oscillator strength of the resonance lines. *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, 25:395–402, 1981.
- [7] Gary C. Borklund. Effects of focusing on third-order nonlinear processes in isotropic media. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, QE.11, No. 6:287–296, 1975.
- [8] Max Born. *Optik: ein Lehrbuch der elektrischen Lichttheorie*. Springer Verlag Berlin, 1972.
- [9] Uwe Bovensiepen and Patrick Kirchmann. Elementary relaxation processes investigated by femtosecond photoelectron spectroscopy of two-dimensional materials. *Laser & Photonics Reviews*, 0:1–17, 2010.
- [10] Ivan P. Christov, Margaret M. Murnane, and Henry C. Kapteyn. High-harmonic generation of attosecond pulses in the single-cycle regime. *Physical Review Letters*, Vol.78 Issue 7:1251–1254, 1997.
- [11] H. J. Eichler, J.. and. Eichler. *Laser: Bauformen, Strahlführung, Anwendungen*. Springer Verlag Berlin, 2010.

- [12] Hans-Joachim Eichler and Heinrich Grobrecht. *Bergmann/ Schäfer: Lehrbuch der Experimentalphysik: Band III Optik*. de Gruyter, 1987.
- [13] A. E. Franken, P.A. and Hil, C.W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Physical Review Letter*, 7, Nr. 4:118–120, 1961.
- [14] Mizuho Fushitani, Akitaba Matsuda, and Akiyoshi Hishikawa. Time-resolved euv-photoelectron spectroscopy of dissociating i_2 by laser harmonics at 80 nm. *Optical Express*, 19(10):9600–9606, 2011.
- [15] Oliver Heinze. Erzeugung von ultrakurzen impulsen im extremen uv-bereich für zeitaufgelöste photoelektronenspektroskopie. Master’s thesis, Universität Duisburg-Essen, 2002.
- [16] Stefan Hüfner. *Photoelectron Spectroscopy: Principles and Applications*. Springer Verlag Berlin, 2003.
- [17] R. Hillbig and R. Wallenstein. Enhanced production of tunable vuv radiation by phase-matched frequency tripling in krypton and xenon. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 17 Issue:8:1566 – 1573, 1981.
- [18] CA USA International Radiation Detectors, Inc. Newbury Park. <http://www.ird-inc.com/brochure/ird2010.pdf>, 2010. Stand 2010.
- [19] A. E. Kingston. Refractive indices and verdet constants of inert gases at ultraviolet wavelengths. *Journal of the optical Society of America*, 54:1145–1146, 1964.
- [20] Charles Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg Verlag München Wien, 2006.
- [21] Ferenc Krausz, Florentin Reiter, Ulrich Graf, Martin Schultze, Wolfgang Schweinberger, Nicholas Schröder, Hartmut Karpowicz, Abdallah Mohammed Azzeer, Reinhard Kienberger, and Eleftherios Goulielmakis. Generation of sub-3 fs pulses in the deep ultraviolet. *Optics Letters*, 35, No 13:2248–2250, 2010.
- [22] A. Largo, G. Hilber, and R. Wallenstein. Optical-frequency conversion in gaseous media. *Physical Review A*, Volumen 36, Number 8:3827–3836, 1987.
- [23] A. L’Huillier, X. F. Li, and L. A. Lompre. Propagation effects in high-order harmonic generation in rare gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol. 7, No. 4:527–537, 1990.
- [24] Manuel Ligges. Erzeugung hoher harmonischer in gasgefüllten hohlfasern. Master’s thesis, Universität Duisburg-Essen, 2005.
- [25] Rita Mahon, Thomas J. McIlarth, Valerie P. Mywerscough, and David W. Kopman. Third-harmonic generation in argon, krypton, and xenon: Bandwidth limitations in the vicinity of lyman-alpha. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, QE-15, No 6:444–451, 1979.

- [26] G. Marcus, A. Zigler, and Z. Henis. Third-harmonic generation at atmospheric pressure in methane by use of intense femtosecond pulses in the tight-focusing limit. *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol. 16, No. 5:792–801, 1999.
- [27] T. Munakata, T. Masuda, N. Ueno, S. Sakaya, T. Sugiyama, N. Takechiro, and Y. Sonoda. Microspot photoemission spectrometer based of fs-vuv radion. *Surface Science*, 532-535:1140–1144, 2003.
- [28] Tenio Popmintchev, Ming-Chang Chen, and et al. Phase matching of high harmonic generation in the soft and hard x-ray regions of spectrum. *PNAS*, 106 No 26:10516–10521, 2009.
- [29] Luxembourg Qoptiq. http://www.linos.com/pages/mediabase/original/glasdaten_2187.pdf, 2010. Stand 2011.
- [30] John F. Reintjes. *Nonlinear Optical Parametric Processes in Liquid and Gases*. Academic Press Inc. Orlando, Florida, 1984.
- [31] John F. Reintjes. Nonlinear optical processes. *Encyclopedia of Physiacal Science and Technology*, 1:535–581, 2004.
- [32] Claude Rulliere. *Femtosecond Laser Pulses: Principles and Experiments*. Springer Verlag Berlin, 1998.
- [33] Y. E. Shen. *Pinciples of Nonlinear Optics*. John Wiley & Sons. Inc., 2003.
- [34] C. W. Siders, N. C. Turner III, M. C. Downer, A Babine, A. Stepanov, and A. M. Sergeev. Blue-shifted third-harmonic generation and correlated self-guiding during ultrafast barrier suppression ionization of subatmospheric density noble gases. *J. Opt. Soc. Am. B*, Vol. 13, No. 2:330–336, 1996.
- [35] Arlee Smith. <http://www.as-photonics.com/snlo.html>, as photonics, albuquerque, new mexico. Stand 09-2011.
- [36] The Imaging Source. http://www.theimagingsource.com/de_de/products/cameras/usb-ccd-mono/dmk21au04/.
- [37] Maria Tudorovskaya and Manfred Lein. High-order harmonic generation in the presence of a resonance. *Physical Review A*, Vol. 84:013430 1–6, 2011.
- [38] C.-G. Wahlström, J. Larsson, A. Persson, and S. Starczewski, T.and Svanberg. High-order harmonic gerneration in rare gases with an intense short-pulse laser. *Physical Review A*, 48,No 6:4709–4720, 1993.
- [39] Marvin J. Weber. *Handbook of optical materials*. CRC-Press, 2003.
- [40] Amnon Yariv. *Quantum Elektroniks*. John Wiley & Sons. Inc., 1989.
- [41] H. Zacharias and J. Kutzner. Vuv generation by frequency tripling the third harmonic of a picosecond khz nd:yf laser in xenon and mercury vapour. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, B66:571–577, 1998.

- [42] H. Zacherias and J . Kutzner. Harmomic generation in the discrete spectral region on xenon using broadband femtosecond laser pulses. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, B 80:203–210, 2005.
- [43] X.J. Zhou, B. Wannberg, W.L. Yang, V. Bouret, Z. Sun, D. Douglas, J.F.and Dessau, Hussain. Z., and Z.-X. Shen. Space charge effects and mirror charge effects in photoemission spectroscopy. *Journal if Electron Spectroscopy*, Vol.142:27–38, 2005.

Erklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel angefertigt habe. Die aus fremden Quellen direkt oder indirekt übernommenen Gedanken sind als solche kenntlich gemacht. Die Arbeit wurde bisher weder im Inland noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die Arbeit wurde unter wissenschaftlicher Betreuung durch Herrn Prof. Dr. Uwe Bovensiepen und Dr. Ping Zhou an der Fakultät für Experimentelle Physik der Universität Duisburg-Essen angefertigt.

Duisburg, 30. September 2011

Nathanael Nielsch

Danksagung

Diese Arbeit ist das Ergebnis eines Prozesses, der vor 11 Jahren nachweislich mit dem ersten Abend am Abendgymnasium begonnen hat. Während dieser Zeit haben viele Menschen mit dazu beigetragen, dass ich diesen eingeschlagenen Lebensweg meistern konnte. Deshalb ergreife ich hier die Gelegenheit, allen denen eine Anerkennung auszusprechen, denen ich sehr zu Dank verpflichtet bin. Dabei kann ich mich auf Grund der Vielzahl der Menschen nur auf eine kleine, aber wichtige Auswahl beschränken.

- Herrn Prof. Dr. Uwe Bovensiepen, der mir diese überaus interessante Arbeit angeboten hat und mich mit Rat und Tat während dieser Zeit begleitet hat.
- Herrn Dr. Ping Zhou, der als meine direkte Betreuung sehr viel Zeit, Mühe und Geduld in mich investiert hat. Ich habe durch seine Hilfe sehr viel in der experimentellen Physik lernen können.
- Dem gesamten Team der AG Bovensiepen. Besonders möchte ich mich bei Dr. Manuel Ligges, Mathias Sandhofer, Simon Freutel, Dr. Alexander Trasevitch und Michael Bieske bedanken, die ihren Anteil an diesen Ergebnissen haben.
- Meinem Vater, der mir während des Studiums finanziell unter die Arme gegriffen hat.
- Meinem Bruder Prof. Dr. Kornelius Nielsch, der mich während meines Studiums und während dieser Arbeit immer gut beraten hat und mir die ausreichende Motivation gegeben hat, dieses Studium zu beenden.
- Meinem Bruder Philippus Nielsch, der mir durch seinen Einsatz in jeglicher Lebensbeziehung eine große Hilfe war.
- Dem damaligen Stationspfleger der G5 Joachim Pertz, der mir den Besuch der Abendschule ermöglicht hat.
- Wolfgang Lessmann für die überaus lohnenden und lehrreichen Abende bei Opa Heinz.
- Herrn Hans Angerhausen, der mir soziale Verantwortung übertragen hat und mich dadurch während des Studiums sehr unterstützt hat.

- Meiner Kommilitonin Karoline Piegdon, die mir während der Abendschulzeit und im Grundstudium eine große Hilfe und ein guter Leidensgenosse war.
- Den Mitarbeitern des Augustinus Pflegedienst in Rheinhausen für eine gute Zeit in der Pflege, so dass ich mein Studium all die Jahre finanzieren konnte.
- Meinen Freunden Felix Best, Jochen Leuf, Björn Schulze und Christian Janssen, die immer im richtigen Moment da waren und meinen Lebensweg unterstützt haben.
- Mein ganz besonderer Dank gilt meiner Freundin Pia Feistauer, die nicht nur die Grammatik dieser Arbeit überwacht hat, sondern so viel für mich getan hat, dass diese Zeilen nicht ausreichen, um meinen Dank auszudrücken.

A. Anhang

A.1. Abschätzung der spektralen Breite der Harmonischen

Die Abschätzung der spektralen Breite erfolgt im Frequenzraum unter der Annahme, dass für die Pulsdauer der Harmonischen gilt

$$\Delta t_q = \frac{\Delta t_F}{\sqrt{q}} \quad (\text{A.1})$$

Dabei ist q die Ordnung der Harmonischen und t_F die Pulsdauer der Fundamentalen. Für das Fouriertransformationslimit gilt:

$$\Delta t \cdot \Delta \omega = \text{const.} \quad (\text{A.2})$$

Dann folgt daraus:

$$\Delta t_q \cdot \Delta \omega_q = \Delta t_F \cdot \Delta \omega_F \quad (\text{A.3})$$

und mit Gleichung A.1 erhalten wir

$$\Delta \omega_q = \Delta \omega_F \cdot \sqrt{q} \quad (\text{A.4})$$

Für $\Delta \omega$ lässt sich eine Taylorentwicklung machen und für den ersten Term gilt:

$$\Delta \omega = \frac{c}{\lambda^2} \Delta \lambda \quad (\text{A.5})$$

und mit Gleichung A.4 folgt dann

$$\frac{c}{\lambda_q^2} \cdot \Delta \lambda_q = \frac{c}{\lambda_F^2} \Delta \lambda_F \sqrt{q} \quad (\text{A.6})$$

Für die Wellenlänge der Fundamentalen gilt:

$$\lambda_F = q \cdot \lambda_q \quad (\text{A.7})$$

Dann folgt für Gleichung A.6:

$$\Delta\lambda_q = \Delta\lambda_F \frac{\sqrt{q}}{q^2} \quad (\text{A.8})$$

Für die 6. Harmonische folgt mit der Pulsbreite der Fundamentalen $\Delta\lambda_F = 28 \text{ nm}$ dann

$$\Delta\lambda_6 = \Delta\lambda_F \frac{\sqrt{6}}{6^2} = \frac{28 \text{ nm} \cdot \sqrt{6}}{36} = 1,905 \text{ nm} \quad (\text{A.9})$$

Für die 2. Harmonische ergibt sich folgendes Ergebnis

$$\Delta\lambda_2 = \Delta\lambda_F \frac{\sqrt{2}}{2^2} = \frac{28 \text{ nm} \cdot \sqrt{2}}{4} = 9,9 \text{ nm} \quad (\text{A.10})$$

A.2. Fokussierung von Gaußstrahlen

Für den Umgang mit Laserstrahlung reicht die geometrische Optik nicht aus. Es empfiehlt sich der Übergang zur Gaußoptik. Eine Kugelwelle mit imaginärem Zentrum in der komplexen Ebene lässt sich durch eine komplexe Größe q schreiben.

$$z \rightarrow z + iz_R = q \quad (\text{A.11})$$

Die Größe z_R wird als reell angenommen und wird als Rayleighlänge bezeichnet. Dann folgt für eine Kugelwelle, wenn $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ und $r \ll |q|$:

$$E(r, z, t) \approx \frac{B}{q} \exp\left(-\frac{r^2}{w^2(z)}\right) \exp\left(-i\frac{kr^2}{2R(z)}\right) \exp(i(\omega t - kz)) \quad (\text{A.12})$$

dabei ist $B = A \exp(kz_R)$ wie A eine unbestimmte Amplitude, $R(z)$ beschreibt den Krümmungsradius, der sich mit z verändert.

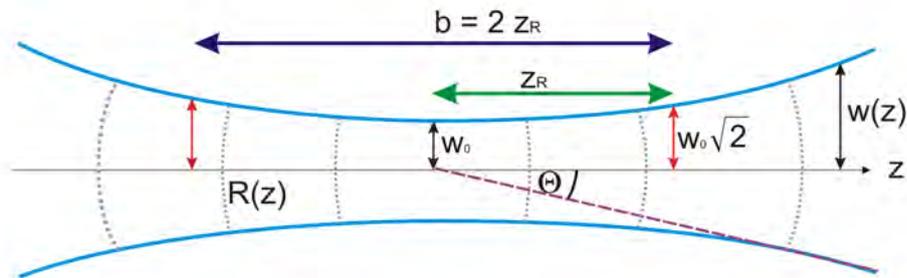


Abbildung A.2.1.: Betrachtung eines Gaußstrahls in z-Richtung. Bei z_0 ist die Strahlweite am geringsten. Die Rayleighlänge entspricht der Länge, bei der die Strahlweite um einen Faktor $\sqrt{2}$ größer geworden ist.

Die Größe $w(z)$ ist der Strahlradius am Ort z .

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + z^2/z_R^2} \quad (\text{A.13})$$

und w_0 entspricht dem kleinsten Strahlradius am Punkt $z = 0$

$$w_0 = \sqrt{\frac{z_R \lambda}{\pi}} \quad (\text{A.14})$$

Für $z = z_R$ weitet sich der Gaußstrahl um Faktor $\sqrt{2}$ des Wertes w_0 . Der Abstand zwischen dem linken und rechten Punkt wird als konfokaler Parameter bezeichnet:

$$b = 2z_r \text{ mit } z_r = \frac{w_0 \pi}{\lambda} \quad (\text{A.15})$$

Der Divergenzwinkel für große Abstände $z \gg z_R$ wächst linear mit z , dann folgt daraus

$$\Theta = \frac{\lambda}{\pi w_0} \quad (\text{A.16})$$

Wenn nun ein Gaußstrahl durch eine Linse fällt, so lassen sich unter Verwendung der Matrizenoptik die beiden Bereiche vor und nach der Linse betrachten:

$$\frac{1}{q_2} = \frac{1}{q_1} - \frac{1}{f} \quad (\text{A.17})$$

dabei ist f die Brennweite der Linse. Dann ergibt sich für die Betrachtung eines neuen Strahldurchmessers w'_0 und neuer Rayleighlänge z'_R

$$q_1 = a + i z_R \quad (\text{A.18})$$

$$q_2 = a' + i z'_R \quad (\text{A.19})$$

dabei sind a und a' die Abstände zwischen Linse und der alten bzw. der neuen Strahltaile w_0 bzw. w'_0 .

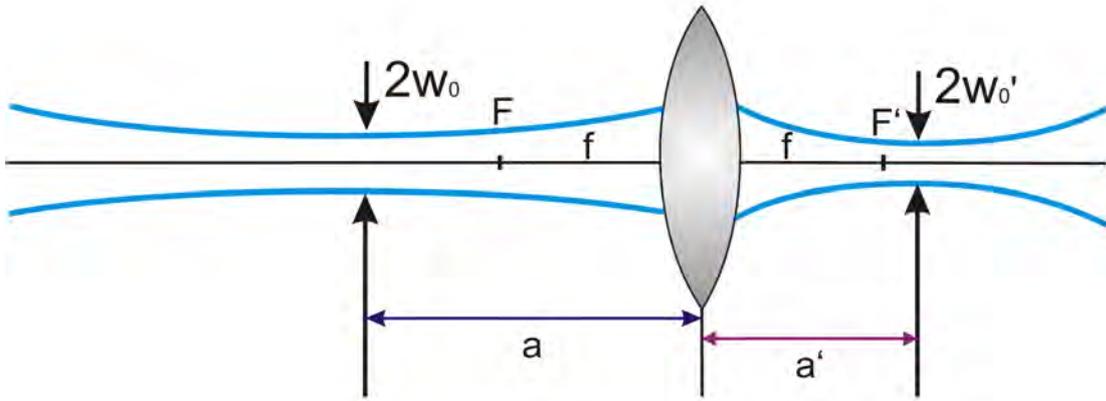


Abbildung A.2.2.: Ein Gaußstrahl fällt durch eine Linse. Dadurch entsteht eine neue Strahlweite, die nicht im Brennpunkt der Linse liegen muss.

Die neue Strahlweite liegt nicht immer im Brennpunkt, sondern kann verschoben sein. Das hängt von Abstand a ab. Es ergibt sich dann für die neue Strahlweite

$$w_0' = \frac{f}{\sqrt{(a-f)^2 + z_R^2}} w_0 \quad (\text{A.20})$$

Betrachtet man den Sonderfall, dass der Abstand $a = f$ ist, so gilt für $a' = -f$ und für die neue Strahlweite folgt dann:

$$w_0' = \frac{\lambda f}{\pi w_0} \quad (\text{A.21})$$