# Zeitliche Verteilung von Auger-Elektronen-Wellenpaketen aus der Photoionisation von Atomen

Dissertation zur Erlangung des Doktorgrades an der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften Fachbereich Physik der Universität Hamburg

Vorgelegt von

Roman Brannath

Hamburg 2016

Gutachter der Dissertation

Prüfungskommission

Prof. Dr. Markus Drescher Junior Prof. Dr. Ulrike Frühling

Prof. Dr. Peter Schmelcher (Vorsitz) Prof. Dr. Markus Drescher Junior Prof. Dr. Ulrike Frühling Priv. Doz. Dr. Tim Laarmann Prof. Dr. Henning Moritz

Datum der Dissertation

17. Mai 2017

#### Zusammenfassung

Das Ziel der vorliegenden Arbeit ist die zeitlich aufgelöste Untersuchung der Wellenpakete bestimmter Auger-Elektronen. Daraus lässt sich direkt auf die Zerfallskonstanten der Löcher in der inneren Atomschale schließen, denn deren Besetzung geht unmittelbar der Emission eines Auger-Elektrons voraus. Als Messapparatur wurde eine laserbasierte THz-Streak-Kamera aufgebaut. Dies beinhaltete den Umbau einer bestehenden Hohe-Harmonischenquelle und dem Einrichten einer THz-Quelle, die auf dem Prinzip optischer Gleichrichtung basiert. Zusätzlich wurde ein Atomstrahlofen entwickelt mit dem Feststoffe kontrolliert verdampft werden können, um Experimente in der Gasphase durchzuführen. Dabei wurden durch die Heizprozesse auftretende elektromagnetische Felder minimiert, so dass emittierte Elektronen nicht beeinflusst werden. Mit der THz-Streak-Kamera wurden schließlich die *LMM* Auger-Elektronen

aus atomarem Magnesium zeitaufgelöst vermessen. Dabei konnte eine Abweichung von der erwarteten exponentiellen Zerfallscharakteristik festgestellt und erklärt werden.

#### Abstract

The aim of this thesis is the time-resolved study of wave packets of certain Auger electrons. From this the decay constants of the core-holes in the atom can be concluded directly because their occupation directly precedes the emission of an Auger electron. A laser-based THz-streak-camera was constructed as a measuring device. This involved the reconstruction of an existing high harmonic source and the establishment of a THz source based on the principle of optical rectification. In addition, an atomic beam oven has been developed with which solid matters can be evaporated in a controlled manner in order to conduct experiments in the gas phase. Electromagnetic fields occurring during heating processes have been minimized so that emitted electrons are not affected.

With the THz-streak-camera temporally resolved measurements of the LMMAuger electrons of atomic magnesium have been performed. A deviation from the expected exponential decay characteristic could be observed and explained.

# Inhaltsverzeichnis

1	Ein	leitung	1				
<b>2</b>	Phy	Physikalische Grundlagen					
	2.1	Ionisation	5				
	2.2	Pulskompression in einer Hohlfaser	8				
	2.3	Hohe Harmonische	14				
	2.4	Erzeugung und Detektion von THz-Pulsen	19				
	2.5	Lichtfeld getriebene Streak-Kamera	29				
	2.6	Effusiver Atomstrahlofen	40				
3	$\mathbf{Exp}$	Experimenteller Aufbau					
	3.1	Lasersystem	48				
	3.2	Hohlfaserkompressor	49				
	3.3	$Hohe-Harmonischenquelle \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ . \ $	51				
	3.4	THz-Quelle	55				
	3.5	Streak-Kamera	57				
	3.6	Elektro-optisches Abtasten	60				
	3.7	Atomstrahlofen	61				
4	Charakterisierung des Messaufbaus						
	4.1	Hohlfaserkompression	63				
	4.2	Hohe Harmonische	64				
	4.3	Eichung des Flugzeitspektrometers	67				
	4.4	THz-Quelle	69				
	4.5	Messung der XUV-Pulsdauer	79				
	4.6	Profil des atomaren Magnesiumstrahles	85				
<b>5</b>	Spektroskopie und THz-Streaking an atomarem Magnesium						
	5.1	Magnesium-Spektrum	91				
	5.2	THz-Streaking	94				
	5.3	Simulation mit Wignerfunktion	97				

	5.4 Diskussion	. 104
6	Zusammenfassung und Ausblick	105
$\mathbf{A}$	Dampfdruckkurve von Magnesium	109
Li	teraturverzeichnis	120
$\mathbf{Li}$	ste der Abkürzungen	121

# Kapitel 1

# Einleitung

Am Anfang des 19. Jahrhunderts entdeckten W. H. Wollaston und J. Fraunhofer unabhängig voneinander schwarze Linien im ansonsten kontinuierlichen Spektrum des Sonnenlichtes [33]. Einige Jahrzehnte später identifizierten G. R. Kirchhoff und R. Bunsen sie als Absorptionslinien bestimmter Elemente in der Sonnenatmosphäre. Sie erkannten, dass Atome nur Licht bestimmter Wellenlänge absorbieren bzw. emittieren. Ein anerkanntes theoretisches Modell dieser Phänomene lieferte jedoch erst die Quantenmechanik in den zwanziger Jahren des letzten Jahrhunderts. Mit der Schrödingergleichung lassen sich die diskreten Energieniveaus von Atomen, die aus den elektronischen Zuständen resultieren, erklären und berechnen [86]. Aus der Spektroskopie von Atomen und Molekülen konnten unzählige Erkenntnisse über die elektronischen Energiezustände und Ionisationsenergien sowie Rotations- und Schwingungszustände gewonnen werden. Doch die zeitliche Dynamik der zugrunde liegenden Prozesse läuft so schnell ab, dass sie lange nicht direkt untersucht werden konnte. Die Dauer der Schwingungsperioden von Molekülen liegen zwischen 10 und einigen 100 Femtosekunden (fs) [108]. Eine tausendfach kürzere Zeitspanne im Bereich von Attosekunden (as) liegt bei einer Photoionisation zwischen der Absorption eines Photons und der folgenden Emission eines Elektrons [75]. Eine Attosekunde entspricht dem milliardsten Anteil einer Nanosekunde und als Zahl ausgeschrieben 0,000 000 000 000 000 001 Sekunden. Um den zeitlichen Verlauf solcher Prozesse zu messen werden Lichtblitze benötigt, die kürzer sind als der Prozess selber. Anderenfalls können nur verschwommene Messungen durchgeführt werden, vergleichbar mit der Fotografie eines schnellen Gegenstandes bei langer Belichtungszeit. Tatsächlich können unter Verwendung von Modenkopplung seit den achtziger Jahren Laserpulse von unter 20 fs erzeugt werden [35]. Doch eine weitere Schwierigkeit ist die unzureichende Geschwindigkeit elektronischer Messgeräte für zeitaufgelöste Spektroskopie. Erst die Erfindung eines neuen Messprinzips durch A. Zewail ermöglichte Messungen auf der Zeitskala von Femtosekunden [108]. Bei einer sogenannten Pump-Probe-Messung wird zunächst mit einem Laserpuls ein System angeregt und mit einem zweiten der momentane Zustand des Systems abgefragt. Durch eine sukzessive Änderung der relativen Ankunftszeiten des ersten und des zweiten Laserpulses kann eine Reihe von Momentaufnahmen des Systems aufgenommen werden, die dessen zeitlicher Entwicklung entsprechen.

Durch die Erfindung der CPA-Lasersysteme (Chirped-Pulse-Amplification) stehen seit Mitte der achtziger Jahre nicht nur sehr kurze sondern gleichzeitig auch noch sehr energiereiche Pulse zu Verfügung [95]. Wenn diese Laserpulse fokussiert werden, können extrem hohe Intensitäten von über  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> erreicht werden. Bei den entsprechenden elektrischen Feldstärken treten nichtlineare Phänomene auf, mit denen Laserpulse mit Frequenzen im sichtbaren oder nah-infraroten Spektralbereich in unterschiedlichste Frequenzen umgewandelt werden können. Mit der Technik der Hohe-Harmonischen-Erzeugung können Laserpulse im extrem ultravioletten Spektralbereich (XUV, 10-120 nm) generiert werden[68]. Auf diese Weise stehen Photonenenergien zur Verfügung mit denen auch tiefer liegende Elektronenschalen angeregt werden können.

Die Hohe-Harmonische-Erzeugung ermöglicht es zudem die Dauer der XUV-Pulse auf die Größenordnung von Attosekunden zu verkürzen. Für die zeitliche Charakterisierung so kurzer Laserpulse wurde ein neues Messprinzip entwickelt, das Attosekunden-Streaking [81, 48]. Es beruht darauf, dass mit einem XUV-Puls Photoelektronen erzeugt werden, deren zeitliche Verteilung der des Pulses entspricht. In dem elektrischen Feld eines überlagerten nahinfraroten Laserpulses werden die Photoelektronen beschleunigt. Durch die Zeitabhängigkeit der Feldstärke verändert sich auch die Beschleunigung zu verschiedenen Zeitpunkten. Auf diese Weise wird die zeitliche Form des XUV-Pulses erst in eine Verteilung von Photoelektronen geprägt und dann auf eine messbare Verteilung kinetischer Energien projiziert. Diese Technik ist dafür geeignet die Dynamik elektronischer Anregungen zu untersuchen, die unter Emission eines Elektrons relaxieren. So wurden die Zeitkonstanten für einen Auger-Zerfall in Krypton direkt gemessen [65]. In einem anderen Experiment wurde die mittlere Dauer einer Photoionisation in Helium bestimmt [75].

Dieses Konzept wurde für die Anwendung an einem Freie-Elektronen-Laser (FEL) adaptiert [98]. Die Periodendauer des beschleunigenden elektrischen Feldes darf nicht viel kürzer sein als die zu messende Pulsdauer. Um auf einer Femtosekunden Zeitskala zu messen, die der Dauer von FEL-Pulsen entspricht, kann daher THz-Strahlung verwendet werden. Unter Verwendung einer Undulator-basierten THz-Quelle wurden die XUV-Pulse des FELs FLASH mit einer THz-Streak-Kamera untersucht. Mit diesem Experiment können so wie beim Attosekunden-Streaking Zerfallsprozesse angeregter Atomund Molekülzustände zeitaufgelöst gemessen werden, nur dass der Bereich der messbaren Zeitkonstanten zwischen 10 und einigen hundert Femtosekunden liegt und nicht im Bereich von Attosekunden.

FELs sind sehr teure Forschungseinrichtungen, daher gibt es nur wenige Anlagen, bei denen die Messzeiten für die einzelnen Anwender sehr limitiert sind. Gleichzeitig weisen sie von Puls zu Puls Fluktuationen im Spektrum, der Pulsenergie und der Zeitstruktur auf. Eine Ausnahme bilden einige FELs der neueren Generation, bei denen Seeding-Techniken verwendet werden. In der Regel sind Hohe Harmonischequellen den FELs in den Punkten Verfügbarkeit und Stabilität im spektralen Bereich extrem ultravioletter Strahlung überlegen. Als Alternative zu der Anwendung der THz-Streak-Kamera am FEL wurde eine Version auf der Basis von Laborquellen für Hohe Harmonische und THz-Strahlung entwickelt [89].

Genau dieses experimentelle Verfahren wurde gewählt, um im Rahmen der vorliegenden Arbeit die zeitliche Dynamik von Auger-Elektronen-Wellenpaketen zu vermessen. Wenn eine Ionisation einer inneren Schale eines Atoms stattfindet, hinterlässt das Photoelektron eine Lücke an seiner ursprünglichen Position. Dieser angeregte Zustand zerfällt indem ein Elektron aus einer höheren Schale die Lücke besetzt und durch die frei werdende Energie entweder ein Photon ausgesendet wird oder aber ein weiteres schwächer gebundenes Elektron emittiert wird. Dieses Elektron wird Auger-Elektron genannt. Eine empirische Erkenntnis ist, dass sich Zerfälle von angeregten Zuständen in Atomen exponentiell verhalten. Der exponentielle Zerfall bestimmt die statistische zeitliche Verteilung in der die Auger-Elektronen gemessen werden. Diese Verteilung entspricht der Wahrscheinlichkeitsdichte des Wellenpakets, mit dem freie Teilchen quantenmechanisch beschrieben werden. Durch die Energie-Zeit-Unschärfe kann aus einer Messung der spektralen Breite von Auger-Elektronen auf die Ausdehnung ihrer zeitlichen Verteilung und damit auf die Lebensdauer des entsprechenden Loches geschlossen werden. Bei Auger-Elektronen aus atomarem Magnesium kommt dieses indirekte Messverfahren an seine Grenzen, denn die Lebensdauer eines Loches ist zu groß ( $< 15 \,\text{fs}$ ), so dass bisher aus technischen Gründen niemand in der Lage war das entsprechend schmale Spektrum aufzulösen [16, 32]. Es ist außerdem nicht möglich aus dem Spektrum eindeutige Rückschlüsse auf eine komplexere zeitliche Dynamik eines Auger-Prozesses zu ziehen, die von der abfallenden Exponentialfunktion abweicht. Aus diesem Grund wurde in der vorliegenden Arbeit genau dieser Auger-Zerfall in atomarem Magnesium in einer zeitaufgelösten Messung untersucht. Dabei stellte sich heraus, dass die Wellenpakete der Auger-Elektronen tatsächlich keine rein exponentielle Charakteristik aufweisen.

Um Magnesium in der Gasphase zu untersuchen muss es kontrolliert verdampft werden. Zu diesem Zweck wurde ein spezieller Ofen entwickelt. Da er mit einer Hohe-Harmonischenquelle verwendet wird, muss in der Interaktionszone des Experiments eine sehr hohe Teilchendichte des Gases erreicht werden, denn Harmonischenquellen haben typischerweise um mehrere Größenordnungen geringere Pulsenergien als zum Beispiel FELs. Mit einer hohen Gasdichte kann stattdessen der Wirkungsquerschnitt in der Interaktionszone erhöht werden. Dies wird erreicht, indem sich die Öffnung des Ofens sehr nahe am Fokus des XUV-Strahles befindet und ein gerichteter Teilchenstrahl erzeugt wird. Für die Elektronenspektroskopie ist es dabei unverzichtbar, dass Störfelder beim Heizen des Ofens vermieden werden. Dieser Ofen bietet auch die Option außer Magnesium viele andere Feststoffe zu verdampfen.

Ein wesentlicher Anteil der Arbeit lag außerdem darin die THz-Streak-Kamera als Messapparatur aufzubauen. Die wichtigsten Komponenten dafür sind jeweils eine Quelle für Hohe Harmonische und für THz-Strahlung. Eine bestehende Harmonischenquelle wurde umgebaut, damit sie mit einem Hohlfaserkompressor kompatibel ist. Der Kompressor wurde zwischen dem Lasersystem und der Quelle eingerichtet und dient der Verkürzung der Laserpulse, um die zeitliche Auflösung des Experiments zu verbessern. Für die Erzeugung von Pulsen im THz-Frequenzbereich wurde eine THz-Quelle aufgebaut, die das Prinzip der optischen Gleichrichtung ausnutzt. Die nichtlinearen Prozesse in beiden Quellen werden durch dieselben Laserpulse angeregt, die nach Verlassen des Lasersystems erst mit einem Strahlteiler aufgeteilt und letztlich in der Streak-Kamera wieder zusammengeführt werden.

Im folgenden Kapitel werden die spezielleren physikalischen Grundlagen erläutert, die zum Verständnis dieser Arbeit notwendig sind. Das dritte Kapitel widmet sich der Beschreibung der experimentellen Aufbauten, insbesondere der THz-Quelle, der Hohe-Harmonischenquelle und des Atomstrahlofens. Im vierten Kapitel werden charakterisierende Messungen aller Komponenten des Experiments vorgestellt und ausgewertet. Das fünfte Kapitel umfasst die Messergebnisse der spektralen und zeitaufgelösten Messungen an atomarem Magnesium, sowie deren Interpretation. Den Abschluss bildet ein Abschnitt, der diese Arbeit zusammenfasst und einen Ausblick auf mögliche Experimente gibt, die auf den vorliegenden Ergebnissen aufbauen.

# Kapitel 2

# Physikalische Grundlagen

## 2.1 Ionisation

#### 2.1.1 Direkte Ionisation

Durch Photoionisation können Elektronen aus Atomen und Molekülen entfernt werden. Dazu müssen sie Photonen mit Energien absorbieren, die mindestens so groß sind wie ihre Bindungsenergie. Dies ist für Lichtwellenlängen im sichtbaren Spektrum meistens nicht der Fall, denn erst Photonen im ultravioletten Bereich und noch geringerer Wellenlänge besitzen die nötigen Energien. Liegen die Photonen jedoch in ultrakurzen Laserpulsen vor, mit denen extrem hohe Leistungen erzielt werden können, dann ist es möglich Atome auch mit Photonen aus dem sichtbaren Spektrum zu ionisieren. Dies kann auf zwei Arten geschehen, und zwar zum einen durch Multiphotonionisation (MPI) und zum anderen durch Tunnelionisation (TI). Die beiden Prozesse werden in Abbildung 2.1 skizziert. Bei der MPI absorbiert das Hüllenelektron mehrere Photonen und akkumuliert so genug Energie um sich vom Atom zu lösen. Im anderen Fall wird das bindende Atompotential durch das starke externe Laserfeld deformiert, so dass ein gebundenes Elektron durch die abgesenkte Potentialbarriere tunneln kann. Mit dem Keldysh-Parameter [53] kann abgeschätzt werden, welche Art der Ionisation in einem System bei einer bestimmten Strahlungsintensität dominiert. Dieser Parameter hängt von der Bindungsenergie  $E_b$  der Elektronen im Atom und dem ponderomotorischen Potential  $U_p$  ab. Letzteres ist ein Maß für die mittlere kinetische Energie, welche die Elektronen im oszillierenden elektrischen Feld des Lasers aufnehmen. Der Keldysh-Parameter  $\gamma$  wird folgendermaßen berechnet:

$$\gamma^2 = \frac{E_b}{2U_p}$$
 mit  $U_p = \left\langle \frac{1}{2} m_e v^2(t) \right\rangle = \frac{e^2 \mathbf{E}^2}{4m_e \omega^2} = \frac{e^2 I}{2 c \epsilon_0 m_e \omega^2}.$  (2.1)

Wenn  $\gamma^2 \gg 1$ , dann überwiegt Multiphotonenionisation und bei  $\gamma^2 \ll 1$  Tunnelionisation. Die Wahrscheinlichkeit für die Ionisation durch Tunneln kann mit der ADK-Theorie von M.V. Ammosov, N. B.Delone und V. P. Krainov [3] berechnet werden.



**Abbildung 2.1:** Schemata der Ionisationsmodelle mit den zugehörigen Intensitätsbereichen im sichtbaren Spektralbreich und Keldysh-Parametern für Multiphotonenionisation  $(I < 10^{14} \frac{W}{cm^2}, \gamma^2 \gg 1)$  und Tunnelionisation  $(I < 10^{15} \frac{W}{cm^2}, \gamma^2 \ll 1)$ 

#### 2.1.2 Auger-Effekt

Beim Auger-Effekt handelt es sich um eine bestimmte Form der Doppelionisation. Das Grundprinzip kann in zwei getrennten Schritten erklärt werden. Als erstes wird ein Atom einfach ionisiert. Im zweiten Schritt wird das entstandene Loch von einem Elektron einer weiter außen liegenden Schale aufgefüllt. Die überschüssige Energie wird in der Folge entweder durch die Emission eines Photons oder eines weiteren Elektrons (Auger-Elektron) frei. Die Wahrscheinlichkeit für so einen strahlungslosen Übergang ist im Bereich unter 1 keV Bindungsenergie der anfänglichen Ionisation deutlich größer als für einen photonischen Übergang [97]. In Abbildung 2.2a wird der normale Auger-Prozess dargestellt. Häufig werden Auger-Prozesse durch Schalen der beteiligten Elektronen beschrieben, z.B. KLM. Der erste Buchstabe steht für die K-Schale, in der bei der initialen Photoionisation ein Loch erzeugt wird, der zweite für die L-Schale, aus der die Lücke gefüllt wird und der dritte für die M-Schale, aus der das Auger-Elektron emittiert wird. Bezogen auf die Elektronenkonfiguration im Grundzustand wird ein fehlendes Elektron, also eine Lücke in der Schale, auch mit einer -1 im Exponenten gekennzeichnet, zum Beispiel  $s_1^{-1}$ . Sie kann durch Photoionisation oder auch durch Stoßionisation mit Elektronen oder anderen Teilchen erzeugt werden. Die kinetische Energie des Auger-Elektrons ergibt sich aus der Differenz des einfach ionisierten und des zweifach ionisierten Zustandes. Sie ist also unabhängig von der anregenden Photonenenergie bzw. dem Impuls der Teilchen. Die spektrale Verteilung der Auger-Elektronen ist ein Lorentz-Profil mit der natürlichen Linienbreite entsprechend dem exponentiellen Charakter des zerfallenden Lochzustandes. Die typische Methode zur Bestimmung der Lebensdauer der Lochzustände ist eine hochaufgelöste Messung der Energieverteilung der Auger-Elektronen. Über die Zeit-Energie-Unschärferelation lässt sich auf folgendes reziprokes Verhältnis zwischen den Lebensdauer  $\tau_A$  und der spektralen Breite  $\Gamma$  schließen:

$$\tau_A = \frac{\hbar}{\Gamma} \quad \text{mit} \quad \hbar \approx 6,58 \cdot 10^{-16} \,\text{eV}\,\text{s.}$$
(2.2)



**Abbildung 2.2:** Schematische Darstellung des normalen Auger-Übergangs (a). Schritt 1 in (b) skizziert eine Photoionisation mit gleichzeitigem Shake-up. Schritt 2 zeigt den möglicherweise folgenden Shake-up-Auger-Prozess.

Die Lebensdauern liegen im Bereich zwischen Attosekunden und einigen zehn Femtosekunden mit spektralen Breiten zwischen mehreren eV und meV [74]

Wenn ein Kernelektron emittiert wird, ändert sich das Coulomb-Potential für die Elektronen in den außen liegenden Schalen plötzlich. Die Störung kann einen Shake-up-Übergang verursachen, bei dem ein Valenzelektron in ein höheres unbesetztes Orbital angeregt wird. In dieser Beschreibung findet der Shake-up-Prozess gleichzeitig mit der Emission des Photoelektrons statt [17]. Im Falle eines Shake-ups hat das freigesetzte Elektron eine kinetische Energie, die um die Anregungsenergie des beteiligten Valenzelektrons geringer ist. Neben dem Hauptpeak entstehen im Spektrum sogenannte Satelliten mit Elektronen, die aus Atomen stammen in denen ein Shake-up stattfand. Wenn in genau diesen angeregten Ionen ein Auger-Prozess stattfindet, erhalten die Auger-Elektronen etwas mehr kinetische Energie (siehe Abb. 2.2 b). So entstehen durch Shake-up-Prozesse auch Auger-Satelliten, also zusätzliche Linien im Auger-Spektrum.

Wenn ein Auger-Elektron mehr kinetische Energie hat als das zuvor emittierte Photoelektron, kann es zu einer Post-Collission Interaction (PCI) kommen. Bis zu dem Zeitpunkt der Überholung schirmt das schnellere Auger-Elektron das Ionenpotential aus Sicht des langsameren Photoelektrons ab. Danach folgt eine Abschirmung durch das Photoelektron. Das Auger-Elektron wechselt von einem doppelt in ein einfach ionisiertes Coulomb-Potential. Dabei wird Energie vom Photoelektron auf das Auger-Elektron übertragen, und zwar je mehr desto näher am Ion die PCI stattfindet. [8]. In der Abbildung 2.3 ist dieser Effekt skizziert. Bei spektralen Messungen können Verschiebungen und Verformungen der Auger-Linien durch PCI beobachtet werden, insbesondere wenn



Abbildung 2.3: Skizze zur Veranschaulichung des Energieübertrages bei einer Post-Collision-Interaction. Vereinfacht betrachtet erfährt das Auger-Elektron, wenn es das Photoelektron überholt, statt der Anziehung eines zweifach nur noch die eines einfach geladenen Coulomb-Potentials. Die Elektronen wechseln bezüglich des Ions die Positionen und es wird abhängig von der Distanz zu diesem eine Energie  $\Delta E$  vom Photoelektron auf das Auger-Elektron übertragen.

sich Photonenenergie der Bindungsenergie des initialen Photoelektrons annähert.

### 2.2 Pulskompression in einer Hohlfaser

CPA-Lasersysteme können minimale Pulslängen von 20 fs generieren. Nisoli et al. zeigten 1996, dass mit der inzwischen etablierten Technik der Hohlfaserkompression die vorhandenen Femtosekundenpulse auf unter 10 fs verkürzt werden können [71]. Sie ist anderen Methoden im Hinblick auf die übertragbare Leistung bei weitem überlegen [46, 57]. Mittlerweile konnten im nahinfraroten Spektrum (NIR) Pulse erzeugt werden, die 5 fs und kürzer sind [72] und dabei Energien bis zu 1 mJ innehaben [96].

Eine physikalische Notwendigkeit, die sich aus der Unschärferelation ableiten lässt, lautet: Je kürzer ein Puls ist, desto größer ist auch seine spektrale Bandbreite. Wenn ein Laserpuls verkürzt werden soll, muss also zunächst sein Spektrum verbreitert werden. Zu diesem Zweck können Femtosekunden Pulse in eine hohle Glasfaser von 1 bis 3 m Länge fokussiert werden, die mit einem Edelgas gefüllt ist. Durch die hohen Intensitäten von über  $10^{14} \frac{W}{cm^2}$  im Fokus entstehen durch nichtlineare Prozesse im Gas neue Frequenzkomponenten. Die Hohlfaser dient als Wellenleiter für den fokussierten Strahl, so dass die Interaktionstrecke zwischen den intensiven Pulsen und dem Edelgas verlängert wird. Die Pulse sind dann spektral verbreitert, jedoch noch nicht zeitlich komprimiert. Dafür müssen zusätzlich mit speziellen gechirpten Spiegeln die Phasenbeziehungen der Frequenzkomponenten optimiert werden.

Es ist eine Folge des optischen Kerr-Effektes, dass neue spektrale Komponenten entstehen können. Gleichzeitig ergeben sich aufgrund des Kerr-Effektes und möglicher Ionisation des Füllgases jedoch auch mehrere parasitäre Prozesse, die ebenfalls in den folgenden Abschnitten erläutert werden.

#### 2.2.1 Optische Kerr-Effekt

In dielektrischen Medien führt das elektrische Feld des Lichtes zu einer Polarisation der Elektronenhülle, denn durch die Propagation durch das Medium werden oszillierende Dipole induziert. In der Wellengleichung für elektromagnetische Strahlung wird diese Polarisation durch die Reihenentwicklung

$$\mathbf{P} = \epsilon_0 \left( \chi^{(1)} + \chi^{(2)} \cdot \mathbf{E} + \chi^{(3)} \cdot \mathbf{E}^2 + \dots \right) \cdot \mathbf{E},$$
(2.3)

beschrieben. Dabei handelt sich bei  $\mathbf{E}$  um das elektrische Feld, bei  $\epsilon_0$ um die Vakuumpermittivität und bei  $\chi^{(i)}$  um die verschiedenen Ordnungen der elektrischen Suszeptibilität. Bei niedrigen Intensitäten verhält sich die Polarisation linear zum auftretenden elektrischen Feld und wird in ihrer Wirkung durch den linearen Brechungsindex beschrieben. In ultrakurzen Laserpulsen treten jedoch so große elektrische Feldstärken auf, dass die Elektronen nicht mehr linear reagieren. Die zweite Ordnung der Polarisation ist in Gasen und Kristallen mit Inversionssymmetrie immer null. Dies gilt also nicht für Kristalle mit mehreren optischen Achsen, auf die im Bezug auf die Erzeugung von THz-Strahlung noch eingegangen wird (siehe Abschnitt 2.4). Die dritte Ordnung führt zu folgendem zusätzlichen intensitätsabhängigen Term des Brechungsindexes eines Mediums

$$n(\omega, \mathbf{E}) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega) + \chi^{(3)} \mathbf{E}^2}$$
(2.4)

$$= n_0 \sqrt{1 + \frac{\chi^{(3)} \mathbf{E}^2}{n_0^2}} \tag{2.5}$$

$$\approx n_0(\omega) + \frac{\chi^{(3)}}{2n_0^2} \mathbf{E}^2.$$
 (2.6)

Sei  $n_2 = \sqrt{\frac{\mu_0}{\epsilon_0} \frac{\chi^{(3)}}{2n_0^2}}$  dann ergibt sich

$$n(\omega, I) = n_0 + n_2 I \tag{2.7}$$

Dieses nichtlineare Verhalten des Brechungsindexes heißt optischer Kerr-Effekt. Dabei ist  $n_2$  der nichtlineare Brechungsindex und I die Intensität des Lasers.

#### 2.2.2 Selbstphasenmodulation

Der nichtlineare Effekt auf dem die spektrale Verbreiterung von ultrakurzen Pulsen in der gasgefüllten Hohlfaser beruht, ist die Selbstphasenmodulation (SPM). Durch den extrem schnellen Anstieg der Intensität eines ultrakurzen Pulses ergibt sich aufgrund des Kerr-Effektes ein stark zeitabhängiger Brechungsindex

$$n(t) = n_0 + n_2 I(t), (2.8)$$

Daraus folgt der Phasenterm

$$\phi(z,t) = \frac{\omega}{c}n(\omega, I(t))z = \frac{\omega}{c}(n_0(\omega) + n_2I(t))z$$
(2.9)

mit der Lichtgeschwindigkeit c und der Strecke z, die der Puls im Medium zurücklegt. Der zusätzliche nichtlineare Term der Phase ist also

$$\Delta\phi(z,t) = \frac{\omega}{c} n_2 I(t) z. \tag{2.10}$$

Es entstehen neue instantane Frequenzen, die sich wie folgt berechnen lassen

$$\omega_{inst}(z,t) = -\frac{\partial \Delta \phi(z,t)}{\partial t} = -\frac{\omega}{c} z \ n_2 \frac{\partial I(t)}{\partial t}.$$
(2.11)

Bei Gauß-Pulsen führt die Proportionalität zur zeitlichen Ableitung der Intensität gerade am Anfang und Ende des Pulses zu Entstehung neuer Frequenzen. Bei einem positiven nichtlinearem Brechungsindex werden an der ansteigenden Flanke niedrigere und der abfallenden höhere Frequenzen erzeugt. Das Spektrum des Pulses verbreitert sich, im Idealfall symmetrisch. Gleichzeitig beeinflusst die SPM nicht die zeitliche Struktur des Pulses. Folglich induziert der Prozess einen Up-Chirp.

#### 2.2.3 Self-Steepening

Der optische Kerr-Effekt hat auch Auswirkungen auf die Einhüllende von ultrakurzen Laserpulsen. Die Intensitätsabhängkeit des Brechungsindex führt zu Veränderungen der Gruppengeschwindigkeit im zeitlichen Verlauf des Pulses. Je größer der Brechungsindex desto niedriger wird die Gruppengeschwindigkeit, daher verringert sie diese unter Einfluss des Kerr-Effektes in die Richtung eines Intensitätsmaximums. In einem Gauß-Puls wirkt sich dies in einer Abflachung der ansteigenden und einer Aufsteilung der abfallenden Pulsflanke aus, weil die intensiven Pulsanteile sich etwas langsamer fortbewegen als die weniger intensiven. Diese selbstinduzierte Aufsteilung heißt Self-Steepening. Sie hat Folgen für die SPM, weil sie insbesondere von der Steigung an den Pulsflanken abhängt. Die Asymmetrie der Einhüllenden führt zu einer Asymmetrie der neu entstehenden Frequenzkomponenten, und zwar zu mehr blauen Anteilen.

#### 2.2.4 Selbstfokussierung

Das räumliche Pendant zur SPM ist die Selbstfokussierung (SF). Durch die räumliche Intensitätsverteilung, zum Beispiel in einer  $TEM_{00}$ -Mode, wirkt sich der Kerr-Effekt in einem nach innen ansteigendem Brechungsindex aus. Das Medium selber fungiert dann als fokussierende Linse. Dieser Effekt wird auch Kerr-Lensing genannt. Es kann eine kritische Leistung

$$P_{krit} = \alpha \frac{\lambda_0^2}{n_0 n_2} \tag{2.12}$$

für SF berechnet werden. Sie hängt von der zentralen Wellenlänge  $\lambda_0$  und vom nichtlinearen Brechungsindex  $n_2$  ab. Der Ansatz dabei ist den Schwellwert zu finden, bei dem sich die Strahldivergenz eines beugungsbegrenzten Strahles und die Selbstfokussierung gerade aufheben. Beide Effekte verhalten sich invers proportional zur Fläche des Strahlprofils, daher ergibt sich keine kritische Intensität für SF sondern eine kritische Leistung. Durch Berechnung nach verschiedenen Ansätzen ergeben sich für den Koeffizienten  $\alpha$  für Wellenleiter Werte von ungefähr 0,15 [25, 31]. Der lineare Brechungsindex  $n_0$ ist bei Edelgasen ungefähr 1 und daher vernachlässigbar. Anderseits muss bei Gasen der lineare Anstieg von  $n_2$  mit dem Druck beachtet werden [10]. Für Gase kann die Formel 2.12 also auch folgendermaßen dargestellt werden

$$P_{krit,gas} = 0.15 \frac{\lambda_0^2}{n_2 p},$$
(2.13)

wobei p der Gasdruck in Einheiten von bar ist.

#### 2.2.5 Ionisationseffekte

Bei der Propagation von Pulsen durch gasgefüllte hohle Wellenleiter können leicht Intensitäten von über  $10^{14} \frac{W}{cm^2}$  entstehen. Dabei werden durch Starkfeld-Ionisation Elektronen freigesetzt, die sich wie ein freies Elektronengas verhalten. Es sorgt für eine Verringerung des Brechungsindexes um [27]

$$n_p = -\frac{\omega_p^2}{2\omega_0^2} \tag{2.14}$$

mit der mittleren Trägerfrequenz des Pulses  $\omega_0$  und der Plasmafrequenz  $\omega_p$ , die folgendermaßen berechnet wird:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{4\pi e^2 n_e}{m_e}}.$$
(2.15)

Dabei ist e die Elementarladung,  $m_e$  die Elektronenmasse und  $n_e$  die Dichte der vom Laserpuls produzierten freien Elektronen. Wenn ein intensiver Puls an einer Position im Strahlweg vorbei zieht, nimmt die freie Elektronendichte monoton zu. Dieses zeitabhängige Verhalten weisen folglich auch die Plasmafrequenz und die Verringerung des Brechungsindexes auf. Von der aufsteigenden zur absteigenden Flanke sehen die Pulse folglich einen sinkenden Brechungsindex. Abhängig von der Länge der Interaktionstrecke zmit dem Medium erfahren die Pulse daher eine Phasenverschiebung

$$\Delta\phi_p(t) = \frac{\omega_0 z n_p(t)}{c}.$$
(2.16)

Daraus folgt eine Verschiebung der instantanen Frequenzen um

$$\Delta\omega_{inst} = -\frac{\partial\Delta\phi_p(t)}{\partial t} = -\frac{\omega_0 z}{c} \frac{\partial n_p(t)}{\partial t}$$
(2.17)

Weil  $\frac{\partial n_p(t)}{\partial t} \ll 0$ , ist folglich  $\Delta \omega_{inst} \gg 0$ . Wenn Laserpulse in einem ionisierten Gas propagieren, kann es also zu einer Verschiebung des Spektrums in Richtung der größeren Frequenzen bzw. kürzeren Wellenlängen kommen. Dieser Effekt wird ionisationinduzierte Blauverschiebung genannt [77].

Die intensitätsabhängige Verringerung des Brechungsindexes beeinflusst auch die Krümmung der Wellenfronten. Sehr ähnlich wie bei der Selbstfokussierung wirkt ein nach außen abfallendes gaußförmiges Strahlprofil wie eine Linse. In diesem Fall jedoch defokussierend.

#### 2.2.6 Wellenleitung

Die klassischen Glasfaserkabel für die Nachrichtentechnik bestehen aus einem Kern und einem Mantel, wobei der Brechungsindex des Kerns etwas größer ist als der des Mantels. Auf diese Weise erfahren Lichtpulse auch bei leichten Biegungen der Faser Totalreflexion an der Grenzfläche zwischen diesen beiden. Bei einer Hohlfaser ist dies nicht der Fall, da sie quasi nur aus einem Mantel aus Quarzglas besteht und der innere Bereich mit einem Gas gefüllt wird. Der Brechungsindex des Gases wird immer geringer sein als der des Mantels, so dass Reflexionen an der Grenzfläche nur bei streifendem Einfall gewährleistet sind. Dies bedeutet wiederum, dass die Faser ausgesprochen gerade und exakt im Strahlweg des Lasers liegen muss.

Bei der Einkopplung in Hohlfasern mit einem linear polarisiertem Laser können sich ausschließlich  $EH_{1m}$ -Moden ausbilden. Marcatili und Schmeltzer [67] berechnen die Intensitätsprofile

$$I(r) = I_0 J_0^2 (u_{1m} \frac{r}{a})$$
(2.18)

mit der nullten Ordnung der Bessel-Funktion  $J_0$ , dem spezifischen Faktor der Moden  $u_{1m}$  ( $u_{11} = 2.405$ ,  $u_{12} = 5.52$ ,  $u_{13} = 8.652$ ) und dem Innenradius der Faser a. In Abbildung 2.4 sind die niedrigsten drei propagationsfähigen Moden dargestellt. In der Faser sollte möglichst nur die  $EH_{11}$  Grundmode angeregt werden und keine Höheren, weil die Grundmode zum einen am geringsten abgeschwächt wird und zum anderen, weil sie im Fernfeld hinter der Faser sehr gut durch eine  $TEM_{00}$ -Mode approximiert werden kann [7]. Welche Moden entstehen, hängt im Wesentlichen vom Größenverhältnis zwischen



**Abbildung 2.4:** Intensitätsprofile der  $EH_{11}$ -,  $EH_{12}$ - und  $EH_{13}$ -Mode von links nach rechts nach Formel 2.18

Strahltaille und Innendurchmesser der Faser ab. M. Nisoli et al. [73] berechneten die Kopplungseffizienz  $\eta$  mit der folgenden Formel, unter der Annahme, dass der eingehende Strahl ein Gauß-Profil aufweist:

$$\eta_{1m} = \frac{\left[4\int J_0\left(\frac{u_{1m}r}{a}\right)\exp\left(-\frac{r^2}{w^2}\right)dr\right]^2}{\left[w^2\int J_0\left(\frac{u_{1m}r}{a}\right)^2dr\right]^2}.$$
(2.19)

Sie gibt das Verhältnis zwischen eingehender und in die jeweilige Mode gekoppelte Leistung an, dabei ist a der Innenradius der Faser und w der Radius der Strahltaille. In Abbildung 2.5 ist dies in Abhängigkeit von dem auf a normierten Strahlradius für die niedrigsten drei Moden aufgetragen. Daraus wird ersichtlich, dass die beste Kopplung in die Grundmode  $EH_{11}$  bei einem Strahltaillen-Innendurchmesser-Verhältnis von 0.65 liegt. Zwischen 0.5 und 0.8 wird jedoch noch über 90% der Leistung in dieser Mode propagieren. Um den Einfluss von Dispersion und Kerr-Effekt bei der Propagation der



**Abbildung 2.5:** Kopplungseffizienz  $\eta$  der verschiedenen Moden in Abhängigkeit von der auf den Innenradius der Hohlfaser normierten Fokusgröße

kurzen Laserpulse in optischen Fasern zu beschreiben, muss die Wellengleichung mit

den vorliegenden Randbedingungen gelöst werden. Es wird davon ausgegangen, dass nur die Grundmode angeregt wird. Weiterhin wird die nichtlineare Polarisation im Medium als Störung erster Ordnung der linearen Polarisation aufgefasst. Unter der zusätzlichen Annahme, dass sich die Einhüllende bezüglich der Trägerfrequenz nur langsam ändert, ergibt sich als eindimensionale Beschreibung die nichtlineare Schrödingergleichung [1]. Sie ist im Allgemeinen nicht analytisch lösbar. Dispersive und nichtlineare Effekte beeinflussen den Puls gleichzeitig, daher kann das Verhalten eines Laserpulses in einer Hohlfaser nur numerisch berechnet werden. Eine übliche Methode aus der Nachrichtentechnik ist das Split-Step-Fourier-Verfahren (SSFM). Es basiert auf der Annahme, dass bei der Propagation auf einer kleinen Strecke die dispersiven und nichtlinearen Effekte näherungsweise unabhängig voneinander wirken. Der Einfluss auf die Einhüllende des Pulses wird daher schrittweise berechnet. Im einfachsten Fall reicht eine eindimensionale Berechnung auf der Propagationsachse. Sobald Ionisationseffekte nicht mehr vernachlässigbar sind, muss die transversale Ausdehnung des Strahles in einer dreidimensionalen SSFM berücksichtigt werden [36].

### 2.3 Hohe Harmonische

Die Erzeugung hoher Harmonischer ist ein Phänomen, das sich zu Nutze gemacht wird, um Pulse im spektralen Bereich vom ultravioletten bis hin zum Röntgenlicht zu generieren. Dabei werden ultrakurze Laserpulse meistens in ein Edelgas fokussiert, um darin sehr starke elektrische Wechselfelder aufzubauen. Durch Ionisation und anschließende Rekombination der Elektronen mit den Atomen werden Photonen freigesetzt. Das Spektrum der Emission ist nicht beliebig, sondern es werden alle ungeraden Vielfachen (Harmonischenordnungen) der Trägerfrequenz der Eingangspulse bis zu einer Cut-Off-Energie erzeugt.

Die ersten experimentellen Nachweise gelangen am Ende der neunzehnhundert achtzigerjahre J. Wildenauer [104] und M. Ferray [30]. Inzwischen konnte mit einem Puls der Wellenlänge  $3,8 \,\mu\text{m}$  der Cut-Off bis zur 5000. Harmonischen (1,6 keV) erhöht [79] und aus Harmonischenspektren Pulse von 67 as Dauer hergestellt werden [109].

Eine qualitative Erklärung für das Auftreten der Harmonischen und ihrer Eigenschaften gibt das 3-Stufen-Modell von Paul Corkum [23], das im nächsten Abschnitt erläutert wird. Es gibt darüber hinaus diverse quantenmechanische Beschreibungsansätze, zum Beispiel von Lewenstein et al. [60]. Neben der atomaren Betrachtungsweise sind es insbesondere makroskopische Einflüsse bei der Ausbreitung durch ein gasförmiges Medium, durch welche die Harmonischenausbeute eingeschränkt wird. Auf diese Propagationseffekte wird in Abschnitt 2.3.2 eingegangen.

#### 2.3.1 3-Stufen-Modell

Im ersten Schritt (Abb.2.6/1) des 3-Stufen-Modells wird ein einzelnes Gasatom betrachtet, dessen Potential durch das elektrische Feld eines intensiven Lasers  $(10^{14} - 10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2})$ deformiert wird, so dass Tunnelionisation stattfinden kann (siehe Abschnitt 2.1). Im



Abbildung 2.6: Schematische Darstellung des 3-Stufen-Modells: 1) Tunnelionisation des Elektrons aufgrund der hohen lokalen Feldstärke, 2) Propagation des Elektrons/Wellenpaketes im Laserfeld und 3) Wechselwirkung des zurückkehrenden Elektrons mit dem Ion unter Emission eines harmonischen Photons

zweiten Schritt (Abb.2.6/2) kann die Trajektorie des Elektrons im Laserfeld mit Hilfe der klassischen Mechanik betrachtet werden. Das Elektron nimmt kinetische Energie auf, indem es erst vom Ion weg und dann wieder zurück beschleunigt wird, da es sich um ein alternierendes Lichtfeld handelt. Die Rückkehr zum Atom ist für den Prozess notwendig und im Fall von zirkular polarisiertem Licht nicht gegeben. Wieviel Energie das Elektron im Laserfeld erhält hängt davon ab, zu welchem Zeitpunkt es aus dem Potential tunnelt. Nach einer halben Laserperiode befindet sich das Elektron im dritten Schritt (Abb.2.6/3) wieder im Einfluss des Atoms, rekombiniert mit diesem und emittiert ein Photon mit der in der Zwischenzeit aufgenommenen Energie plus der Energie aus dem Ionisationspotential IP. Anstatt zu Rekombinieren kann das Elektron jedoch auch das Atom durch Elektronenstoß weiter ionisieren oder gestreut werden.

In Abbildung 4.4 ist ein Harmonischenspektrum schematisch dargestellt. Die Intensitäten der Ordnungen nehmen anfangs exponentiell ab und erreichen dann ein lineares Plateau bis zum Cut-Off. Die zur Cut-Off-Frequenz  $\omega_{max}$  gehörende Photonenenergie  $E_{max}$  wurde ebenfalls von Paul Corkum [23] theoretisch bestimmt und später vielfach experimen-



Abbildung 2.7: Schematische Darstellung eines Hohen Harmonischenspektrums (Entnommen aus [50])

tell bestätigt [61]. Sie ergibt sich aus der Gleichung

$$E_{max} = \hbar\omega_{max} = IP + 3,17 U_p, \qquad (2.20)$$

mit dem Ionisationspotential IP und dem in Formel 2.1 definierten ponderomotorischen Potential  $U_p$ . Die höchste erreichbare Harmonischenordnung ist also abhängig vom Ionisationspotential der Atome sowie von der Frequenz und Intensität der eingehenden Laserpulse.

Anhand des 3-Stufen-Modells lässt sich außerdem die zeitliche Struktur der hohen Harmonischen erklären. Die Tunnelionisation im ersten Schritt findet nur in einem schmalen Bereich der Maxima des elektrischen Feldes der Fundamentalen statt. Dieser Bereich ist typischerweise einige 100 as breit [66, 76]. Durch die anschließende Emission der XUV-Photonen ensteht ein Zug aus Attosekunden-Pulsen dieser Breite mit jeweiligem Abstand der halben Wellenlänge der Fundamentalen. Die Länge des Pulszuges hängt von der Pulsdauer der Fundamentalen und der Menge an Feldspitzen mit ausreichender Amplitude ab. Die Fourier-Transformation eines Pulszuges mit den Abständen  $\frac{T}{2}$  ergibt einen Frequenzkamm mit den Abständen  $2\omega$ . Diese Schlussfolgerung zeigt, dass von der Fundamentalen nur die ungeraden Harmonischen erzeugt werden können.

#### 2.3.2 Propagationeffekte

Die Harmonischen-Erzeugung wird von einer Reihe von Effekten beeinflusst, die erst hervortreten, wenn man statt nur eines Atoms ein Gasvolumen in einem propagierenden Laserfeld betrachtet. Die Effizienz des Prozesses hängt stark von der Phasenanpassung des IR- mit dem XUV-Puls ab. Für die folgenden Ausführungen wurde insbesondere [12] herangezogen. Hier werden vereinfachte Propagationsgleichungen für ein linear polarisiertes elektromagnetisches Feld in einem isotropen dielektrischen Medium aufgestellt. Unter Verwendung der Slowly-Varying-Envelope-Näherung (SVEA) und der paraxialen Näherung ergeben sich folgende gekoppelte Gleichungen:

$$\Delta_{\perp} E_1(\mathbf{r}, t) + 2ik_1(\mathbf{r}, t)\frac{\partial E_1(\mathbf{r}, t)}{\partial z} = 0$$
(2.21)

$$\Delta_{\perp} E_q(\mathbf{r}, t) + 2ik_q(\mathbf{r}, t)\frac{\partial E_q(\mathbf{r}, t)}{\partial z} = \frac{q^2\omega_1^2}{\epsilon_0 c^2} P_q^{NL}(\mathbf{r}, t) \exp[i(q\,k_1 - k_q)z].$$
(2.22)

Dabei sind  $E_1(\mathbf{r}, t)$  und  $E_q(\mathbf{r}, t)$  die Einhüllenden des fundamentalen Feldes und der q-ten Ordnung des Harmonischen Feldes mit den Wellenvektoren  $k_1$  und  $k_q$ . Die Verringerung der Fundamentalen kann aufgrund der geringen Konversionseffizienz vernachlässigt werden. Die Harmonischen-Erzeugung ergibt sich im Term auf der rechten Seite von Formel 2.22 durch die nichtlineare Polarisation der q-ten Harmonischen

$$P_q^{NL}(\mathbf{r},t) = n_a(z,t) \, d_q(\mathbf{r},t), \qquad (2.23)$$

mit der Atomdichte  $n_a(z,t)$  und der q-ten harmonischen Komponente  $d_q(\mathbf{r},t)$  des atomaren Dipolmoments, inklusive der Beiträge aller aktiven Elektronen. In der Praxis sind die Atomdichten so gering, dass von konstanten Gruppengeschwindigkeiten für Laserund Harmonischenpulse ausgegangen werden kann.

#### Absorption

Mit jeder Harmonischenordnung steigt auch die entsprechende Photonenenergie, so dass für 800 nm Laserwellenlänge schon ab der 7ten Harmonischen über 10 eV erreicht werden. Sobald die Photonenenergien das Ionisationspotential des Mediums übertrifft, kann die emittierte Strahlung wieder absorbiert werden. Solange nur ein kleiner Teil des Mediums ionisiert wird, limitiert die Absorption durch die neutralen Atome die Harmonischenausbeute. In Formel 2.22 steht dafür der imaginäre Anteil des Harmonischen-Wellenvektors, der sich aus dem imaginären Brechungsindex ergibt. So folgt:

$$Im(k_q) = \frac{r_0}{q} \lambda_1 f_2 n_a = \frac{n_a \sigma_q}{2}, \qquad (2.24)$$

mit dem klassischen Elektronenradius  $r_0$ , dem imaginären Anteil des atomaren Streuungsfaktors  $f_2$ , der Atomdichte  $n_a$  und dem Wirkungsquerschnitt für Photoionisation  $\sigma_q$ . Daraus lässt sich eine Absorptionslänge  $L_{abs} = \frac{1}{n_a \sigma_q}$  definieren, über die ein frei propagierendes Feld um den Faktor  $e^{1/2}$  abgeschwächt wird.

#### Phasenanpassung

Für eine effiziente Erzeugung von hohen Harmonischen ist es wichtig, dass die Phasengeschwindigkeit der IR- und der Harmonischenstrahlung gleich ist. Anderenfalls ändert sich ihre relative Phase bei der Propagation durch das Medium. Die Folge ist eine destruktive Interferenz der Teilwellen, die an unterschiedlichen Positionen beim Durchlaufen des Mediums entstehen. Die wichtigsten Effekte, welche die Phasengeschwindigkeiten und damit die Phasenanpassung beeinflussen, werden folgend vorgestellt.

Bei der Beschleunigung der Elektronen im Laserfeld ergibt sich eine **Dipolphase**  $\Phi_q$ , die abhängig ist von der Zeit  $\tau$  zwischen Ionisation und Rekombination. Als Näherung gilt  $\Phi_q \approx -U_p \tau \approx -\alpha I_1$ . Bei  $I_1$  handelt es sich um die Intensität der Fundamentalen. Die Steigung  $\alpha$  hängt hauptsächlich vom Zeitpunkt der Rekombination ab und nur schwach von der Harmonischenordnung. Durch das transversale Intensitätsprofil das Lasers ergibt sich ein transversaler Gradient der Dipolphase  $\nabla \Phi_q$ .

Für die Harmonischen im Plateau-Bereich hat die Dipolphase noch eine besondere Konsequenz. Die Elektronen können je nach Ionisationszeitpunkt eine lange oder eine kurze Trajektorie beschreiten, die bei einer Rekombination zur Emission der gleichen Harmonischen führt. Jedoch haben beide Trajektorien unterschiedliche Flugzeiten  $\tau$  und damit auch nicht die gleiche Dipolphase. Die Gesamtphase kann demnach nur für eine der beiden optimiert werden.

Eine **geometrische Dispersion** wirkt aufgrund des Phänomens der Gouy-Phase bei der Fokussierung eines Gauß-Strahles. Bei der Propagation im Fokusbereich verschiebt sich die Phase des Lasers auf der z-Achse um  $\Phi_{geo} = -\arctan(z/z_R)$  mit z als longitudinaler Koordinate und  $z_R$  als Rayleighlänge. Als Phasendifferenz ergibt sich dann  $\Delta \mathbf{k}_{geo} = \nabla \Phi_{geo}$ . Wenn von einer im Vergleich zu Mediumlänge großen Rayleighlänge ausgegangen wird, dann gilt näherungsweise  $\Delta \mathbf{k}_{geo} \approx -q/z_0 \mathbf{z}$  mit dem Einheitsvektor  $\mathbf{z}$ und der Harmonischenordnung q [5].

Eine Änderung der Phase aufgrund von **atomarer Dispersion**  $\Delta \mathbf{k}$  wirkt sich wegen der geringen Gasdichte  $n_a$  nur wenig aus. Der Einfluss auf den Wellenvektor der Fundamentalen ist  $\delta \mathbf{k}_{1,atom} = \pi \alpha_1 n_a / \lambda_1 \mathbf{z}$ , wobei  $\alpha_1$  die statische Polarisierbarkeit ist. Für den Harmonischen-Wellenvektor gilt  $\delta \mathbf{k}_{q,atom} = -r_0 \lambda_1 f_1 n_a / q \mathbf{z}$ , dabei steht  $f_1$  für den Realteil des atomaren Streufaktors. Daraus ergibt sich als Differenz die Phasenänderung durch atomare Dispersion zu

$$\Delta \mathbf{k}_{atom} = q \,\delta \mathbf{k}_{1,atom} - \delta \mathbf{k}_{q,atom} \approx n_a \left( \pi \,\alpha_1 \,\frac{q}{\lambda_1} + r_0 \,f_1 \frac{\lambda_1}{q} \right) \,\mathbf{z}.$$
 (2.25)

Eine **elektronische Dispersion** entsteht durch das freie Elektronengas, das durch die Ionisation des Mediums entsteht. In Abschnitt 2.2.5 wurden bereits Effekte diskutiert, die durch die Brechungsindexänderung in einem freien Elektronengas einhergehen. Hier ist jedoch die folgende Differenz der Phase zwischen Fundamentaler und Harmonischer wichtig:

$$\Delta \mathbf{k}_{elec} = r_0 \,\lambda_1 \,n_e \left(-q + \frac{1}{q}\right) \mathbf{z} \approx -r_0 \,q \,\lambda_1 \,n_e \,\mathbf{z} \tag{2.26}$$

Für die Phasenanpassung kann jetzt die zusammengefasste Bedingung

$$\mathbf{k}_q = q \, \mathbf{k}_1 + \Delta \mathbf{k}_{geo} + \Delta \mathbf{k}_{atom} + \Delta \mathbf{k}_{elec} + \nabla \Phi_q \tag{2.27}$$

aufgestellt werden. Die Harmonischenausbeute hängt davon ab wie gut sich diese Vektoren gegenseitig kompensieren. Die geometrischen und elektronischen Einflüsse stehen den atomaren entgegen. Die Dipolphase ändert sich mit dem Abstand zur Strahlachse. Die Phasenanpassung ist experimentell durch verschiedene Freiheitsgrade realisierbar. Die Dichte des Gasmediums ändert die atomare und die elektronische Dispersion. Die Laserintensität beeinflusst sowohl die elektronische Dispersion als auch die Dipolphase. Die Fokussierung wiederum wirkt auf die Dipolphase und auf die geometrische Dispersion. Außerdem bestimmt die Position des Fokus bezüglich des Mediums den Gradienten der Dipolphase.

### 2.4 Erzeugung und Detektion von THz-Pulsen

Als THz-Strahlung werden elektromagnetische Wellen im Frequenzbereich zwischen 0,1 und 10 THz bezeichnet. Die folgenden Abschnitte befassen sich mit der Erzeugung von kurzen THz-Pulsen durch optische Gleichrichtung (OR) und ihrer Detektion durch elektrooptisches Abtasten (EOS) basierend auf dem linearen elektro-optischen Effekt (Pockels-Effekt). Die OR und der Pockel-Effekt treten nur in Kristallen auf, die keine Inversionssymmetrie aufweisen. Weiterhin müssen solche elektro-optischen Kristalle eine ausreichende Transparenz für THz- und IR-Frequenzen aufweisen.

Bei der Propagation intensiver Laserstrahlung durch geeignete Kristalle entsteht bei der OR eine niederfrequente Polarisation. Wenn dieser Effekt von ultrakurzen Laserpulsen mit großer Bandbreite ausgelöst wird, kommt es zu einer Differenzfrequenzmischung zwischen unterschiedlichen spektralen Anteilen. Dies führt zu einer Emission von Pulsen im THz Bereich.

Der Pockels-Effekt beschreibt die Änderung der Polarisation eines Kristalls bei einem von außen angelegten elektrischen Feld. Daraus ergibt sich Doppelbrechung, also eine Änderung der Brechungsindizes des Kristalls. Für die Detektion der THz-Pulse werden diese gleichzeitig mit ultrakurzen IR-Pulsen durch einen elektro-optischen Kristall transmittiert. Das elektrische Feld der THz-Strahlung induziert dann durch den Pockels-Effekt eine richtungsabhängige Phasenänderung des IR-Pulses. Beim EOS wird die resultierende Änderung der Polarisation der IR-Pulse genutzt, um die Höhe des anliegenden elektrischen Feldes zu bestimmen. Die Grundlagen zum EOS in den folgenden Abschnitten orientieren sich an [59] und [11].

#### 2.4.1 Optische Gleichrichtung

In Abschnitt 2.2.1 wurde bereits die Polarisation für isotrope Medien wie beispielsweise atomare Gase eingeführt. Im allgemeinen Fall muss aber davon ausgegangen werden, dass optische Medien anisotrop sind. Demnach muss ein elektrisches Feld nicht parallel zu einer induzierten Polarisation ausgerichtet sein. Die Suszeptibilität ist im verallgemeinerten Fall kein Skalar, sondern ein Tensor. Phänomene wie Summenfrequenz- und Differenzfrequenzbildung, sowie optische Gleichrichtung und Pockels-Effekt ergeben sich aus der zweiten Ordnung der Reihenentwicklung der Polarisation (siehe Formel2.3). Die OR kann als Differenzfrequenzbildung betrachtet werden, bei der die Differenz der beiden Frequenzen sehr klein ist [69]. Der Polarisationsterm zweiter Ordnung ist dann gegeben durch [11]

$$P_i^{(2)}(0) = \sum_{j,k} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(0,\omega_1,-\omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2).$$
(2.28)

Die Indizes i, j und k stehen für die kartesischen Komponenten des Feldes.  $\chi_{ijk}^{(2)}$  ist das Element zweiter Ordnung des nichtlinearen Suszeptibilitätstensors des Kristalls. In [11] und [100] wird folgende kompakte Schreibweise vorgeschlagen:

$$d_{il} = \frac{1}{2}\chi^{(2)}_{ijk},\tag{2.29}$$

 $\operatorname{mit}$ 

Auf diese Weise kann der nichtlineare Suszeptibilitätstensor anstatt mit einem 3x3x3-Tensor mit folgender 3x6-Matrix dargestellt werden:

$$d_{il} = \begin{pmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{pmatrix}$$
(2.30)

In Kristallsystemen, die Symmetrien aufweisen, können mehrere der 18 Einträge des Tensors null oder gleich anderen Einträgen sein. Dies ist bei bewährten elektro-optischen Kristallen der Fall. ZnTe hat nur drei nicht verschwindende Einträge, von denen nur einer unabhängig ist:  $d_{14} = d_{25} = d_{36}$ . Bei LiNbO<sub>3</sub> sind es immer noch drei unabhängige Einträge  $d_{15} = d_{24} = d_{31} = d_{32}$ ,  $d_{22} = -d_{16} = -d_{21}$  und  $d_{33}$ . Um für THz-Erzeugung geeignet zu sein muss ein Kristall mehrere Eigenschaften aufweisen:

- 1. Eine hohe Transparenz für THz- und IR-Strahlung
- 2. Ähnliche Brechungsindizes für THz- und IR-Strahlung
- 3. Eine hohe Zerstörschwelle, um möglichst großen Pumpintensitäten im nichtlinearen Bereich zu widerstehen
- 4. Eine starke optische Gleichrichtung im Verhältnis zu konkurrierenden nichtlinearen Prozessen

In [41] wird folgende Formel angegeben mit der sich die Effizienz der Differenzfrequenzmischung durch OR verschiedener elektrooptische Kristalle vergleichen lässt:

$$\eta_{THz} = \frac{2\omega^2 d_{eff}^2 L^2 I}{\epsilon_0 n_{NIR}^2 n_{THz} c^3} \exp(-\alpha_{THz} L/2) \cdot \frac{\sinh^2(\alpha_{THz} L/4)}{(\alpha_{THz} L/4)^2}$$
(2.31)

Dabei ist  $\omega$  die Differenz- bzw. THz-Frequenz, I die Intensität des NIR-Pumpstrahles,  $\epsilon_0$  die Vakuumpermittivität, c die Vakuumlichtgeschwindigkeit, L die Länge des Kristalls,  $\alpha_{THz}$  der Absorptionskoeffizient für THz-Strahlung und  $n_{NIR}$  und  $n_{THz}$  die Brechungsindizes für Nahinfrarot- und THz-Strahlung.  $d_{eff}$  ist der effektive nichtlineare Koeffizient, der sich in Anbetracht der Kristallsymmetrie und der Einträge des Suszeptibilitätstensors bestimmen lässt [41, 11]. In dieser Formel wird die THz-Absorption berücksichtigt, nicht jedoch die des Pumplasers. Für eine vernachlässigbare Absorption ( $\alpha_{THz}L \ll 1$ ) kann Formel 2.31 vereinfacht werden zu

$$\eta_{THz} = \frac{2\omega^2 d_{eff}^2 L^2 I}{\epsilon_0 n_{NIR}^2 n_{THz} c^3}$$
(2.32)

und für große Absorption ( $\alpha_{THz}L \gg 1$ ) zu

$$\eta_{THz} = \frac{8\omega^2 d_{eff}^2 I}{\epsilon_0 n_{NIR}^2 n_{THz} c^3 \alpha_{THz}^2}.$$
(2.33)

Daraus folgt, dass eine Kristalllänge größer als die Eindringtiefe der THz-Strahlung  $\alpha_{THz}^{-1}$ nutzlos ist. Denn nur die THz-Photonen können den Kristall verlassen, die nahe genug an der Austrittsfläche entstehen. In Tabelle 2.1 sind einige für die optische Gleichrichtung relevanten Eigenschaften für ZnTe, LiNbO<sub>3</sub> und gekühltes LiNbO<sub>3</sub> zusammengefasst. ZnTe vereinigt zwei positive Eigenschaften. Der Absorptionskoeffizient ist klein und außerdem sind Brechungsindizes für 800 nm Pumpwellenlänge und THz ungefähr gleich. Durch letzteres ist eine Phasenanpassung der Pumppulse und THz-Strahlung bei senkrechtem Einfall auf den Kristall gegeben, was für LiNbO<sub>3</sub> nicht der Fall ist. Darauf wird

Material	$d_{eff}(pm/V)$	$n_{800nm}^{gr}$	$n_{THz}$	$\alpha_{THz}(cm^{-1})$
ZnTe	68,5	$3,\!13$	3,17	$1,\!3$
LiNbO <sub>3</sub>	168	$2,\!25$	4,96	17
LiNbO(100K)				4,8

Tabelle 2.1: Wichtige Eigenschaften einiger Materialien für optische Gleichrichtung

im nächsten Abschnitt genauer eingegangen.

LiNbO<sub>3</sub> hat einen mehr als doppelt so großen  $d_{eff}$ -Wert, der nach Formel 2.31 zu einer effektiveren Differenzfrequenzbildung führt. Es wurde aber gezeigt, dass mit LiNbO<sub>3</sub> bei gleicher Pumpenergie sogar um Größenordnungen höhere THz-Pulsenergien erreicht werden können als in ZnTe [94]. Der Grund hierfür ist die relativ schmale Bandlücke des Halbleiters ZnTe, die eine Zweiphotonen-Absorption bei einer Pumpwellenlänge von 800 nm zulässt [63, 9, 45]. Das Problem liegt dabei nicht im Verlust der Pumpleistung, sondern in der starken THz-Absorption durch die entstandenen quasifreien Ladungsträger. Die Bandlücke von LiNbO<sub>3</sub> liegt außerhalb der Reichweite einer derartigen Zweiphotonen-Absorption [82], so dass Pumpintensitäten ermöglicht werden, die in höheren Konversionseffizienzen resultieren. Der Nachteil von LiNbO<sub>3</sub> ist der hohe Absorptionskoeffizient. Die nutzbare THz-Strahlung entsteht nur in einer sehr dünnen letzten Schicht des Kristalls. Wenn dieser aber zusätzlich auf 100 K abgekühlt wird reduziert sich die Absorption erheblich. Unter Verwendung von gekühltem LiNbO<sub>3</sub> konnte eine Konversionseffizienz von 3,8% bei einer THz-Pulsenergie von 1,2 mJ erreicht werden [47].

Eine weiteres Phänomen, dass in LiNbO<sub>3</sub> auftritt ist der photorefraktive Effekt [4]. Es handelt sich dabei um photoinduzierte lokale Änderungen der Brechungsindizes durch dauerhafte Ladungsumverteilungen. Durch eine Dotierung des Kristalls mit MgO können diese Schäden verhindert werden [78].

#### 2.4.2 Phasenanpassung durch geneigte Pulsfronten

Neben der erläuterten Vorzüge von LiNbO<sub>3</sub> gibt es auch noch den Umstand, dass sich die Gruppengeschwindigkeit bei 800 nm Pumpwellenlänge und die Phasengeschwindigkeit bei der Frequenz von 1 THz stark unterscheiden (siehe Tabelle 2.1). Für eine effiziente Konversion ist es notwendig, dass folgende Bedingung für erfüllt ist:

$$v_{NIR}^{gr} = v_{THz} \qquad n_{NIR}^{gr} = n_{THz} \tag{2.34}$$

Anderenfalls läuft der Pumppuls dem THz-Puls davon. So erzeugte Strahlung breitet sich Kegelförmig unter einem Tscherenkov-Winkel aus. Dieser Winkel kann aus den Brechungsindizes berechnet werden durch

$$\cos(\theta_c) = \frac{n_{NIR}^{gr}}{n_{THz}} = \frac{v_{NIR}^{gr}}{v_{THz}}.$$
(2.35)

Abbildung 2.8 zeigt eine schematische Darstellung der konischen THz-Emission. Mit den Brechungsindizes für 800 nm und 1 THz aus Tabelle 2.1 ergibt sich für LiNbO<sub>3</sub> ein Tscherenkov-Winkel von ungefähr  $63^{\circ}$ . Experimentell ist diese Abstrahlcharakteristik



**Abbildung 2.8:** Kegelförmige Abstrahlcharakteristik im Tscherenkov-Winkel  $\theta_c$ , die entsteht wenn die Geschwindigkeit einer Quelle größer ist als die der emittierten Strahlung. Die Gruppengeschwindigkeit eines IR-Pulses ist in LiNbO<sub>3</sub> größer als die Phasengeschwindigkeit der erzeugten THz-Strahlung. Entnommen aus [41].

sehr schwierig in der Handhabung. Außerdem ergibt sich folgende Bedingung für den maximalen Durchmesser des Pumpstrahls [56]

$$\mathbf{w} \ll v_{NIR}^{gr} \cdot \tau_p, \tag{2.36}$$

weil die transversal erzeugte THz-Strahlung sonst destruktiv interferiert.  $\tau_p$  steht dabei für die Dauer des Pumppulses. Anschaulich bedeutet diese Bedingung, dass der Puls schmaler sein muss als er lang ist. Die Konsequenz ist aber eine starke Limitierung der nutzbaren Leistung, weil bei entsprechend kleinen Strahldurchmessern schnell Intensitäten über der Zerstörschwelle des Mediums auftreten.

Durch ein Kippen der Pulsfront des Pumpstrahles kann der Unterschied zwischen den Brechungsindizes kompensiert werden [40]. Der Kippungsgwinkel  $\theta_K$  entspricht dem Tscherenkov-Winkel (siehe Formel 2.35), so dass die THz-Strahlung über die gesamte Propagationstrecke senkrecht zur Pulsfront emittiert wird (siehe Abbildung 2.9). Als Folge ist die Einschränkung des Pumpstrahldurchmessers nichtig, weil die laterale destruktive Interferenz verhindert wird. Durch die mögliche Steigerung der Pumpleistung vergrößert sich auch die THz-Ausbeute. Eine gute Möglichkeit diese Neigung der Pulsfront zu erreichen ist durch die Beugung an einem Gitter, wie in Abbildung 2.10 skizziert. In der ersten Beugungsordnung entsteht ein kontinuierlicher Weglängenunterschied von der einen zur anderen Seite des Strahlprofiles. Je nach Einfallswinkel ergibt sich dann eine gegenüber der Propagationsrichtung geneigte Pulsfront. Der Neigungswinkel  $\gamma$  kann



**Abbildung 2.9:** Schematische Darstellung der bezüglich der Propagationsrichtung geneigten Pulsfront. Die Neigung mit dem Winkel  $\theta_K$  dient der Phasenanpassung des NIRund THz-Pulses.

anhand der Formel

$$\tan(\gamma) = \frac{a+b}{P} \tag{2.37}$$

berechnet werden und nach [87] gilt

$$\tan(\gamma) = \frac{\lambda}{g\cos(\theta_d)} = \lambda \frac{d\theta_d}{d\lambda}.$$
(2.38)

Dabei ist a + b die akkumulierte Weglängendifferenz, P die Strahlbreite des gebeugten Strahles,  $\lambda$  die Wellenlänge des Lichtes, g die Gitterkonstante und  $\theta_d$  der Beugungswinkel. Zusätzlich muss die Winkeldispersion des Gitters in Betracht gezogen werden, denn es werden ultrakurze Pulse mit entsprechend großen Bandbreiten für die THz-Erzeugung verwendet. Die unterschiedlichen Wellenlängen des Spektrums werden in unterschiedlichen Winkeln gebeugt und so immer weiter räumlich voneinander getrennt je weiter sie propagieren. Aus diesem Grund wird eine Abbildung der Gitterebene im Kristall erzeugt, wo durch die räumliche Überlagerung der spektralen Anteile der Puls wieder zusammengefügt wird. Abbildungsfehler können jedoch die Konversionseffizienz verringern. In [58] wurden verschiedene Abbildungsmethoden verglichen. Wenn mit der Abbildung auch noch eine Vergrößerung oder Verkleinerung des Strahldurchmessers stattfindet, ändert sich entsprechend der Neigungswinkel, denn der Weglängenunterschied a + b ändert sich dabei nicht. Es ergibt sich daher für den Neigungswinkel  $\gamma'$  nach der Abbildung

$$\tan(\gamma') = \frac{\lambda}{M \ g \cos(\theta_d)},\tag{2.39}$$

mit dem Vergrößerungsfaktor M. Beim Eintritt in den Kristall wiederum verkürzt sich durch die Brechung der Weglängenunterschied a + b um den Faktor  $n_{NIR}^{gr}$ . Daraus folgt



**Abbildung 2.10:** Pulsfrontneigung an einem Gitter: In der 1. Beugungsordnung unterscheiden sich Ein- und Ausfallswinkel, so dass Weglängenunterschied a + b von einer zur anderen Seite des Strahldurchmessers entsteht. Die Folge ist eine Kippung der Pulsfront. (Entnommen aus [26]).

für den Neigungswinkel $\theta_K$ im Kristall

$$\tan(\theta_K) = \frac{1}{n_{NIR}^{gr}} \cdot \tan(\gamma') = \frac{1}{n_{NIR}^{gr}} \cdot \frac{\lambda}{M \ g \cos(\theta_d)}.$$
 (2.40)

Mit dieser Gleichung können für die verwendete Wellenlänge  $\lambda$  die Gitterkonstante gund der Einstrahlwinkel  $\theta_d$  auf das Gitter für die angestrebte Pulsfrontneigung bestimmt werden.

#### 2.4.3 Detektion via Elektro-optischer Abtastung

Das EOS ist eine Technik, mit der sowohl die Amplitude, als auch die Phase des elektrischen Feldes von THz-Pulsen gemessen werden kann. Dafür wird der Pockels-Effekt in elektro-optischen Kristallen ausgenutzt. In Abschnitt 2.4.1 wird bereits erwähnt, dass sich der Pockels-Effekt so wie die OR anhand der Polarisation der zweiten Ordnung erklären lässt. Entsprechend ähnlich mit Formel 2.28 ist auch die Beschreibung [11]

$$P_i^{(2)}(\omega) = 2 \sum_{j,k} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)}(\omega, \omega, 0) E_j(\omega) E_k(0)$$
$$= \sum_j \epsilon_0 \chi_{ij}^{(2)}(\omega) E_j(\omega), \qquad (2.41)$$

wobei  $\chi_{ij}^{(2)}(\omega) = 2 \sum_k \chi_{ijk}^{(2)}(\omega, \omega, 0) E_k(0)$  für den durch das Feld induzierten Tensor der Suszeptibilität steht. Ohne Verluste im Medium gilt  $\chi_{ijk}^{(2)}(0,\omega,-\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega,\omega,0)$ , daher sind die nichtlinearen optischen Koeffizienten für den Pockels-Effekt die gleichen wie für die optische Gleichrichtung [59]. Aus der Formel 2.41 wird ersichtlich, dass ein statisches Feld in einem nichtlinearen optischen Medium Doppelbrechung induziert, die proportional zur angelegten Feldstärke ist. Andersherum betrachtet folgt auch, dass eine anliegende Feldstärke bestimmt werden kann, indem die feldinduzierte Doppelbrechung gemessen wird. Für das EOS gibt es eine typische Apparatur, bei der nach einem elektro-optischen Kristall ein  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen und dann ein polarisierender Strahlteiler positioniert wird. Wenn ein Sondierungspuls zunächst ohne THz-Puls durch den Kristall propagiert behält er seine lineare Polarisation, um dann durch das  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen zirkular polarisiert zu werden. Es folgt die Aufspaltung in zwei orthogonal polarisierte Komponenten der gleichen Intensität durch den Strahlteiler. Um das elektrische Feld des THz-Pulses zu vermessen, wird dieser im Kristall räumlich und zeitlich mit dem Sondierungspuls überlagert. Durch die feldinduzierte Doppelbrechung wird die Polarisation des Sondierungspulses leicht elliptisch und dann durch das  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen nur noch fast zirkular polarisiert. Der Strahlteiler spaltet den Strahl in diesem Fall in zwei Komponenten auf, deren Intensitäten nicht mehr gleich sind. Die Differenz der beiden orthogonal polarisierten Komponenten des Sondierungspulses ist proportional zur anliegenden Feldstärke. Für die Messung eignen sich Photodiodenpaare mit integrierter Verstärkung des Differenzsignals. Durch eine Änderung der Propagationsstrecke des THz-Pulses oder des Sondierungspulses kann sukzessive das komplette elektrische Feld des THz-Pulses (Amplitude und Phase) vermessen werden.

Die Ansprüche an einen geeigneten elektro-optischen Kristall sind für ein EOS sehr



**Abbildung 2.11:** Polarisation des THz- und des Sondierungspulses bezüglich der Kristallrichtungen von ZnTe für optimales EOS (In Anlehnung an [59])

ähnlich wie für die THz-Erzeugung durch OR. ZnTe vereinigt die Vorteile einer hohen

Transparenz für optische und THz Frequenzen und einer passenden Gruppengeschwindigkeit bei 800 nm im Vergleich zur Phasengeschwindigkeit der THz-Strahlung (siehe Tabelle 2.1). Die ausgeprägteste feldinduzierte Doppelbrechung wird erreicht, wenn die Polarisation des THz- und des Sondierungspulses parallel zur  $[1\overline{10}]$ -Richtung ausgerichtet ist, wie in Abbildung 2.11 dargestellt wird. Die Propagation der Strahlen verläuft dann in der  $[\overline{110}]$ -Richtung. Mit dem nichtlinearen Koeffizienten von ZnTe kann die Formel 2.41 mit Matrizen folgendermaßen dargestellt werden:

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = 4\epsilon_0 d_{14} \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_{S,x} E_{THz,x} \\ E_{S,y} E_{THz,y} \\ E_{S,z} E_{THz,z} \\ E_{S,z} E_{THz,z} + E_{S,z} E_{THz,y} \\ E_{S,z} E_{THz,x} + E_{S,x} E_{THz,z} \\ E_{S,x} E_{THz,y} + E_{S,y} E_{THz,x} \end{pmatrix}$$
(2.42)  
$$= -4\epsilon_0 d_{14} E_S E_{THz} \mathbf{e}_z \perp \mathbf{E}_S$$
(2.43)

 $\operatorname{mit}$ 

$$\mathbf{E}_{S} = \frac{E_{S}}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1\\ -1\\ 0 \end{pmatrix} \qquad \text{und} \qquad \mathbf{E}_{THz} = \frac{E_{THz}}{\sqrt{2}} \begin{pmatrix} 1\\ -1\\ 0 \end{pmatrix}, \qquad (2.44)$$

wobei es sich bei  $E_S$  und  $E_{THz}$  um die maximalen Amplituden des Sondierungs- und des THz-Feldes handelt. Die nichtlineare Polarisation ist senkrecht zum Feld des einlaufenden Sondierungspulses. Dessen lineare Polarisation wird folglich mit der Propagation in ZnTe unter Einfluss des THz-Feldes zunehmend elliptisch. Die Differenz der Phasenänderung  $\Delta \phi$ , die ein Sondierungspuls auf der Propagationstrecke L durch den Pockels-Effekt erfährt ist [11]

$$\Delta\phi = (n_y - n_x)\frac{\omega L}{c} = \frac{\omega L}{c}n_S^3 d_{14}E_{THz},$$
(2.45)

wobei  $n_S$  für den Brechungsindex des Kristalls bei der Wellenlänge des Sondierungspulses steht. Die Intensitäten des aufgespaltenen Strahles auf den Photodioden sind

$$I_x = \frac{I_0}{2} (1 - \sin\Delta\phi) \approx \frac{I_0}{2} (1 - \Delta\phi)$$
(2.46)

$$I_y = \frac{I_0}{2} (1 + \sin\Delta\phi) \approx \frac{I_0}{2} (1 + \Delta\phi), \qquad (2.47)$$

mit der Gesamtintensität des Sondierungsstrahles  $I_0$ . Für kleine Winkel wird hier die Sinusfunktion mit ihrem Argument angenähert. Das Differenzsignal  $I_D$  der Photodioden verhält sich bezüglich des THz-Feldes folgendermaßen:

$$I_D = I_y - I_x = I_0 \Delta \phi = \frac{I_0 \omega L}{c} n_S^3 d_{14} E_{THz}.$$
 (2.48)

Wenn alle Variablen bekannt sind, dann kann die maximale Feldstärke  $E_{THz}$  aus dieser Formel berechnet werden.

### 2.5 Lichtfeld getriebene Streak-Kamera

Seit der Entwicklung der konventionellen Streak-Kamera am Anfang der siebziger Jahre [13, 84] können inzwischen diverse kommerzielle Ausführungen erworben werden. Streak-Kameras sind also ein etabliertes Werkzeug zur zeitlichen Charakterisierung von kurzen XUV-Pulsen. In Abbildung 2.12 wird das Prinzip einer Streak-Kamera schematisch dargestellt. Ein kurzer XUV-Puls trifft auf eine Photokathode und setzt Photoelektronen frei. In diesen Puls aus Photoelektronen ist die gleiche zeitliche Struktur eingeprägt, wie sie auch der XUV-Puls aufweist. Die Elektronen passieren anschließend ein schnell steigendes oder abfallendes elektrisches Feld, das in transversaler Richtung angelegt wird. Je nach Zeitpunkt des Eintritts in das elektrische Feld erfahren die Elektronen einen transversalen Impuls, so dass auf einem folgenden Fluoreszenzschirm ein Schmierbild der abgelenkten Elektronen entsteht. Auf diese Weise wird die zeitliche Verteilung der Elektronen in eine räumliche Verteilung umgewandelt. Sofern das ablenkende elektrische Feld bekannt ist, kann von der Breite des Schmierbildes auf die Pulsdauer geschlossen werden. Das zeitliche Auflösungsvermögen der konventionellen Streak-Kamera wird ei-



**Abbildung 2.12:** Schematische Darstellung einer konventionellen Streak-Kamera. Beim Auftreffen auf eine Photokathode erzeugt ein XUV-Puls einen Elektronenpuls mit der gleichen zeitlichen Struktur. In einem ansteigenden elektrischen Feld werden die Elektronen je nach Startzeitpunkt unterschiedlich stark lateral beschleunigt. Auf einem Fluoreszenzschirm entsteht ein Schmierbild, von dessen räumlicher Ausdehnung auf die zeitliche Verteilung der Elektronen geschlossen werden kann.

nerseits durch die Geschwindigkeit mit der eine anliegende Hochspannung geändert werden kann und anderseits von der kinetischen Energie der Elektronen begrenzt. Letzteres bestimmt die Zeitspanne, in der das laterale elektrische Feld auf die Elektronen wirken kann. Mit dieser Technik können bisher Auflösungen von bis zu 200 fs erreicht werden [28, 91].

Nach dem Konzept der konventionellen Streak-Kamera wurden Lichtfeld getriebene Streak-Kameras entwickelt und damit die mögliche zeitliche Auflösung um mehrere Größenordnungen verbessert. Anstatt die Elektronen durch eine Hochspannung zwischen Ablenkplatten zu beschleunigen, wird das elektrische Feld eines Laserpulses genutzt.



**Abbildung 2.13:** Schematische Darstellung des Streakings im Vektorpotential eines IR-Pulses. Die XUV- und IR-Pulse werden kollinear in ein Gas fokussiert. Die emittierten Elektronen werden im elektrischen Feld des IR-Pulses beschleunigt und mit einem Elektronen-Flugzeitspektrometer detektiert.

In Abbildung 2.12 ist eine Lichtfeld getriebene Streak-Kamera schematisch dargestellt. XUV- und IR-Pulse propagieren kollinear und werden in ein Edelgas fokussiert. So wie durch die Photokathode der konventionellen Streak-Kamera, erzeugt der XUV-Puls eine Kopie seiner Zeitstruktur durch die Emission einer entsprechenden Verteilung von Photoelektronen aus dem Gas. Je nach Emissionszeitpunkt werden die Elektronen im elektrischen Feld des IR-Pulses unterschiedlich stark beschleunigt. Die resultierende Impulsverteilung der Elektronen wird mit einem Elektronenspektrometer gemessen. Es wird also die zeitliche Verteilung der Elektronen in eine messbare Impulsverteilung übertragen.

Die erste Lichtfeld getriebene Streak-Kamera wurde für die zeitliche Charakterisierung von Attosekundenpulsen verwendet [54]. Mit einer Wellenlänge des Streak-Feldes von 750 nm konnten kurze Zeit später XUV-Pulse von 250 as Länge mit einer Auflösung von unter 100 as gemessen werden [81]. Im Allgemeinen sollte für derartige Messungen die Periodendauer des infraroten Streak-Feldes deutlich größer sein als die Dauer des XUV-Pulses. Nur so ergibt sich eine möglichst lineare Änderung des elektrischen Feldes über die gesamte Pulsdauer. Um Pulsdauern von über 10 fs zu messen, eignen sich Pulse im THz-Frequenzbereich. Mit einer THz-Feld getriebenen Streak-Kamera konnten am freien Elektronenlaser FLASH erstmalig die Längen einzelner Pulse bestimmt werden [98]. Die THz-Strahlung lieferte in diesem Fall eine Undulator-Beamline. Diese Methode konnte jedoch auch in einem Laserlabor umgesetzt werden, indem THz-Pulse über OR in LiNbO<sub>3</sub> erzeugt und zur zeitlichen Vermessung von fs XUV-Pulsen verwendet wurden [89].
Für die theoretische Beschreibung der Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera kann eine semiklassische und eine quantenmechanische Betrachtung herangezogen werden, die beide gleichwertig sind. Diese grundlegenden Konzepte wurden für die Vermessung von Attosekundenpulsen mit Streak-Feldern im NIR Bereich erarbeitet, sind aber unabhängig von der Streak-Wellenlänge gültig und werden in den folgenden Abschnitten erläutert. Darauf folgt eine Erklärung wie aus den Streak-Messungen die Dauer der XUV-Pulse mit und ohne Berücksichtigung eines linearen Chirps rekonstruiert werden können. Abschließend wird auf die Besonderheiten beim Streaking von Auger-Elektronen anstatt von Photoelektronen eingegangen.

#### 2.5.1 Semiklassische Beschreibung

In der semiklassischen Beschreibung der Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera kann die Photoionisation durch den XUV-Puls unabhängig von der folgenden Beschleunigung des Elektrons im Streak-Feld betrachtet werden, weil der Unterschied zwischen der XUV-Frequenz  $\omega_x$  und der Streak-Frequenz  $\omega_L$  groß ist [48]. Das heißt, das Atom wird bei der Absorption eines XUV-Photons und der folgenden Emission eines Elektrons nicht vom infraroten Streak-Puls beeinflusst. Auf der anderen Seite wirkt der XUV-Puls nicht mehr auf das freie Elektron ein, welches sich im Streak-Feld befindet.

Im ersten Schritt ergibt sich die kinetische Energie des Photoelektrons nach der Emission zu

$$W_0 = \frac{m_e v_0^2}{2} = \hbar \omega_x - IP, \qquad (2.49)$$

wobei IP für das Ionisationspotential steht und  $v_0$  für die Geschwindigkeit zum Emissionszeitpunkt. Im nächsten Schritt kann nach Itatani et al. [48] unter der Bedingung  $U_p \gg \hbar \omega_L$  und  $\hbar \omega_x \gg IP$  die zeitabhängige Geschwindigkeit  $\mathbf{v}(t)$  im Streak-Feld nach Gesichtspunkten der klassischen Mechanik folgendermaßen bestimmt werden:

$$\mathbf{v}(t) = -\frac{e}{m_e}\mathbf{A}(t) + \left(\mathbf{v}_0 + \frac{e}{m_e}\mathbf{A}_i\right).$$
(2.50)

Dies gilt für ein linear polarisiertes elektrisches Feld  $\mathbf{E}_L(t) = \mathbf{E}_0(t)\cos(\omega_L + \phi)$ . Dann steht  $\mathbf{A}(t)$  für das Vektorpotential, für das gilt  $\mathbf{E}_L = -\partial \mathbf{A}/\partial t$ . Außerdem ist  $\mathbf{A}_i$  das Vektorpotential zum Zeitpunkt der Ionisation. Der zweite Term in 2.50 beschreibt die gesamte Änderung der Geschwindigkeit und Flugrichtung der Elektronen durch das Streak-Feld für  $t \to \infty$ . Der erste Term beschreibt das eigentliche Streaking bzw. Verschmieren der zeitlichen Elektronenverteilung, die abhängig von der zeitlichen Änderung des Feldes ist. Die kinetische Energie  $W_{kin}$ , die ein Elektron durch den Einfluss des Streak-Feldes erhält, ist unter anderem vom Winkel  $\theta$  zwischen der Polarisationsrichtung des Feldes und der initialen Flugrichtung des Elektrons abhängig. Wichtig ist auch die Phase  $\phi_i$ des Streak-Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation. Die kinetische Energie ergibt sich aus der Formel [48]

$$W_{kin} = W_0 + 2U_p \cos 2\theta \sin^2 \phi_i \pm \sqrt{1 - \frac{2U_p}{W_0} \sin^2 \theta \sin^2 \phi_i} \sqrt{8W_0 U_p} \cos \theta \sin \phi_i \qquad (2.51)$$

mit der kinetischen Energie $W_0$ ohne Streak-Feld und dem ponderomotiven Potential $U_p$  (siehe 2.1). Wenn nur Elektronen betrachtet werden, die sich parallel zur Polarisationsrichtung ( $\theta=0$ ) bewegen kann 2.51 vereinfacht werden zu

$$W_{kin||} = W_0 + 2U_p \sin^2 \phi_i \pm \sqrt{8W_0 U_p} \sin \phi_i.$$
(2.52)

Üblicherweise ist das ponderomotive Potential bei Streak-Kamera-Experimenten viel kleiner als die initiale kinetische Energie der Elektronen ( $U_p \ll W_0$ ), daher kann der zweite Term aus 2.52 vernachlässigt werden. Dann ergibt sich

$$W_{streak} = W_{kin\parallel} - W_0 \approx \sqrt{8W_0 U_p} \sin\phi_i \tag{2.53}$$

als induzierte Energieverschiebung. Durch ersetzen von  $U_p$  nach Formel 2.1 folgt

$$W_{streak} \approx e \sqrt{\frac{2W_0}{m_e}} \frac{E_0(t_i)}{\omega_{IR}} \sin \phi_i = e \sqrt{\frac{2W_0}{m_e}} A_i, \qquad (2.54)$$

dabei ist  $t_i$  der Ionisationszeitpunkt und  $\omega_{IR}$  die Frequenz des Streak-Pulses.  $t_i$  sollte im Bereich des Nulldurchgangs des Vektorpotentials gewählt werden, weil hier die Streak-Geschwindigkeit

$$s = \frac{\partial W_{streak}}{\partial t} \tag{2.55}$$

am größten und die Abweichung von  $W_0$  klein ist. Die Dauer des ionisierenden XUV-Pulses wird nun direkt auf eine Änderung der kinetischen Energien der Elektronen projiziert. Wenn die initialen Energien der Photoelektronen alle gleich wären, könnte anhand der Verteilung der kinetischen Energien bei bekannter Streak-Geschwindigkeit *s* unmittelbar die XUV-Pulsdauer bestimmt werden. Bekanntermaßen weisen Laserpulse eine spektrale Bandbreite auf, die sich durch die Ionisationsprozesse direkt in einer Verteilung der anfänglichen kinetischen Energien  $W_0$  widerspiegelt. Es ist daher nur eine Faltung aus der spektralen Breite und der Länge des XUV-Pulses messbar. Durch die Messung von Spektren mit und ohne Streak-Feld kann aber die Pulsdauer bestimmt werden, wie in Abschnitt 2.5.3 beschrieben wird.

#### 2.5.2 Quantenmechanische Beschreibung

Eine anschauliche Beschreibung der Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera wurde von Quere et al. vorgestellt [80]. Dafür wird zuerst betrachtet, in welcher Beziehung der XUV-Puls zum Elektronenwellenpaket steht, das bei der Ionisation erzeugt wird. Es wird dabei die Single-Active-Electron-Näherung verwendet, die besagt, dass ein betrachtetes Elektron vernachlässigbar mit anderen Elektronen wechselwirkt. In atomaren Einheiten  $(\hbar = m_e = e = 1)$  wird die Übergangsamplitude vom Grundzustand in den finalen Kontinuumszustand mit dem Impuls **p** in [80] so dargestellt:

$$a_{\mathbf{p}} = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{d}_{\mathbf{p}} \mathbf{E}_{XUV}(t) \exp[i(W + IP)t], \qquad (2.56)$$

dabei ist  $W = \mathbf{p}^2/2$  die Energie des Kontinuumzustandes,  $\mathbf{E}_{XUV}$  das elektrische Feld des XUV-Pulses,  $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$  das Matrixelement des Dipolübergangs und *IP* das Ionisationspotential des Atoms. In dieser Formel wird deutlich, dass das Spektrum des Photoelektrons  $a_{\mathbf{p}}$  direkt mit dem XUV-Spektrum zusammenhängt. Für XUV-Bandbreiten von höchstens einigen eV (Attosekundenpulse) kann außerdem von einem konstanten  $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$  ausgegangen werden. Wenn  $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$  bekannt ist, kann das Spektrum des Photoelektrons  $a_{\mathbf{p}}$  sowohl in Amplitude als auch der Phase als Kopie des XUV-Spektrums betrachtet werden.

Um den Einfluss eines infraroten Laserfeldes auf den Ionisationsprozess einzubeziehen, wird die Strong-Field-Approximation (SFA) verwendet [60]. Bei dieser Näherung wird davon ausgegangen, dass das Potential des Ions eine vernachlässigbare Wirkung auf das emittierte Photoelektron hat. Wenn die Energie der XUV-Photonen deutlich größer ist als die Ionisationsenergie IP, dann kann die SFA angewendet werden, obwohl die Intensität des IR-Pulses nicht sehr groß ist. Nach dem Vorbeiziehen des XUV- und des IR-Pulses ergibt sich eine Übergangsamplitude von  $a_{\mathbf{p}_f}(\tau)$  für einen Kontinuumszustand mit dem Impuls  $\mathbf{p}_f$  bei einer Verzögerung von  $\tau$  zwischen XUV- und IR-Pulse

$$a_{\mathbf{p}_f}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_{XUV}(t-\tau) \exp\left[i \left(IP t - \int_{t}^{+\infty} dt' \frac{1}{2} \mathbf{p}^2(t')\right)\right], \quad (2.57)$$

mit  $\mathbf{p}(t) = [\mathbf{p}_0 + \mathbf{A}(t_i)] - \mathbf{A}(t)]$  als instantaner Impuls des freien Elektrons im infraroten Feld. Nach dem Passieren des IR-Pulses ist das Vektorpotential  $\mathbf{A}(t)$  gleich null und es gilt  $\mathbf{p}_f = \mathbf{p}_0 + \mathbf{A}(t_i)$ . Die Übergangsamplitude  $a_{\mathbf{p}_f}$  kann als die Summe der Wahrscheinlichkeitsamplituden aller Elektronentrajektorien angesehen werden, die letztendlich den gleichen Impuls  $\mathbf{p}_f$  aufweisen. Durch das Integrieren über die Zeit t in Gleichung 2.57 wird dem Umstand Rechnung getragen, dass der XUV-Puls zu jedem Zeitpunkt t ein Elektron ins Kontinuum freisetzen kann. Die Wahrscheinlichkeit dafür ergibt sich aus der Multiplikation der XUV-Feldamplitude mit dem Übergangsmatrixelement zu diesem Zeitpunkt. Die Exponentialfunktion in Gleichung 2.57 berücksichtigt die Phase des Prozesses. Hier steht *IP* t für die Phase, die bis zum Zeitpunkt t aufsummiert wurde und mit dem Integral wird die Phase im Kontinuum akkumuliert. Formel 2.57 kann umgeformt werden zu

$$a_{\mathbf{p}_f}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{+\infty} dt \, \exp[-i\phi(t)] \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_{XUV}(t-\tau) \, exp[i(W+IP)t]$$
(2.58)

mit der Phase

$$\phi(t) = -\int_{t}^{+\infty} dt' \left( \mathbf{p}_f \mathbf{A}(t') + \frac{\mathbf{A}^2(t')}{2} \right).$$
(2.59)

Durch das infrarote Feld wird also eine zeitliche Phasenmodulation  $\phi(t)$  im Elektronenwellenpaket, das vom XUV-Puls erzeugt wurde, induziert. Die Phase kann auch als folgende Summe dargestellt werden:

$$\phi(t) = \phi_1(t) + \phi_2(t) + \phi_3(t), \qquad (2.60)$$

$$\phi_1(t) = -\int_t^{+\infty} dt U_p(t), \qquad (2.60)$$

$$\phi_2(t) = \frac{\sqrt{8WU_p(t)}}{\omega_{IR}} \cos\theta\cos(\omega_{IR}t); \qquad (2.60)$$

$$\phi_3(t) = -\frac{U_p(t)}{2\omega_{IR}} \sin(2\omega_{IR}t).$$

Im Vergleich zur Dauer des IR-Pulses ändert sich  $\phi_1$  nur langsam.  $\phi_2$  dagegen oszilliert mit  $\omega_{IR}$  und  $\phi_3$  mit der doppelten Frequenz. Für die meisten Streaking-Experimente gilt  $U_p \ll W$ , daher können  $\phi_1$  und  $\phi_3$  im Gegensatz zu  $\phi_2$  für kleine Beobachtungswinkel  $\theta$ vernachlässigt werden.

Physikalisch geschen führt eine lineare Phasenmodulation des Elektronenwellenpakets zu einer Verschiebung seines Spektrums. Diese Verschiebung ergibt sich aus  $W_{streak} = W - W_0 = -\partial \phi / \partial t$ . Aufgelöst nach W ergibt sich der gleiche Ausdruck wie für die kinetische Energie in der semiklassischen Beschreibung in Formel 2.52. Die Energiemodulation aus dem semiklassischen Modell und die Phasenmodulation aus dem quantenmechanischen Modell sind also durch eine zeitliche Ableitung miteinander verknüpft.

#### 2.5.3 Rekonstruktion von XUV-Pulseigenschaften

Aus einem gestreakten Photoelektronenspektrum kann nur mit der Kenntnis über die Stärke des Streak-Feldes noch nicht unmittelbar auf die XUV-Pulsdauer geschlossen werden. Die Bandbreite und die Phase der XUV-Pulse überträgt sich auf das Elektronenwellenpaket. Selbst bei einem fourierlimitierten Puls wird die Energiemodulation beim Streaking von der spektralen Breite überlagert und muss mit in Betracht gezogen werden. Dazu ist eine Rekonstruktion mit beliebiger Phase nicht eindeutig. Unter der Annahme eines dominanten Phasenanteils der zweiten Ordnung (Chirp) wurde in [34] ein analytischer Ansatz für die Rekonstruktion vorgestellt. Sei

$$E_{XUV}(t) = A \exp[-a(t-t_0)^2] \exp[i(\omega_0(t-t_0) + c(t-t_0)^2]$$
(2.61)

das elektrische Feld eines Gauß-Pulses mit dem linearen Frequenz-Chirp c. Dann ist die Intensität  $I_{XUV} = |\mathbf{E}_{XUV}|^2$ , die entsprechende rms-Pulsdauer  $\tau_{XUV} = \frac{1}{\sqrt{a}}$  und die spektrale Bandbreite  $\sigma_{XUV} = \sqrt{\frac{a^2+c^2}{a}}$ . Wie oben beschrieben wird der XUV-Puls mit einem IR-Puls überlagert. Dabei bestimmt die Ankunftszeit des XUV-Pulses den Ionisationszeitpunkt der Elektronen. Dieser wird so gewählt, dass das IR-Vektorpotential gerade einen Nulldurchgang hat. Aus Gleichung 2.58 ergibt sich für das Photoelektronenspektrum

$$S(\omega) = |a_{\mathbf{p}_f}|^2 = \left| -\int_{-\infty}^{+\infty} dt \exp[i\phi(t)] E_{XUV}(t) \exp[i\omega t] \right|^2, \qquad (2.62)$$

mit  $\mathbf{d}_{\mathbf{p}} = 1$ . Wie in Abschnitt 2.5.2 wird  $\phi(t)$  durch  $\phi_2(t)$  aus Formel 2.60 angenähert. Für kleine t gilt dann

$$\phi_2 \approx \sqrt{\frac{8 W U_p(0)}{\omega_{IR}^2}} \cos\theta \left(1 - \frac{\omega_{IR}^2 t^2}{2}\right).$$
(2.63)

Die analytische Lösung für Gleichung 2.62 bei einem Beobachtungswinkel von nahezu $\theta=0$ ist

$$S(\omega) \propto exp\left[\frac{-a(\omega-\omega_0)^2}{2(a^2+(c+\frac{s}{2})^2)}\right].$$
 (2.64)

Als Maß für die Streak-Geschwindigkeit (siehe auch 2.55) wird

$$s = \frac{\partial W_{streak}}{\partial t} = \sqrt{8 U_p(0) W} \,\omega_{IR} \tag{2.65}$$

definiert. Das gestreakte Spektrum ist ebenfalls gaußförmig mit einer Breite von

$$\sigma_{S} = \sqrt{\frac{a^{2} + (c + \frac{s}{2})^{2}}{a}}$$

$$= \sqrt{\sigma_{XUV}^{2} + \tau_{XUV}^{2} (s^{2} + 4 c s)}$$
(2.66)

Bei dem gestreakten Spektrum handelt es sich also um eine Faltung des XUV-Spektrums und der Projektion der zeitlichen Struktur des Pulses auf eine Energiemodulation. Die Streak-Geschwindigkeit ist proportional zur elektrischen Feldstärke des IR-Pulses bzw. zur zeitlichen Ableitung des Vektorpotentials.

Durch Umstellen von 2.66 ergibt sich folgende Gleichung zu Bestimmung der XUV-Pulsdauer:

$$\tau_{XUV}^2 = \frac{\sigma_S^2 - \sigma_{XUV}^2}{s^2 + 4\,c\,s}.$$
(2.67)

Wenn das IR-Feld gut bekannt ist, lässt sich s einfach bestimmen. Weiterhin wird dazu das Spektrum der Photoelektronen einmal mit Einfluss des IR-Feldes ( $\sigma_S$ ) und einmal ohne ( $\sigma_{XUV}$ ) gemessen. Unter der Annahme, dass es sich um einen fourierlimitierten XUV-Puls handelt, also c = 0, ergibt sich aus Formel 2.67 die Pulsdauer. Für die Rekonstruktion von XUV-Pulsdauern mit Chirp werden zwei gestreakte Spektren mit unterschiedlichem s benötigt. In [34] wird eine Gleichung vorgestellt, die für den speziellen Fall gültig ist, wenn für die Streak-Geschwindigkeiten gilt  $s_1 = -s_2$ , wie es beispielsweise für aufeinander folgende Nulldurchgänge des Vektorpotentials möglich ist. Es soll hier aber auch eine verallgemeinerte Gleichung aufgestellt werden. Dazu wird die Formel 2.67 für zwei unterschiedliche s und zugehörige  $\sigma_S$  aufgestellt. So ergibt sich ein lösbares Gleichungssystem aus zwei Gleichung mit zwei Unbekannten  $\tau_{XUV}$  und c, so dass letztere nicht mehr benötigt wird. Es ergibt sich

$$\tau_{XUV}^2 = \frac{s_1(\sigma_{XUV2}^2 - \sigma_{S2}^2) + s_2(\sigma_{XUV1}^2 - \sigma_{S1}^2)}{s_1 \, s_2(s_1 - s_2)}.$$
(2.68)

Mit s1 = -s2 und  $\sigma_{XUV1} = \sigma_{XUV2}$  folgt

$$\tau_{XUV}^2 = \frac{\sigma_1^2 + \sigma_2^2 - 2\,\sigma_{XUV}^2}{2\,s^2}.\tag{2.69}$$

Es gibt mehrere Möglichkeiten die benötigten Spektren zu erhalten. Im einfachsten Fall wird tatsächlich je ein Spektrum an aufeinander folgenden Nulldurchgängen gemessen [34]. Dafür muss lediglich der IR-Puls relativ zum XUV-Puls verschoben werden. Im Falle vom Streaking mit einem THz-Puls, der kaum mehr als eine volle Oszillation des elektrischen Feldes aufweist (OR), gibt es je nach Phase keine zwei passenden Nulldurchgänge. Es können jedoch zwei Detektoren gegenüber voneinander platziert werden. So erfahren die Elektronen, die zum einen Detektor gelangen, ein elektrisches Feld mit umgekehrtem Vorzeichen, als diejenigen, die am zweiten Detektor ankommen [87]. In Abbildung 2.14 wird diese Art Messung graphisch dargestellt. Im Prinzip ist es aber mit der verallgemeinerten Formel 2.68 auch möglich Spektren zu vergleichen, bei denen sich s nicht nur im Vorzeichen unterscheidet. Zum Beispiel vor und nach einem Nulldurchgang des Vektorpotentials, sofern die Steigung im Verhältnis zur Pulsdauer noch ausreichend linear ist. Aus Formel 2.54 ist ersichtlich, dass die Stärke des Vektorfeldes und damit der Streak-Geschwindigkeit auch von der kinetische Energie der Photoelektronen abhängt. Daher könnten auch die Spektren verschiedener Photoelektronen für die Rekonstruktion herangezogen werden.

#### 2.5.4 Streaking von Auger-Elektronen

Statt Photoelektronen können auch Auger-Elektronen mit einer Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera untersucht werden. Die Auswertung der Messungen muss aber aufgrund



**Abbildung 2.14:** Streaking eines XUV-Pulses mit up-chirp an einer ansteigenden bzw. abfallenden Flanke eines Vektorpotentials  $A_{THz}$  (positive bzw. negative Streak-Geschwindigkeit). Die spektrale Verbreiterung des ungestörten Spektrums ist für das ansteigende  $A_{THz}$  größer und für das abfallende  $A_{THz}$  kleiner als bei einem fourierlimierten Puls. Entnommen aus [34].

unterschiedlicher Eigenschaften von Photo- und Auger-Elektronen angepasst werden. Da die Photoelektronen quasi instantan während der Ionisation emittiert werden, entspricht ihre zeitliche Verteilung der des XUV-Pulses. Ihre kinetische Energie wird durch die Differenz zwischen der Photonen- und der Ionisationsenergie definiert. Deshalb übernehmen die Photoelektronen neben der spektralen Verteilung auch die spektrale Phase des XUV-Pulses. Die Folgen für die Streak-Messungen wurden im vorangegangenen Abschnitt für den speziellen Fall eines linearen Chirps diskutiert. Die Verteilung der Auger-Elektronen wird jedoch nur durch die zeitliche Form des XUV-Pulses beeinflusst, nicht jedoch durch seine spektrale Zusammensetzung. Denn ihre mittlere kinetische Energie ist, so wie die spektrale Breite  $\Gamma$ , eine intrinsische Eigenschaft des Atoms (siehe Abschnitt 2.1.2). Quantenmechanisch betrachtet übernimmt das Wellenpaket eines Auger-Elektrons als zeitliche Struktur die exponentielle Zerfallscharakteristik des zugehörigen Lochzustandes. Der XUV-Pulslänge entsprechend ist aber die Entstehung der Löcher ebenfalls zeitlich verteilt, so dass die exponentielle Form in der statistischen Verteilung der Auger-Elektronen verschmiert wird. Diese zeitliche Verschmieren wird beim THz-Streaking auch auf das Spektrum übertragen, da die Zerfallsprozesse der Lochzustände zu verschieden Zeitpunkten relativ zum THz-Puls stattfinden.

Für die Interpretation der Streak-Messung von Auger-Elektronen ist es sinnvoll drei verschiedene Verhältnisse der Lebensdauer  $\tau_A$  und der Pulsdauer  $\tau_{XUV}$  zu unterscheiden. Im ersten Bereich ist die Pulsdauer deutlich größer als die Lebensdauer ( $\tau_{XUV} \gg \tau_A$ ), so dass die zeitliche Verteilung vom XUV-Puls dominiert wird. Das gestreakte Spektrum ist gaußförmig und symmetrisch, wie bei den Photoelektronen. Daher kann die Pulsdauer auch analog dazu bestimmt werden. Ein entscheidender Vorteil ist, dass der Chirp des XUV-Pulses die Messung nicht verfälscht. Im zweiten Bereich liegen Pulsdauer und Lebensdauer in der gleichen Größenordnung ( $\tau_{XUV} \approx \tau_A$ ). Die zeitliche Verteilung der Auger-Elektronen ist ein verschmierter exponentieller Zerfall, der sich in einem asymmetrischem gestreaktem Spektrum zeigt. Es handelt sich dabei um die Faltung des gestreakten XUV-Pulses und des gestreakten exponentiellen Zerfalles. Da nicht mehr ausschließlich um Gauß-Verteilungen beteiligt sind, ist eine analytische Entfaltung des Spektrums deutlich komplizierter. Es ist aber durchaus möglich Aussagen über  $\tau_{XUV}$ und  $\tau_A$  zu treffen, zum Beispiel durch den Vergleich mit berechneten Spektren. Wenn die Pulsdauer viel geringer ist als die Lebensdauer ( $\tau_{XUV} \ll \tau_A$ ), dann bestimmt die Pulsdauer nur noch die vordere Flanke der zeitlichen Verteilung, während die Hintere dem exponentiellen Zerfall der Löcher entspricht. Das gestreakte Spektrum zeigt in diesem Fall unmittelbar die zeitliche Verteilung der Auger-Elektronen bzw. die Zerfallsrate der Löcher.

Bisher wurden aber Einflüsse von PCI auf die Streak-Messungen noch nicht berücksichtigt. In Abschnitt 2.1.2 wurde schon beschrieben, dass ein Auger-Elektron das Elektron der zuvor erfolgten Photoionisation überholen kann. Die Folge ist ein Energieübertrag, dessen Höhe vom Abstand der Elektronen zum Ion zum Zeitpunkt des Uberholens abhängt. Je später der Emissionszeitpunkt eines Auger-Elektrons desto weniger Energie erhält es durch diesen Vorgang. Wenn die Photonenenergie sehr nahe an der Ionisationsenergie liegt, das Photoelektron also sehr langsam ist, dann können Verschiebungen und Deformationen der Spektrallinie des Auger-Elektrons gemessen werden [83, 42, 38]. Schütte et al. fanden bei der Untersuchung von Auger-Elektronen in Krypton und Xenon Hinweise auf einen energetischen Chirp in deren zeitlichen Verteilungen [88]. Dafür wurde von Bauch und Bonitz theoretisch beschrieben, welche Auswirkungen PCI auf Auger-Elektronen in einem Streak-Feld hat (FAPCI) [6]. Aufgrund des induzierten Chirps sind Streak-Messungen empfindlicher auf den Einfluss von PCI als reine spektrale Messungen. Für die Auswertung von Streak-Messungen an Auger-Elektronen sollte folglich abgeschätzt werden, ob PCI einen Effekt hat, der vernachlässigbar ist oder mit einbezogen werden muss. Letzteres ist deutlich komplizierter als im Fall linear gechirpter Photoelektronen, denn PCI erzeugt einen hyperbolischen Chirp. Eventuell müssen numerische Simulationen für diese Abschätzung herangezogen werden.

#### 2.5.5 Einfluss der Gouy-Phasenverschiebung

Konvergentes Licht erfährt beim Durchlaufen der Strahltaille eine Phasenverschiebung. Sie wird Gouy-Phasenverschiebung genannt und beträgt auf der Propagationsachse z für Gauß-Strahlen genau  $\pi$  zwischen  $-\infty$  und  $+\infty$ . Der Verlauf der Gouy-Phase  $\Phi_G$  wird durch die Formel

$$\Phi_G(z) = -\arctan\left(\frac{z-z_0}{z_R}\right) \tag{2.70}$$

beschrieben [29]. Dabei steht  $z_0$  für die Position der Strahltaille und  $z_R$  für die Rayleigh-Länge. Zwischen  $-z_R$  und  $+z_R$  verschiebt sich die Phase demnach von  $\pi/4$  auf  $-\pi/4$ . Dieses Verhalten weist auch das elektrische Feld der THz-Pulse auf, die in der Streak-Kamera verwendet werden. Die zu untersuchenden Gasatome liegen räumlich verteilt vor, so dass auch die Photo- und Auger-Elektronen aus der Ionisation mit den XUV-Pulsen in diesem Bereich emittiert werden. In Abbildung 2.15 wird dieser Sachverhalt in Form einer Skizze verdeutlicht. XUV- und THz-Pulse propagieren kollinear und gleichzeitig durch das Medium, durch die Gouy-Phasenverschiebung aber verschiebt sich das Streak-Feld von einer Seite des Gases zur Anderen relativ zum Zeitpunkt der Emission der Elektronen. Die Folge ist ein zusätzliches Verschmieren des gestreakten Spektrums. Der Einfluss der Gouy-Phasenverschiebung kann abgeschätzt und in die Auswertungen



Abbildung 2.15: Schematische Darstellung der Gouy-Phasenverschiebung im Vergleich zur Rayleigh-Länge  $z_R$ des THz-Strahles. Der Einfluss auf die Streak-Messung ergibt sich aus der Phasendifferenz im Bereich  $\Delta G$ , in dem sich XUV-Strahl und Atomstrahl überlagern.

der Streak-Messungen einbezogen werden. Dafür muss zunächst die räumliche Verteilung der Gasatome  $\Delta G$  auf der Propagationsachse, die der Verteilung der emittierten Elektronen entspricht, bestimmt werden. Weiterhin muss die Phasenverschiebung in Abhängigkeit von z bekannt sein, die sich mit der Rayleigh-Länge  $z_R$  aus Formel 2.70 ergibt. Wenn die Verteilung schmaler ist als  $z_R$ , dann kann eine lineare Phasenverschiebung pro mm  $d\Phi$  angenommen werden. Daraus kann eine Pulslänge  $\tau_G$  berechnet werden, mit der die Pulsdauern aus Streak-Messungen nach Formel 2.67 entfaltet werden müssen.  $\tau_G$  entspräche der Pulsdauer, die einem zeitlich und spektral infinitesimal ausgedehnten XUV-Puls (physikalisch natürlich ausgeschlossen) aufgrund der Gouy-Phasenverschiebung zugeordnet würde. Die Entfaltung wird deutlich einfacher, wenn die Gasverteilung entlang der z-Achse mit einer Gauß-Funktion angenähert werden kann. Die Pulsdauer  $\tau_G$  ergibt sich aus der Gleichung

$$\tau_G = \frac{\Delta G \, d\Phi}{2\pi \, f},\tag{2.71}$$

wobei f für die Trägerfrequenz des THz-Pulses steht.

#### 2.6 Effusiver Atomstrahlofen

Für die Erzeugung von atomaren oder molekularen Gasen aus Feststoffen wurde im Rahmen dieser Arbeit ein sehr kompakter Ofen basierend auf dem Prinzip einer Knudsen-Zelle entwickelt. Diese Zellen bestehen aus einem Gasreservoir, das nur durch eine kleine Öffnung mit einem umgebenden Vakuum verbunden ist. Je nach Geometrie der Öffnung und der mittleren freien Weglänge  $\lambda$  der Teilchen kann das Gas auf verschiedene Arten austreten. Die dimensionslose Knudsen-Zahl  $k_n = \frac{\lambda}{I}$  mit der charakteristischen Länge l (hier der Durchmesser der Offnung) ist als Kennzahl für die Art der auftretenden Strömung geeignet. Bei großen  $k_n$ , d.h.  $\lambda \gg l$ , entsteht ein effusiver Teilchenstrahl. Die Stöße unter den Teilchen sind vernachlässigbar selten, so dass diese in der Anzahl, Geschwindigkeit und Winkelverteilung austreten, wie sie statistisch auf die Außenwand auf eine Fläche mit der Größe der Öffnung treffen würden. Dabei muss letztere zusätzlich klein genug sein, um das thermische Gleichgewicht des Reservoirs nicht zu stören. Wenn die Knudsen-Zahl unter 2 liegt, können Kollisionen der Teilchen nicht mehr vernachlässigt werden. Bei noch niedrigeren  $k_n$  überwiegen fluiddynamische Effekte, so dass eine quantitative theoretische Betrachtung nicht mehr möglich ist [90]. Im Bereich zwischen diesen Regimen bildet sich statt eines begrenzten Strahles eine Teilchenwolke an der Öffnung aus.

In den folgenden Abschnitten wird zunächst die Winkelverteilung des angestrebten effusiven Strahles beschrieben und darauf basierend wird anschließend eine Möglichkeit vorgestellt, durch die Vermessung einer auf einem Substrat abgeschiedenen Schicht die Abstrahlcharakteristik experimentell zu bestimmen.

#### 2.6.1 Effusion

Die Teilchendichte in einem Gasreservoir kann für ein einatomiges Gas mit der allgemeinen Gasgleichung

$$n_0 = \frac{N}{V} = \frac{p}{k_b T}$$
(2.72)

berechnet werden. Dabei handelt es bei N um die Teilchenzahl, V das Volumen des Reservoirs, p um den Druck,  $k_B$  um die Boltzmannkonstante und bei T um die Temperatur. Wenn das Gas im Reservoir durch das Erhitzen eines Feststoffes erzeugt wird, dann sind Druck und Temperatur zusätzlich durch den spezifischen Dampfdruck voneinander abhängig. Unter Einbezug des geometrischen Wirkungsquerschnittes  $\pi d^2$  mit dem Teilchendurchmesser d kann die mittlere freie Weglänge  $\lambda$  folgendermaßen berechnet werden [20]:

$$\lambda = \frac{1}{n_0 \sqrt{2} \pi d^2}.$$
 (2.73)

Damit kann die Voraussetzung für eine große Knudsen-Zahl überprüft werden.

G. Scoles bestimmt die Anzahl der Teilchen dN, die ein Flächenelement der Öffnung  $d\sigma$ in der Zeit dt mit einer Geschwindigkeit zwischen v und v + dv in einem Winkelelement  $d\omega$ , dessen Achse im Winkel  $\theta$  bezüglich der Normalen der Öffnung liegt, verlassen, mit der folgenden Gleichung [90]:

$$dN = n_0 f(v) \frac{d\omega}{4\pi} v \cos(\theta) \, d\sigma \, dt \, dv.$$
(2.74)

f(v) steht für die Maxwellsche-Geschwindigkeitsverteilung. Mit einer normierten Geschwindigkeit  $v_n = v/v_w$ , wobei es sich bei  $v_w = \sqrt{2 k_B T/m}$  um die wahrscheinlichste Geschwindigkeit im Gas handelt, ergibt sich

$$f(v_n)dv_n = \frac{4}{\sqrt{\pi}}v_n^2 \exp(-v_n^2) \, dv_n.$$
(2.75)

Durch Einsetzen in 2.74 folgt:

$$\frac{dN}{dt}(\theta, v_n) = I(\theta, v_n) \, d\omega = \frac{n_0}{\pi^{\frac{2}{3}}} v_w \, v_n^3 \exp(-v_n^2) \cos(\theta) \, d\sigma dv_n d\omega, \qquad (2.76)$$

wobei zu beachten ist, dass aufgrund der vorigen Substitution gilt  $dv = v_w dv_n$ . Weiterhin wird 2.76 in [90] über alle Geschwindigkeiten integriert und die mittlere Geschwindigkeit  $\overline{v} = 2 v_w / \sqrt{\pi}$  von f(v) eingesetzt, so dass sich

$$I(\theta) \, d\omega = \frac{n_0}{4\pi} \,\overline{v} \, d\sigma \cos(\theta) \, d\omega \tag{2.77}$$

ergibt. Durch einsetzen von  $d\omega = \sin(\theta) d\theta d\phi$  kann 2.77 über die Winkel  $\theta$  und  $\phi$  integriert werden mit dem Ergebnis

$$I_{ges} = \frac{n_0 \,\overline{v}}{4} \, d\sigma \tag{2.78}$$

als Gesamtzahl der abgestrahlten Teilchen pro Flächenelement  $d\sigma$ . In Abständen, die deutlich größer sind als die Öffnung, kann nach [90] das Flächenelement durch die Gesamtfläche der Öffnung  $\sigma$  ersetzt werden.

Bis jetzt wurde eine ideale Öffnung in einer vernachlässigbar dünnen Außenwand betrachtet. In dieser Arbeit liegt aber ein Reservoir mit einer Wandstärke vor, die dreimal größer ist als der Öffnungsdurchmesser. Dafür kann die Theorie für den Fluss durch einen zylindrischen Kanal erweitert werden. Unter der Annahme, dass die an den Wänden reflektierten Teilchen eine Kosinusverteilung aufweisen, werden in [90] die Gleichungen aus [22] für die Gesamtzahl der austretenden Teilchen  $I_k$  und für für die Winkelverteilung  $I_k(\theta)$  zusammengefasst. Mit einer Transmissionswahrscheinlichkeit W durch den Kanal ergibt sich zunächst aus 2.78 der Ausdruck

$$I_k = W I_{ges} = W \frac{n_0 \overline{v}}{4} \, d\sigma, \qquad (2.79)$$

dabei ist

$$W = 1 + \frac{2}{3}(1 - 2\alpha)(\beta - \sqrt{1 - \beta^2} + \frac{2}{3}(1 + \alpha)\beta^{-2}(1 - \sqrt{1 + \beta^2})$$
(2.80)

und es gelten

$$\alpha = \frac{1}{2} - \frac{1}{3\beta^2} \left( \frac{1 - 2\beta^3 + (2\beta^2 - 1)\sqrt{1 + \beta^2}}{\sqrt{1 + \beta^2} - \beta^2 \operatorname{arcsinh}(1/\beta)} \right) \quad \text{und} \quad \beta = \frac{l}{L}$$
(2.81)

mit l als Öffnungsdurchmesser und L als Kanallänge. Für  $\beta \to \infty$  wird W = 1 und es ergibt sich wieder Formel 2.78. Nach der Herleitung von P. Clausing werden für die Berechnung der Winkelverteilung die Fälle unterschieden, bei denen die Teilchen von der Kanalwand reflektiert  $(\frac{\tan(\theta)}{\beta} \ge 1)$  werden und bei denen sie ohne Kontakt passieren  $(\frac{\tan(\theta)}{\beta} \le 1)$  [21]. Für die Winkelverteilung kann die Formel

$$I_k(\theta) = \frac{I_{ges}}{\pi} j(\theta) \tag{2.82}$$

aufgestellt werden. Mit der Substitution  $q = \frac{\tan(\theta)}{\beta}$  ist  $j(\theta)$  für  $q \leq 1$ 

$$j(\theta) = \cos(\theta) \left[ \alpha + \frac{\pi}{2} \left( (1 - \alpha)(\cos^{-1}(q) - q\sqrt{1 - q^2}) + \frac{2}{3q}(1 - 2\alpha)(1 - (1 - q^2)^{\frac{3}{2}}) \right) \right]$$

und für  $q \ge 1$ 

$$j(\theta) = \cos(\theta) \left( \alpha + \frac{4}{3\pi q} (1 - 2\alpha) \right).$$
(2.83)

In Abbildung 2.16 ist  $j(\theta)$  für verschiedene  $\beta$  dargestellt. Je länger der Kanal ist desto gerichteter wird der Strahl. Im Grenzfall eines sehr kurzen Kanals geht die Winkelverteilung in den oben erläuterten Grenzfall mit  $j(\theta) = \cos(\theta)$  über.

Für die experimentelle Bestimmung der Teilchendichte im Strahl kann ein planes Sub-



**Abbildung 2.16:** Winkelverteilungen effusiver Teilchenstrahlen durch zylindrische Kanäle mit den Verhältnissen der Öffnungsdurchmesser zur Kanallänge  $\beta = \frac{l}{L}$  zwischen 0,01 und  $\infty$  nach Formel 2.83. Für  $\beta \gg 1$  wird  $j(\theta) = \cos(\theta)$ .

strat in einem bestimmten Abstand für eine bestimmte Zeit bedampft werden. Für die folgende Herleitung wurden einige Ansätze aus [24] übernommen. Unter der Annahme, dass die Teilchen aus der Öffnung geradlinig zum Substrat propagieren und alle dort anhaften, wo sie auftreffen, kann durch eine Messung der aufgedampften Schichtdicke auf die Menge der pro Zeiteinheit austretenden Teilchen und ihre Winkelverteilung geschlossen werden. Zunächst werden in Formel 2.78 für  $n_0 = \frac{p}{k_B T}$  und für  $\overline{v} = \sqrt{\frac{8 k_B T}{\pi m}}$ eingesetzt und mit der Teilchenmasse m multipliziert, so dass die gesamte Masse, die pro Zeiteinheit aus einem Flächenelement der Öffnung strömt, durch die Formel

$$M = p \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T}} d\sigma \tag{2.84}$$

gegeben ist. Formel 2.79 entsprechend kann der Transmissionswahrscheinlichkeit durch eine zylindrische Röhre durch den Faktor W aus Formel 2.80 Rechnung getragen werden.



**Abbildung 2.17:** Skizze zu den geometrischen Überlegungen für die Bestimmung der aufgedampften Schichtdicke auf einem planen Substrat im Abstand hzur Öffnung der Gaszelle. Das Flächenelement dA wird auf die Ebene des Substrates projiziert.

Für den Massenausstoß pro Winkelelement ergibt sich dann

$$M(\theta) = M \frac{1}{\pi} j(\theta) d.$$
(2.85)

Per Definition kann das Flächenelement  $d\omega$  durch die Relation  $dA = r^2 d\omega$  berechnet werden. Dabei bezeichnet r den Abstand im Winkel  $\theta$  zur Öffung, wie in Abbildung 2.17 skizziert ist. Ein Flächenelement auf dem Substrat ergibt sich durch die Projektion auf die Ebene im Winkel  $\alpha$ 

$$dA = \frac{r^2 \, d\omega}{\cos(\alpha)}.\tag{2.86}$$

Für ein Substrat, dass parallel zur Öffnung ausgerichtet ist gilt  $\alpha = \theta$ . Außerdem kann  $\cos(\theta)$  durch den Quotienten  $\frac{h}{r}$  aus dem Abstand zum Substrat h und dem Abstand zum Flächenelement r ausgedrückt werden, so dass aus 2.85 und 2.86 für die Schichtdicke eines Flächenelementes pro Zeiteinheit folgt:

$$D(h,r) = \frac{M j(\theta) h}{2\pi r^3 \rho},$$
(2.87)

dabei ist  $\rho$  die Dichte des aufgedampften Materials als Feststoff. In Abhängigkeit vom Abstand x zur Mittelachse kann Formel 2.86 umgeschrieben werden zu

$$D(h,x) = \frac{M \, j(\tan^{-1}(\frac{x}{h})) \, h}{2\pi \, (h^2 + x^2)^{\frac{3}{2}} \, \rho}.$$
(2.88)

Für den Spezialfall  $j(\theta) = \cos(\theta)$  gilt dann

$$D(h,x) = \frac{M h^2}{2\pi (h^2 + x^2)^2 \rho}.$$
(2.89)

Wenn h größer ist als die Öffnung, dann kann in M auch hier  $d\sigma$  mit der Gesamtfläche der Öffnung  $\sigma$  ersetzt werden.

# Kapitel 3

# Experimenteller Aufbau

Für den Betrieb einer THz-Streak-Kamera durchlaufen die benötigten Laserpulse eine ganze Reihe von Stationen, in denen ihre zeitlichen und spektralen Eigenschaften durch nichtlineare Effekte beeinflusst werden. Ein Übersichtsschema der Stationen ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Ein kommerzielles Lasersystem liefert ultrakurze Pulse mit 3 mJ mittlerer Leistung bei 1 kHz Repetitionsrate. Mit einem Strahlteiler werden etwa  $\frac{2}{3}$  der Leistung reflektiert und  $\frac{1}{3}$  transmittiert. Die Pulse des größeren Anteils werden zunächst mit einem Hohlfaserkompressor verkürzt und dann für die Erzeugung hoher Harmonischer verwendet. Die Harmonischen können anschließend entweder mit einem Gitterspektrometer qualitativ charakterisiert oder in die Experimentierkammer geleitet und fokussiert werden. Der transmittierte Teil der anfänglichen Laserstrahlung propa-



Abbildung 3.1: Übersicht der Stationen, welche die Laserpulse im Experiment durchlaufen

giert durch eine etwa 12 m lange Verzögerungsstrecke, um die zeitliche Überlagerung mit den Harmonischenpulsen im Zielbereich des Experiments zu ermöglichen. Nach der Verzögerung folgt eine Quelle zu Erzeugung von THz-Pulsen, die anschließend ebenfalls in die Experimentierkammer transportiert, fokussiert und mit den Harmonischen räumlich und zeitlich überlagert werden. In der Experimentierkammer gibt es unterschiedliche Messkonfigurationen für EOS der THz-Pulse und für das THz-Streaking von Elektronen. Dafür kann entweder der fundamentale IR-Strahl, die Harmonischen oder beide durch die Strahlführung geleitet werden. Das Zielgas für das Streaking kann optional aus einer Kapillare oder aus einem speziell entwickelten Ofen bereitgestellt werden. Es folgt eine detaillierte Beschreibung der einzelnen Stationen.

### 3.1 Lasersystem

Der Ausgangspunkt aller verwendeten Laserpulse ist ein kommerzielles System der Firma Amplitude Technologies. Es basiert auf dem Prinzip der Chirped Pulse Amplification, das heißt ein Puls wird zunächst mit einem linearen Chirp versehen, um dann verstärkt und abschließend wieder komprimiert zu werden. Der Oszillator, in dem die initialen Pulse erzeugt wird, enthält als Lasermedium einen diodengepumpten Titan-Saphir-Kristall. Durch Kerr-Lensing wird eine Modenkopplung erzwungen, so dass mit einer Repetitionsrate von 75 MHz Pulse mit bis zu 100 nm Bandbreite und 4,9 nJ Energie bereitgestellt werden. Den Pulsen wird mit Hilfe von Reflexionsgittern ein linearer Chirp zugeführt, um sie drei bis vier Größenordnungen zu verlängern. So ist es möglich, dem Puls große Mengen Energie zuzuführen und dabei erheblich weniger durch Zerstörschwellen und auftretende Nichtlinearitäten begrenzt zu werden. Von den Oszillatorpulsen werden 1000 pro Sekunde selektiert und in zwei Stufen verstärkt. Bei der ersten handelt es sich um einen regenerativen Verstärker. Die Pulse werden in eine Kavität eingekoppelt, in der sie einige Male durch einen Titan-Saphir-Kristall propagieren. Nach Erreichen der maximalen Verstärkung wird jeder vierzigste Puls in einen anderen Zweig des Lasersystems ausgekoppelt. Die verbleibenden 975 Pulse pro Sekunde werden in der zweiten Stufe in einem Multipass-Verstärker mit 5 Umläufen durch einen weiteren Titan-Saphir-Kristall verstärkt. Abschließend wird der vorher eingeführte lineare Chirp mit einem Gitterkompressor kompensiert. Die Laserpulse sind dann bei einer spektralen Breite von 30 nm (FWHM) und einer zentralen Wellenlänge von 800 nm etwa 35 fs lang, enthalten etwa 3 mJ Energie und sind bezüglich der optischen Tische parallel polarisiert. Die Strahlradien am Augang des Lasersystems in horizontaler und vertikaler Richtung sind  $w_x = 5,6 \text{ mm}$  und  $w_y = 6,5 \text{ mm}$ . Die halben Divergenzwinkel sind  $\theta_x = 0,27 \text{ mrad}$  und  $\theta_u = 0.44 \,\mathrm{mrad}.$ 

# 3.2 Hohlfaserkompressor

Der Aufbau zur Hohlfaserkompression wurde im Rahmen meiner Diplomarbeit im Jahre 2012 entworfen und getestet. Die Implementierung in Verbindung mit der Hohe-Harmonischenquelle erfolgte im Kontext dieser Doktorarbeit. Damit eine möglichst große Wirkung durch Selbstphasenmodulation und gleichzeitig möglichst wenig Einfluss durch parasitäre Effekte (Self-Steepening, Selbstfokussierung, Ionisation) erzielt wird, wurde auf Konzepte von Vozzi et al. und Granados et al. zurückgegriffen [99, 36]. Mit ihnen konnten sinnvolle Dimensionen für die Hohlfaser und Fokusgröße, sowie das Füllgas in Anbracht der gegebenen Laserpulse bestimmt werden.

Die Pulse aus dem Amplitude System werden zunächst mit einem Strahlteiler aufgespalten. 72% werden reflektiert und 28% transmittiert. Nach etwa drei Metern Propagation des reflektierten Strahlteils über mehrere Umlenkspiegel wird mit einer plan-konvexen Linse (f $\approx 3$  m) fokussiert. Um wenig Dispersion und nichtlineare Einflüsse zu akkumulieren, wurde eine möglichst dünne Linse mit 2 mm Dicke im Zentrum gewählt. Der Laserstrahl ist leicht divergent, daher befindet sich der Fokus 20 cm hinter der nominellen Brennweite.

In die Strahlführung vor der Einkopplung in die Hohlfaser ist eine Strahllagestabilisierung der Firma TEM eingegliedert. Zwei der Umlenkspiegel sind zu diesem Zweck jeweils mit zweiachsigen Piezoaktuatoren ausgestattet. Weiterhin wird der geringe transmittierte Anteil der Laserpulse eines anderen Umlenkspiegels für die genaue Bestimmung von Position und Winkel des Strahles mit Hilfe von PSDs (Position Sensitive Device) genutzt. Die Ansteuerung und Kalibrierung erfolgt über spezielle Soft- und Hardware Für die Fokusgröße wurde ein Wert von  $w_0 = (85 \pm 22) \,\mu m$  berechnet, welcher sich an der unteren Grenze für eine gute Einkopplung in die gewählte Hohlfaser befindet (siehe Abbildung 2.5). Letztere stammt von der Firma LEONI Fiber Optics und hat eine Länge von etwa einem Meter sowie einen Innenradius von 175  $\mu$ m bei einem Außenradius von  $800 \,\mu\text{m}$ . Die Füllung der Hohlfaser mit Gas erfolgt durch die Platzierung in einem Vakuumrohr, in dem eine Neonatmosphäre erzeugt wird. Das Rohr ist ein speziell gefertigtes KF40 T-Stück aus Stahl von 1,1 m Länge. Die Hohlfaser liegt in einer Nut, die in einen Aluminiumbarren gefräst wurde. In Abbildung 3.2 wird der vordere Teil dieser Konstruktion als Skizze dargestellt. Der senkrechte Fortsatz des Rohres ist mit einem Sichtfenster versehen, um die Einkopplung in die Faser zu beurteilen. Damit sie in den Strahlweg des Lasers justiert werden kann, ist das Rohr vorne und hinten über spezielle Halterungen mit Lineartischen verbunden. Es handelt sich um je zwei Lineartische, mit denen die Rohrenden in der senkrechten Ebene zur Faser um  $\pm 15 \,\mathrm{mm}$  bewegt werden können. Die Halterungen sind so entworfen, dass das Rohr von oben abgelegt werden kann. Gleichzeitig sind die Auflageflächen möglichst klein, um ein Verkanten beim Verfahren der Lineartische zu vermeiden.



Abbildung 3.2: Vordere Seite der Konstruktion zur Lagerung und Justage der Hohlfaser. Die Faser liegt in einer V-förmigen geraden Nut auf einem langen Aluminiumbarren. Dieser liegt in einem Vakuumrohr, das mit dem Edelgas Neon gefüllt wird.

Als Ein- und Auskoppelfenster wurden 0,2 mm dicke Borsilikatgläser im Brewster-Winkel mit Silikon auf für diesen Zweck hergestellte Rohrfortsätze geklebt. Der Brewster-Winkel in der Polarisationsebene sorgt für fast vollständige Transmission des Lasers. Der Winkel wurde nach dem Snelliusschen Brechungsgesetz berechnet und für 600 bis 900 nm Wellenlänge gemittelt. Daraus ergab sich ein Winkel von  $56,5^{\circ}$ . Die Fenster sind dünn, um wenig nichtlineare Effekte im Glas zu akkumulieren. Dies ist neben einer potentiellen Beschädigung auch der Grund dafür, dass die Fenster nicht zu nah am Ein- bzw. Ausgang der Faser platziert sind. Der Abstand von der Faser zu den Fenstern ist mit etwa einem Meter so groß, dass die Intensität die Größenordnung von  $10^{11} \,\mathrm{W/cm^2}$  nicht übersteigt. Nach dem Verlassen der Gasatmosphäre gilt es die spektral verbreiterten und gechirpten Pulse zu komprimieren. Abbildung 3.3 zeigt diesen Teil des optischen Aufbaus. Nach etwa 40 cm Propagation an Luft wird der Strahl durch ein weiteres Brewster-Fenster in die Vakuumkammer der Harmonischenquelle geleitet. Es folgen Reflexionen an drei gechirpten Spiegeln, die jeweils etwa -120 fs<sup>2</sup> Gruppenverzögerungsdispersion (GDD) erzeugen. Für eine akkurate Chirpkompensation wird etwas zuviel negative GDD appliziert, um sie dann zusätzlich mit zwei dünnen Glaskeilen auszugleichen. Die Keile bestehen aus Quarzglas, sind 30x20 mm groß, 0,2 bis 1,25 mm dick und der Keilwinkel beträgt 2°. Zur Vermeidung von Verlusten und Reflexionen sind sie außerdem beidseitig mit einer breitbandigen Transmissionsbeschichtung versehen.

# 3.3 Hohe-Harmonischenquelle

Die folgend vorgestellte Harmonischenquelle diente schon als Lieferant von XUV-Pulsen für zwei abgeschlossene Doktorarbeiten [50, 87]. Durch das Einfügen der Hohlfaser in den Gesamtaufbau änderten sich jedoch die Lasereigenschaften so stark, dass fast alle Optiken ausgetauscht werden mussten und das Einrichten einer neuen Strahlführung notwendig wurde. Durch die spektrale Verbreiterung der Pulse ergeben sich höhere Ansprüche an die verwendeten Optiken. Typische dielektrische Multilagenspiegel für Titan-Saphir-Laser reflektieren Bandbreiten von deutlich unter 100 nm. Je größer die Bandbreite der Pulse desto größer ist außerdem die Auswirkung der GDD einer Optik, gleichzeitig ist es jedoch schwerer eine geringe GDD mit der entsprechenden Bandbreite zu vereinbaren. Silberspiegel weisen beide Eigenschaften auf, aber leider auch Verluste von mehreren Prozent. Wenn möglich wurden spezielle Silberspiegel der Firma LAYERTEC mit zusätzlichen dielektrischen Multilagen verwendetet, die bei ausreichender Bandbreite eine Reflexion mit unter einem Prozent Verlusten und geringer GDD gewährleisten. In Abbildung 3.3 ist eine schematische Übersicht der Harmonischenquelle und des dazu gehörigen Spektrometers dargestellt. Die erste optomechanische Komponente des Aufbaus ist eine Irisblende, die sich außerhalb der Vakuumkammer befindet. Mit dieser lässt sich das Streulicht, welches durch den Hohlfasermantel zusätzlich zur gewünschten Mode propagiert, ablocken. Wichtiger ist aber die Möglichkeit durch die Verkleinerung des Laserstrahldurchmessers die Intensität im später erzeugten Fokus beeinflussen zu können. Dies geschieht zum einen durch das direkte Abblocken der Randbereiche des Strahlprofiles und zum anderen durch die Vergrößerung der Strahltaille als Folge der Fokussierung eines verkleinerten Strahlprofiles. Diese Intensitätsabschwächung dient der Optimierung des Harmonischenertrages durch Phasenanpassung (siehe Abschnitt 2.3.2). Nach der Blende folgen die bereits in Abschnitt 3.2 beschriebenen Kompensationskeile und die in der Vakuumkammer befindlichen gechirpten Spiegel. Da der Strahl die Hohlfaser etwa mit der Divergenz verlässt, die er aufgrund der Fokussierung vor der Hohlfaser aufweist, wird mit einem konkaven sphärischen Spiegel mit 3 m Brennweite kollimiert. Die Spiegelhalter des Kollimierspiegels und des folgenden Umlenkspiegels können durch Piezomotoren horizontal und vertikal verkippt werden. Dadurch können Position und Winkel des Strahles im Vakuum verändert werden. Der nächste Spiegel hat eine Silberbeschichtung mit einer Transmission von etwa 1%. Der reflektierte Anteil wird mit einem konkaven sphärischen Spiegel mit 1,5 m Brennweite fokussiert. Nach ungefähr 0,7 m folgt eine Reflexion an einem planen Spiegel in möglichst kleinem Einfallswinkel. Dieser Spiegel ist auf einem motorisierten Lineartisch montiert, so dass die Propagationsstrecke um 10 mm verkürzt oder verlängert werden kann. Die Folge ist eine Verschiebung der Strahltaille im Bezug auf die Position der folgenden Gaszelle zum Zwecke der Phasenanpassung.



**Abbildung 3.3:** Schematischer Aufbau der Hohe-Harmonischenquelle und des Harmonischen-Spektrometers. Die grau-blauen Bereiche kennzeichnen die Vakuumkammern.

Das Gasvolumen (Target), in dem die Harmonischen erzeugt werden, wird mit einem 3 mm dicken und etwa 30 mm langen Edelstahlröhrchen mit geringer Wandstärke bereitgestellt. Der fokussierte Laser hat genügend Intensität, um ein Eintritts- und ein Austrittsloch in das Röhrchen zu brennen. So entstehen die kleinsten möglichen Öffnungen. Das Röhrchen befindet sich im Zentrum einer separaten kleineren Vakuumkammer, welche der Laserstrahl durch auf der Vor- und Rückseite montierte dünne Aluminiumfolie passiert, durch die er sich ebenfalls durchbrennt. Je nach Größe der Löcher im Targetröhrchen können in Anbetracht der Gaslast, die von der Vakuumpumpe abtransportiert werden kann, bis zu 200 mbar Druck im Röhrchen aufgebaut werden.

Zur Überwachung der Fokusposition wird mit der Transmission des oben erwähnten teildurchlässigen Silberspiegels eine Kopie des Fokus mit einer Linse der Brennweite 750 mm erzeugt und mit einer CCD-Kamera detektiert.

Die im Target erzeugten Harmonischen propagieren kollinear mit dem initialen infraroten Laserstrahl weiter. Nur ein Bruchteil der Energie des Lasers wird in Harmonische umgewandelt, deshalb können mehrere Metallfilter im Strahlweg positioniert werden, um die Fundamentale herauszufiltern. In Abbildung 3.4 sind die Transmissionseigenschaften der verwendeten Aluminium- und Zirkoniumfilter dargestellt.

Für die qualitative Charakterisierung der Harmonischen steht ein Gitterspektrometer



**Abbildung 3.4:** Transmission der verwendeten Filter aus Aluminium und Zirkonium (Werte aus [43]).

zur Verfügung, dass im Rahmen einer Diplomarbeit implementiert wurde [64]. Diese Art Spektrometer nutzt aus, dass der Ausfallswinkel der Beugung an einem Reflexionsgitter abhängig von der Wellenlänge ist. Durch die Detektion des aufgefächerten Lichtes können die einzelnen spektralen Komponenten zugeordnet werden. Für eine optimierte Effizienz in der ersten Beugungsordnung wird dazu in diesem Aufbau ein Blazegitter mit 600 Linien pro Millimeter und einem Blazewinkel von 2° mit einem Lineartisch in den Strahl gefahren. Durch eine senkrechte Schlitzapertur vor dem Gitter wird das Strahlprofil verkleinert, so dass eine räumliche Aufspaltung der Harmonischen bis über die 65. Ordnung in einem Abstand von etwa 300 mm Entfernung vom Gitter gegeben ist. An dieser Position befindet sich der Detektor bestehend aus einer Multi-Channel-Plate (MCP) und einem Phosphorleuchtschirm mit 25 mm aktiver Fläche. Der Leuchtschirm wird über einen Spiegel mit einem Objektiv auf eine CCD-Kamera abgebildet. Für den Betrieb des Experiments werden die Schlitzapertur und das Blazegitter aus dem Strahlweg gefahren.

Beim Transport in Richtung des Experiments trifft der Strahl mit einem Einfallswinkel von 5° auf einen speziellen Multilagenspiegel aus Molybdän und Silizium (Mo/Si). Durch abwechselnde Schichten bestimmter Dicken in definiertem Verhältnis zueinander können gute Reflektivitäten im spektralen Bereich des XUV erzielt werden. Die reflektierte Bandbreite kann dabei so gewählt werden, dass eine bestimmte Harmonische selektiert wird. Der hier eingesetzte Spiegel weist zusätzlich noch einen linearen Gradienten der Schichtdicken in vertikaler Richtung auf. Durch eine Änderung der Spiegelhöhe relativ zum einfallenden Strahl kann der reflektierte spektrale Bereich von etwa 1,8 eV Breite (FWHM) zwischen 85,5 und 98 eV eingestellt werden. Ein weiterer Mo/Si-Spiegel ist



**Abbildung 3.5:** Reflektivitäten des Fokussierspiegels und des Gradientenspiegels in zentraler Position. Dazu die Multiplikation von beiden als gemeinsame Gesamtreflektivität und die Gesamtreflektivitäten aller möglichen vertikalen Positionen (85,5 bis 98 eV) auf dem Gradientenspiegel zusammengefasst (reflektiver Bereich)

gleichzeitig der Fokussierspiegel mit 0,5 m Fokallänge im Streaking-Experiment. Dieser hat eine größere Bandbreite von etwa 6 eV (FWHM) mit einem Maximum bei 91 eV. In Abbildung 3.5 sind die Reflektivitäten für den Fokussierspiegel und den Gradientenspiegel in zentraler Position zu sehen. Zusätzlich wird durch die Multiplikation beider Bandbreiten die gemeinsame Reflektivität dargestellt. Der gezeigte reflektive Bereich fasst die gemeinsamen Reflektivitäten des Fokussierspiegels und aller möglichen Positionen des Gradientenspiegels zusammen. Beide Spiegel übetragen etwa 50% der eingehenden Leistung, daher ergibt sich zusammen eine Reflektivität von 25%, sofern sich die spektralen Bereiche zentral überlagern. In den Randbereichen der Bandbreite des Fokussierspiegels nimmt auch die gesamte Reflektivität drastisch ab.

Zwischen den Mo/Si-Spiegeln befindet sich noch ein Molybdänspiegel, der im streifenden Einfall von 8,5° (Glanzwinkel) über den ganzen reflektiven Bereich der anderen Spiegel ca. 8% Verluste hinzufügt.

## 3.4 THz-Quelle

In der Einleitung des Kapitels und in Abschnitt 3.2 wurde bereits die Aufspaltung des Lasers mit dem 70/30-Strahlteiler erläutert. Der transmittierte Anteil steht für die THz-Erzeugung zur Verfügung, durchläuft aber zunächst eine Verzögerungsstrecke von etwa 12 m. Dazu wird der Strahl mehrere Male mit geringem Einfallswinkel im Abstand von ungefähr zwei Metern hin und her reflektiert. Für den Strahltransport bis zum THz-Aufbau werden insgesamt 16 Spiegel für 45° und normalen Einfallwinkel verwendet. Zur Vermeidung von Luftfluktuationen, die zu Störungen der Strahlpropagation führen könnten, wurden weite Teile der Strahlführung eingehaust. Eine Skizze der THz-Quelle ist in Abbildung 3.6 dargestellt.

Zuerst wird das Strahlprofil ( $w_x = 9,5 \text{ mm}, w_y = 12,6 \text{ mm}$ ) mit einem Teleskop, bestehend aus einer plan-konvexen (f = 1 m) und einer plan-konkaven Linse (f = -0,2 m), um den Faktor 5 verkleinert. Es folgt eine Delayeinheit, mit der die Ankunftszeit der THz-Pulse beim Streaking oder EOS relativ zu den XUV- bzw. IR-Pulsen durchgestimmt werden kann. Die Einheit besteht aus zwei rechtwinklig zueinander ausgerichteten Spiegeln auf einem Lineartisch. Bei der folgenden Optik handelt es sich um ein Blazegitter mit 2000 Linien/mm, auf welches der Strahl 9,5° abweichend von der Littrow-Anordnung trifft. So erhalten die Pulse die Neigung bezüglich der Propagationsrichtung für eine möglichst gute Phasenanpassung im LiNbO<sub>3</sub>-Kristall (siehe Abschnitt 2.4.2).



Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der THz-Quelle

Um die Justage des Strahles parasitär überprüfen zu können, wird die nullte Beugungsordnung des Gitters verwendet. Über einen Spiegel wird ein Großteil des Strahles auf einen Schirm gelenkt und damit die Strahlposition kontrolliert. Ein durch den Spiegel transmittierter Teilstrahl wird auf eine CCD-Kamera fokussiert und macht so Winkelabweichungen sichtbar.

Die erste Beugungsordnung gelangt über einen Achromaten von 75 mm Brennweite und eine  $\lambda/2$ -Platte den LiNbO<sub>3</sub>-Kristall. Mit dem Achromaten wird dabei das Gitter auf den Kristall abgebildet und mit der  $\lambda/2$ -Platte die Polarisation des Lasers von der horizontalen in die vertikale übertragen. Durch die Abbildung wird der Strahl noch einmal um den Faktor zwei zu Strahlradien von  $w_x \approx 1 \,\mathrm{mm}$  und  $w_y \approx 1.3 \,\mathrm{mm}$  verkleinert. Durch Verluste beim Strahltransport erreichen 550 mW mittlere Leistung den Kristall. Mit einer abgeschätzten Pulslänge von 40 fs ergibt sich so eine maximale Intensität von 0.65 TW/cm<sup>2</sup>. Für eine möglichst verlustfreie Propagation des Lasers in den Kristall ist die Eintrittsfläche beschichtet. Der Winkel zwischen der Ein- und Austrittsfläche beträgt 63°, so dass die THz-Strahlung senkrecht austreten kann. Für die Optimierung der Konversionseffizienz ist die THz-Quelle mit vielen Freiheitsgraden ausgestattet. Insbesondere der Kristall kann durch Optomechanik gekippt, gedreht und in der horizontalen Ebene verschoben werden. Die Führung der THz-Strahlung erfolgt durch Kupferspiegel mit 5 cm Durchmesser. Aufgrund der großen Divergenz, mit welcher der THz-Strahl den Kristall verlässt, folgt nach kurzer Propagationstrecke eine plankonvexe Teflonlinse mit etwa 100 mm Brennweite. Anstatt einer Kollimation wurde hier jedoch eine Abbildung der THz-Quelle auf halber Strecke zur Interaktionszone im Experiment angestrebt, um Verluste durch Abschneiden des Strahlprofiles zu vermeiden.

Für die Messung der Energie der erzeugten THz-Pulse wurde ein pyroelektrischer Detektor mit einer Größe von 2x2 mm verwendet. Anhand einer Vergleichsmessung mit der durch Streaking ermittelten Feldstärke wurde der Detektor kalibriert. Demnach entspricht eine Amplitude von 1 V einer Pulsenergie von  $1,4 \mu$ J. Um die transversale Änderung bei der Propagation zu vermessen, ist es notwendig Strahlprofile aufnehmen zu können. Dafür können prinzipiell Kameras mit pyroelektrischen Arrays erworben werden, jedoch konnte mit einem geliehenen Modell festgestellt werden, dass die Empfindlichkeit im Nahfeld für die vorherrschenden Pulsenergien nicht ausreichte. Alternativ wurde eine Konstruktion verwendet, mit welcher der vorhandene Pyrodetektor automatisiert ein Raster in einem definierten transversalen Fenster abfährt. Die Messzeit hängt von der Menge der Messpunkte und der jeweiligen Belichtungsdauer ab und belief sich auf Zeitspannen zwischen 10 und 30 Minuten pro Bild. Es ergeben sich so zweidimensionale Bilder des Strahlprofiles. Wenn das gemessene Profil nicht deutlich größer ist als der Detektor (2x2 mm), muss eine Entfaltung der Messung mit einer Rechteckfunktion mit den Dimensionen des Detektors in Betracht gezogen werden.

#### 3.5 Streak-Kamera

Für die THz-Streak-Kamera müssen vier Hauptkomponenten zusammengebracht werden. Zunächst muss ein dichtes Gasvolumen mit einer Kapillare oder einem Ofen hergestellt werden. In diesem Gas müssen die Foki der THz- und der XUV-Pulse räumlich und zeitlich überlagert werden. Zusätzlich muss ein Flugzeitspektrometer (TOF) für Elektronen auf die Interaktionszone ausgerichtet werden. Wie in Abbildung 3.7 schematisch dargestellt, wurde dies in einer separaten Vakuumkammer realisiert. Der XUV-Strahl läuft zunächst unter dem Ofen bzw. der Kapillare entlang auf den Fokussierspiegel mit 500 mm Brennweite, der in Abschnitt 3.3 schon beschrieben wurde. Durch den Spiegel wird der XUV-Strahl um 8° nach oben hin abgelenkt und der Fokus 0,5 bis 1 mm über der Ofenspitze positioniert. Der THz-Strahl gelangt durch ein Polymerfenster von 3 mm Dicke und 40 mm freier Apertur mit einer Transmission von 90% in die Vakuumkammer. Es folgen zwei Kupferspiegel in einer Periskopanordnung, mit denen der Strahl um einige Zentimeter nach oben und im rechten Winkel umgelenkt wird. Dadurch wird der bis dahin vertikal polarisierte THz-Strahl an die horizontale Polarisationsrichtung des XUV-Strahles angepasst. Mit einem Parabolspiegel von 100 mm Brennweite wird der THz-Strahl bei einer gleichzeitigen 90° Umlenkung in das Gas fokussiert. Der Parabol-



Abbildung 3.7: Schematische Darstellung der THz-Streak-Kamera. Der XUV- und er THz-Strahl werden kollinear auf eine Position unmittelbar über der Austrittsöffnung der Gasquelle fokussiert. Die kinetischen Energien, der emittierten und danach gestreakten Elektronen, werden mit dem TOF-Spektrometer senkrecht zu Strahlrichtung gemessen.

spiegel ist mittig mit einem Loch von 2 mm Durchmesser versehen, so dass der THzund der XUV-Strahl kollinear propagieren und in den Foki überlagert werden können. Beide Fokussierspiegel sind motorisiert, um sie im Vakuum optimal bezüglich des Ofens bzw. der Kapillare und des TOF-Spektrometers zu positionieren. Durch mehrere Lineartische kann die Lage der Gasquelle optimiert und zusätzlich zwischen Kapillare und Ofen gewechselt werden ohne das Vakuum zu brechen. Der Ofen wird in Abschnitt 3.7 ausführlich beschrieben. Bei der Kapillare handelt es sich um ein Edelstahlröhrchen von  $50 \,\mathrm{mm}$  Länge mit einem Innendurchmesser von  $120 \,\mu\mathrm{m}$ . Der Gasfluss wird durch ein fein einstellbares Durchflussventil geregelt. Der maximale Fluss ist durch den Druck begrenzt, der sich im Flugrohr des TOFs ergibt. Aufgrund der Hochspannungen von mehreren kV im Elektronendetektor darf der Druck höchstens in den niedrigen  $10^{-5}$  mbar Bereich ansteigen. Das TOF und die Experimentierkammer werden von je einer Turbomolekularpumpe gepumpt und sind mit Hilfe einer Folie bis auf die Eingangsöffnung für die Elektronen separiert, so dass unter Gaslast eine Druckdifferenz von einer Größenordnung auftritt. Der maximale Druck in der Kammer sollte demnach im niedrigen  $10^{-4}$  mbar Bereich liegen.

Eigentlich sollten zwei gegenüberliegende TOF-Spektrometer implementiert werden, so

wie in [89]. Bei dem Betrieb des Atomstrahlofens stellte sich jedoch heraus, dass in einem der beiden der Druck aus unklaren Gründen durch die abgestrahlte Wärme stark anstieg. Das andere baugleiche Spektrometer zeigte keine Anzeichen dieses Verhaltens. Unter diesen Umständen konnten die Messungen dieser Arbeit nur mit einem TOF-Spektrometer durchgeführt werden. Das andere wurde sicherheitshalber aus dem Experiment entfernt. Für die Kompensation von störenden Magnetfeldern, insbesondere des Erdmagnetfeldes, wurden 3 Spulenpaare von außen um die Seiten der Experimentierkammer gewickelt. Für alle drei Raumrichtungen kann so jeweils ein Magnetfeld angelegt werden. Jede Spule hat 20 Wicklungen mit einem Kupferdraht von 0,5 mm Durchmesser. Je nach Durchmesser der Spulen ergaben sich für die Gesamtwiderstände der Paarungen 6 $\Omega$ , 4 $\Omega$  und 2 $\Omega$ . Für ideale Helmoltzspulenpaare müssten ihr Abstand voneinander ihrem Radius entsprechen. Außerdem sind die Spulen eher rechteckig als rund. Wegen des kleinen Volumens der Interaktionszone kann aber trotzdem von konstanten Magnetfeldern ausgegangen werden.

Mit dem **Elektronen Flugzeitspektrometer** wird die Flugzeit der Elektronen über eine bestimmte Strecke gemessen und damit einer kinetischen Energie zugeordnet. Neben den Energien der Photo- und Auger-Elektronen können so auch die Modulationen durch den Einfluss der THz-Strahlung gemessen werden. Etwa 5 mm von der Interaktionszone entfernt befindet sich die Eingangsapertur von 4 mm Durchmesser. Durch sechs elektrostatische Linsen werden die Elektronen kollimiert, so dass ein Großteil der Elektronen in einem Raumwinkel von  $\pm 16^{\circ}$  bezüglich der Mittelachse des TOFs eingesammelt werden. Nach einer Strecke von 445 mm durch ein Flugrohr, das gegen Magnetfelder abgeschirmt ist, erreichen die Elektronen den Detektor. Dieser besteht aus zwei übereinander liegenden MCPs, welche pro einfallendem Elektron  $10^6$  bis  $10^7$  Sekundärelektronen emittieren. Die entstehenden Ströme werden in Spannungssignale umgewandelt, verstärkt und mit einem Oszilloskop aufgezeichnet. Die beste Auflösung wird im Bereich zwischen 10 und 30 eV kinetischer Energie erreicht. Für schnellere Elektronen kann mit einer Retardierspannung die Driftgeschwindigkeit bis in diesen Bereich reduziert werden, um die energetische Auflösung zu verbessern. Leider konnte in dieser Arbeit aufgrund eines Kurzschlusses zu weiten Teilen nicht auf eine Retardierspannung zurückgegriffen werden. In [34] wurden mit dem Programm SIMION für den Bereich der Driftgeschwindigkeiten von 15 eV bis 40 eV der Akzeptanzwinkel, die Transmission und die Auflösung eines baugleichen TOFs simuliert. Weiterhin wurde herausgefunden, dass die Transmission nicht über alle Energien konstant ist und sich deshalb nur für spektrale Breiten von wenigen eV vernachlässigbar auswirkt. Das bestmögliche Auflösungsvermögen dieses TOFs wurde auf  $0,3 \,\mathrm{eV}$  spezifiziert.

Die Umrechnung der Flugzeiten in kinetische Energie erfolgt durch den Zusammenhang

$$W_{kin} = \frac{m_e L_{eff}^2}{2(t-t_0)^2} - U,$$
(3.1)

mit der Retardierspannung U, dem Ionisationszeitpunkt  $t_0$  bezüglich der angelegten Zeitskala und der effektiven Flugstrecke  $L_{eff}$ . Durch die elektrostatischen Linsen ergeben sich kurzzeitige Beschleunigungen der Elektronen, so dass die geometrische Flugstrecke durch  $L_{eff}$  ersetzt werden muss. Die Parameter der Übertragungsfunktion können entweder durch eine Simulation oder durch eine Kalibrierungsmessung bestimmt werden. In beiden Fällen werden Wertepaare von Flugzeiten und entsprechenden Energien benötigt, um anschließend die Funktion anzupassen. Bei der Simulation werden nach dem Modell in [34] mit SIMION die Flugzeiten für verschiedene Elektronenenergien bestimmt. In dieser Arbeit wurden stattdessen Kalibrierungsmessungen mit Xenon durchgeführt. In den Flugzeitspektren können mehrere Peaks von Auger-Elektronen mit Literaturwerten identifiziert werden und so Wertepaare für Anpassung der Funktion bereitgestellt werden.

### 3.6 Elektro-optisches Abtasten

Das EOS diente in dieser Arbeit in erster Linie dazu, die zeitliche Überlagerung der THz- und der XUV-Pulse zu finden, also die optischen Weglängen beider Propagationsstrecken ab dem Strahlteiler am Anfang des Aufbaus anzugleichen. Daher muss der EO-Kristall in der Wechselwirkungszone des Experiments positioniert werden. In Abbildung 3.8 ist die experimentelle Realisierung des EOS schematisch dargestellt. Sie entspricht im Wesentlichen der allgemeinen Beschreibung in Abschnitt 2.4.3. Der ZnTe-Kristall von 300  $\mu$ m Dicke wurde in einem in transversaler Ebene rotierbaren Halter anstelle des Ofens eingebaut. Dafür musste das TOF um circa 15 mm von der Wechselwirkungszone entfernt werden. Der XUV-Strahl ist für die Sondierung des THz-Feldes durch EOS nicht geeignet. Stattdessen wird durch die vollständig belüftete Harmonischenquelle der NIR-Strahl aus der Hohlfaser ungefiltert hindurch geleitet. Die optische Weglängen unterscheidet sich dann nur um den Faktor des Brechungsindexes der Luft, was etwa 3 mm entspricht. Die Strahlführung in der Experimentierkammer ist ansonsten so wie in Abschnitt 3.5 beschrieben. Nach der gemeinsamen Propagation durch den Kristall divergiert der THz-Strahl und braucht nicht weiter beachtet zu werden, während der NIR-Strahl



**Abbildung 3.8:** Messaufbau zum elektro-optischen Abtasten des THz-Feldes. NIR- und THz-Pulse überlagern sich im ZnTe. Die vom elektrischen Feld abhängige Drehung der Polarisation des NIR-Strahles wird detektiert.

durch ein Fenster aus der Kammer ausgekoppelt wird. Danach folgt der optische Aufbau mit einem  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen, einem polarisierendem Strahlteiler und den Photodioden mit Differenzverstärkung. Damit die beiden Teile des Sondierungsstrahles sicher auf die Oberflächen der Dioden passen, ist vor dem Strahlteiler eine zusätzliche fokussierende Linse positioniert. Für ein EOS sollten die Signale ohne Einfluss des THz-Feldes auf den Dioden am besten gleich groß sein, so dass das Differenzsignal null wird. Dieses Ausbalancieren konnte alleine mit dem  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen nicht erreicht werden. Zu diesem Zweck wurde ein zusätzliches  $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen verwendet.

#### 3.7 Atomstrahlofen

Für die Untersuchung von Stoffen, die bei Raumtemperatur nur im festen Aggregatzustand auftreten, wurde der folgend beschriebene Ofen entworfen. Typische Atomstrahlöfen müssen aufgrund ihrer Größe und Störfelder verhältnismäßig weit weg von der Interaktionszone betrieben werden. Daher können nur geringe Teilchendichten bereitgestellt werden. Für Messungen an Synchrotronquellen mit hohen Photonenzahlen ist dies praktikabel, mit einer Hohe-Harmonischenquelle jedoch nicht. Mit 45 mm Gesamthöhe und 16 mm Durchmesser kann dieser Ofen so wie eine Gaskapillare unmittelbar unter einem XUV-Fokus positioniert werden, um eine maximale Teilchendichte



zu gewährleisten. In Abbildung 3.9 ist ein Querschnitt durch den Ofen dargestellt. Das

Abbildung 3.9: Querschnitt durch den Atomstrahlofen.

Herzstück bildet die 30 mm lange Kartusche aus Edelstahl mit 6,4 mm Durchmesser. An der konischen Spitze befindet sich das Ausgangsloch des Ofens mit 200  $\mu$ m Durchmesser. Das Füllen der Kartusche erfolgt durch die offene Unterseite. Mit einer Edelstahlkugel kann eine etwas kleinere Stufenbohrung im Inneren verschlossen werden. Die Kugel wird durch ein eingeschraubtes Röhrchen fest angepresst, damit die Kartusche bis auf die Austrittsöffnung dicht ist. Das Röhrchen ist gleichzeitig die Verbindung zu einer Halterplatte. Letztere wird im Experiment fixiert und definiert die Ofenposition, während die verschlossene Kartusche ein- und ausgebaut werden kann. Um die Kartusche herum wird eine eng gewickelte Heizspirale platziert. Der verwendete Heizdraht besteht aus zwei Nickel-Chrom-Litzen, die durch gepresstes Magnesiumoxid elektrisch isoliert werden. Eine Schicht aus der Edelstahllegierung Inconel bildet den Mantel des Drahtes. Der Heizstrom fließt in der beiden Adern gegenläufig, so dass sich die entstehenden Magnetfelder kompensieren. Um die Heizspirale herum befinden sich zwei Rohrstücke aus Edelstahl von 13 und 16 mm Außendurchmesser mit einer Wandstärke von 1 mm als doppeltes Hitzeschild. Der Heizdraht geht nach 50 cm direkt im Anschluss an die unterste Wicklung der Spirale in einen Leiter mit kleinerem Widerstand über, dem Kaltende. An dieser Stelle wird durch ein zusätzliches Kupfergeflecht die Wärme auf die Kammerwand abgeleitet, damit keine Hitzeschäden entstehen. Die Temperatur wird mit einem Thermoelement direkt an der Heizspirale gemessen.

# Kapitel 4

# Charakterisierung des Messaufbaus

Dieses Kapitel widmet sich den umfassenden charakterisierenden Messungen der experimentellen Aufbauten und deren Auswertung. Dabei wurden insbesondere die zeitlichen, spektralen und räumlichen Eigenschaften der erzeugten IR-, XUV-, und THz-Pulse untersucht. Außerdem wurde die Abstrahlcharakteristik des Atomstrahlofens vermessen.

## 4.1 Hohlfaserkompression

Beim normalen Betrieb des Hohlfaserkompressors werden zwischen 2,15 und 2,2 W mittlere Leistung bei Pulslängen von 38 fs eingekoppelt. Der Neondruck liegt für eine gute spektrale Verbreiterung zwischen 1 und 1,2 bar. Die gesamte Ausgangsleistung beträgt ungefähr 70% der Eingangsleistung. Es befinden sich jedoch nur 50% in der zentralen EH11-Mode (siehe Abschnitt 2.2.6), während 20% in einer Korona aus Streulicht verloren geht. Das Streulicht entsteht durch Laseranteile, die durch den Fasermantel propagieren. In Abbildung 4.1 ist das Spektrum der Eingangspulse und der Ausgangspulse dargestellt. Aus der Bestimmung des zweiten Momentes ergeben sich für die doppelten Standardabweichungen Werte von 23 und 100 nm. Die Schwerpunkte liegen bei 795 bzw. 755 nm. Im Idealfall müsste die Selbstphasenmodulation (siehe Abschnitt 2.2.2) zu einer symmetrischen spektralen Verbreiterung führen. Die bevorzugte Erzeugung von blauen Komponenten kann aber durch Self Steepening und ionisationinduzierte Blauverschiebung erklärt werden (siehe Abschnitt 2.2.3 und 2.2.5). Die fourierlimitierte Dauer der Ausgangspulse beträgt für dieses Spektrum 8 fs. Die Messung der Pulsdauer erfolgte zuletzt im Rahmen einer Diplomarbeit im Jahr 2012 mit einem geeignetem SPIDER der Firma Venteon [14]. Unter Verwendung fast desselben experimentellen Aufbaus bei sehr ähnlichen Ausgangsspektren der gleichen Breite wurden Pulsdauern zwischen 9 und 10fs gemessen. Aufgrund von schwer kompensierbaren hohen Ordnungen der spektralen Pha-



Abbildung 4.1: Normierte Ein- und Ausgangsspektren des Hohlfaserkompressors bei einem Neondruck von 1,1 bar mit Schwerpunkten bei 795 bzw. 755 nm und Breiten von 23 bzw. 100 nm.

se traten Substrukturen mit bis zu 10% der Intensität des Hauptpulses auf. Unter der Annahme, dass mit den kürzesten Pulsen die höchste Intensität erreicht wird, mit der wiederum die höchsten Harmonischen erzeugt werden, erfolgt die Chirpkompensation mit den Glaskeilen anhand der Höhe des Harmonischen-Cut-Offs.

# 4.2 Hohe Harmonische

Nach der Komprimierung und dem Strahltransport enthalten die IR-Pulse jeweils noch 0,9 mJ Energie. Unter der Annahme etwa 10 fs langer Pulse wird im Gastarget ein Fokus mit einer Intensität im Bereich von  $5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  erzeugt. Aus einer Messung mit einer XUV-sensitiven kalibrierten Photodiode (SPD-1UVHCM von Technoexan Ltd.) ergab sich eine Photonenzahl von  $1 \cdot 10^4$  pro Puls. Der XUV-Strahl lief dabei durch zwei 200  $\mu$ m Zr-Filter mit der Transmission von jeweils 50% und wurde von beiden Mo/Si-Spiegeln reflektiert, die zusammen eine Reflektivität von 25% aufweisen (siehe Abbildung 3.4 und 3.5). Damit kann berechnet werden, dass in einer einzelnen Harmonischen bei 90 eV pro IR-Puls 160  $\cdot 10^3$  Photonen entstehen. Das entspricht einer Effizienz der Energiekonver-

sion von  $2,6 \cdot 10^{-9}$ , die etwas größer ist als bei sehr ähnlichen Quellen in [103] und [50]. Mit anderen Lasersystemen und erheblichem experimentellen Mehraufwand kann eine deutlich höhere Harmonischenausbeute erreicht werden. Mit kürzeren Pulsen von 6 fs Länge wurde in [85] eine um eine Größenordnung effizientere Konversion beschrieben. Für die Streaking-Experimente wurde ein Zr-Filter weniger verwendet, dafür ergeben sich zusätzliche Verluste von 8% durch den Mo-Spiegel, so dass  $18,4 \cdot 10^3$  Photonen mit jedem Puls zur Verfügung stehen.

Abbildung 4.2 zeigt das überlagerte Strahlprofil aller Harmonischen (> 65 eV), die durch



Abbildung 4.2: Strahlprofil der Harmonischen, dargestellt durch die nullte Beugungsordnung des Gitterspektrometers auf dem Detektor im Abstand von 2,15 m zur Quelle.

einen 400  $\mu$ m Zr-Filter transmittieren. Das Bild ergibt sich durch die Aufnahme der nullten Beugungsordnung mit dem Gitterspektrometer. Das Profil ist stark asymmetrisch mit einer kurzen und einer langen Achse, die auf sehr unterschiedliche Divergenzwinkel hinweisen. Die schmale Achse hat eine Breite von 1, 1 mm FWHM auf dem Detektor, der 2,3 m von der Quelle entfernt ist. So ergibt sich ein voller Divergenzwinkel von 0, 5 mrad. Die lange Achse wird durch eine 3 mm große Apertur auf dem Strahlweg abgeschnitten. Durch die Verbreiterung ab der Apertur folgt eine Divergenz bezogen auf die volle sichtbare Breite der langen Achse von 4 mrad. Einen Meter hinter der Quelle, wo sich die Apertur befindet, beträgt die Strahlbreite also 4 mm, so dass an jeder Seite 0,5 mm abgeschnitten werden. Ein Grund für die Asymmetrie könnte ein astigmatischer Fokus der Fundamentalen sein, obwohl die Einfallswinkel auf die plankonvexen Spiegel in der Harmonischenquelle so gering wie möglich gehalten wurden.

Auf dem Fokussierspiegel des Streaking-Experiments, der sich 4,8 m entfernt vom Quell-



Abbildung 4.3: Aufnahme des Fokus der 55. Harmonischen im Zielbereich der Streak-Kamera mit einer CCD-Kamera mit Phosphorbeschichtung.

punkt der Harmonischen befindet, hat das Strahlprofil nach den ermittelten Divergenzen eine Größe von ungefähr 3x21 mm. Der Strahl passt also vollständig auf den Spiegel mit einem Durchmesser von 25 mm. Abbildung 4.3 ist eine Darstellung des fokussierten Strahles der selektierten Harmonischen bei 90 eV. Die Aufnahme wurde in im Bereich der Strahltaille mit einer CCD-Kamera hergestellt, die mit Phosphor beschichtet wurde. Auch im Fokus ist das Profil sehr asymmetrisch mit einer Größe von  $20x250 \,\mu\text{m}$ .

Für die qualitative Messung eines Harmonischenspektrums wurde das in Abschnitt 3.3 beschriebene Gitterspektrometer verwendet. Jede Harmonische wird durch eine senkrechten Linie auf dem zweidimensionalen Detektor repräsentiert. In Abbildung 4.4 ist eine waagerechte Pixelreihe aus dem Zentrum eines typischen Spektrums aufgetragen. Die Pixelpositionen wurden zusätzlich den Photonenenergien zugeordnet und durch eine Interpolation linear skaliert. Die niedrigeren Harmonischen unter 65 eV wurden mit einer Zr-Folie herausgefiltert. Die Identifikation der Harmonischenordnungen erfolgt unter der Annahme, dass es sich um die ganzzahligen ungeraden Bruchteile der Trägerwellenlänge der Fundamentalen handelt, die durch den Schwerpunkt des Spektrums definiert wird. Ein Aluminiumfilter liefert zusätzlich eine scharfe Absorptionskante bei 72,5 eV (siehe Abb. 3.4), so dass die erste nicht herausgefilterte Harmonische bestimmt werden kann. Bei einer Trägerwellenlänge von 755 nm (1,64 eV) entspricht das der 45. Harmonischen. Die weiteren Harmonischen können dann abgezählt werden. Der Cut-Off befindet sich



**Abbildung 4.4:** Exemplarisches Spektrum der Harmonischen bei Transmission durch einen Zr-Filter  $(400 \,\mu\text{m})$ 

im Bereich der 69. Harmonischen (10,9 nm, 113 eV) und damit deutlich über der Wellenlänge, die für die Experimente vorgesehen und durch die Mo/Si-Spiegel im Bereich um 90 eV festgelegt ist. Dort befindet sich die 55. Harmonische (13,7 nm, 90,2 eV) im stabi-
len Plateau-Bereich des Spektrums. Es ist auffällig, dass die 63. Harmonische schwächer ausgeprägt ist als die benachbarten. In einer frühen Konfiguration der Harmonischenquelle ist diese Besonderheit bei Messungen mit dem selben Spektrometer nicht sichtbar (vergleiche [50]).

# 4.3 Eichung des Flugzeitspektrometers

Für die Interpretation gemessener Elektronenspektren müssen die Flugzeiten der Elektronen ihren kinetischen Energien zugeordnet werden. Zu diesem Zweck wurden Flugzeitspektren von Xenon aufgenommen. Anhand der hochaufgelösten Messungen von L. O. Werme et al. [101] können die Positionen diverser *NOO*-Auger-Linien identifiziert und ihren kinetischen Energien zugeordnet werden, wie es in Tabelle 4.1 aufgeführt ist. Weil ihre Energie unabhängig von der Photonenenergie ist, eignen sich Auger-Elektronen sehr gut für diese Eichung. Die zugeordneten Werte können an die Formel 3.1 angepasst

Peak $\#$	Flugzeit (ns)	Energie (eV)	Peak $\#$	Flugzeit (ns)	Energie (eV)
1	$61,\!8$	36,2	10	110,3	17,02
2	63,7	$34,\!99$	11	$115,\! 6$	15,92
3	65,0	$34,14^{*}$	12	119,8	$15,\!05$
4	66,7	$33,10^{*}$	13	122,8	14,45
5	68,5	32,09	14	125,8	$13,\!95$
6	69,2	31,71	15	134,8	12,54
7	73,0	29,73	16	154,2	10,07
8	94,0	21,44	17	174,9	8,08
9	100,6	$19,\!45$	-	-	-

**Tabelle 4.1:** Zuordnung der gemessenen Flugzeiten der NOO-Auger-Elektronen von Xenon zu ihren kinetischen Energien für die Detektoreichung anhand von [101]. Die Zuordnung der Auger-Linien ist auch in Abbildung 4.5 dargestellt. Die Markierung \* zeigt an, dass ein Mittelwert von zwei nicht aufgelösten Linien angegeben ist.

werden, um eine Konversionsfunktion zwischen Flugzeit und kinetischen Energien zu erhalten. Für die Retardierspannung, den Ionisationszeitpunkt bezüglich der angelegten Zeitskala und der effektiven Flugstrecke ergeben sich die Werte U = 1,2 V,  $t_0 = 50,4$  ns und  $L_{eff} = 686,2$  mm. In Abbildung 4.5-oben ist das Flugzeitspektrum mit den identifizierten Auger-Linien dargestellt. Die untere Graphik in 4.5 zeigt das selbe Spektrum auf einer Energieskala, die nach Formel 3.1 und den genannten Werten definiert wurde. Die Energien der Auger-Linien passen erwartungsgemäß sehr gut zu den Werten in Tabelle

4.1. Die Gesamtflächen der beiden Darstellungsformen des Spektrums unterscheiden sich nur um 2%.

Bei dieser Messung wurden zusätzlich die Ströme in den Spulen zur Kompensation des



Abbildung 4.5: Oben: Flugzeitspektren von Xenonelektronen bei einer Anregung mit 90 eV Photonenenergie. Für die Zuordnung der Flugzeiten zu entsprechenden kinetischen Energien wurden die Auger-Linien identifiziert und eine Übertragungsfunktion angepasst. Unten: Entsprechendes Elektronenspektrum in Abhängigkeit zur kinetischen Energie.

Magnetfeldes optimiert, indem die Höhe der Linien maximiert wurde. Insbesondere die Linien der langsameren Elektronen wurden so ausgeprägter. Den größten Einfluss hat die Kompensation des Erdmagnetfeldes durch das Spulenpaar mit der senkrechten Achse.

# 4.4 THz-Quelle

#### 4.4.1 Konversionseffizienz und Pulsenergie

Die Effizienz der Konversion von der eingehenden Pulsenergie in THz-Strahlung kann auf zwei sehr unterschiedliche Arten definiert werden. Für die praktische Anwendung ist interessant, wie viel Energie aus dem Kristall heraus propagiert und effektiv für ein Experiment nutzbar ist. Diese unterscheidet sich jedoch erheblich von der tatsächlich im Kristall erzeugten Menge an THz-Strahlung. In Abbildung 4.6 ist das Spektrum der eingehenden Pulse zusammen mit den Spektren des im LiNbO<sub>3</sub> entstandenen Streulichtes für die Einstrahlung von s- bzw. p-polarisierten Lichtes dargestellt. Bei einer optimierten



**Abbildung 4.6:** Spektrum des einlaufenden IR-Pulses und des Streulichtes im LiNbO<sub>3</sub> bei s- und p-polarisiertem Einfall. Die gestrichelten Linien zeigen die Schwerpunkte der Spektren an. Ihr Abstand spiegelt die gesamte Rotverschiebung durch die kaskadierte Differenzfrequenzmischung wieder.

Ausgangsleistung im Fall der s-Polarisation ist eine deutliche Rotverschiebung des Spektrums sichtbar. Wenn eine p-Polarisation des Eingangspulses vorliegt, wird eine erheblich abgeschwächte Leistung der ausgehenden THz-Strahlung bei geringerer Rotverschiebung gemessen. Yeh et al. interpretieren die Verschiebung des Spektrums als Energieverlust durch die Differenzfrequenzmischung [107]. Bei der Entstehung eines THz-Photons verliert ein IR-Photon die entsprechende Energie und erhält eine etwas längere Wellenlänge. Bei einer Frequenz von 0,83 THz (siehe Abbschnitt 4.4.3) verschiebt die Emission eines THz-Photons ein IR-Photon um  $\Delta \lambda_{THz} \approx 1,5$  nm. Für eine grobe Quantifizierung kann die Verschiebung der Schwerpunkte der Spektren von 797 nm auf 820 nm herangezogen werden [107]. In dieser Betrachtungsweise erzeugt jedes IR-Photon im Durchschnitt in einer Kaskade 15 THz-Photonen. Das entspricht einer energetischen Konversionseffizienz von 2,8%.

Der kalibrierte Pyrodetektor ist mit 2x2 mm sensitiver Fläche zu klein für eine Energiemessung direkt an der Ausgangsseite des LiNbO<sub>3</sub>-Kristalls. Außerdem könnte gestreutes IR-Licht die Messung verfälschen. Aus diesem Grund wurde kurz hinter der kollimierenden Teflonlinse der THz-Strahl mit einem im 90° Winkel fokussierenden Parabolspiegel auf den Pyrodetektor fokussiert. Die Signalhöhe von 430 mV entspricht nach dem Umrechnungsfaktor  $1.23 \frac{\mu J}{V}$  einer Pulsenergie von 516 nJ. Dieser Wert kann als konservative Abschätzung betrachtet werden, weil die in den folgenden Abschnitten bestimmten Fokusgrößen die Vermutung nahe legen, dass der vollständige Fokus auch hier nicht auf den Detektor passt. Die Teflonlinse misst an ihrer dicksten Stelle 10 mm. Abgeschätzt propagiert der größte Teil des Pulses im Mittel durch 8 mm Material. Mit dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha = 0.05 \text{ mm}^{-1}$  für Teflon bei 0.83 THz [59] ergibt sich ein Verlust von 33%. Hinzu kommen die Verluste durch Reflexionen an den Oberflächen der Linse von insgesamt 8%. Demnach liefert die THz-Quelle etwa 728 nJ Pulsenergie. Im Vergleich zur Eingangsenergie von  $550 \,\mu J$  entspricht das einer Konversionseffizienz von 0.13%, die so hoch ist wie in vergleichbaren Experimenten [37, 105]. Das heißt nur ein zwanzigstel der erzeugten THz-Strahlung gelangt nutzbar aus dem Kristall. Ungefähr 45% gehen durch den Übergang vom LiNbO<sub>3</sub> an Luft durch Fresnelverluste verloren. Eine volle Größenordnung wird vom Kristall wieder absorbiert.

Der Fokus in der Experimentierkammer wird mit einem baugleichen Parabolspiegel erzeugt, wie für den oben erwähnten Testfokus für die Energiemessung. An dieser Stelle ergibt die Messung mit dem Pyrodetektor nur noch 240 nJ (200 mV). In den Messungen, die in den nächsten Abschnitten beschrieben werden, stellt sich heraus, dass der Fokus mit ca. 2 mm  $\frac{1}{e^2}$ -Radius größer ist als die Detektorfläche. Aus diesem Grund wird nur die Hälfte der Pulsenergie von insgesamt 480 nJ detektiert. Die Differenz zwischen den ermittelten Werten ergibt sich durch Verluste beim Strahltransport von der Quelle zum Experiment. Die vorliegenden Verluste von 8% stammen von den Reflexionsverlusten bei der Propagation durch das Einkoppelfenster in die Experimentierkammer. Aufgrund der vorsichtigen Abschätzung der Energie kurz nach der Quelle sind die tatsächlichen Verluste wahrscheinlich um einige 10% größer. Durch die äußerst schwierige Handhabung der THz-Strahlung können kleine Ungenauigkeiten bei der Positionierung der Kupferspiegel für den Strahltransport nicht ausgeschlossen werden. Dies kann zu einem Abschneiden der Randbereiche des Strahlprofiles führen.

Eine sinnvolle Verbesserung der Apparatur wäre die Nutzung eines anderen Linsenmaterials. Materialien wie HDPE, TPX, Tsurupica und Zeonex 480R könnten die Absorptionsverluste mehr als halbiert werden [18].

#### 4.4.2 Strahlpropagation

Um das Risiko für das Abschneiden des Strahlprofiles zu verkleinern, wurde der divergent aus der THz-Quelle propagierende Strahl bewusst nicht richtig kollimiert, sondern ein konvergenter Strahl erzeugt. Bei einem Abstand zwischen Kristall und Linse von 95 mm wird die Quelle in einem Abstand von  $(600 \pm 20)$  mm abgebildet. Dies zeigt sich durch ein maximales Signal auf dem Pyrodetektor bei einer Messung entlang der Propagationsachse. Anhand der Bild- und Gegenstandsweite ergibt sich mit der Linsengleichung eine Brennweite der Linse von  $(82\pm4)$  mm. Durch die Bestimmung des Krümmungsradius der plan-konvexen Linse wurde mit der Linsenschleiferformel eine Brennweite von 86 mm berechnet. Durch das sukzessive Vermessen eines transversalen Rasters mit dem Pyrode-



**Abbildung 4.7:** Tranversales Profil des THz-Strahles im Abstand von 75 cm von der Teflonlinse. Aufgenommen mit der Rastermethode (siehe Abschnitt 3.4)

tektor wurde an mehreren Stellen Profile des THz-Strahles aufgenommen. In Abbildung 4.7 ist als Beispiel das Strahlprofil im Abstand von 75 cm von der Teflonlinse dargestellt. Durch die Bestimmung der horizontalen und vertikalen FWHM-Breiten im Abstand von 75 cm zur Linse von  $x_1 = (20, 4 \pm 0, 3)$  mm und  $y_1 = (22, 5 \pm 0, 4)$  mm, sowie im Abstand von 106 cm zur Linse von  $x_2 = (23, 2 \pm 0, 4)$  mm und  $y_2 = (25, 4 \pm 0, 4)$  mm, kann der volle Divergenzwinkel des Strahles von  $\theta_x = (9 \pm 2)$  mrad und  $\theta_y = (10 \pm 3)$  mrad hinter der Abbildung berechnet werden. Auf den parabolischen Fokussierspiegel in der Experimentierkammer, der sich 125 cm von der Linse entfernt befindet, trifft also ein Strahl mit einer FWHM-Breite von vertikalen  $(24, 9 \pm 1, 3)$  mm und horizontalen  $(27, 5 \pm 1, 9)$  mm. Hierbei wurde bereits berücksichtigt, dass durch das Periskop direkt vor dem Fokussierspiegel das Strahlprofil um 90° gedreht wird. Mit einer freien Apertur von 50 mm kann mit dem Spiegel also das volle Strahlprofil genutzt werden. Die verwendeten Kupferspiegel im Periskop liegen nur 10-15 cm weiter vorne im Strahlweg wo das Strahlprofil schon ca. 23 mm breit ist. Bei einer Reflektion um 90° steht als freie Apertur nur die Projektion von 35 mm des gesamten Durchmessers von 50 mm des Spiegels zur Verfügung. Der Ansatz, eine Strahltaille auf der halben Propagationstrecke des THz von der Quelle zum Experiment zu erzeugen, geht also nicht ganz auf, weil bei den letzten Umlenkspiegeln mit einem Abschneiden des Strahlprofiles gerechnet werden muss. Um dies zu verhindern, könnte entweder die Strahltaille noch weiter Richtung Fokussierspiegel geschoben werden oder aber ein THz-Teleskop aus zwei Linsen realisiert werden, mit dem ein kleinerer kollimierter Strahl erzeugt wird.

Mit der gleiche Messmethode wurde auch die Strahltaille eines Testfokus außerhalb des Experimentes untersucht. Im Abstand von 150 cm von der Teflonlinse wurde der THz-Strahl mit einem Parabolspiegel der gleichen Brennweite wie im Experiment fokussiert und in Abständen von je 10 mm die Strahlprofile aufgenommen. Tatsächlich stellen die Bilder eine Faltung zwischen dem tatsächlichen Strahlprofil und der aktiven Fläche des Pyrodetektors dar. Wenn sich, wie in diesem Fall, die Größe der gemessenen Strahlprofile der Größe des Pyrodetektors annähert, muss eine Entfaltung vorgenommen werden, um die unverfälschten Abmessungen der Strahlprofile zu bestimmen. In Abbildung 4.8 sind die ermittelten  $\frac{1}{e^2}$ -Radien aufgetragen. Als Fehler wurden die Schrittweiten der jeweiligen Messraster angenommen. Durch das Anpassen der Strahltaille w(z) anhand der Funktion

$$\mathbf{w}(z) = \mathbf{w}_0 \sqrt{1 + \frac{(z - z_0)^2}{z_R^2}}$$
(4.1)

können die Fokusgröße w<sub>0</sub>, die Fokusposition bezüglich der Optik  $z_0$  und die Rayleigh-Länge  $z_R$  bestimmt werden. In der Horizontalen ergeben sich die Werte w<sub>0</sub> =  $(2,02 \pm 0,06)$  mm,  $z_R = (13,5 \pm 0,5)$  mm und  $z_0 = (112,8 \pm 0,4)$  mm und in der Vertikalen w<sub>0</sub> =  $(1,90 \pm 0,14)$  mm,  $z_R = (11,3 \pm 1,0)$  mm und  $z_0 = (103,0 \pm 0,6)$  mm. Die Foki sind um fast 10 mm versetzt zueinander. Es liegt also ein astigmatischer Fokus vor. Der Grund dafür liegt in den leicht unterschiedlichen Divergenzwinkeln auf den beiden Achsen. Zusätzlich können bereits kleine Abweichungen von der idealen Justierung bei einem Parabolspiegel für unterschiedliche effektive Spiegelradien auf den beiden Achsen sorgen. Mit der Wellenlänge  $\lambda$  kann zusätzlich die Beugungsmaßzahl

$$M^2 = \frac{\pi w_0^2}{z_R \lambda} \tag{4.2}$$

berechnet werden. In Abschnitt 4.4.3 wird die mittlere Wellenlänge des THz-Strahles  $\lambda = 0.36 \text{ mm}$  ermittelt, so dass sich  $M_x^2 = 2.64 \pm 0.26$  und  $M_y^2 = 2.78 \pm 0.66$  ergeben. Die Radien des beugungsbegrenzten Fokus wären folglich um mehr als den Faktor 2.5 kleiner als der Vorliegende. Der Fokussierspiegel im Experiment befindet sich 25 cm näher an der Teflonlinse als es für die Optik in dieser Messung der Fall war. Aufgrund



Abbildung 4.8: Darstellung der Taille des THz-Strahles in horizontaler und vertikaler Achse. In Abständen von 10 mm wurden Strahlprofile mit der Rastermethode aufgenommen. Die Querschnitte wurden zusätzlich noch mit der Detektorgröße entfaltet.

der Abhängigkeit zur Größe des Strahlprofils auf dem Fokussierspiegel, ist der Fokus im Experiment vermutlich noch etwas größer.

#### 4.4.3 Elektro-optisches Abtasten des Feldes

Der größte Nutzen der EOS-Messung lag darin, die zeitliche Überlagerung der THz-Pulse und der Fundamentalen aus der Harmonischn-Erzeugung zu finden. Das ist möglich, weil das ZnTe als EO-Kristall direkt im Fokus der Experimentierkammer positioniert werden kann. Da die Messungen an Luft durchgeführt wurden, unterscheidet sich die optische Weglänge der Harmonischen aufgrund des Brechungsindexes noch um ungefähr 2 mm von der gemessenen Weglänge.

Außerdem kann durch das Verschieben der Pulse zueinander mittels EOS das elektrische Feld der THz-Pulse vermessen werden. Für die Bestimmung der Gouy-Phasenverschiebung (siehe Abschnitt 2.5.5) wurde das elektrische Feld an 7 Positionen direkt im Fokus und alle 2 mm davor und dahinter vermessen. In Abbildung 4.9 sind die ermittelten Felder mit einer zeitlichen Auflösung von 33 fs (10  $\mu$ m Delay) dargestellt. An den Hauptteil jeden Feldes wurde als oszillierendes Feld mit einer Gauß-Verteilung als Einhüllender die Funktion

$$E(t) = A \exp\left(-\frac{t-t_0}{b}\right) \cos[f(t-t_0) + \Phi]$$
(4.3)

angepasst. Dabei steht A für die Feldamplitude, b für Breite der Einhüllenden,  $t_0$  für den zeitlichen Versatz, f für die Frequenz der Oszillation und  $\Phi$  für die relative Phase. Die Änderung von  $\Phi$  ist die gesuchte Gouy-Phasenverschiebung. In Abbildung 4.10 sind die



**Abbildung 4.9:** EOS-Messung des THz-Feldes an verschiedenen Positionen auf der Propagationsachse innerhalb der Rayleigh-Länge. Anhand der Änderung der CE-Phasen lässt sich die Gouy-Phase ablesen.

relativen Phasen an den 7 Messpunkten aufgetragen. Auf der Propagationsachse verhält sich die Gouy-Phase, wie in Abschnitt 2.5.5 beschrieben, folgendermaßen:

$$\Phi_G(z) = -\arctan\left(rac{z-z_0}{z_R}
ight),$$

dabei ist  $z_0$  die Position des Fokus und  $z_R$  die Rayleigh-Länge. In 4.10 wird zusätzlich die angepasste Funktion  $\Phi_G(z)$  dargestellt.  $z_0$  wurde dafür auf 2 mm festgelegt, weil sich an dieser Position die höchste Feldamplitude befindet. Es ergibt sich damit die Rayleigh-Länge  $z_R = (15,7 \pm 1,2)$  mm. Mit der Gleichung

$$\mathbf{w}_0 = \sqrt{\frac{M^2 \, z_R \, \lambda}{\pi}} \tag{4.4}$$

können unter Einbezug der Beugungsmaßzahlen aus dem vorigen Abschnitt 4.4.2 und der mittleren Wellenlänge von  $\lambda = 0.36$  mm die Fokusgrößen w<sub>0x</sub> =  $(2.18 \pm 0.19)$  mm und w<sub>0y</sub> =  $(2.24 \pm 0.35)$  mm berechnet werden. Erwartungsgemäß ist der Fokus wegen des kleineren Strahlprofils auf dem Fokussierspiegels etwas Größer als im Testfokus in Abbildung 4.8.

Um den Einfluss der Gouy-Phase auf die Streak-Messungen zu bestimmen, wurde eine



**Abbildung 4.10:** Die CE-Phasen der einzelnen EOS-Messungen aus Abbildung 4.9 in Abhängigkeit zu ihrer Messposition auf der Propagationsachse. An die Werte wurde die Gouy-Phase (Formel 2.71) angepasst um die Rayleigh-Länge zu bestimmen.

lineare Änderung von  $d\Phi = (61 \pm 4) \text{ mrad/mm}$  der Phase um den Zielbereich ermittelt. Wie in Abschnitt 2.5.5 beschrieben, muss berechnet werden, wie lang ein infinitesimal kurzer Puls aufgrund der Phasenverschiebung bei ein Streak-Messung erscheint. Dazu fehlt noch die Breite des Gasvolumens in dem Ionisationen stattfinden und aus dem Elektronen detektiert werden können. Für die Kapillare, die auch in dieser Arbeit verwendet wurde, vermaß B. Schütte in [87] die Breite einer normalverteilten Gasdichte zu  $\Delta G = 0.75 \text{ mm}$  FWHM, indem er die Öffnung Schrittweise auf der Propagationsachse des XUV-Strahles verschob und jeweils die Elektronenausbeute bestimmte. Die Abschätzung der Pulsbreite  $\tau_G$ , mit der die durch Streaking ermittelten Pulsdauern entfaltet werden müssen, ergibt sich nach Formel 2.71 zu 9 fs.

Für die genauere Untersuchung des THz-Feldes wurde zusätzlich eine EOS-Messung in einem größeren Zeitfenster mit Abständen von 20  $\mu$ m durchgeführt. In Abbildung 4.11links ist diese Messung dargestellt. Nach Formel 2.48 ist es theoretisch möglich die Höhe der Feldstärken quantitativ zuzuordnen. Durch einen Fehler bei der Bestimmung der Höhe des Gesamtsignals auf beiden Photodioden kann das elektrische Feld in diesem Fall leider nur qualitativ beschrieben werden. Das Feldmaximum bildet ich innerhalb eines optischen Zyklus am Anfang des Pulses aus. Danach sind deutliche Substrukturen bis zum Ende des gemessenen Zeitfensters sichtbar. Vermutlich überlagern sich echte Feldkomponenten mit Reflexionen des Hauptpulses, die bei einer Dicke des EO-Kristalls von 2 mm ungefähr 6,5 ps verzögert detektiert werden müssten.



Durch eine schnelle Fourier-Transformation (FFT) wurde aus dem elektrischen Feld

**Abbildung 4.11:** Links: EOS-Messung des elektrischen Feldes der THz-Pulse. Rechts: Spektrum des THz-Feldes aus einer FFT. Zusätzlich sind die Positionen der Absorptionslinien von Wasser in rot eingezeichnet.

des THz-Pulses das entsprechende Spektrum berechnet, welches in 4.11-rechts abgebildet ist. Das Maximum der Frequenz befindet sich bei 0,66 THz. Als Trägerwellenlänge wird jedoch in dieser Arbeit für alle Berechnungen der Schwerpunkt des Spektrums bei 0.83 THz verwendet. Die spektrale Zusammensetzung ist vergleichbar mit denen in [87] und [105]. Das Spektrum weist diverse lokale Minima auf, die den Absorptionslinien von Wasser sehr gut entsprechen. In Abbildung 4.11-rechts sind zusätzlich die Positionen der Linien eingezeichnet [92]. Die Propagation durch 125 cm Luft wirkt sich also deutlich auf das Spektrum aus. Intensivere Frequenzanteile bei der doppelten Frequenz des Maximums interpretieren Stepanov et al. [93] als mögliche Harmonische des THz-Pulses, die im LiNbO<sub>3</sub> entstehen. In dem vorliegenden Spektrum ist so eine Struktur bei 1,3 THz vorhanden. Diese Harmonische können aber aufgrund der benachbarten Häufung von Absorptionslinien nicht ausgemacht werden. Durch die Teflonoptik im Strahlweg erfährt das Spektrum eine weitere Deformation. Der Absorptionskoeffizient steigt mit der Frequenz an, so dass die höheren Frequenzen stärker abgeschwächt werden als die niedrigeren. Bei 1 THz liegt der Koeffizient bei  $0.6 \,\mathrm{cm}^{-1}$ , bei  $1.5 \,\mathrm{THz}$  schon bei  $1.1 \,\mathrm{cm}^{-1}$  und bei  $2 \,\mathrm{THz}$ bei  $1.5 \,\mathrm{cm}^{-1}$  [59]. Auch hier zeigt sich, dass ein anderes Linsenmaterial Vorteile bringen könnte. Zusätzlich könnte die Propagationstrecke des THz-Strahles eingehaust werden und dann mit Stickstoff oder trockener Luft geflutet werden, um die Absorption durch die Luftfeuchtigkeit zu minimieren.

#### 4.4.4 Untersuchung des THz-Feldes durch Streaking

Für die quantitative Charakterisierung des THz-Feldes wurde die Streak-Kamera verwendet. Die XUV und THz-Pulse werden schrittweise relativ zueinander verschoben, während das Photoelektronenspektrum von Neon gemessen wird. Proportional zum Vektorfeld des THz-Pulses werden die Photoelektronen beschleunigt oder gebremst. In Abbilding 4.12 sind vertikal die kinetischen Energien und horizontal die relative Verzögerung der beiden Pulse aufgetragen. Auf jeder Position wurden die Elektronen aus 15.000 Pulsen aufsummiert. Die Schrittweite lag bei 15  $\mu$ m (50 fs). Die Photonenenergie der XUV-Pulse betrug 90 eV. Die intensivste Linie kann den 2p-Elektronen mit 21,6 und 21,7 eV



Abbildung 4.12: THz-Feld induzierte Verschiebung der kinetischen Energien der 2p- und 2s-Photolinien von Neon (bei 69 eV und 41 eV). Die XUV-Pulse wurden schrittweise relativ zu den THz-Pulsen verschoben.

Ionisationsenergie zugeordnet werden. Die Aufspaltung durch Spin-Bahn-Kopplung wird nicht aufgelöst. Bei der zweitstärksten Linie darunter handelt sich um dir 2s-Elektronen mit einer Bindungsenergie von 48,5 eV. Bei den niedrigeren kinetischen Energien sind diverse Satelliten sichtbar, die ihren Ursprung in Shake-up-Prozessen haben (siehe Abschnitt 2.1). Eine Zuordnung der Satelliten zu bestimmten angeregten Zuständen kann anhand von [97] abgeglichen werden. Die Linie bei 33 eV entsteht Beispielsweise durch die Ionisation von 2s-Elektronen, wobei eine Shake-up in einen 3p-Zustand stattfindet. Für die Analyse der Spektren wurde an jeden 2p und 2s-Peak eine Gauß-Funktion angepasst und die jeweiligen Maxima in Abhängigkeit zur Zeitachse interpoliert um die feldinduzierte Energieverschiebung  $W_{streak}$  zu erhalten. Die Steigung von  $W_{streak}$  ergibt nach Formel 2.55 die Streak-Geschwindidgkeit s, mit den Maxima 37,2 meV/fs bei  $W_0 \approx 69 \text{ eV}$  für die 2p-Elektronen und 27,4 meV/fs bei  $W_0 \approx 41 \text{ eV}$  für die 2s-Elektronen. Da gilt

 $W_{streak} \propto \sqrt{W_{kin}}$ , nimmt auch auch das Maximum von *s* mit geringerer kinetischer Energie der Elektronen  $W_{kin}$  ab. Mit Formel 2.54 aus dem  $W_{streak}$  das entsprechende Vektorpotential berechnet werden. Die zeitliche Ableitung des Vektorpotentials ergibt das elektrische Feld. Es wird in Abbildung 4.13-links dargestellt und wurde unabhängig voneinander aus den beiden Photolinien ermittelt. Die maximale Feldstärke liegt bei 7,8 MV/m. Aus dem Feldmaximum kann das Intensitätsmaximum der Einhüllenden berechnet werden, woraus wiederum unter Einbezug der Fokusgröße aus Abschnitt 4.4.3 eine Pulsenergie von (600±146) nJ bestimmt werden kann. Die CE-Phase ist sehr ähnlich



**Abbildung 4.13:** Links: Elektrisches Feld der THz-Pulse. Ermittelt aus  $W_{streak}$  der 2pund der 2s-Photolinie. Rechts: FFT des Elektrischen Feldes

wie bei der EOS-Messung des Feldes. Abbildung 4.13 (rechts) zeigt die FFT des elektrische Feldes. Das Spektrum aus dem EOS ist aufgrund des größeren Zeitfensters der Messung besser aufgelöst, die grobe Verteilung stimmt allerdings sehr gut überein. Maximum und Schwerpunkt liegen mit 0,7 und 0,8 THz ebenfalls sehr nahe an den Werten der EOS-Messung.

#### 4.5 Messung der XUV-Pulsdauer

Für die Bestimmung der mittleren Pulsdauer der XUV-Pulse wurden Elektronenspektren von Neon ohne und mit Einfluss des THz-Feldes vermessen. Die maximale Streak-Geschwindigkeit s befindet sich im vorliegenden THz-Feld sehr nahe am Nulldurchgang der Oszillation von  $W_{streak}$ , daher wurde bei der Messung darauf geachtet, dass sich die mittlere kinetischen Energien der Elektronen im Einfluss des Feldes nur geringfügig verschieben. In Abbildung 4.14 werden die aufsummierten Spektren für jeweils eine halbe Million XUV-Pulse gezeigt. Im Durchschnitt wurden pro Puls 0,55 Elektronen detektiert. Neben den 2p- und 2s-Elektronen gehören dazu auch Satellitenelektronen und ein geringer Untergrund. Durch den Vergleich der unbeeinflussten und der gestreakten Lini-



**Abbildung 4.14:** Elektronenspektren von Neon bei 90 eV mit und ohne THz-Feld. Bezogen auf Abbildung 4.12 wurde ungefähr bei 3,3 ps gemessen.

enbreiten ist es mit der bekannten Größe *s* möglich nach Formel 2.67 die XUV-Pulsdauer zu bestimmen. Wenn aber die Messungen in 50 Teilabschnitte mit jeweils 10.000 Pulsen aufgeteilt wird, wie in den Abbildungen 4.15, zeigt sich, dass über den Zeitraum der Messungen unterschiedliche Drifts aufgetreten sein müssen. Im linken Bild sind die feldfreien Spektren im Energiebereich um die 2p-Linie dargestellt. Die fast lineare Energieänderung weist auf eine kontinuierliche Verschiebung der Energien der XUV-Photonen hin. Dafür kann es eine ganze Reihe von Gründen geben, z.B. könnte sich durch eine leichte Änderung in der Hohlfasereinkopplung die Trägerwellenlänge der Fundamentalen ändern oder eine leichte Verschiebung der Position des Laserstrahles vor oder nach der Hohlfaser führt zu einer veränderten Phasenanpassung bei der Harmonischenerzeugung. Im rechten Bild in 4.15 werden die gleichen Teilabschnitte des Spektrums mit THz-Feld dargestellt. Es liegt eine noch stärkere Verschiebung der Energien vor, was auf eine Verschiebung der CE-Phase des THz-Pulses im Verlauf der Messung hinweist. Für die weiteren Be-



Abbildung 4.15: Darstellung der Energiedrifts bei der Messung der Spektren in Abbildung 4.14 im feldfreien (links) und im gestreakten Fall (rechts) am Beispiel der 2p-Photolinie. Die Messreihen wurden in 50 Abschnitte von 10.000 vermessenen Pulsen aufgeteilt

rechnungen wurden daher die Breiten der Peaks in den einzelnen Teilabschnitten durch Anpassen von Gauß-Funktionen bestimmt und dann Mittelwerte gebildet. Dabei wurde angenommen, dass die Energieverschiebungen in den Teilabschnitten vernachlässigbar klein sind und die Streak-Geschwindigkeit nahezu konstant bleibt. In den Abbildungen 4.16 sind die Breiten als FWHM aufgetragen. Es ist auffällig, dass die Breiten der 2s-



Abbildung 4.16: Darstellung der FWHM-Breiten der einzelnen Messabschnitte im feldfreien (links) und im gestreakten Fall (rechts).

Peaks stärker gestreut sind als die der 2p-Peaks. Der Grund dafür ist die größere Menge an detektierten 2p-Elektronen, die zu einem verbesserten Signal-zu-Rausch-Verhältnis führen. Andererseits sind die 2p-Linien wesentlich breiter als die 2s-Linien. Tatsächlich hat das Flugzeitspektrometer bei kinetischen Energien von 30 eV die beste Auflösung von 0,3 eV. Das abnehmende Auflösungsvermögen bei wachsender Energie der Elektronen ist der Grund für die Unterschiede in den gemessenen Linienbreiten. In Tabelle 4.2 sind die Breiten mit den entsprechenden Streak-Geschwindigkeiten und den ermittelten Pulsdauern mit und ohne Einfluss der Gouy-Phase eingetragen. Mit über 34,1 fs ist der

	2s	2p
Breite (feldfrei)(eV)	$1,\!28\pm0,\!07$	$1,\!92\pm0,\!05$
Breite (mit THz)(eV)	$1,\!66\pm0,\!12$	$2{,}55\pm0{,}08$
$s \; ({\rm meV/fs})$	27,4	37,2
$ au_{XUV}$ (fs)	$38,6 \pm 10,0$	$45, 1 \pm 4, 8$
$\tau_{XUV,G}$ (fs)	$34,1 \pm 11,3$	$41, 4 \pm 5, 2$

**Tabelle 4.2:** Zusammenfassung der gemittelten FWHM-Breiten der Abschnitte für die feldfreien und die gestreakten Messungen, der vorliegenden Streak-Geschwindigkeiten *s* und der berechneten Pulslängen mit und ohne Einfluss der Gouy-Phasenverschiebung für die Photolinien 2s und 2p.

gemessene Wert der XUV-Pulsdauer um mehr als den Faktor 3 größer als erwartet. Wegen der schlechteren Auflösung ist der Wert aus der Auswertung der 2p-Linie mit 41,4 fs sogar noch höher. Ein naheliegender Grund für eine Verfälschung der Streak-Messung könnte ein positiver linear Chirp der Pulse sein, der für eine zusätzlich Verbreiterung im ansteigenden Vektorfeld führt. Eine Methode einen linearen Chirp festzustellen, ist die Messung des Spektrums in einem Streak-Feld der gleichen Stärke mit umgekehrtem Vorzeichen, wie in Abschnitt 2.5.3 beschrieben. Ein zweites Flugzeitspektrometer, das für diese Messung vorgesehen war, musste aus dem Experiment entfernt werden, weil es unter der Wärmestrahlung, die vom Ofen ausging, zu einem dramatischen Druckanstieg im zugehörigen Flugrohr kam. Es konnte nicht geklärt werden, aus welchem Grund es in einem Spektrometer zum Ausgasen kam, in einem baugleichen Gerät jedoch nicht. In Abschnitt 2.5.3 wird zusätzlich ein verallgemeinerter Ansatz erläutert, um den linearen Chirp in die Auswertung mit einzubeziehen. Es werden dafür lediglich Messungen mit zwei beliebigen unterschiedlichen Streak-Geschwindigkeiten benötigt. Es können folglich die Linienbreiten der Messungen an der 2s und der 2p Linie verglichen werden. Aus Formel 2.68 ergibt sich dann eine Pulsdauer von  $60 \pm 32$  fs. Wegen der geringen Auflösung der 2p-Linien und der großen Standardabweichung hat dieser Wert wenig Aussagekraft. Es muss außerdem beachtet werden, dass sich bei der Berechnung der fourierlimitierten Spektren von Pulsen mit Beispielsweise 10 oder 30 fs Dauer Bandbreiten von 180 bzw. 60 meV ergeben. Das heißt, schon die ungestreakten Photolinien sind mit über 1 eV deutlich breiter als es für die gemessenen Pulslängen notwendig ist, selbst wenn es sich um gechirpte Pulse handelt. Daraus kann gefolgert werden, dass die mittlere Photonenenergie der Harmonischenpulse im Bereich von 1 eV fluktuiert. Dieses Verhalten zeigte sich auch in [87]. Eine Konsequenz dieser verbreiterten Spektren ist eine verminderte zeitliche Auflösung der Streak-Kamera.

Es ist weiterhin nicht auszuschließen, dass die Pulse außer einem linearen Chirp noch relevante höhere Ordnungen der spektralen Phase aufweisen oder sogar einen räumlichen Chirp. Beides könnte zu einer zusätzlich Verbreiterung der gestreakten Spektren führen. Für eine Bestimmung der Pulslänge, die weder durch die spektrale Phase noch durch Fluktuationen der Photonenenergien beinflusst wird, können Auger-Elektronen verwendet werden, wie in 2.5.4 beschrieben. Statt mit Neon wurde zu diesem Zweck Xenon für eine Streak-Messung herangezogen. In Abbildung 4.17 ist ein Messung der  $N_{4.5}O_{2.3}O_{2.3}$ Auger-Elektronen aus den möglichen  $4d^{-1}$  Vakanzen dargestellt. Am besten eignet sich die separate Auger-Linie bei 29,7 eV für die weitere Auswertung. In dem gestreakten Elektronenspektrum der gleichen Auger-Linien in Abbildung 4.18 zeigt sich, dass die feldinduzierte Verbreiterung zu einer Überlagerung der ausgesuchten Auger-Linie mit den Benachbarten führt. Aus diesem Grund wurden in die Bestimmung der Breiten alle neun Auger-Linien in diesem Bereich mit einbezogen. Im ersten Schritt wurde vom feldfreien Spektrum ein keilförmiger Untergrund abgezogen, so dass die Höhe der Kurve vor der ersten und nach der letzten Linie bei ungefähr null liegt. Diese Ansatz wurde auch von Schütte et al. verwendet, um simulierte Spektren dieser Auger-Elektronen mit den Messungen in Deckung zu bringen [88]. Die Form der Linien ergibt sich durch die Faltung der Auflösung des Spektrometers von 300 meV und den natürlichen Linienbreiten der jeweiligen Zustände von  $(111\pm3)$  meV und  $(103\pm3)$  meV, je nachdem ob es sich um  $4d_{5/2}^{-1}$  oder  $4d_{3/2}^{-1}$  handelt [49]. Diese Faltung aus einer Gauß- und einer Lorentz-Kurve wird Voigtfunktion genannt und wurde an 9 Linien gemeinsam an die Messung angepasst. Als freier Parameter bleibt nur noch die Höhe der einzelnen Peaks. Die Breiten ergeben sich aus den obigen Werten und die Positionen aus den Literaturwerten in [101]. In Abbildung 4.17 sind neben dem gemessenen Spektrum die einzelnen Voigtfunktionen und deren Summe dargestellt. Die angepasste Kurve deckt sich sehr gut mit der Messung. In dem gestreakten Spektrum in Abbildung 4.18 wurde der gleiche Untergrund abzogen wie im feldfreien Fall. Die Messung zeigt neben einer deutlichen Verbreiterung der Linien auch eine Verschiebung des gesamten Spektrums, die darauf zurückzuführen ist, dass die relative Ankunftszeit des XUV-Pulses nicht beim Nulldurchgang des Vektorpotentials des THz-Pulses, sondern kurz dahinter liegt. Für Anpassung der gestreakten Auger-Linien wurden 9 Gauß-Verteilungen verwendet. Die Positionen wurden vorher definiert, indem die Verschiebung der ersten Linie, mit der geringsten Energie, relativ zum feldfreien Fall bestimmt wurde und anschließend die Verschiebungen der anderen Linien unter Einbezug der Tatsache berechnet wurden, dass die feldinduzierte Energieverschiebung  $W_{streak}$ mit der kinetische Energie ansteigt. Aus den relativen Peakhöhen der feldfreien Messung wurden bezogen auf die erste Linie die Höhen berechnet. Als freier Parameter bleibt die



**Abbildung 4.17:** Darstellung der Messung der  $N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$  Auger-Elektronen von Xenon (blau) ohne Einfluss des THz-Feldes mit angepassten Voigtfunktionen, die separat (grau) und als Summe (orange) abgebildet sind.



**Abbildung 4.18:** Darstellung der Messung der gestreakten  $N_{4,5}O_{2,3}O_{2,3}$  Auger-Elektronen von Xenon (blau) mit angepassten Gauß-Verteilungen, die seperat (grau) und als Summe (orange) abgebildet sind.

Breite der Gauß-Funktionen übrig, wobei zur Vereinfachung angenommen wurde, dass alle Linien gleich breit sind. Der Anstieg der Streak-Geschwindigkeit mit der kinetischen Energie wird nicht berücksichtigt. Dadurch werden mit steigender Energie die Breiten der Linien geringfügig unterschätzt und die Höhen entsprechend überschätzt. In Abbildung 4.18 sind ebenfalls neben der Messung zusätzlich die einzelnen Gauß-Verteilungen und ihre Gesamtsumme eingetragen. Die berechnete Kurve passt gut zu den Messergebnissen, insbesondere im Bereich der ersten Auger-Linie.

Die Linienbreite im feldfreien Fall ist  $\sigma_U = 0.38 \text{ eV}$  und im gestreakten Fall  $\sigma_s = 1.18 \text{ eV}$ . Aus der natürliche Linienbreite des  $4d_{5/2}^{-1}$  Zustandes kann mit Formel 2.2 die Lebensdauer von 5,9 fs berechnet werden. Daraus ergibt sich eine asymmetrische Verbreiterung der gestreakten Auger-Linie, die vernachlässigt werden kann (siehe Abschnitt 2.5.4). Zudem gab es während der Messung eine leichte Verschiebung der CE-Phase des THz-Feldes, der sich in einer kontinuierlichen Verschiebung der kinetischen Energien der gemessenen Elektronen von 100 meV bemerkbar macht. Eine Entfaltung der bestimmten Linienbreite mit der Weite der Verschiebung zeigt ebenfalls eine vernachlässigbare Auswirkung. Der Einfluss der Gouy-Phase ist der gleiche wie bei den Neonmessungen  $\tau_G = 9$  fs. Bei einer Streak-Geschwindigkeit von 24 meV/fs ergibt sich nach Formel 2.67 und der Entfaltung mit  $\tau_G$  eine Pulsdauer von 45,7 fs. Die Auswirkung von FAPCI (siehe 2.5.4) ist schwierig zu beziffern. Eine sehr grobe Abschätzung liefern die Messungen und Simulationen von Schütte et al. am freien Elektronen Laser FLASH [88]. Bei einer Photonenenergie von 92 eV wurden ebenfalls die  $N_{4.5}O_{2.3}O_{2.3}$  Auger-Elektronen von Xenon im THz-Feld untersucht. Im ansteigenden Vektorpotential zeigte sich im Vergleich zum Abfallenden eine stärkere Verbreiterung der gestreakten Auger-Linie. Bei einer deutlich höheren Streak-Geschwindigkeit als in den hier vorgestellten Messungen ergab sich eine Asymmetrie von etwa 20%. Selbst wenn dieser unrealistisch große Wert auf die vorliegenden Spektren bezogen wird, ergäbe sich noch eine Pulslänge von über 40 fs.

Zusammenfassend kann für die Dauer der vorliegenden XUV-Pulse nur eine obere Grenze von 30 bis 40 fs bestimmt werden. Diese Werte weichen stark von den erwarteten Pulsdauern im Bereich von 10 fs ab. Für diese Diskrepanz kommen drei Hauptgründe in Frage:

- 1. Schon mit der Hohlfaser werden Pulsdauern im Bereich von 30 bis 40 fs generiert.
- 2. Die Harmonischen erfahren bei der Propagation von der Quelle zum Experiment unbekannte dispersive Einflüsse.
- 3. Die Messungen werden durch systematische Fehler stärker verfälscht als es berücksichtigt wurde, weil bei den Photoelektronen eine komplizierte spektrale Phase und bei den Auger-Elektronen die Auswirkungen von FAPCI nicht richtig einbezogen wurden.

Gegen den ersten Punkt spricht der Vergleich der Pulsparameter vor und nach dem Umbau der Harmonischenquelle. Mit Pulsenergien, die um den Faktor 3 geringer sind als früher, werden unter Verwendung eines Fokussierspiegels der gleichen Brennweite auch die gleichen Ordnungen der Harmonischen erreicht. Das heißt es müssen ähnliche Intensitäten im Gas vorliegen. Das ist aber nur möglich, wenn entweder die Pulse aus dem HFC deutlich kürzer sind als die früheren von 25 fs Länge oder aber der kollimierte Strahldurchmesser wesentlich größer als früher ist und damit der Fokus im Verhältnis verkleinert wurde. Letzteres ist allerdings nicht der Fall. Tatsächlich kann nicht ausgeschlossen werden, dass zwei oder sogar alle drei genannten Aspekte zutreffen.

#### 4.6 Profil des atomaren Magnesiumstrahles

In einem separaten Testexperiment wurde das Profil des erzeugten atomaren Magnesiumstrahles aufgenommen. Zu diesem Zweck wurde in 3 mm Abstand zur Öffnung ein Objektträger positioniert. Zwischen der Öffnung und dem Glas befand sich ein manuell bewegliches Blech, mit dem der Strahlweg schnell abgeschirmt bzw. freigegeben werden konnte. Die Temperatur wurde langsam erhöht bis sich auf dem Blech eine aufgedampfte Schicht abzeichnete. Dann wurde bei auf einige Grad konstanter Temperatur für 180 Sekunden der Objektträger bedampft. Das Thermoelement befand sich in unmittelbarem Kontakt mit dem Heizdraht. Zwar war die Kartusche des Ofens fast vollständig und nahe vom Heizdraht umgeben, trotzdem kann angenommen werden, dass die Temperatur im Inneren des Ofens möglicherweise etwas geringer war. Gemessen wurde bis 700 °C, die innere Temperatur entsprach abgeschätzten 650 bis 700 °C. In früheren Experimenten wurden Öfen bei 100° bis 200° weniger betrieben [102, 55, 15]. In den genannten Publikationen wurden andererseits auch deutlich geringere Teilchendichten benötigt, weil für die Untersuchungen Synchrotronstrahlung oder Elektronenstrahlen verwendet wurden. Durch die unerwartet hohen benötigten Temperaturen ergibt sich ein Teilchenstrahl im Grenzbereich der Effusivität. Das zeigt sich bei der Berechnung der mittleren freien Weglänge  $\lambda$  nach Formel 2.73. Bei den Dampfdrücken von 437 Pa und 1004 Pa für 650 und 700°C, die anhand der Dampfdruckkurve im Anhang A abgelesen werden können, ergeben sich die mittleren freien Weglängen  $\lambda_{650} = 292 \,\mu\text{m}$  und  $\lambda_{700} = 134 \,\mu\text{m}$ . Sie sind ähnlich groß wie der Durchmesser der Öffnung von  $200\,\mu\text{m}$ , so dass sich die Knudsen-Zahlen mit  $kn_{650} = 1.5$  und  $kn_{700} = 0.7$  in einem Bereich befinden, in dem sich die Atome durch Stöße gegenseitig beeinflussen. Das aufgedampfte Profil ist trotzdem ein wohldefinierter Kreis von ungefähr 6,5 mm sichtbarem Durchmesser.

Mit einem interferometrischen Mikroskop wurde die Dicke des aufgedampften Magne-



**Abbildung 4.19:** Die Graphik zeigt den Querschnitt des gemessenen Höhenprofils der Magnesiumschicht, die in 3 mm Abstand vom Ofen in 180 s auf einem Objektträger abgeschieden wurde (blau), die Glättung des gemessenen Querschnittes (orange), sowie die berechneten Höhenprofile für  $\beta = 0.33$  (schwarz) und eine dünnwandige Öffnung mit  $\beta \rightarrow \infty$  (rot). Für eine bessere Vergleichbarkeit wurden die maximalen Höhen der berechneten Profile an die Messung angepasst.

siums bestimmt. Aufgrund der radialen Symmetrie reichte die Messung eines schmalen Streifens von 0,3x6,6 mm über der Mitte des Profils. Eine zentrale Pixelreihe des Streifens ergibt einen Querschnitt des Strahlprofiles und ist in Abbildung 4.19 dargestellt. Die Messwerte weisen ein starkes Rauschen auf, zeigen aber ein deutliches fast symmetrisches Höhenprofil mit einem mittigen Maximum. Durch eine Glättung der Werte durch einen gleitenden Mittelwert ist das Profil besser interpretierbar. Wegen der radialen Symmetrie kann aus der Fläche des Querschnittes das Volumen des aufgebrachten Materials von 0,13 mm<sup>3</sup> berechnet werden. Die Dichte von Magnesium im festen Aggregatzustand beträgt 1,74 g/cm<sup>3</sup> und die Masse pro Atom 24,505 u ( $\approx 40 \cdot 10^{-24}$  g). Daraus folgt eine Gesamtmenge N von 5,6  $\cdot 10^{18}$  aufgedampften Magnesiumatomen und ein  $N_T$  von 3,1  $\cdot 10^{16}$  Teilchen, die entsprechend der Aufdampfzeit pro Sekunde die Öffnung des Ofens verlassen. Die Divergenz des Atomstrahles im Bezug auf die FWHM-Breite beträgt 95°.

Aus den theoretischen Ansätzen in Abschnitt 2.6 kann aus der Geometrie der Ofenöffnung, der Temperatur und dem Druck im Ofen berechnet werden, wie groß der Teilchenfluss ist und in welcher Winkelverteilung er auftritt. Die maßgebliche Relation für die Winkelverteilung ist der Quotient  $\beta$  aus dem Durchmesser der Öffnung und der Wandstärke. Den technischen Zeichnungen nach hat der Ofen bei einer Wandstärke von 0,6 mm ein  $\beta$  von 0,33. In Abbildung 4.19 ist die zugehörige Winkelverteilung projiziert auf ein planes Substrat im Abstand von 3 mm nach Formel 2.88 eingezeichnet. Das gemessene Profil ist deutlich breiter als das berechnete. Das zusätzlich abgebildete berechnete Profil für ein dünnwandige Öffnung ( $\beta \rightarrow \infty$ ) ist nur geringfügig breiter als das Gemessene und passt abgesehen von den Randbereichen von der Form recht gut dazu. Auch die Menge der Atome pro Sekunde liegt im dünnwandigen Fall am nächsten an der Berechnung auf Grundlage der Messung. In Tabelle 4.3 sind die Werte aus der Messung und der theoretischen Berechnungen zusammengefasst. Die Diskrepanz zwischen

	$\beta$	$N_T(s^{-1} \cdot 10^{15})$	Divergenz (°)
Messung		31	95
$650^{\circ}C, 300 Pa$	$0,\!33$	2,51	50
	$\rightarrow \infty$	12,6	105
$700^{\circ}C, 800 Pa$	$0,\!33$	$5,\!61$	50
	$ ightarrow\infty$	28,2	105

**Tabelle 4.3:** Gemessene und berechnete Werte der Teilchenzahl  $N_T$ , die pro Sekunde den Ofen verlassen für Temperaturen von 650 und 700 °C bei  $\beta$ -Quotienten von 0,33 und konvergierend gegen  $\infty$ . Zusätzlich ist die Divergenz bezüglich der FWHM-Breiten aufgeführt.

der Messung und den theoretisch ermittelten Werten hat ihren Ursprung in vermehrten Stößen der Atome untereinander. Wenn die mittlere freie Weglänge der Teilchen kürzer ist als der Kanal, ergibt sich effektiv eine kürzere Kanallänge als geometrisch vorliegt. Zusätzlich ist das Substrat mit 3 mm Abstand möglicherweise zu dicht an der Öffnung, um diese als Punktquelle zu betrachten.

Mit den ermittelten Werten kann zusammen mit der Kenntnis über die Fokusgröße und der Anzahl der Photonen pro XUV-Puls abgeschätzt werden, wie viele Elektronen im Mittel pro Puls durch Photoionisation freigesetzt werden. Zu diesem Zweck wird zunächst das Volumen bestimmt, in dem sich der Atom- und der XUV-Strahl überlagern. Für eine abschätzende Rechnung genügt es den XUV-Strahl als divergenzfrei und mit rechteckigem Profil entsprechend der Fokusgröße aus Abschnitt 4.2 zu betrachten. Demnach hat das Profil eine Höhe H von 20  $\mu$ m und eine Breite b von 250  $\mu$ m. Der THz-Strahl propagiert auf der z-Achse durch das Gasmedium, so dass das Volumen, in dem detektierbare Elektronen entstehen, auf dieser Achse durch den Akzeptanzbereich des Flugzeitspektrometers begrenzt wird. Der Bereich ist bei einem idealen Abstand von 5 mm zur Spektrometeröffnung und  $\pm 16^{\circ}$  Akzeptanzwinkel ungefähr 2,8 mm groß.



In Abbildung 4.20 wird aus zwei Perspektiven dargestellt, wie sich das quaderförmige

**Abbildung 4.20:** Skizze zur Abschätzung des Volumens, in dem Elektronen emittiert und detektiert werden können. Es ergibt sich aus dem Bereich in dem sich Atom- und der XUV-Strahl überlagern und dem Akzeptanzbereich des Spektrometers

Volumen geometrisch ergibt. Das oben ermittelte Abstrahlprofil für den Abstand von 3 mm kann linear skaliert werden und so an den Abstand des XUV-Strahles zur Ofenöffnung von circa 0,75 mm angepasst werden. Durch ein Integration der Strahlprofiles in diesem Abstand über die Fläche von  $250 \,\mu\text{m} \ge 2800 \,\mu\text{m}$  ergibt sich, dass ein Viertel der abgestrahlten Atome in diesem Bereich auftreffen. Die Teilchenzahldichte über die 20  $\mu\text{m}$  Höhe *H* des Quaders wird aufgrund der geringen Änderung als konstant angenommen. Die Menge an Atomen, die mit dem ultrakurzen XUV-Puls interagieren können, entspricht der Anzahl, die sich in einer Momentaufnahme in dem Volumen befinden. Dazu kann die mittlere Geschwindigkeit der Maxwellschen Geschwindigkeitsverteilung  $\overline{v} \approx 900 \,\text{m/s}$  herangezogen werden (siehe Abschnitt 2.6). Mit der folgenden Formel kann die Anzahl  $N_m$  der Atome berechnet werden, die sich zu jedem Zeitpunkt im definiertem Zielvolumen befinden:

$$N_m = \frac{0.25 N_T H}{\overline{v}}.\tag{4.5}$$

Daraus ergibt sich für  $N_m$  ein Wert von circa 172 · 10<sup>6</sup> Atomen. Das entspricht einem mittlerem Druck von etwa 1,7 · 10<sup>-3</sup>mbar bzw. der mittleren Teilchenzahl von 1,2 · 10<sup>13</sup> pro cm<sup>3</sup>. Die maximalen Werte auf der Mittelachse des Abstrahlprofiles zum Vergleich sind 2 · 10<sup>-1</sup>mbar und 1,5 · 10<sup>14</sup> Teilchen pro cm<sup>3</sup>.

Der Wirkungsquerschnitt für die 2p-Photoionisation im Bereich von 90 eV Photoenergie  $\sigma_{2p}$  beträgt 6 Mb [106, 44]. Die Wahrscheinlichkeit für eine Ionisation kann durch

$$W = \frac{\sigma_{2p} N_m N_P}{A} \tag{4.6}$$

berechnet werden. Dabei steht  $N_P$  für die Photonenzahl pro XUV-Puls (siehe Abschnitt 4.2) und  $A = H \cdot b$  für die Fläche des XUV-Fokus. Nach dieser Berechnung entstehen im Mittel 0,4 2p-Photoelektronen pro Puls der Harmonischen.

Die Charakterisierung des Atomstrahles lässt außerdem eine gute Abschätzung des Einflusses der Gouy-Phase auf eine Streak-Messung zu. An das Strahlprofil für den Abstand von 0,75 mm zur Öffnung des Ofens wurde eine Gauß-Funktion angepasst, die sich gut mit dem Profil deckt. Mit der vollen Halbwertsbreite von 0,83 mm und  $d\Phi = (61 \pm 4) \text{ mrad/mm}$  aus Abschnitt 4.4.3 kann nach Formel 2.71 der Gouy-Phasenverschiebung eine Pulsdauer von  $\tau_G = 9,7$  fs zugeordnet werden.

# Kapitel 5

# Spektroskopie und THz-Streaking an atomarem Magnesium

Mit dem Atomstrahlofen konnte eine ausreichende Teilchendichte des atomaren Magnesiums erzeugt werden, um mit ca. 90 eV-Photonen aus der Harmonischenquelle Elektronenspektren aufzunehmen. Darüber hinaus gelang es die Magnesiumatome mit der THz-Streak-Kamera zu vermessen. Im ersten Teil dieses Kapitels wird das feldfreie Spektrum genauer untersucht. Der zweite Teil widmet sich der Auswertung der Streak-Messung. Dabei zeigten sich Diskrepanzen im Bezug auf die Vermessung der Streak-Geschwindigkeit in Abschnitt 4.4.4 und der Pulsdauermessungen in Abschnitt 4.5. Da die Messung in sich schlüssig interpretiert werden kann, werden die Widersprüchlichkeiten erst am Ende diskutiert.

# 5.1 Magnesium-Spektrum

Für die Erzeugung des Magnesiumsdampfes wurde der Ofen im gleichen Temperaturbereich zwischen 650 und 700 °C betrieben, wie für die Messungen in Abschnitt 4.6. Das aufsummierte Spektrum der Elektronen von  $10^6$  XUV-Pulsen wird in Abbildung 5.1-links dargestellt. Eine Verschiebung der mittleren Photonenergie der XUV-Pulse im Verlauf der Messung, wie in den Neon-Messungen in Abschnitt 4.5 wurde nicht festgestellt. Zum Vergleich ist in 5.1-links ein Spektrum aus einem Synchrotron-Experiment abgebildet [39]. Wenn berücksichtigt wird, dass in der Vergleichsmessung Photoelektronen mit 80 eV Energie verwendet wurden, dann stimmen die Positionen der Peaks in beiden Spektren sehr gut überein. Das gilt auch für weitere Literaturwerte aus [52], [16] und [51]. Magnesium hat die Ordnungszahl 12 und die entsprechende Elektronenkonfiguration  $1s^22s^22p^63s^2$  im Grundzustand. Für den Überblick über die möglichen Einzelund Doppelionisationen ist in der Graphik 5.2 ein Termschema abgebildet, in dem unter anderem die erreichbaren Vakanzen in den Elektronenschalen abgelesen werden können.



Abbildung 5.1: Links: In dieser Arbeit gemessenes Elektronenspektrum von atomarem Magnesium bei Photonenenergien von 91 eV. Rechts: Vergleichsspektrum bei Photonenenergien von 80 eV mit Werten, die aus [39] entnommen wurden

Bei den vorliegenden Photonenenergien wurden noch keine 2s-Elektronen ionisiert. Aber mit der Ionisationenergie von 57,7 eV können die 2p-Elektronen dem Peak bei 33,3 eV kinetischer Energie zugeordnet werden. Daraus kann geschlussfolgert werden, dass die Photonenergie eher bei 91 als bei 90 eV lag. Die Anzahl der detektierbaren 3s-Elektronen (0,1 Mb) ist im Vergleich zu den 2p-Elektronen (6 Mb) sehr gering [39] und daher nicht im dargestellten Energiebereich des Spektrums. Bei den Energien unterhalb der 2p-Photolinie sind zwei ausgeprägte Satelliten zu erkennen (siehe Abschnitt 2.1.2). Durch Shake-Up-Prozesse bei der 2p-Ionisation können 3s-Elektronen in angeregte Zustände in den 3p- und 4s-Niveaus angehoben werden. Die Photoelektronen verlieren dann die entsprechende Energie.

Aus dem Spektrum konnte ermittelt werden, dass pro Puls 0,17 Elektronen aus der 2p-Schale detektiert wurden. Typischerweise werden nur Bruchteile der freigesetzten Elektronen mit dem Flugzeitspektrometer erfasst. Trotzdem ist die konservative Abschätzung aus Abschnitt 4.6 von 0,4 Elektronen pro Puls in der richtigen Größenordnung.

Wie im Termschema in Abbildung 5.2 angezeigt, kann der Lochzustand  $2p^{-1}$  bzw.  $2p^{5}3s^{2}$  durch die Emission eines Photons oder durch einen Auger-Prozess zerfallen. Die Doppelionisation durch den Auger-Zerfall ist mit 99,1% Wahrscheinlichkeit gegenüber der Emission eines Photons mit 0,9% Wahrscheinlichkeit der dominierende Prozess [52]. Die Auger-Elektronen haben eine kinetische Energie von 35 eV und sind im Spektrum in 5.1 deutlich auszumachen. Wenn die angeregten Zustände nach einem Shake-up am Auger-Prozess beteiligt sind, dann erhalten die Auger-Elektronen entsprechend mehr kinetische Energie und es entstehen zusätzliche Peaks, die Auger-Satelliten.

Die Auflösung des Spektrometers ist nicht ausreichend um die Feinstrukturaufspaltung



**Abbildung 5.2:** Termschema der Zerfallskanäle von einfach ionisiertem atomaren Magnesium im Zustand  $2p^{-1}$ . Der schwarze Pfeil kennzeichnet den photonischen Übergang und die blauen die Auger-Zerfälle. Zusätzlich werden die Energien der Photoelektronen der ersten Ionisation im Vergleich zur Photonenergie und die Energien der Auger-Elektronen angegeben. Mögliche Anregungen durch Shake-up sind als Energiebereiche dargestellt. Alle Energien sind in Elektronenvolt angegeben. (Werte entnommen aus [52] und [16])

der 2p-Zustände durch Spin-Bahn-Kopplung aufzulösen. Es gibt tatsächlich die zwei Zustände  $2p_{1/2}^{-1}$  und  $2p_{3/2}^{-1}$  mit dem Abstand 0,278 eV zueinander. Durch diese Aufspaltung ergeben sich auch zwei Auger-Linien  $L_2$ - und  $L_3M_1M_1$  bei den Energien 34,87 und 35,15 eV, wobei die zweite Linie nur die Hälfte der Intensität der ersten aufweist [16]. Anhand der gemeinsamen Breite der beiden Auger-Linien von 0,56 eV im vorliegenden Spektrum lässt sich ableiten, dass die Auflösung nahe an der technischen Grenze des Spektrometers von 0,3 eV liegt. In den siebziger und achtziger Jahren wurden spektrale Breiten von 30 und 35 meV gemessen, die aber auch durch das jeweilige Auflösungsvermögen begrenzt wurden [16, 32]. Nach Formel 2.2 können diesen spektralen Breiten Lebensdauern von 22 und 18 fs zugeordnet werden, die aber nur als untere Grenze der tatsächlich möglichen Lebensdauern betrachtet werden können. A. Niehaus nimmt in [70] eine spektrale Breite von 1,36 meV für die Zustände  $2p_{1/2}^{-1}$  und  $2p_{3/2}^{-1}$  an. Das entspräche einer sehr langen Lebensdauer von ungefähr 500 fs. In der genannten Veröffentlichung wird jedoch nicht klar, wie auf diesen Wert geschlossen wird.

#### 5.2 THz-Streaking

Unmittelbar vor dem Heizen des Ofens wurde das THz-Feld anhand von Neonspektren vermessen, um die Funktionsfähigkeit der Streak-Kamera, sowie Feld und Phase zu überprüfen. Das Ergebnis entsprach der Messung in Abbildung 4.12. Für die feldfreien und die gestreakten Spektren des atomaren Magnesiums in Abbildung 5.3 wurden die Elektronen aus jeweils 500.000 Pulsen vermessen. Die Verschiebung der Photolinie von 0,6 eV zeigt, dass der Nulldurchgang des THz-Vektorpotentials leicht verfehlt wurde.

Entgegen der Erwartung spalten sich die gestreakten Auger-Elektronen in drei sichtbare Peaks auf. Es tritt keine spektrale Verteilung auf, die einer Faltung aus Gaußund Exponentialfunktion entspricht (siehe Abschnitt 2.5.4). Je nach Verhältnis zwischen XUV-Pulsdauer und Lebensdauer des Lochzustandes müsste die Verteilung eher gaußartig oder eher exponentiell geformt sein.

Es wäre denkbar, dass der THz-Strahl zu nahe an der metallischen Spitze des Ofens verläuft und durch die Störung mehrere Feldmaxima im THz-Fokus auftreten. Oder aber es liegen komplizierte Substrukturen in der zeitlichen Verteilung der XUV-Pulse vor. In beiden Fällen müssten jedoch die Photoelektronen die gleiche Aufspaltung erfahren wie die Auger-Elektronen, daher können sie ausgeschlossen werden. Es wurde zudem keine Verschiebung der Phase des THz-Feldes im Verlauf der Messung festgestellt (vergleiche



**Abbildung 5.3:** Vergleich des feldfreien und des gestreakten Elektronenspektrums von atomarem Magnesium

Abschnitt 4.5).

Bisher wurde die Feinstruktur der Auger-Linien noch nicht mit in Betracht gezogen. Die Zerfallsprozesse beider Zustände beginnen immer zum Zeitpunkt der Ionisation. Sie können daher nicht zeitlich versetzt zueinander liegen. Es handelt sich aber um quantenmechanische Zustände, die dementsprechend unter bestimmten Umständen miteinander interferieren können. Solange das 2p-Photoelektron noch nicht detektiert wurde, bleibt auch dessen Spin unbestimmt, so dass sowohl der  $2p_{1/2}^{-1}$  als auch der  $2p_{3/2}^{-1}$ Zustand möglich ist und damit beide die Energie und Form des Wellenpaketes des Auger-Elektrons definieren. Mit der De-Broglie-Gleichung  $f = h E_{kin}$  können aus den beiden möglichen kinetischen Energien die entsprechenden Frequenzen der Materiewellen bestimmt werden. Bei der Superposition der beiden Wellen entsteht aus dem Frequenzunterschied eine sinusförmige Schwebung der zeitlichen Verteilung des Wellenpaketes, deren Periode gegeben ist durch die Gleichung  $T_S = 2/|f_1 - f_2|$ . Das Betragsquadrat ergibt die Wahrscheinlichkeitsdichte des Elektronenwellenpaketes. Die Einhüllende bildet eine abfallende Exponentialverteilung in der sich entsprechend der quadrierten Wellen in Abständen von  $T_S/2$  Maxima ausbilden, wie in Abbildung 5.4 skizziert wird. Aus den vorliegenden überlagerten Zuständen der  $L_2$ - und  $L_3M_1M_1$  Auger-Linien resultiert ein Abstand von 14.88 fs zwischen den Interferenzmaxima der Wahrscheinlichkeitsdichte. A. Niehaus wies schon 1976 auf die Möglichkeit hin diese Interferenzstrukturen im Spek-

trum der *LMM* Auger-Elektronen von atomarem Magnesium zu messen [70]. Die Auger-Elektronen sollten einen zeitabhängigen Energieübertrag durch PCI mit sehr langsamen Photoelektronen erfahren, so dass die modulierte zeitliche Verteilung Substruktu-



**Abbildung 5.4:** Graphische Veranschaulichung der Wahrscheinlichkeitsdichte eines Elektronenwellenpaktes aus zwei überlagerten zerfallenden Energiezuständen, die eine Schwebung hervorrufen.

ren im Spektrum hervorruft. Die Beschleunigung von Elektronen in Abhängigkeit ihres Emissionszeitpunktes entspricht genau dem Prinzip der Streak-Messung. Der Quotient aus dem Energieabstand  $\Delta E$  der Peaks im gestreakten Spektrum und der zeitlichen Abstände der Maxima der Wahrscheinlichkeitsdichte  $T_S/2$  entspricht der mittleren Streak-Geschwindigkeit. In der Abbildung 5.5 sind die Energien der Maxima relativ zur Position der Auger-Linie im ungestreakten Spektrum bezüglich der Zeit aufgetragen. Da sich die Energieabstände zwischen den Interferenzmaxima unterscheiden, wurde die Steigung von 91 ± 14 meV/fs einer angepassten Geraden als vorliegende Streak-Geschwindigkeit angenommen. In Anbetracht der Phase der feldinduzierten Energieverschiebung  $W_{streak}$  in Abschnitt 4.4.4 liegt die Verteilung der Auger-Elektronen in einem Bereich von weniger als ±2 eV noch sehr gut im linearen Abschnitt. Für die kinetische Energie von 35 eV entspricht die Streak-Geschwindigkeit von 91 ± 14 meV/fs einer elektrischen Feldstärke von etwa 26±4 MV/m.

Anhand der Verbreiterung der Photolinie durch das THz-Feld sollte eine Abschätzung der XUV-Pulsdauer möglich sein. Tatsächlich ist im Vergleich mit der feldfreien Messung keine Verbreiterung ersichtlich. Unterschiede von bis zu 300 meV sind jedoch nicht mehr gut messbar, denn die Auflösung des Spektrometers beträgt bestenfalls 300 meV. Außerdem handelt es sich eigentlich um zwei Spektrallinien und der Untergrund der beiden Messungen ist unterschiedlich. Bei einer Verbreiterung von 100, 200 oder 300 meV ergeben sich Pulsdauern von 6,3 oder 9,1 bzw. 11,3 fs. Diese Werte passen zu der erwarteten Pulsdauer von weniger als 10 fs, jedoch nicht zu den Messungen in Abschnitt 4.5. Im Gegensatz zu den gestreakten Auger-Elektronen treten bei den 2p-Photoelektronen



**Abbildung 5.5:** Energieabstände  $\Delta E$  und zeitliche Abstände  $T_S/2$  der Interferenzmaxima des gestreakten Spektrums aus Abbildung 5.3 und die Angepasste lineare Funktion mit Steigung  $s = 91 \pm 14 \text{ meV/fs}$ 

keine Interferenzen in Erscheinung, obwohl sie die gleiche Feinstrukturaufspaltung aufweisen. Dies unterstützt die Hinweise auf eine Dauer der XUV-Pulse, die geringer ist als die Abstände der Interferenzmaxima. In der Einhüllenden des Elektronen-Wellenpakets könnten sich demnach in den Flanken nur kleine Maxima ausbilden, die im Spektrum nicht erkennbar sind. Andererseits wäre dann statt der spektralen Breite der Einhüllenden, nur die Breite des schmaleren Hauptmaximums bestimmbar. In Anbetracht spektralen Ausdehnung der Photoelektronen von ohnehin deutlich über 1 eV könnte sein, dass die Auswirkungen der Interferenzen einfach überlagert werden.

# 5.3 Simulation mit Wignerfunktion

Um weitere Aussagen über die zeitliche Dynamik der Zerfallenden Lochzustände zu treffen, wurde mit der Software LabVIEW ein Programm geschrieben, mit dem die Messungen simuliert werden können. Dabei wurde auf die Wignerfunktion zurückgegriffen, deren Implementierung ein Teil der LabVIEW-Bibliothek ist. In ihrer ursprünglichen Form können mit dieser Funktion die Wellenfunktionen quantenmechanischer Zustände in eine Quasi-Wahrscheinlichkeitsverteilung im Phasenraum überführt werden. Auf die gleiche Art und Weise kann auch eine Darstellung im Zeit- und Frequenzraum erzeugt werden. Die Wignerfunktion ist dann folgendermaßen definiert:

$$W(t,f) = \int \Psi(t+T/2)\Psi^*(t-T/2)\exp(-i\,f\,T)\,dT.$$
(5.1)

Eine detaillierte Erläuterung der Eigenschaften und Herleitung der Wignerfunktion ist zum Beispiel in [19] zu finden. Als anschauliches Beispiel ist in Abbildung 5.6 die Wignerverteilung eines Gaußschen Wellenpaketes mit einer mittleren Energie von 5 eV und eine Dauer von 15 fs dargestellt. Der Einfluss des Streak-Feldes wird durch einen linearen Anstieg der kinetischen Energie mit der Zeit einbezogen. Der untere Teil des Bildes zeigt die zeitliche Entwicklung des Wellenpakets. Die Projektion der Wignerfunktion auf die Zeit- bzw. Frequenzachse ergibt die Wahrscheinlichkeitsdichte im Zeitbereich bzw. im Frequenzraum. Dem Konzept der Streak-Kamera entsprechend zeigt sich durch die zeitabhängige Energieverschiebung die zeitliche Verteilung des Wellenpaketes auch im Spektrum. Ohne diese Verschiebung ergibt sich erwartungsgemäß ein fourierlimiertes Spektrum.

Für die Simulation der Streak-Messungen wurden das Auger-Wellenpaket durch die Gleichung

$$\Psi_A(t) = \sum_{k=2}^{3} A_k \exp\left[\frac{-t}{2\,\tau_A}\right] \,\cos\left[\left(\omega_0 + \omega_k\right)t + \frac{\pi\,s}{4,136}\,t^2\right]$$
(5.2)

beschrieben.  $\Psi_A(t)$  ist die Superposition aus den beiden Wellenpaketen der L<sub>2</sub>- und  $L_3M_1M_1$  Auger-Zerfälle. Dabei steht  $A_k$  für die maximale Amplitude des einhüllenden exponentiellen Zerfalles mit der Lebensdauer  $\tau_A$ ,  $\omega_0$  für die mittlere Kreisfrequenz der Materiewelle und  $\omega_k$  für die Größe der Feinstrukturaufspaltung der Zustände. Die feldinduzierte Energieverschiebung wird mit der Streak-Geschwindigkeit s einbezogen. Da süblicherweise in der Einheit eV/fs angegeben wird, ist die Umrechnung in  $1/s^2$  in der Formel durch den Divisor 4,136 gegeben. Diese Wert entspricht der Planck-Konstante h in eV multipliziert mit  $10^{15}$ . Der Index 2 in Gleichung 5.2 wird dem  $L_2$ - und der Index 3 dem  $L_3M_1M_1$  Auger-Elektron zugeordnet. Im vorigen Abschnitt wurden viele der Parameter schon aus der Literatur oder der Messung erhoben. Daraus ging hervor, dass die Emission eines  $L_2$ - doppelt so wahrscheinlich ist wie die eines  $L_3M_1M_1$ Auger-Elektrons.  $A_2$  muss daher um den Faktor  $\sqrt{2}$  größer sein als  $A_3$ . Die mittlere Frequenz  $\omega_0$  entspricht der Energie 34,87 eV. Der Feinstrukturaufspaltung wird Rechnung getragen indem  $\omega_2$  gleich 0 und  $\omega_3$  gleich 0,278 eV ist. Für s wird der Wert aus der angepassten linearen Funktion in Abbildung 5.5 von 91 meV/fs verwendet. In Abbildung 5.7 ist die Simulation für das Wellenpaket  $\Psi_A(t)$  mit den genannten Werten und einer Lebensdauer  $\tau_A$  von 20 fs dargestellt. In der Einhüllenden des Wellenpakets zeichnet sich direkt die erwartete Schwebung ab. Die Frequenz der Materiewelle allerdings ist zu groß um in diesem Graphen aufgelöst zu werden. Die Interferenzmaxima in der Wahrschein-



**Abbildung 5.6:** Zweidimensionale Darstellung der Wignerfunktion eines gestreakten Gaußschen Wellenpakets bei s = 100 meV/fs. Die Projektion auf die Zeit- bzw. Frequenzachse ergibt die Wahrscheinlichkeitsdichte im Zeitbereich bzw. im Frequenzraum.

lichkeitsverteilung haben die Abstände von ungefähr 14,9 fs und entsprechen damit der Berechnung im vorigen Abschnitt. Durch das Streaking zeichnet sich die zeitliche Dynamik des Zerfallsprozesses im Spektrum ab. Die kleineren Substrukturen im Spektrum haben vermutlich keine physikalische Begründung sondern entstehen durch Artefakte in der numerischen Simulation.

Um die Simulationsergebnisse mit der Messung zu vergleichen muss noch ein zusätzliches Verschmieren des Spektrums durch die zeitliche Ausdehnung des XUV-Pulses und durch den Einfluss der Gouy-Phase beachtet werden. Beiden können gaußförmige Spektren bestimmter Breite zugeordnet werden, mit denen das gestreakte Auger-Spektrum gefaltet werden muss. Da die Faltung assoziativ ist, können die Spektren von XUV-Puls und Gouy-Phase auch zunächst miteinander gefaltet werden und danach mit dem Auger-Spektrum. Angegeben wird im folgenden immer die Faltung  $\tau$  der Pulsdauern



Abbildung 5.7: Darstellung der Wignerverteilung des gestreakten Wellenpakets  $\Psi_A(t)$  aus Formel 5.2 für die Lebensdauer von 20 fs und eine Streakgeschwindigkeit *s* von 91 meV/fs.

 $\tau_{XUV}$  und  $\tau_G$  (siehe Abschnitt 4.4.3), deren gemeinsames Spektrum ebenfalls mit dem beschriebenen Programm bestimmt wurde.

Die Simulation der Messung wurde für verschiedene Pulsdauern  $\tau$  und Lebensdauern  $\tau_A$ durchgeführt. Für eine bessere Vergleichbarkeit wurde von dem gemessenen Spektrum aus Abbildung 5.3 eine linear abfallender Untergrund und ein angepasstes Gauß-Profil der Photoelektronen abgezogen. Abbildung 5.8 zeigt die Ergebnisse der Berechnungen bei einer Lebensdauer  $\tau_A$  von 25 fs für verschiedene Pulsdauern  $\tau$ . Das gemessene Spektrum wurde normiert und die simulierten Spektren wurden jeweils so angeglichen, dass die ersten Interferenzmaxima gleich hoch sind. Die Pulsdauer  $\tau$  definiert deutlich erkennbar die spektrale Auflösung. Bei 7 fs sind die Peaks noch bis zu einem Drittel ihrer Höhe getrennt, während sich bei 19 fs keine separaten Maxima mehr ausmachen lassen. Die größte Ähnlichkeit zur Messung zeigt sich bei  $\tau = 13$  fs. Diese Pulsdauer entspricht bei einem Wert  $\tau_G$  von 9,7 fs (siehe Abschnitt 4.6) einem XUV-Puls von 9 fs Dauer, was



**Abbildung 5.8:** Gemessenes gestreaktes Spektrum der  $L_2$ - und  $L_3M_1M_1$  Auger-Elektronen von atomarem Magnesium (blau) im Vergleich mit simulierten Spektren mit angenommener Lebensdauer  $\tau_A$  von 25 fs bei Pulsdauern  $\tau$  von 7, 10, 13, 16 und 19 fs (orange)



**Abbildung 5.9:** Gemessenes gestreaktes Spektrum der  $L_2$ - und  $L_3M_1M_1$  Auger-Elektronen von atomarem Magnesium (blau) im Vergleich mit simulierten Spektren mit angenommenen Lebensdauern  $\tau_A$  von 15, 20, 25, 30 und 35 fs bei einer Pulsdauer  $\tau$  von 13 fs (orange)
nach den Abschätzungen anhand der Photolinien des Spektrums im richtigen Bereich liegt.

Die Abstände der Maxima zueinander stimmen für die ersten Beiden von links jeweils sehr gut überein, für das dritte jedoch nicht. Eine mit der Zeit ansteigende Streak-Geschwindigkeit würde hier zu einer größeren Übereinstimmung der Peakpositionen führen, ist aber anhand des THz-Feldes nicht zu erklären, wie oben erläutert wurde. Die Berechnung mit einer erhöhten Streak-Geschwindigkeit, zum Beispiel um eine Standardabweichung, führt Erwartungsgemäß zu einer Annäherung der simulierten und gemessenen dritten Peaks auf Kosten der Übereinstimmung der Anderen.

In Abbildung 5.9 werden die berechneten Spektren für fünf Lebensdauern zwischen 15 und 35 fs bei einer Pulsdauer  $\tau$  von 13 fs mit der Messung verglichen. Je länger die Lebensdauer desto mehr Interferenzmaxima liegen in der exponentiell abfallenden Einhüllenden der berechneten Wellenpakete und damit auch im berechneten Spektrum. Gleichzeitig steigt mit  $\tau_A$  die relative Höhe des zweiten bezüglich des ersten Maximums an. Im Hinblick auf Anzahl und Ausprägung der Interferenzmaxima im Bereich um 36 eV stimmt die Berechnung für 15 fs Lebensdauer am besten mit der Messung überein. Für die ersten beiden Maxima passen die Berechnungen mit Lebensdauern von 30 und 35 fs besser.

Einige Effekte können zu kleineren Abweichungen zwischen der Messung und der Simulation der Spektren führen. Für eine bessere Vergleichbarkeit wurde von der Messung ein abgeschätzter Untergrund abgezogen. Wenn dieser Untergrund sich anders verhielte als oben beschrieben, dann würden sich auch die relativen Höhen der Maxima verändern. Im Prinzip könnte der erhöhte zweite Peak im Vergleich zum Ersten auch auf eine Vermischung von feldfreien und gestreakten Spektren zurückgeführt werden, da sich die schmalen Auger-Linien genau in diesem Bereich befinden. Die 500.000 Pulse der Messung wurden in 20 Abschnitte aufgeteilt so wie in Abschnitt 4.5 die Messungen an Neon. In den Teilspektren zeigen sich die gleichen Strukturen, wie im Gesamtspektrum. Hinweise auf feldfreie Messabschnitte oder Drifts sind nicht vorhanden. Ein Fehlen des THz-Feldes in kurzen Intervallen ist bisher nicht beobachtet worden. Bei der Vermessung von  $W_{streak}$  (siehe Abschnitt 4.4.4) hätte dieses Verhalten auffallen müssen.

Um grob Abzuschätzen in welchem Maße PCI Einfluss auf die Messung nimmt, wurde berechnet wie lange es nach der Emission eines Auger-Elektrons dauert bis es das Photoelektron überholt und in welchem Abstand zum Atom dies stattfindet. Wenn das Auger-Elektron 5 fs nach der Photoionisation emittiert wird, erreicht es das Photoelektron nach 100und einer Strecke von 330 nm. Nach 10 fs sind es schon 175 fs zum Überholen und 600 nm Abstand. In der sehr vereinfachten Anschauung eines instantanen Wechsels vom doppelt ins einfach ionisierte Coulomb-Potential des Atoms beim Überholvorgang würden ungefähr 4 bzw. 2 meV kinetischer Energie auf das Auger-Elektron übergehen (siehe Abschnitt 2.1.2). Nach dieser Rechnung läge folglich ein geringfügiger nichlinearer Chirp der Auger-Wellenpakete vor, wie in Abschnitt 2.5.4 beschrieben wurde. Die Auswirkungen auf das gestreakte Spektrum sind vermutlich klein, trotzdem könnte zukünftig in einer erweiterten Simulation versucht werden dies mit Einzubeziehen.

In Anbetracht der Simulationsergebnisse ist insgesamt eine vorsichtige Abschätzung der Lebensdauer des  $2p_{1/2}^{-1}$  und des  $2p_{3/2}^{-1}$ -Zustandes auf 15 bis 25 fs gerechtfertigt.

#### 5.4 Diskussion

Diese in sich konsistente Interpretation der Messungen an Magnesium weist deutliche Diskrepanzen gegenüber den Ergebnissen der Messungen an Neon auf. Während mit Neon eine elektrische Feldstärke des THz-Pulses von  $7,8\,\mathrm{MV/m}$  gemessen wurde (siehe Abbildung 4.13), müsste beim Magnesium ein Feld der Stärke 26 MV/m auftreten. Aus der Messung in Abschnitt 4.5 an Neon folgt zudem eine XUV-Pulsdauer von <40 fs, die einer Pulsdauer von <10 fs aus der Auswertung oben gegenübersteht. Eine zufällige Erhöhung der elektrischen Feldstärke um den Faktor 4 bei gleichzeitiger Verkürzung der XUV-Pulse um den gleichen Faktor ist sehr unwahrscheinlich. Bei der Deutung der Neon- oder der Magnesiumdaten werden scheinbar unbekannte Sachverhalte nicht korrekt berücksichtigt. Für die Neon-Ergebnisse spricht, dass es sich um ein etabliertes System für THz-Streaking handelt [87, 34]. Wenn für eine alternative Interpretation des gestreakten Magnesium-Spektrums aber die geringere Feldstärke aus der Neonmessung für die Simulation herangezogen wird, dann wäre die Streak-Geschwindigkeit nur etwa  $26 \,\mathrm{meV/fs}$ . Damit die Abstände der Interferenzmaxima im Spektrum der Messung entsprechen, müsste der Energieabstand zwischen den beiden interferierenden Zuständen 70 meV betragen. Die Größe der Feinstrukturaufspaltung ist aber gut bekannt (278 meV). Weder die Hyperfeinstruktur noch Zeeman- oder Stark-Effekt wirken sich in dieser Größenordnung aus, selbst dann wenn starke externe Felder anlägen. Da es bis jetzt keine Erklärung für diese Diskrepanz gibt, sollten weitere Messungen angestrebt werden.

## Kapitel 6

## Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen den vorliegenden Arbeit wurde eine THz-Streak-Kamera nach dem Vorbild der Arbeiten von U. Frühling und B.Schütte realisiert [87, 34]. Für die Elektronenspektroskopie mit einer Hohe-Harmonischenquelle, als essentieller Teil dieser Streak-Kamera, wurde ein kompakter Ofen entwickelt. Mit diesem können Temperaturen von bis zu 850°C erreicht und so eine große Anzahl Feststoffe kontrolliert verdampft werden. Dadurch vergrößert sich die Palette möglicher Untersuchungsobjekte für zeitaufgelöste Messungen mit der Streak-Kamera erheblich. An atomarem Magnesium wurde mit diesem experimentellen Aufbau die zeitliche Dynamik eines Auger-Zerfalles vermessen.

Aus der zeitlichen Verteilung der  $L_{2^-}$  und  $L_3M_1M_1$  Auger-Elektronen von atomarem Magnesium konnte die Lebensdauer der entsprechenden Lochzustände  $2p_{1/2}^{-1}$  und  $2p_{3/2}^{-1}$ im Bereich zwischen 15 und 25 fs eingrenzt werden. Damit ist dies die zweite direkte zeitliche Messung eines Auger-Zerfalles [65]. Da in reinen spektralen Messungen bisher nicht die nötige Auflösung erreicht wurde, handelt es sich sogar um die erste Bestimmung der Lebensdauer bzw. spektralen Breite der  $2p^{-1}$  Lochzustände von Magnesium. Dabei hat sich ein zusätzlicher quantenmechanischer Effekt im gestreakten Spektrum manifestiert, der so noch nicht beobachtet wurde. Eine starke Modulation in den Wellenpaketen der Auger-Elektronen konnte auf Interferenzen der beiden Lochzustände zurückgeführt werden. Diese Interpretation wird durch eine Simulation der überlagerten Wellenpakete im Streak-Feld unterstützt. Außerdem wurde das Phänomen bereits theoretisch vorhergesagt [70].

Der entwickelte Ofen ist speziell auf die Anwendung mit einer Hohe-Harmonischenquelle angepasst. Durch eine Minimierung der elektrischen Felder, die beim Heizprozess auftreten, kann der Ofen sehr nahe an der Interaktionszone betrieben werden ohne die emittierten Elektronen zu beeinflussen. Durch die hohe Gasdichte an der Öffnung des Ofens wird der Wirkungsquerschnitt erhöht. Trotz der verhältnismäßig geringen Energien der Harmonischen-Pulse, zum Beispiel im Vergleich zu einem Freie-Elektronen-Laser, können so Experimente an verdampften Festoffen durchgeführt werden. Bei der Erzeugung des Magnesiumdampfes wurde der Ofen bei Temperaturen von bis zu 700 °C betrieben. Die Dichte der Teilchen war groß und die Streufelder klein genug um mit Hilfe der Hohe-Harmonischenquelle Elektronenspektren zu messen.

Ein wesentlicher Anteil dieser Arbeit bestand darin die nötigen Apparaturen für die THz-Streak-Kamera einzurichten. In eine bestehende Harmonischenquelle wurde ein Hohlfaserkompressor eingebunden, was umfassende Umbauten im Bezug auf die verwendeten Optiken und der Laserstrahlwege beinhaltete. Das Ziel war es die Pulsdauern der Fundamentalen von 35 bis 40 fs auf ungefähr 10 fs zu reduzieren. Dabei wurden Harmonische bis zur 69. Ordnung erzeugt (10,9 nm, 113 eV).

Zusätzlich wurde eine auf optische Gleichrichtung basierende THz-Quelle aufgebaut und optimiert. Mit mehr als 0,13% Konversionseffizienz ist ein sehr guter Wert für einen ungekühlten elektro-optischen Kristall (LiNbO<sub>3</sub>) erzielt worden.

Die Ergebnisse der Vermessung der Länge der XUV-Pulse mit der THz-Streak-Kamera entsprachen nicht den Erwartungen. Bei der Untersuchung anhand von Photoelektronen von Neon ergab sich eine Pulsdauer von  $34 \pm 11$  fs, anhand von Auger-Elektronen aus Xenon sogar 45 fs. Wegen technischer Schwierigkeiten konnte statt mit zwei Elektronenspektrometern nur mit einem gemessen werden. Bei Streak-Messungen mit Photoelektronen konnte daher der Einfluss eines möglichen linearen Chirps der XUV-Pulse nicht in die Auswertung einbezogen werden. Ebenso verhält es sich mit dem energetischen Chirp den Auger-Elektronen aufgrund von PCI erhalten. Es sollte also ein zweites Elektronenspektrometer implementiert werden, um das Ausmaß dieser Effekte zu bestimmen. Um auszuschließen, dass schon die IR-Pulse, die für die Erzeugung der Harmonischen verwendet werden, deutlich länger sind als erwartet, sollten schon an dieser Stelle Messungen der Pulslängen durchgeführt werden.

Weiterhin sind bei der Interpretation der Streak-Messungen an Neon und Magnesium Unstimmigkeiten im Hinblick auf die XUV-Pulsdauer und die Feldstärke des THz-Pulses aufgetreten. Die Messreihen an beiden Gasen konnten aber jeweils in sich schlüssig ausgewertet werden. Während bei Neon eine XUV-Pulsdauer von 34 fs und eine maximale elektrische Feldstärke im THz-Fokus von 7,8 MV/m auftritt, zeigt sich bei Magnesium eine Pulsdauer von 9 fs und eine THz-Feldstärke von 26 MV/m. Weil diese Diskrepanz noch nicht aufgeklärt werden konnte, wären weitere Messungen an Magnesium sinnvoll. Mit einer Abtastung des vollen THz-Feldes durch eine zeitliche Verschiebung relativ zum XUV-Puls können weitere Erkenntnisse über die THz-Feldstärke gewonnen werden. In Zukunft könnte der vorgestellte experimentelle Aufbau für die zeitaufgelöste Vermessung von Auger-Prozessen in Atomen verwendet werden, die in unterschiedlichen Molekülen gebunden sind. Es ist schon lange bekannt, dass sich die Bindungsenergien von Rumpfelektronen durch Molekülbindungen des Atoms verschieben können [62]. Dies gilt auch für die kinetische Energien von Auger-Elektronen, die direkt von den Beteiligten Energieniveaus abhängen. Möglicherweise können aber zusätzlich noch Änderungen der zeitlichen Dynamik der Auger-Zerfälle festgestellt werden.

## Anhang A

# Dampfdruckkurve von Magnesium



Abbildung A.1: Dampfdruckkurve von Magnesium nach [2]. Die Kreuze markieren die angenommenen Arbeitspunkte des Ofens von  $650^{\circ}C/437$  Pa und  $700^{\circ}C/1004$  Pa in Abschnitt 4.6.

# Literaturverzeichnis

- [1] G.P. Agrawal. Nonlinear fiber optics. Optics and photonics. Academic Press, 1995.
- [2] C. B. Alcock, V. P. Itkin, and M. K. Horrigan. Vapour pressure equations for the metallic elements: 298-2500k. *Canadian Metallurgical Quarterly*, 23:309–313, 1984.
- [3] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. Sov Phys JETP, 64(6):1191–1194, 1986.
- [4] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein, and K. Nassau. Optically induced refractive index inhomogeneities in LiNbO3 and LiTaO3. *Applied Physics Letters*, 9(1):72–74, 1966.
- [5] P. Balcou, P. Sali'eres, A. L'Huillier, and M. Lewenstein. Generalized phasematching conditions for high harmonics: The role of field-gradient forces. *Phys. Rev. A*, 55:3204–3210, 1997.
- [6] S. Bauch and M. Bonitz. Theoretical description of field-assisted postcollision interaction in auger decay of atoms. *Phys. Rev. A*, 85, 2012.
- [7] P. Belland and J.P. Crenn. Gaussian approximation of the waveguide EH11 mode pattern in the far field. Optics Communications, 45(3):165 – 170, 1983.
- [8] T. Åberg. Unified theory of auger electron emission. *Physica Scripta*, 1992.
- [9] F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, H. K. Haugen, and F. A. Hegmann. Generation of 1.5 μj single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal. *Opt. Express*, 15(20), 2007.
- [10] Á. Börzsönyi, Z. Heiner, A.P. Kovács, M. P. Kalashnikov, and K. Osvay. Measurement of pressure dependent nonlinear refractive index of inert gases. *Opt. Express*, 18(25), 2010.

- [11] R. W. Boyd. Nonlinear Optics. Academic Press, 2003.
- [12] T. Brabec. Strong Field Laser Physics. Springer, 2009.
- [13] D.J. Bradley, B. Liddy, and W.E. Sleat. Direct linear measurement of ultrashort light pulses with a picosecond streak camera. Optics Communications, 2(8):391 – 395, 1971.
- [14] R. Brannath. Kompression von Pulsen eines Femtosekunden-Lasersystems in einem nichtlinearem Gasmedium. Master's thesis, Universität Hamburg, 2012.
- [15] B. Breuckmann and V. Schmidt. The K auger spectrum of the free magnesium atom. Zeitschrift für Physik, 268(2):235–239, 1974.
- [16] B. Breuckmann, V. Schmidt, and W. Schmitz. The electron spectrum following ionization and excitation of L-shell electrons in magnesium vapour. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 9(17):3037, 1976.
- [17] M. A. Brisk and A.D. Baker. Shake-up satellites in x-ray photoelectron spectroscopy. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 7(3):197 – 213, 1975.
- [18] C. Brückner. THz-Optiken für Bildgebungssysteme. PhD thesis, Friedrich-Schiller-Universitena, 2010.
- [19] W. B. Case. Wigner functions and weyl transforms for pedestrians. American Journal of Physics, 76(10):937–946, 2008.
- [20] S. Chapman and T.G. Cowling. The Mathematical Theory of Non-uniform Gases: An Account of the Kinetic Theory of Viscosity, Thermal Conduction and Diffusion in Gases. Cambridge University Press, 1970.
- [21] P. Clausing. Über die Strahlformung bei der Molekularströmung. Zeitschrift für Physik, 66(7):471–476, 1930.
- [22] P. Clausing. Über die Strömung sehr verdünnter Gase durch Röhren von beliebiger Länge. Annalen der Physik, 404(8):961–989, 1932.
- [23] P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71:1994–1997, Sep 1993.
- [24] R. B. Darling. Ee-527: Micro fabrication http://www2.ee.washington.edu/research/microtech/cam/ processes/pdf%20files/physicalvapordeposition.pdf, Stand: Feb. 2015.

- [25] J.C. Diels and W. Rudolph. Ultrashort laser pulse phenomena: fundamentals, techniques, and applications on a femtosecond time scale. Optics and photonics. Academic Press, 2006.
- [26] J.-H. Erbe. Aufbau und Charakterisierung einer gepulsten, Laser-basierten THz-Quelle unter Einsatz eines gekhlten Lithiumniobat-Kristalls. Master's thesis, University of Hamburg, 2013.
- [27] A. B. Fedotov, E. E. Serebryannikov, and A. M. Zheltikov. Ionization-induced blueshift of high-peak-power guided-wave ultrashort laser pulses in hollow-core photonic-crystal fibers. *Phys. Rev. A*, 76, Nov 2007.
- [28] J. Feng, H. J. Shin, J. R. Nasiatka, W. Wan, A. T. Young, G. Huang, A. Comin, J. Byrd, and H. A. Padmore. An x-ray streak camera with high spatio-temporal resolution. *Applied Physics Letters*, 91(13), 2007.
- [29] S. Feng and H. G. Winful. Physical origin of the gouy phase shift. Opt. Lett., 26(8):485–487, Apr 2001.
- [30] M. Ferray, A. L'Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus. Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(3), 1988.
- [31] G. Fibich and A. L. Gaeta. Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguides. Opt. Lett., 25(5):335–337, Mar 2000.
- [32] L. F. Forrest, G. K. James, K. J. Ross, and V. Pejcev. Alignment of the L3-shell of magnesium induced by electron excitation. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 16(24):4671, 1983.
- [33] J. Fraunhofer. Bestimmung des Brechungs- und des Farbenzerstreungs-Vermögens verschiedener Glasarten, in Bezug auf die Vervollkommnung achromatischer Fernröhre. Annalen der Physik, 56(7):264–313, 1817.
- [34] Ulrike Frühling. Lichtfeld getriebene Streak-Kamera zur Einzelschuss Zeitstrukturmessung der XUV-Pulse eines Freie-Elektronen Lasers. PhD thesis, Universität Hamburg, 2009.
- [35] J. G. Fujimoto, A. M. Weiner, and E. P. Ippen. Generation and measurement of optical pulses as short as 16 fs. *Applied Physics Letters*, 44(9):832–834, 1984.
- [36] E. Granados, L.-J. Chen, C.-J. Lai, K.-H. Hong, and F. X. Kärtner. Wavelength scaling of optimal hollow-core fiber compressors in the single-cycle limit. *Opt. Express*, 20(8):9099–9108, Apr 2012.

- [37] I. Grguraš, A. R. Maier, A. R. andMaier, T. Mazza, T.J. Kelly, P. Radcliffe, S. Düsterer, A.K. Kazansky, N.M. Kabachnik, Th. Tschentscher, et al. Ultrafast xray pulse characterization at free-electron lasers. *Nature Photonics*, 6(12):852–857, 2012.
- [38] R. Guillemin, S. Sheinerman, R. Püttner, T. Marchenko, G. Goldsztejn, L. Journel, R. K. Kushawaha, D. Céolin, M. N. Piancastelli, and M. Simon. Postcollision interaction effects in KLL auger spectra following argon 1s photoionization. *Phys. Rev. A*, 92, Jul 2015.
- [39] A. Hausmann, B. Kämmerling, H. Kossmann, and V. Schmidt. New approach for a perfect experiment: 2 p photoionization in atomic magnesium. *Phys. Rev. Lett.*, 61:2669–2672, Dec 1988.
- [40] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl. Velocity matching by pulse front tilting for large-area thz-pulse generation. Opt. Express, 10(21):1161–1166, Oct 2002.
- [41] J. Hebling, K. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K.A. Nelson. Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities. J. Opt. Soc. Am. B, 25(7):B6–B19, Jul 2008.
- [42] K. Helenelund, S. Hedman, .L Asplund, U. Gelius, and K. Siegbahn. An improved model for post-collision interaction (pci) and high resolution arLMM auger spectra revealing new PCI effects. *Physica Scripta*, 27(4):245, 1983.
- [43] B.L. Henke, E.M. Gullikson, and J.C. Davis. X-ray interactions: Photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at e = 50-30,000 ev, z = 1-92. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 54(2):181 – 342, 1993.
- [44] B.L. Henke, P. Lee, T.J. Tanaka, R.L. Shimabukuro, and B.K. Fujikawa. Lowenergy x-ray interaction coefficients: Photoabsorption, scattering, and reflection. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 27(1):1 – 144, 1982.
- [45] M. C. Hoffmann, K. Yeh, J. Hebling, and K. A. Nelson. Efficient terahertz generation by optical rectification at 1035 nm. *Opt. Express*, 15(18):11706–11713, Sep 2007.
- [46] S. Huang, G. Cirmi, J. Moses, K. Hong, S. Bhardwaj, J. R. Birge, L. Chen, E. Li, B. J. Eggleton, G. Cerullo, and F. X. Kner. High-energy pulse synthesis with sub-cycle waveform control for strong-field physics. *Nature Photonics*, 5:475–479, 2011.

- [47] S. Huang, E.Granados, W. B. Case, R. Huang, K.-H. Hong, L. E. Zapata, and F. X. Kärtner. High conversion efficiency, high energy terahertz pulses by optical rectification in cryogenically cooled lithium niobate. *Opt. Lett.*, 38(5):796–798, Mar 2013.
- [48] J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, M. Yu. Ivanov, F. Krausz, and P. B. Corkum. Attosecond streak camera. *Phys. Rev. Lett.*, 88:173903, Apr 2002.
- [49] M. Jurvansuu, A. Kivimäki, and S. Aksela. Inherent lifetime widths of ar  $2p^{-1}$ , kr  $3d^{-1}$ , xe  $3d^{-1}$ , and xe  $4d^{-1}$  states. *Phys. Rev. A*, 64:012502, Jun 2001.
- [50] Roland Kalms. Eine lasergestützte Apparatur fr Experimente zum magnetischen Lineardichroismus in der Photoemission. PhD thesis, Universität Hamburg, 2010.
- [51] B. Kämmerling, A. Hausmann, J. Lauger, and V. Schmidt. 2p photoionization in magnesium. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 25(22):4773, 1992.
- [52] B. Kanngießer, W. Malzer, M. Müller, N. Schmidt, P. Zimmermann, A. G. Kochur, and V. L. Sukhorukov. Cascade decay of atomic magnesium after photoionization with a photoelectron-photoion coincidence method. *Phys. Rev. A*, 68:022704, Aug 2003.
- [53] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. Soviet Physics JETP, 20(5):1307, 1965.
- [54] R. Kienberger, M. Hentschel, M. Uiberacker, Ch. Spielmann, M. Kitzler, A. Scrinzi, M. Wieland, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Steering attosecond electron wave packets with light. *Science*, 297(5584):1144–1148, 2002.
- [55] P. D. Kleiber, A. M. Lyyra, S. P. Heneghan, and W. C. Stwalley. Stimulated emission in laser-pumped magnesium vapor. J. Opt. Soc. Am. B, 2(4):522–526, Apr 1985.
- [56] D. Kleinman and D. Auston. Theory of electrooptic shock radiation in nonlinear optical media. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 20(8):964–970, August 1984.
- [57] G. Krauss, S. Lohss, T. Hanke, A. Sell, S. Eggert, R. Huber, and A. Leitenstorfer. Synthesis of a single cycle of light with compact erbium-doped fibre technology. *Nature Photonics*, 4:33–36, 2010.
- [58] M. Kunitski, M.Richter, M. D. Thomson, A. Vredenborg, J. Wu, T.Jahnke, M. Schöffler, H.Schmidt-Böcking, H. G. Roskos, and R. Dörner. Optimization of

single-cycle terahertz generation in LiNbO3 for sub-50 femtosecond pump pulses. *Opt. Express*, 21(6):6826–6836, Mar 2013.

- [59] Yun-Shik Lee. Principles of Terahertz Science and Technology. Springer US, 2009.
- [60] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M. Yu. Ivanov, Anne L'Huillier, and P. B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Phys. Rev. A*, 49:2117–2132, Mar 1994.
- [61] A. L'Huillier and Ph. Balcou. High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser. *Phys. Rev. Lett.*, 70:774–777, Feb 1993.
- [62] I. Lindgren. Chemical shifts in x-ray and photo-electron spectroscopy: a historical review. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 137140:59 – 71, 2004. ICESS-9 Proceedings of the 9th International Conference on Electronic Spectroscopy and Structure.
- [63] T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob, and H. G. Roskos. Large-area electrooptic ZnTe terahertz emitters. *Opt. Express*, 13(14):5353–5362, Jul 2005.
- [64] L.Schroedter. Design, simulation and operation of two spectrometers for the analysis of high harmonic and fluorescence radiation in the extreme ultraviolet spectral range. Master's thesis, Universitamburg, 2009.
- [65] R. Kienberger M. Uiberacker V. Yakovlev A. Scrinzi Th. Westerwalbesloh U. Kleineberg U. Heinzmann & F. Krausz M. Drescher, M. Hentschel. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 419:803–807, Oktober 2002.
- [66] Y. Mairesse and F. Quéré. Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts. *Phys. Rev. A*, 71:011401, Jan 2005.
- [67] E. A. J. Marcatili and R. A. Schmeltzer. Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. *The Bell System Technical Journal*, 43:1783–1809, 1964.
- [68] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. Rhodes. Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. J. Opt. Soc. Am. B, 4(4):595–601, Apr 1987.
- [69] D. Mittleman. Sensing with Terahertz Radiation, chapter 3, pages 155–187. Springer, 2003.
- [70] A Niehaus. Analysis of post-collision interactions in auger processes following nearthreshold inner-shell photoionization. Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 10(10):1845, 1977.

- [71] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. *Applied Physics Letters*, 68(20):2793 –2795, may 1996.
- [72] M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, Ch. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz. Compression of high-energy laser pulses below 5 fs. *Opt. Lett.*, 22(8):522–524, Apr 1997.
- [73] M. Nisoli, S. Stagira, S. De Silvestri, O. Svelto, S. Sartania, Z. Cheng, G. Tempea, C. Spielmann, and F. Krausz. Toward a terawatt-scale sub-10-fs laser technology. 4(2):414–420, 1998.
- [74] Masahide Ohno and Grant A van Riessen. Hole-lifetime width: a comparison between theory and experiment. Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena, 128(1):1 – 31, 2003.
- [75] M. Ossiander, V. Siegrist, F.and Shirvanyan, R. Pazourek, A. Sommer, T. Latka, A. Guggenmos, S. Nagele, J. Feist, J. Burgdörfer, et al. Attosecond correlation dynamics. *Nature Physics*, 2016.
- [76] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292(5522):1689–1692, 2001.
- [77] B. M. Penetrante, J. N. Bardsley, W. M. Wood, C. W. Siders, and M. C. Downer. Ionization-induced frequency shifts in intense femtosecond laser pulses. J. Opt. Soc. Am. B, 9(11):2032–2040, Nov 1992.
- [78] L. Palvi, J. Hebling, J. Kuhl, Pr, and K. Polg Temperature dependence of the absorption and refraction of mg-doped congruent and stoichiometric linbo3 in the thz range. *Journal of Applied Physics*, 97(12), 2005.
- [79] T. Popmintchev, M.-C. Chen, M.-C. PopmChen, P. Arpin, S. Brown, S. Ališauskas, G. Andriukaitis, T. Balčiunas, O. D. Mücke, A. Pugzlys, A. Baltuška, B. Shim, S. E. Schrauth, A. Gaeta, C. Hernández-García, L. Plaja, A. Becker, A. Jaron-Becker, M.M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Bright coherent ultrahigh harmonics in the kev x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers. *Science*, 336(6086):1287– 1291, 2012.
- [80] F. Quere, Y. Mairesse, and J. Itatani. Temporal characterization of attosecond xuv fields. *Journal of Modern optics*, 52(2-3):339–360, JAN-FEB 2005.
- [81] M. Uiberacker A. Baltuska V. Yakovlev F. Bammer A. Scrinzi Th. Westerwalbesloh U. Kleineberg U. Heinzmann M. Drescher & F. Krausz R. Kienberger, E. Goulielmakis. Atomic transient recorder. *Nature*, 427:817–821, Februar 2004.

- [82] D. Redfield and W. J. Burke. Optical absorption edge of LiNbO3. Journal of Applied Physics, 45(10):4566-4571, 1974.
- [83] A Russek and W Mehlhorn. Post-collision interaction and the auger lineshape. Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics, 19(6):911, 1986.
- [84] M. Ya. Schelev, M. C. Richardson, and A. J. Alcock. Image-converter streak camera with picosecond resolution. *Applied Physics Letters*, 18(8):354–357, 1971.
- [85] M. Schnürer, Z. Cheng, M. Hentschel, G. Tempea, P. Kálmán, T. Brabec, and F. Krausz. Absorption-limited generation of coherent ultrashort soft-x-ray pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 83:722–725, Jul 1999.
- [86] E. Schroedinger. Quantisierung als Eigenwertproblem. Annalen der Physik, 386(18):109–139, 1926.
- [87] B. Schütte. Laser-based terahertz-field-driven streak camera for the temporal characterization of ultrashort processes. PhD thesis, Universität Hamburg, 2011.
- [88] B. Schütte, S. Bauch, U. Frühling, M. Wieland, M. Gensch, E. Plönjes, T. Gaumnitz, A. Azima, M. Bonitz, and M. Drescher. Evidence for chirped auger-electron emission. *Phys. Rev. Lett.*, 108:253003, Jun 2012.
- [89] B. Schütte, U. Frühling, M. Wieland, A. Azima, and M. Drescher. Electron wave packet sampling with laser-generated extreme ultraviolet and terahertz fields. *Opt. Express*, 19(20):18833–18841, Sep 2011.
- [90] Giacinto Scoles. Atomic and Molecular Beam Methods. Oxford University Press, 1988.
- [91] M. M. Shakya and Z. Chang. Achieving 280fs resolution with a streak camera by reducing the deflection dispersion. *Applied Physics Letters*, 87(4), 2005.
- [92] D. M. Slocum, E. J. Slingerland, R. H. Giles, and T. M. Goyette. Atmospheric absorption of terahertz radiation and water vapor continuum effects. *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, 127:49 – 63, 2013.
- [93] A. G. Stepanov, L. Bonacina, S. V. Chekalin, and J.-P. Wolf. Generation of 30 μj single-cycle terahertz pulses at 100 Hz repetition rate by optical rectification. Opt. Lett., 33(21):2497–2499, Nov 2008.
- [94] A. G. Stepanov, J. Kuhl, I. Z. Kozma, E. Riedle, G. Almási, and J. Hebling. Scaling up the energy of THz pulses created by optical rectification. *Opt. Express*, 13(15):5762–5768, Jul 2005.

- [95] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. Optics Communications, 56(3):219 – 221, 1985.
- [96] J.H. Sung, J.Y. Park, T. Imran, Y.S. Lee, and C.H. Nam. Generation of 0.2-TW 5.5-fs optical pulses at 1åkHz using a differentially pumped hollow-fiber chirped-mirror compressor. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 82:5–8, 2006. 10.1007/s00340-005-2005-0.
- [97] D. A. Shirley U. Becker, editor. VUV and Soft X-Ray Photoionization. Plenum Press, 1996.
- [98] M. Gensch T. Gebert B. Schtte M. Krikunova R. Kalms F. Budzyn O. Grimm J. Rossbach E. Plnjes & M. Drescher U. Frühling, M.Wieland. Single-shot terahertzfield-driven x-ray streak camera. *Nature Photonics*, 3:523–528, August 2009.
- [99] C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, and S. De Silvestri. Optimal spectral broadening in hollow-fiber compressor systems. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, 80:285–289, 2005. 10.1007/s00340-004-1721-1.
- [100] R. S. Weis and T. K. Gaylord. Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure. Applied Physics A, 37(4):191–203, 1985.
- [101] L. O. Werme, T. Bergmark, and K. Siegbahn. The high resolution L<sub>2,3</sub>MM and M<sub>4,5</sub>NN auger spectra from krypton and M<sub>4,5</sub>NN and N<sub>4,5</sub>OO auger spectra from xenon. *Physica Scripta*, 6(2-3):141, 1972.
- [102] S. B. Whitfield, U. Hergenhahn, N. M. Kabachnik, B. Langer, J. Tulkki, and U. Becker. Angular anisotropy in the resonant auger decay of 2 p -photoexcited mg. Phys. Rev. A, 50:R3569–R3572, Nov 1994.
- [103] Marek Wieland. Entwicklung hochauflsender rntgenoptischer Verfahren fr Hohe-Harmonische-Strahlung im extrem ultravioletten Spektralbereich. PhD thesis, Rheinische Friedrich-Wilhelms-Universitonn, 2004.
- [104] J. Wildenauer. Generation of the ninth, eleventh, and fifteenth harmonics of iodine laser radiation. Journal of Applied Physics, 62(1):41–48, 1987.
- [105] X. Wu, S. Carbajo, K. Ravi, F. Ahr, G. Cirmi, Y. Zhou, O. D. Mücke, and F. X. Kärtner. Terahertz generation in lithium niobate driven by ti:sapphire laser pulses and its limitations. *Opt. Lett.*, 39(18):5403–5406, Sep 2014.
- [106] J.J. Yeh and I. Lindau. Atomic data and nuclear data tables. Academic Press, 32:1–155, 1985.

- [107] K.L. Yeh, M.C. Hoffmann, J. Hebling, and K. A. Nelson. Generation of 10 j ultrashort terahertz pulses by optical rectification. *Appl. Phys. Lett*, 90(171121):1– 3, 2007.
- [108] A. H. Zewail. Laser femtochemistry. Science, 242:1645–1653, 1988.
- [109] K. Zhao, Q. Zhang, M.I Chini, Y. Wu, X.i Wang, and Z. Chang. Tailoring a 67 attosecond pulse through advantageous phase-mismatch. Opt. Lett., 37(18):3891– 3893, Sep 2012.

### Liste der Abkürzungen

- **MPI** Multiphotonenionisation
- ${\bf TI}$  Tunnelionisation
- $\mathbf{PCI}$  Post-Collision-Interaction
- ${\bf NIR}\,$ Nah-Infrarot
- ${\bf SPM}$  Selbst phasen modulation
- ${\bf SF}$ Selbstfokussierung
- ${\bf SSFM} \ {\rm Split-Step-Fourier-Methode}$
- FFT schnelle Fourier-Transformation (Fast Fourier Transform)
- **OR** optische Gleichrichtung (Optical Rectification)
- EOS Elektro-optisches Abtasten (Elektro-Optical Sampling)
- $\mathbf{SFA}$  Strong-Field-Approximation
- FWHM Halbwertsbreite (Full Width at Half Maximum)
- **TOF** Elektronen-Flugzeit-Spektrometer (Time of flight)
- **GDD** Gruppenverzögerungsdispersion (Group-Delay-Dispersion)
- $\mathbf{MCP}$ Multi-Channel-Plate
- Mo-Si Molybdän-Silizium
- **CPA** Chirped-Pulse-Amplification

### Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Dissertationsschrift selbst verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Hamburg, den

Roman Brannath

## Danksagung

Das Verfassen einer Doktorarbeit besteht aus vielen Herausforderungen. An dieser Stelle möchte ich mich bei den Menschen bedanken, die mir durch ihre Unterstützung in verschiedenster Hinsicht dabei halfen diesen Herausforderungen entgegenzutreten.

Mein Dank gilt:

- Prof. Markus Drescher, für die Betreuung und Begutachtung der Arbeit
- Prof. Ulrike Frühling, für das zweite Gutachten der Dissertation
- Marek Wieland, für das stets offene Ohr für alle möglichen Fragen und zusätzlich für das Korrekturlesen
- Der Arbeitsgruppe Dynamix, für die gute Zusammenarbeit und viele konstruktive Diskussionen. Insbesondere Neele Grenda, Oliver Becker, Arne Baumann, Armin Azima und die Ehemaligen Thomas Gebert, Phillip Wessels und Dimitrios Rompotis
- Martin Ranke, für die Vorarbeit an der THz-Quelle. Dank auch an Malte Sumfleth.
- Der Werkstatt, für die Herstellung der vielen Kartuschen, Adapter und Schräubchen etc.
- Und ganz besonders meiner Frau **Janine**, für alles