

Erzeugung abstimmbarer Femtosekunden Impulse im vakuum-ultravioletten Spektralgebiet

im Fachbereich Physik
der
Freien Universität Berlin
eingereichte Dissertation
von
Marcus Beutler



April 2012

1. Gutachter: Prof. Dr. Ingolf Volker Hertel

2. Gutachter: Prof. Dr. Ludger Wöste

Tag der Disputation: 18. Juni 2012

Diese Arbeit wurde am

Max-Born-Institut für nichtlineare Optik und Kurzzeitspektroskopie

unter der Projektleitung von *Dr. Frank Noack* durchgeführt.

*für Anna Victoria
geb. am 06.01.2010*

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit beschreibt die effiziente Erzeugung von Femtosekunden-Impulsen im vakuum-ultravioletten Spektralbereich durch die Nutzung von Vierwellenmischung in Edelgasen. Die Fundamentale und dritte Harmonische eines Titan-Saphir Verstärkersystems werden genutzt, um hochenergetische Impulse bei 160 nm zu erzeugen. Bei kollinear er Wechselwirkung gelingt die Erzeugung von bis zu 250 nJ Impulsenergie bei einer Impulsdauer von 43 fs (FWHM) durch eine Vierwellen-Differenzfrequenzmischung zwischen dritter Harmonischer und Fundamentaler. Die hohe Konversionseffizienz kann durch den zusätzlichen Phasenbeitrag bei der Fokussierung Gauß'scher Strahlen erklärt werden (Gouy-Phase).

Durch Nutzung nicht-kollinear er Geometrie kann für den Differenzfrequenzprozess Phasen Anpassung erreicht werden. Unter Beibehaltung einer Impulsdauer von weniger als 50 fs kann die Impulsenergie auf mehr als 3 μ J gesteigert werden. Die Größe des eingeführten Winkels kann dabei auf die Dispersionseigenschaften des Gases zurückgeführt werden. Durch numerische Simulation wird die Korrektheit des verwendeten Modells bestätigt und die Begrenzung der Konversionseffizienz durch Mehrfarben-Mehrphotonenionisation gezeigt.

Des Weiteren wird die Erzeugung wellenlängen-abstimmbarer Impulse, durch Austausch der Fundamentalen durch einen im infraroten Bereich arbeitenden optisch parametrischen Verstärker gezeigt. Bei einer Impulsdauer von unter 50 fs werden Impulsenergien bis zu 100 nJ in einem Abstimmbereich zwischen 146 und 151 nm erzeugt.

Mit der durch Filamentierung in Argon spektral verbreiterten Fundamentalen gelingt die Erzeugung von Impulsen von weniger als 20 fs Dauer. Die Kompression gelingt durch geeignete Vorkompensation der Fundamentalen mithilfe von Materialdispersion.

Die nun verfügbaren VUV Impulse gestatten nun einen Einblick in die Dissoziationsdynamik undotierter Wassercluster, der so detailliert bisher nicht möglich war.

Abstract

This dissertation describes efficient generation of femtosecond vacuum ultraviolet pulses by using four-wave-mixing in noble gases. The fundamental and third harmonic of a titanium sapphire amplifier system are used to generate intense pulses near 160 nm. In collinear interaction the generation of 250 nJ pulses with duration of 43 fs by four-wave-difference-frequency mixing is shown. The high conversion efficiency can be explained by additional phase acquired when gaussian beams are focussed (gouy-phase).

In non-collinear geometry phase-matching of the difference frequency process can be achieved. While maintaining a pulse duration of less than 50 fs pulse energies of more than 3 μ J are attained. It is shown that the angle between the beams depends on dispersion properties of the gas only. Numerical simulations show correctness of the model and a significant reduction of conversion efficiency by multi-color multi-photon ionisation.

Exchanging the fundamental pulse by an infrared pulse generated by an optical parametric amplifier the generation of sub 50 fs pulses with up to 100 nJ is shown in a tuning range between 146 nm and 151 nm.

A pulse that is spectrally broadened by filamentation in argon gas is used to generate VUV pulses of several hundred nano joule with sub-20 fs pulse duration. Compression is achieved by appropriate precompensation by material dispersion in the fundamental pulse.

The now available VUV pulses give insight into the dissociation dynamics of undoped water clusters.

Inhaltsverzeichnis

Abkürzungsverzeichnis	xi
1. Einleitung	3
2. Grundlagen und Methoden	7
2.1. Beschreibung ultrakurzer Laserimpulse	7
2.1.1. Dispersion	9
2.1.2. Bandbreite und Impulsdauer	11
2.2. gezielte Beeinflussung der spektralen Phase ultrakurzer Impulse . .	12
2.3. Messung ultrakurzer Impulse	15
2.3.1. Impulscharakterisierung im VUV mittels Zweifarbenionisation	18
2.4. Nichtlineare Wechselwirkung von Licht und Materie	20
2.4.1. Dreiwellenmischung in nichtlinearen Kristallen	22
2.4.2. Erzeugung der dritten Harmonischen des Titan-Saphir Lasers	24
2.4.3. Nichtlinearer Brechungsindex und Vierwellenmischung . . .	26
2.5. Energiemessung von VUV Impulsen	28
3. Beschreibung des verwendeten Lasersystems	31
3.1. Chirped Pulse Amplification	31
3.2. Das Titan-Saphir Lasersystem	32
4. Charakterisierung der dritten Harmonischen des Titan-Saphir Lasers	35
5. Kollineare Vierwellenmischung	41
5.1. Wechselwirkung fokussierter Gauß'scher Strahlen	41
5.2. experimenteller Aufbau	45
5.3. Vergleich der Druckabhängigkeit	48
5.4. Abhängigkeit vom konfokalen Parameter	49

5.5. Impulscharakterisierung	51
6. Nicht-kollineare Vierwellenmischung	53
6.1. Phasenanpassung und Wechselwirkungslänge	53
6.2. Wahl des optimalen nichtlinearen Mediums	56
6.3. Experimenteller Aufbau	58
6.4. druckabhängiger Phasenanpassungswinkel von Argon	59
6.5. Druckverhalten und Transmission	60
6.6. Modell der numerischen Simulation	64
6.7. Vergleich von Simulation und Experiment	69
6.8. Phasenanpassungswinkel und Effizienz in Krypton	74
6.9. Impulscharakterisierung	77
7. Abstimmbare VUV Impulse	79
7.1. parametrische Verstärkung	80
7.2. experimenteller Aufbau	80
7.3. Fitprozedur für Kreuzkorrelationen	83
7.4. Vergleich der Abstimmbarkeit im IR und VUV	86
8. Sub-20-fs VUV-Impulse durch nichtlineare Impulskompression	91
8.1. Phasenübertrag bei der Vierwellenmischung	91
8.2. Vierwellenmischung mit schmalbandiger TH	94
8.3. Impulskompression durch Filamentierung	97
8.4. Phasenanpassungsbandbreite	100
8.5. Beschreibung des experimentellen Aufbaus	103
8.6. Kompression und Charakterisierung der VUV- und Abfrage-Impulse	105
8.7. Abstimmbarkeit der Wellenlänge	114
9. Zeitaufgelöste Spektroskopie an Wasserclustern	117
9.1. experimenteller Aufbau	117
9.2. Massenspektrum und zeitaufgelöste Messung am Monomer	119
10. Ausblick	123
10.1. Messung der spektralen Phase	123
10.2. Erzeugung von VUV Impulsen mit wenigen Zyklen	125

11. Zusammenfassung	131
Literaturverzeichnis	133
12. Danksagung	145
A. Anhang	147
A.1. Berechnung der Effizienzfunktion G	147
A.2. Numerische Simulation der Vierwellenmischung	147
B. Liste der eigenen Publikationen	149
C. Lebenslauf	151
D. Erklärung	153

Abkürzungsverzeichnis

BBO	β -Bariumborat, nichtlinearer Kristall mit hoher effektiver Nichtlinearität und großem Transparenzbereich
BIBO	Bismuttriborat, nichtlinearer Kristall mit besonderer Eignung für den IR Bereich
CPA	engl.: <i>chirped pulse amplification</i> , Erzeugung von Impulsen höchster Spitzenleistung durch zeitliche Streckung, Verstärkung und anschließende Kompression
FCP	engl.: <i>few-cycle pulses</i> , Impulse mit einer Dauer von nur wenigen Zyklen der Trägerfrequenz
FF	engl.: <i>fundamental frequency</i> , Fundamentalfrequenz eines Lasers
FROG	engl.: <i>frequency resolved optical gating</i> , Methode zur Charakterisierung ultrakurzer Impulse
FWM	engl.: <i>four-wave-mixing</i> , Vierwellenmischung
GDD	engl.: <i>group delay dispersion</i> , Gruppengeschwindigkeitsverzögerung
GVD	engl.: <i>group velocity dispersion</i> , Gruppengeschwindigkeitsdispersion
GVM	engl.: <i>group velocity mismatch</i> , Gruppengeschwindigkeitsdifferenz bei nichtlinearer Frequenzkonversion
HHG	engl.: <i>high harmonic generation</i> , Erzeugung höherer Harmonischer des Lasers
KBBF	$\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$, nichtlinearer Kristall mit großem Transparenzbereich und guter Phasenanpassbarkeit im vakuum-ultravioletten Spektralbereich
MCP	engl.: <i>micro channel plate</i> , Mikrokanalplatte, Messgerät zur Detektion von Ionen, Elektronen oder Photonen

-
- NOPA engl.: *noncollinear optical parametric amplifier*, OPA mit hoher Verstärkungsbandbreite
- OPA engl.: *optical parametric amplifier*, optisch parametrischer Verstärker
- OPG engl.: *optical parametric generation*, Erzeugung neuer Wellenlängen aus dem Quantenrauschen heraus durch nichtlineare Konversion zweiter Ordnung
- SBBO $\text{Sr}_2\text{Be}_2\text{B}_2\text{O}_7$, nichtlinearer Kristall mit hoher Nichtlinearität aber nur geringer Phasenanpassbarkeit. Großer Transparenzbereich bis in den vakuum-ultravioletten Spektralbereich
- SPIDER engl.: *Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction*, Methode zur Charakterisierung ultrakurzer Impulse
- SVEA engl.: *slowly varying envelope approximation*, Näherung der langsam veränderlichen Einhüllenden
- THG engl.: *third harmonic generation*, dritte Harmonische des Lasers
- Ti:Sa Titan-Saphir, Lasermedium mit Ti^{3+} als aktivem Ion und Saphir als Wirtskristall, häufig verwendetes Medium zur Erzeugung ultrakurzer Impulse
- TOD engl.: *third order dispersion*, Dispersion dritter Ordnung
- VUV Vakuum Ultraviolet, elektromagnetischer Wellenlängenbereich unterhalb von 193 nm. Je nach Definition bis hinab zu 10 nm.
- WLC engl.: *white-light continuum*, Weißlichterzeugung

1. Einleitung

Der Einblick in die Dynamik ultraschneller Prozesse verlangt nach immer kürzeren Lichtimpulsen, die in Anrege-Abfrage-Experimenten genutzt werden können. Der Umfang neuer Erkenntnisse war und ist stets gekoppelt an die Verfügbarkeit verbesserter Lichtquellen. Dies war in den achtziger Jahren das erstmalige Vordringen in den Femtosekundenbereich durch „*colliding pulse modelocking*“-Farbstofflaser [FGS1981] und mit Beginn der neunziger Jahre durch die massenhafte Verbreitung des Titan-Saphir-Lasers [SES1991] der Fall. Heutzutage ist der rasante Fortschritt auf dem Gebiet der Erzeugung von Attosekundenimpulsen das Maß der Dinge. Bis auf wenige Ausnahmen ist derzeit der Titan-Saphir Laser das am häufigsten verwendete Werkzeug zur Erzeugung von Femtosekundenimpulsen. Leider genügt der begrenzte Emissionsbereich des Ti^{3+} Ions im roten bzw. nahen infraroten Spektralbereich (ca. 650-1150 nm) nicht, um alle interessanten Moleküle zu untersuchen. Die Benutzung nichtlinearer Kristalle ist das Mittel der Wahl, um die Impulse des Titan-Saphir-Lasers in den ultravioletten (UV) bzw. infraroten (IR) Bereich zu konvertieren. Das Vorstoßen in den Vakuum UV (VUV) Bereich wird aber durch die starke Absorption der meisten nichtlinearen Kristalle verhindert. In [PRN1999] sind eine Reihe von Kristallen aufgeführt, die die Summenfrequenzerzeugung bis hinunter zu 166 nm ermöglichen. Es existieren noch weitere nichtlineare Kristalle, namentlich KBBF [CWW2009] und SBBO [CWW1995], die es ermöglichen, Strahlung bis hinunter zu 153 nm zu erzeugen [NIO2011]. Leider sind diese wenigen, zur Frequenzkonversion nutzbaren Kristalle nicht kommerziell erhältlich. In jedem Falle begrenzt die hohe Dispersion im VUV Bereich, die in sämtlichen Festkörpern zu finden ist, die erreichbare kürzeste Impulsdauer.

Die Erzeugung von VUV Impulsen durch Laser mit Impulsdauern im Nano- und Pikosekundenbereich mithilfe nichtlinearer Prozesse höherer Ordnung ist schon seit langem bekannt [Bjo1975]. Eine andere, intensivere Quelle von VUV Strahlung (ebenfalls mit Impulsdauern im Bereich von Pikosekunden) stellen Synchrotrons

dar. Schließlich hat in den letzten Jahren die Entwicklung von Freie-Elektronen Lasern (FEL) die Verfügbarkeit von ultrakurzen VUV Impulsen revolutioniert [ABB2002].

Wegen der immensen Bedeutung von VUV Strahlung für die Photochemie wurden - gerade am Max-Born-Institut - große Anstrengungen unternommen, um konvertierte Impulse des Titan-Saphir-Lasers durch Excimer-Module zu verstärken und diese dann für Vierwellenmischung zu benutzen [WWS2000]. Bei geeigneter Wahl von Laserwellenlänge und nichtlinearem Medium (Xenon-Gas) in der Nähe von Resonanzlinien kann die drastische Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität genutzt werden, um effiziente Umwandlung in VUV Strahlung zu erreichen. Schon Anfang der neunziger Jahre ließen sich so Impulse von unter einer Pikosekunde Dauer erzeugen [MFL1995]. Leider ist diese Methode nicht nur materialaufwändig, sondern gestattet wegen der begrenzten Bandbreite der excimer-verstärkten Impulse und des Wellenlängenbereichs nahe der Resonanz nicht die Erzeugung von Impulsen mit weniger als 100 fs Dauer. Außerdem gibt es, abgesehen von der kürzeren Wellenlänge von 155 nm, keine Verbesserung zu den oben genannten Summenfrequenzexperimenten.

Unter Zuhilfenahme von Hohlwellenleitern konnte von Misoguti et al. [MBD2001] gezeigt werden, dass sich auch abseits von Resonanzlinien VUV effizient erzeugen lässt. Eine Erweiterung dieser Methode stellen die Arbeiten von Tzankov et al. dar [TSZ2007], bei der Fundamentale und dritte Harmonische eines Titan-Saphir-Lasers in einem Hohlwellenleiter gemischt wurden. Die Impulsdauer wurde dabei nur durch die Dauer der Fundamentalen von 140 fs bestimmt. Um sowohl die Impulsdauer zu verkürzen als auch eine Möglichkeit der Abstimmbarkeit zu haben, wurde die Fundamentale in [TZM2006] durch einen Impuls im sichtbaren Bereich ersetzt. Die so erzeugten Impulse im Bereich zwischen 168 und 182 nm wurden in [MeZ2011] genauer charakterisiert und Impulsdauern von unter 100 fs wurden gezeigt. Deutlich kürzere Impulse der fünften Harmonischen (160 nm) von 11 fs, jedoch mit Energien von nur einigen Nanojoule, wurden von Kosma et al. [KTS2008] durch die Erzeugung von höherer harmonischer Strahlung und anschließender spektraler Filterung erzeugt und im Experiment angewandt ([KTF2008], [TSF2009]). Durch Verwendung von Lasern mit Spitzenleistungen im Terawatt-Bereich lassen sich die Impulsenergien in den Bereich einiger hundert Nanojoule erhöhen [AWS2010]. Jedoch haben solche Laser eine nur geringe Impulswiederhol-

frequenz, was die Dauer von Messungen deutlich erhöht.

In der hier vorgelegten Arbeit wurde sowohl die nicht-phasenangepasste als auch die phasenangepasste Vierwellendifferenzfrequenzmischung eines UV Impulses mit einem Impuls im nahen Infrarot genutzt um ultrakurze Impulse im VUV Spektralbereich zu erzeugen. Diese vorgestellten Methoden sind effizient und gestatten gleichzeitig die Erzeugung von Impulsen mit nur wenigen Zyklen Dauer. Nach Erklärung der wichtigsten Begriffe in Kapitel 2 und einer kurzen Vorstellung des für die Experimente genutzten Lasersystems in Kapitel 3 sowie der Charakterisierung der intensiven UV Impulse (266 nm) in Kapitel 4, wird in Kapitel 5 auf die nicht-phasenangepasste Vierwellenmischung in Edelgasen eingegangen, die durch die Fokussierung Gauß'scher Strahlen und der deswegen existenten Gouy-Phase trotzdem eine annehmbar hohe Konversionseffizienz ermöglicht.

Die Methode der Phasenanpassung durch nicht-kollineare Vierwellenmischung wird in Kapitel 6 vorgestellt. Es wird gezeigt, dass die Umwandlungseffizienz um eine Größenordnung höher ist als die in der Literatur erreichten Werte für Vierwellenmischung im Hohlwellenleiter [TSZ2007]. Neben der zeitlichen und spektralen Charakterisierung erfolgte auch eine Betrachtung der Grenzen des Verfahrens durch die begrenzte Wechselwirkungslänge sowie durch Mehrphotonenabsorption im Gas sowohl durch Messungen als auch durch numerische Simulation.

Im anschließenden Kapitel 7 wird die Möglichkeit der Wellenlängenabstimmbarkeit behandelt. Der IR Impuls fixierter Wellenlänge aus den vorangegangenen Kapiteln wird durch einen abstimmbaren Infrarotimpuls ersetzt. Auf diese Weise wurden abstimmbare VUV Impulse von weniger als 40 fs Dauer und Energien um 100 nJ erzeugt.

Das Kapitel 8 beschreibt die Erzeugung von VUV Impulsen von weniger als 20 fs ohne die Verwendung von Impulskompressionsmethoden im Strahlengang der VUV Impulse. Lediglich durch geeignete Dispersion eines breitbandigen Impulses wird die Phase der VUV Impulse so gesteuert, dass weitere Dispersion im Strahlengang vorkompensiert werden kann. Der breitbandige Impuls wird durch Filamentierung der Fundamentalen in einer edelgasgefüllten Gaszelle bereitgestellt und ermöglicht die Verkürzung der Fundamentalen bis hinab zu 13 fs Dauer. Ein einfacher optischer Aufbau erlaubt es, ohne einen Impulskompressor zu arbeiten und vermeidet so Verluste beim Strahltransport.

Nachdem im Kapitel 9 ein kurzer Überblick über ein im Rahmen dieser Disserta-

tion durchgeführtes Experiment zur Dynamik von Wasserclustern gegeben wird, versucht Kapitel 10 einen Ausblick auf mögliche Verbesserungen und zukünftige Entwicklungen bei der Erzeugung und Charakterisierung der VUV Impulse zu ermöglichen.

Die im Rahmen dieser Arbeit erzeugten VUV Impulse erreichen eine Spitzenleistung, die mehrere Größenordnungen über der liegt, die sämtliche bisherigen Quellen liefern konnten. Die hohe Umwandlungseffizienz gestattet die Verwendung hochrepetierender Titan-Saphir Laser, was die Datenaufnahme von Anregungs-Abfrage-Experimenten stark beschleunigt, ja zum Teil erst ermöglicht. Gleichzeitig zeichnet sich die Methode durch eine hohe Flexibilität in der Wahl der Wellenlänge aus, was von besonderem Interesse in der Spektroskopie ist. Einer Fülle von neuen und aussagekräftigen Experimenten zur Ultrakurzzeitdynamik an freien Molekülen und Clustern im VUV Bereich, also dort wo die Mehrzahl aller Moleküle absorbiert, wird hiermit die Tür aufgestoßen.

2. Grundlagen und Methoden

Um die in den nachfolgenden Kapiteln beschriebenen Methoden der Frequenzkonversion zu verstehen, ist die vorherige Klärung der notwendigen Grundbegriffe vonnöten. Zum einen ist dies die mathematische Beschreibung von Laserimpulsen, der Zusammenhang von zeitlichem Feld und Spektrum, und grundlegende Eigenschaften der Wechselwirkung von Licht mit Materie. Die mathematische Beschreibung von Hertel und Schulz [HeS2010], Kapitel 13 und 14 wird genutzt, stellenweise findet auch das Buch von Diels und Rudolph Verwendung [DiR2006].

Zum anderen werden die Charakteristika der verwendeten Impulse und der üblichen Messverfahren zur Impulsdauerbestimmung erklärt.

2.1. Beschreibung ultrakurzer Laserimpulse

Laserimpulse sind elektromagnetische Wellenpakete, die sich aus der kohärenten Überlagerung einer Vielzahl monochromatischer Wellen ergeben. Sie können durch ein orts- und zeitabhängiges elektrisches Feld $\vec{E}(\vec{r}, t)$ beschrieben werden (siehe [HeS2008], Gleichung (4.26)). Unter Annahme einer festen Polarisationsrichtung lässt sich eine einzelne Komponente dieses Wellenpakets schreiben als

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{i}{2} E_0 \left(e^{i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} - e^{-i(\vec{k}\vec{r} - \omega t)} \right). \quad (2.1)$$

Bei Ausbreitung in Richtung der z -Achse wird $\vec{k}\vec{r}$ zu $kz = \omega z/c$. Im Allgemeinen wird angenommen, dass die Dauer des Laserimpulses viel größer ist als ein Zyklus der Schwingung selber, die Einhüllende ändert sich also viel langsamer als das elektrische Feld. Man redet von der Näherung der langsam-veränderlichen Einhüllenden (engl.: „*slowly varying envelope approximation*“, SVEA). Geht man nun davon aus, dass das elektrische Feld an einem festen Ort detektiert wird und das Wellenpaket ja aus einer Superposition einer Vielzahl von Wellen besteht (über

die zu integrieren ist), so kann man das elektrische Feld des Wellenpaketes als eine ortsunabhängige Größe ausdrücken (siehe [Wei2009] Gleichung 1.11):

$$E(t) = \frac{E_0}{2} A(t) e^{-i(\omega_c t + \psi_0 + \psi(t))} + c. c. \quad (2.2)$$

Hier ist ω_c die Zentralfrequenz des Wellenpaketes, $A(t)$ die Einhüllende und *c. c.* steht für den komplex-konjugierten Anteil. Der Term ψ_0 bezeichnet die sogenannte *carrier-envelope phase* (CEP), also die relative Phase zwischen der Einhüllenden und der Zentralfrequenz. Die Funktion $\psi(t)$ ist die zeitlich-veränderliche Phase des Feldes. Das elektrische Feld ist definiert als eine reelle Größe, was mathematisch die Verwendung des konjugiert-komplexen Anteils in den Formeln nötig macht. Das elektrische Feld im Zeitraum ist durch die Fourier-Transformation mit dem Spektrum $\tilde{E}(\omega)$ verbunden (siehe [HeS2010] Kap. 13 Gleichung 13.122):

$$\begin{aligned} \tilde{E}(\omega) = \mathcal{F}(E(t)) &= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{-i\omega t} dt \\ &= \frac{1}{2\pi} E_0 \int_{-\infty}^{\infty} A(t) e^{-i(\omega - \omega_c)t} dt = A(\omega) \cdot e^{i\phi(\omega)}. \end{aligned} \quad (2.3)$$

Der rechte Term von Gleichung 2.3 zeigt gleich die Aufteilung des Spektrums in eine Amplitude $|\tilde{E}(\omega)| = A(\omega)$ und einen Phasenanteil $e^{i\phi(\omega)}$, bei der $\phi(\omega)$ als *spektrale Phase* bezeichnet wird.

Ein weiterer Zusammenhang der elektrischen Felder in Zeit- und Frequenzraum ist durch das Plancherel'sche Theorem gegeben, welches angibt, dass das Integral des Betragsquadrats des zeitlichen elektrischen Feldes $E(t)$ gleich dem Integral des Betragsquadrats der Fouriertransformierten $\tilde{E}(\omega)$ dividiert durch 2π ist. Diese Aussage ist nichts weiter als eine Repräsentation der Energieerhaltung.

$$\int_{-\infty}^{\infty} |\bar{E}(t)|^2 dt = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{E}(\omega)|^2 d\omega \quad (2.4)$$

Die experimentell messbaren Größen sind jedoch die zeitliche und spektrale Intensität $I(t)$ bzw. $I(\omega)$. Diese hängen über die elektrische Feldkonstante ϵ_0 , die Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 und den Brechungsindex n des Mediums mit den

jeweiligen Feldern zusammen.

$$I(t) = \frac{\epsilon_0 \cdot c_0 \cdot n}{2} |\bar{E}(t)|^2 \quad (2.5)$$

$$I(\omega) = \frac{\epsilon_0 \cdot c_0 \cdot n}{\pi} |\tilde{E}(\omega)|^2 \quad (2.6)$$

2.1.1. Dispersion

Beim Durchlaufen eines optischen Mediums erfährt die spektrale Phase eines Laserimpulses eine Veränderung um den Betrag $\phi(\omega)$. Grund ist die unterschiedliche Gruppengeschwindigkeit der verschiedenen Frequenzkomponenten des Impulses. Somit werden die Komponenten zueinander verschoben, was die Impulsdauer ändert. Die Ausbreitung von Licht um eine Länge z lässt sich mathematisch darstellen als die Multiplikation des komplexen Spektrums $\tilde{E}(\omega)$ mit einer komplexwertigen Transferfunktion $H(\omega, z)$. Deswegen werden die folgenden Betrachtungen im Frequenzraum durchgeführt.¹

Ein elektrisches Feld $E(t)$ erfährt eine Veränderung:

$$E_z(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}_{in}(\omega) e^{i\omega t} \cdot H(\omega, z) d\omega \quad (2.7)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}_{in}(\omega) e^{i\omega t} e^{-\frac{1}{2}\alpha(\omega)z} \cdot e^{i\phi(\omega)} d\omega \quad (2.8)$$

$E_z(t)$ ist das elektrische Feld des Impulses nach Ausbreitung um die Länge z und $\tilde{E}_{in}(\omega)$ ist das Spektrum des Impulses davor. Die Transferfunktion wird bestimmt durch die Absorption $\alpha(\omega)$ und die sogenannte Ausbreitungskonstante $\beta(\omega) = -\phi(\omega)/z$ mit z als dem im Medium zurückgelegten Weg. Die Größe $\phi(\omega)$ ist die bei der Ausbreitung akkumulierte Änderung der spektralen Phase des Impulses. Die Ausbreitungskonstante $\beta(\omega)$ ist mit dem Brechungsindex des Mediums verbunden über:

$$\beta(\omega) = \frac{\omega}{c} n(\omega). \quad (2.9)$$

Bei den meisten verwendeten Materialien kann die Absorption wegen der geringen Größe ignoriert werden oder ist annähernd konstant über die zu betrachtenden Frequenzen, was somit lediglich zu einer konstanten Reduktion der Amplitude führt. Für die weiteren Betrachtungen geht man davon aus, dass die Ausbreitungskon-

¹die Beschreibung an dieser Stelle verläuft in Anlehnung an [Wei2009] Kap. 4.

stante um die Zentralfrequenz des Impulses in einer Taylor-Reihe entwickelt werden kann, was zu folgender Gleichung führt.

$$\beta(\omega) = \beta(\omega_0) + \left. \frac{d\beta}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{d^2\beta}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (2.10)$$

$$= \beta_0 + \beta'(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\beta''(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\beta'''(\omega - \omega_0)^3 \quad (2.11)$$

Nutzt man diese Taylorentwicklung der Ausbreitungskonstanten, so kann gezeigt werden, dass β_0 proportional zur Phasengeschwindigkeit v_p ist und β' proportional zur inversen Gruppengeschwindigkeit des Impulses v_g mit der sich das Wellenpaket ausbreitet. Der Term β'' ist die sogenannte Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD), der die Änderung der Gruppengeschwindigkeit beschreibt. Dieser Term, und ebenso alle höheren Terme, führt zur unterschiedlichen Ausbreitungsgeschwindigkeit der einzelnen Frequenzkomponenten und somit zu einer zeitlichen Streckung des Impulses. Als Folge davon hat ein Impuls eine sich zeitlich ändernde Mittenfrequenz $\omega = \omega(t)$, was mit dem Begriff *chirp* bezeichnet wird. Diese Mittenfrequenz ist die Ableitung der in Gleichung 2.2 eingeführten zeitlichen Phase $\omega(t) = \frac{d\psi}{dt}$. Ist $\frac{d\omega}{dt} > 0$ so spricht man dabei von *up-chirp*, weil sich mit der Zeit die Mittenfrequenz immer weiter erhöht. Ist $\frac{d\omega}{dt} < 0$ so redet man dementsprechend von *down-chirp*. Werden sämtliche Ableitungen von ϕ jenseits der zweiten vernachlässigt, so führt dies zu einem linearen chirp, also $\omega(t) = \omega_0 + a \cdot t$.

Zur Berechnung der Ausbreitungskonstante ist nach Gleichung 2.9 die Kenntnis des Brechungsindex n vonnöten. Mit der Dispersionsformel (siehe [HeS2008], Gleichung 8.101)

$$n(\omega)^2 - 1 = \frac{Ne_0^2}{\epsilon_0 m_e} \sum_{b \neq a} \frac{f_{ba}}{\omega_{ba}^2 - \omega} \quad (2.12)$$

kann der Brechungsindex bestimmt werden. In dieser sind f_{ba} die Oszillatorenstärken der Resonanzlinien, die sich bei den Frequenzen ω_{ba} befinden. N , ϵ_0 , e_0 und m_e sind die Teilchenzahldichte des Mediums, die elektrische Feldkonstante, die Elementarladung und die Elektronenmasse.

In der Praxis wird allerdings meist die „Sellmeier-Gleichung“ genutzt [Sel1871], die den Brechungsindex in Abhängigkeit der Wellenlänge λ wiedergibt. Sie ergibt sich aus Gleichung 2.12 recht einfach über die Relation $\omega = 2\pi \cdot c/\lambda$. Im Allgemeinen

hat die Sellmeier-Gleichung die Form:

$$n(\lambda)^2 - 1 = \sum_i \frac{\lambda^2 \cdot B_i}{\lambda^2 - C_i} \quad (2.13)$$

Dabei stellen die Koeffizienten in den Nennern der Terme C_i die Resonanzwellenlängen des Materials analog zu den Resonanzfrequenzen ω_{ba} in Gleichung 2.12 dar. Da ein großer Teil der in dieser Arbeit vorgestellten Wechselwirkungen auch in Gasen stattfindet, seit hier nochmals eine gebräuchliche Form (siehe z.B. [BHK2008]) der Sellmeier-Gleichung für die Ausbreitung in Gasen genannt, die auch die Abhängigkeit von Druck und Temperatur des Gases beinhaltet.

$$n(\lambda)^2 - 1 = \frac{p}{p_0} \frac{T_0}{T} \left[\frac{\lambda^2 \cdot B_1}{\lambda^2 - C_1} \right] \quad (2.14)$$

Die Reduktion der Formel auf nur eine Resonanz C_1 ist ausreichend, da die in dieser Arbeit genutzten Wellenlängen noch weit genug von den anderen Resonanzwellenlängen entfernt liegen so dass diese ignoriert werden können. Da die empirische Formel die Abhängigkeit von der Wellenlänge zeigt, zur Berechnung der Ausbreitungskonstante jedoch die Frequenzabhängigkeit notwendig ist, muss eine Umrechnung erfolgen. Mithilfe der Relation $c = \lambda\omega/2\pi$ und einiger Rechenschritte gelangt man z.B. für die GVD zu dem Zusammenhang:

$$\beta''(\omega) = \frac{d^2\phi}{d\omega^2} = \frac{\lambda^3}{2\pi c^2} \cdot \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} \quad (2.15)$$

Die Darstellung der Dispersion dritter Ordnung (TOD) lässt sich ebenso darstellen als

$$\beta'''(\omega) = -\frac{\lambda^4}{4\pi^2 c^3} \left(3 \frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} + \lambda \frac{\partial^3 n}{\partial \lambda^3} \right). \quad (2.16)$$

2.1.2. Bandbreite und Impulsdauer

Zur Beschreibung der Impulsdauer τ und der spektralen Bandbreite $\Delta\nu = \Delta\omega/2\pi$ hat sich die Verwendung der Halbwertsbreite (engl.: *full width half maximum* (FWHM)) durchgesetzt, also die Breite die den Abfall auf die Hälfte des Maximalwertes angibt. Diese beiden Werte sind über die Fouriertransformation miteinander verknüpft, das Produkt beider Werte kann eine bestimmte Konstante nicht

Einhüllende	Intensitätsprofil	Zeit-Bandbreiten-Produkt c_B
sech	$\text{sech}^2 t/\tau$	0,315
Gauß	e^{-2t^2/τ^2}	0,441

Tabelle 2.1.: Zeit-Bandbreiten-Produkt für gebräuchliche Impulsformen.

unterschreiten. Dieses Produkt wird als Zeit-Bandbreiten-Produkt bezeichnet

$$\tau \cdot \Delta\nu \geq c_B \quad (2.17)$$

Ist in Gleichung 2.17 das Gleichheitszeichen gültig, so spricht man von einem bandbreitenbegrenzten Impuls. Je nach Intensitätsprofil der Impulse ergeben sich unterschiedliche Konstanten. In Tabelle 2.1 sind einige Beispiele aufgeführt (siehe dazu auch [DiR2006] (Kap. 1 S.10)). Wird es nicht anderweitig ausdrücklich so genannt, so wird in dieser Arbeit stets von gauß-förmigen Intensitätsprofilen ausgegangen.

Propagiert ein bandbreitenbegrenzter Gauß'scher Impuls durch ein optisches Medium, so erfährt er durch dieses eine Vergrößerung der Impulsdauer. Vernachlässigt man die Terme höherer Ordnung und betrachtet nur die GVD, dann hat die spektrale Phase den Verlauf einer Parabel. Durch die Formel

$$\tau(z) = \tau(0) \sqrt{1 + \ln(2) \cdot \frac{(\beta'' \cdot z)^2}{\tau(0)^4}}, \quad (2.18)$$

welche in [Wei2009] (Kap. 4.11) hergeleitet wird, kann die Impulsdauer am Ort z berechnet werden. Dabei ist die Größe $\beta'' \cdot z$ die sogenannte Gruppenverzögerungsdispersion (GDD).

2.2. gezielte Beeinflussung der spektralen Phase ultrakurzer Impulse

Da die meisten verwendeten Materialien, in denen sich die Impulse ausbreiten, eine positive zweite Ableitung $\frac{d^2n}{d\omega^2} > 0$ haben, werden die Impulse zeitlich gestreckt und haben up-chirp. Um am Punkte des Experimentes den kürzest möglichen Impuls zu haben, müssen Wege gefunden werden, diesen up-chirp zu kompensieren. Die gebräuchliche und schon am längsten genutzte Variante [FMG1984] ist die Nutzung

der Winkeldispersion. Mithilfe einer Anordnung von 4 identischen, sogenannten Brewster-Prismen (das Licht trifft auf jede Fläche im Brewster-Winkel) kann ohne räumliche Verzerrung des Strahles eine negative Dispersion erzeugt werden, die sich ergibt zu (siehe [DiR2006], Gleichung 2.71):

$$\phi''(\omega) = \frac{\lambda^3}{2\pi c} \left(\frac{\partial^2 n}{\partial \lambda^2} \cdot d - 4L \cdot \left(\frac{\partial n}{\partial \lambda} \right)^2 \right) \quad (2.19)$$

Hierbei ist L die einfache Distanz zwischen dem ersten und zweiten Prisma und d der mittlere Glasweg, der innerhalb aller Prismen zurückgelegt wird. Propagiert der Strahl nahe der Spitze der Prismen, so kann $d \sim 0$ angenommen werden. Der in Abbildung 2.1 gezeigte Aufbau mit 4 identischen Prismen wird häufig mit einem Spiegel zwischen dem zweiten und dritten Prisma realisiert, der den Strahl, nur um einen kleinen Winkel nach oben oder unten verkippt, auf gleichem Weg durch die beiden Prismen zurück sendet. Dies vereinfacht den optischen Aufbau und die Justage, hat aber ansonsten identische Eigenschaften. Mit Prismenkompressoren können meist nur GDD in der Größenordnung von 10^4 bis 10^5 fs² kompensiert werden, weil ansonsten die Abstände zwischen den Prismen zu groß werden. Die Nutzbarkeit eines Prismenkompressors ist begrenzt, wenn die Mittenwellenlänge des Lichts nahe dem Dispersionsnullpunkt $\frac{dn}{d\lambda} \rightarrow 0$ liegt, da dann der Term mit negativem Vorzeichen in Gleichung 2.19 verschwindet. Dies ist zum Beispiel bei den häufig verwendeten Gläsern SF11 und Quarzglas bei etwa $1,84 \mu\text{m}$ bzw. $1,27 \mu\text{m}$ der Fall.

Analog zum Prismenkompressor kann auch ein Aufbau mit Gittern realisiert werden, welcher in Abbildung 2.2 dargestellt ist. Die Berechnung der erreichbaren

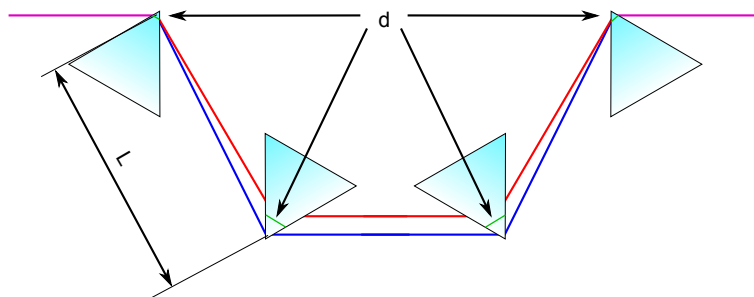


Abbildung 2.1.: Schema eines Prismenkompressors. Der Wert d bezeichnet den mittleren Weg innerhalb der Prismen, die Länge L den Abstand zwischen erstem und zweitem bzw. drittem und viertem Prisma.

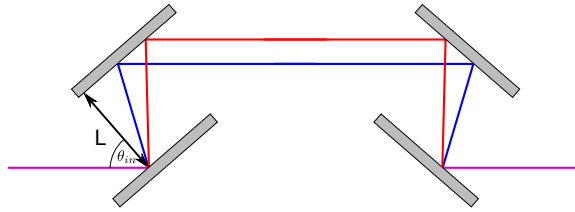


Abbildung 2.2.: Schema eines Gitterkompressors. Der Strahlengang für die kurzwellige Komponente ist blau dargestellt, die langwellige Komponente in rot.

Dispersion erfolgt nach der Gleichung

$$\phi''(\omega) = \frac{\lambda^3 \cdot L}{\pi c^2 d^2 \cdot \cos^2 \theta_{in}}. \quad (2.20)$$

Hier ist L der senkrechte Abstand der Gitter und θ_{in} der Winkel relativ zur Flächennormalen, in dem das Licht auf das Gitter trifft. Die Länge d ist in diesem Fall der Abstand zweier Linien des Gitters, die inverse Gitterkonstante.

Eine weitere Möglichkeit, die spektrale Phase ultrakurzer Impulse zu manipulieren ist die Verwendung dispersiver Spiegel, oft auch „gechirpte“ Spiegel genannt [SFS1994]. Sie bestehen, wie andere dielektrische Spiegel auch, aus einer wechselnden Abfolge von dünnen transparenten Schichten unterschiedlichen Brechungsindex (n_{high} und n_{low}). Der Anteil reflektierten Lichts an einer Grenzfläche zweier Schichten ist nur gering (wenige Prozent). Wird die optische Schichtdicke jedoch korrekt gewählt (ein Viertel der Wellenlänge), so können die reflektierten Anteile mehrerer aufeinanderfolgender Grenzflächen konstruktiv miteinander interferieren.

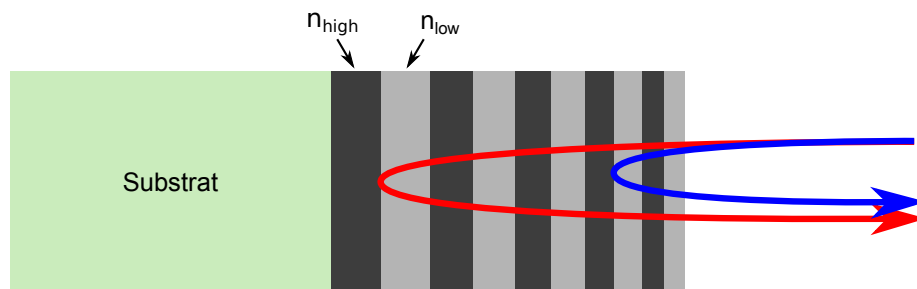


Abbildung 2.3.: Schematische Darstellung eines dispersiven Spiegels. Die Dicke der Schichten unterschiedlichen Brechungsindex (n_{high} und n_{low}) nimmt mit dem Abstand von der Oberfläche zu, was zu einer Wellenlängenabhängigkeit der Eindringtiefe in das Spiegelmaterial führt. Der langwellige spektrale Anteil eines Laserimpulses lässt sich somit gegen den kurzwelligen Anteil verzögern.

Es lässt sich so ein Reflexionsvermögen erreichen, welcher weit besser ist als das von metallbedampften Spiegeln.

Bei dispersiven Spiegeln ist die Schichtdicke nicht konstant sondern ändert sich mit dem Abstand von der Oberfläche. Das Schema in Abbildung 2.3 verdeutlicht die Wirkungsweise: Um *down-chirp* zu erzeugen muss die Schichtdicke nahe der Oberfläche kleiner sein als in der Nähe des Substrats. Somit wird erreicht, dass der kurzwellige Anteil eines Laserimpulses (blau dargestellt) nahe der Oberfläche reflektiert wird, während der langwellige Anteil (rot dargestellt) tiefer in den Spiegel eindringt und deswegen einen längeren optischen Weg zurückzulegen hat. Tabelle 2.2 zeigt eine Übersicht von Werten, die mit den genannten Möglichkeiten der Dispersionskompensation typischerweise im Labor erreicht werden.

Bauteil	typische erreichbare GDD
dispersiver Spiegel	$\approx -10^1 \dots 10^2 \text{ fs}^2$ / Reflexion
Prismenkompressor	$\approx -10^3 \dots 10^4 \text{ fs}^2$
Gitterkompressor	$\approx -10^5 \dots 10^8 \text{ fs}^2$

Tabelle 2.2.: Typische Werte für die erreichbare GDD verschiedener Maßnahmen der Gruppengeschwindigkeitskompensation.

2.3. Messung ultrakurzer Impulse

Neben den Impulsparametern Spektrum und Energie ist die Impulsdauer bzw. das genaue zeitliche Intensitätsprofil entscheidend. Da elektronische Detektion bei Impulsdauern im Femtosekundenbereich nicht möglich ist, sind Methoden der Nichtlinearen Optik notwendig. Dazu wird ein kurzer Referenzimpuls mit dem zu messenden Impuls zeitlich und räumlich in einem Medium mit nichtlinearem Verhalten überlagert. Häufig wird als Referenzimpuls der gleiche Impuls genutzt, der mittels eines Strahlteilers vom eigentlichen Impuls abgetrennt wird. Anschließend wird dieser über eine Verzögerungsstrecke geleitet, um ihn geeignet gegen den anderen Impuls zu verschieben. Mit einer solchen Anordnung misst man die Autokorrelationsfunktion der Intensität, wobei das Messsignal proportional zur Faltung der Intensität des Impulses ist.

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I(t) \cdot I(t - \tau) dt \quad (2.21)$$

Häufig wird im Labor die Nichtlinearität zweiter Ordnung in doppelbrechenden Kristallen genutzt.

Findet die Messung des Signals durch Faltung mit einem anderen Impuls statt, so spricht man von der Kreuzkorrelationsfunktion

$$S(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{in}}(t) \cdot I_{\text{Ref}}(t - \tau) dt. \quad (2.22)$$

Hierbei ist $I_{\text{Ref}}(t)$ ein Referenzimpuls mit bekannter Einhüllender und $I_{\text{in}}(t)$ der zu vermessende Impuls.

In [PeR1998] wird ein Verfahren vorgestellt, welches mithilfe der Autokorrelationsfunktion und des Spektrums Rückschlüsse auf das Intensitätsprofil ziehen kann. Die Anwesenheit von Rauschen während der Messung verhindert jedoch häufig die genaue Bestimmung der Impulsform mit dieser Methode. Unter der Annahme einer bestimmten Impulsform (z.B. gauß-förmig) kann man zumindest mithilfe der Autokorrelationsfunktion die Impulsdauer abschätzen.

Zur Berechnung der Impulsform ist die Kenntnis der (spektralen oder zeitlichen) Phase vonnöten. Es haben sich zwei bevorzugte Verfahren durchgesetzt, die zur Messung der spektralen Phase angewandt werden können. Dies ist zum einen das *Frequency Resolved Optical Gating* oder kurz FROG [TrK1993] und *Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction*, kurz SPIDER [IaW1998]. FROG ist eine Erweiterung der Autokorrelationsmessung, die nicht nur die Intensität des Signals misst, sondern auch die Frequenz ω des erzeugten Lichts. Das gemessene Interferogramm ist proportional zum Betragsquadrat der Fouriertransformierten eines elektrischen Signal-Feldes $E_{\text{Sig}}(t, \tau)$, welches neben der Zeitabhängigkeit auch eine Abhängigkeit von der zeitlichen Verschiebung τ der beiden Impulse zueinander aufweist (siehe [Wei2009] Kap 3.6ff).

$$I_{\text{FROG}}(\omega, \tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} E_{\text{Sig}}(t, \tau) e^{-i\omega t} dt \right|^2 \quad (2.23)$$

$E_{\text{sig}}(t, \tau)$ ist abhängig von der Art der nichtlinearen Wechselwirkung bzw. der verwendeten Strahlgeometrie. Es ergibt sich ein Spektrogramm, welches ein, in Abhängigkeit der Verzögerung beider Impulse, veränderliches Spektrum aufweist. Übliche Varianten von FROG sind SH (zweite Harmonische), TH (dritte Harmo-

nische), SD (Selbstbrechung) und vereinzelt auch PG (Polarisationsdrehung).

$$\begin{aligned}
 \text{SH} : \quad & E_{sig}(t, \tau) \propto E(t) \cdot E(t - \tau) \\
 \text{TH} : \quad & E_{sig}(t, \tau) \propto E^2(t) \cdot E(t - \tau) \\
 \text{SD} : \quad & E_{sig}(t, \tau) \propto E^2(t) \cdot E^*(t - \tau) \\
 \text{PG} : \quad & E_{sig}(t, \tau) \propto |E(t)|^2 \cdot E(t - \tau)
 \end{aligned}$$

Um die Phase zu errechnen, wird mithilfe eines iterativen Verfahrens (verallgemeinerte Projektion, engl. *generalized projections*) eine Lösung errechnet, die eine möglichst geringe Abweichung zum gemessenen Spektrogramm hat. Dieses liegt bei Messungen stets in quantisierter Form vor und lässt sich in die Form einer Matrix der Abmessungen $N \times N$ überführen. Als Maß für die Konvergenz des Projektions-Algorithmus wird der sogenannte „FROG-Fehler“ genutzt, der den relativen Unterschied der beiden Spektrogramme wiedergibt.

$$\epsilon_{\text{FROG}}^{(k)} = \left[\frac{1}{N^2} \sum_{i=1}^N \sum_{j=1}^N [\alpha I_{\text{FROG}}^{(k)}(\omega_i, \tau_j) - I_{\text{FROG}}(\omega_i, \tau_j)]^2 \right] \quad (2.24)$$

Die Größe I_{FROG} ist das auf eins normierte, gemessene Spektrogramm, das vom Algorithmus errechnete Spektrogramm ist $I_{\text{FROG}}^{(k)}$, wobei k für die k -te Iteration steht. Die reelle Zahl α beschreibt eine Normierung des errechneten Spektrogramms auf eins. Laut [DFT1996] Abschnitt VII. ist bei der Nutzung eines Spektrogramms mit 64×64 Punkten ein FROG-Fehler um $\epsilon_{\text{FROG}} \sim 0,01$ ein Wert für eine verlässliche Rekonstruktion.

Das SPIDER Verfahren ist zwar experimentell aufwändiger, benötigt jedoch keine komplizierte und zeitaufwändige iterative Berechnung der Phase. Der zu vermessende Impuls wird in insgesamt drei Repliken aufgeteilt. Eine der Repliken wird auf ein Vielfaches seiner ursprünglichen Dauer gestreckt, die beiden anderen durchlaufen auf identischem Wege, nur zeitlich zueinander verzögert, eine Strecke. Werden die Teilstrahlen nun in einem nichtlinearen Kristall zur Summenfrequenz überlagert, so ergeben sich zwei spektral zueinander versetzte Spektren, da jede der identischen Repliken mit einer anderen Spektralkomponente des gestreckten Impulses überlagert (man spricht von spektralem *shear* Ω). Diese Spektren inter-

ferieren miteinander und ergeben das Signal:

$$S(\omega_c) = |E(\omega_c)|^2 + |E(\omega_c + \Omega)|^2 + 2|E(\omega_c)E(\omega_c + \Omega)| \times \cos[\phi_\omega(\omega_c + \Omega) - \phi_\omega(\omega_c) + \omega_c\tau] \quad (2.25)$$

Durch Fouriertransformation des Signals, Filterung des kontinuierlichen Anteils und eines der Seitenbänder und anschließender Rücktransformation kann der Phasenterm bestimmt werden. Wird noch der Term $\omega_c\tau$ subtrahiert, welcher in einer getrennten Messung (der Kalibration) zu bestimmen ist, so kann nun die spektrale Phase des Impulses gemessen werden. Durch die separate Messung des Spektrums ist der Impuls nun vollständig bestimmt. Die Kalibration des SPIDER-Apparates erweist sich als der kritische Punkt für die erreichbare Messgenauigkeit, da $\omega_c\tau$ die spektrale Phase $\phi_\omega(\omega_c)$ um mehrere Größenordnungen übersteigt. Auch kleine Abweichungen der Kalibration führen zu großen Fehlern der spektralen Phase. Außerdem ist SPIDER z.B. für den UV Bereich nicht nutzbar, da hier keine für die Summenfrequenz phasenangepassten Kristalle existieren. FROG bietet hier jedoch die Möglichkeit, die Selbstbeugung intensiver Strahlen zu nutzen.

2.3.1. Impulscharakterisierung im VUV mittels Zweifarbenionisation

Da die im sichtbaren und infraroten Wellenlängenbereich üblichen Methoden zur Impulsdauermessung (siehe 2.3) im VUV Bereich wegen fehlender transparenter bzw. phasenangepasster Kristalle nicht möglich sind, muss eine andere nichtlineare Wechselwirkung gefunden werden. Eine Möglichkeit besteht in der nichtresonanten Mehrphotonenionisation von Atomen bzw. Molekülen und deren anschließender Detektion mithilfe eines Flugzeitmassenspektrometers. Werden die Atome mithilfe zweier zueinander verzögerbarer Impulse ionisiert, so kann unter Kenntnis der Dauer des einen Impulses die Dauer des anderen bestimmt werden (Kreuzkorrelation).

Die im Rahmen dieser Arbeit erzeugten VUV Impulse wurden deswegen durch die Kreuzkorrelation mit der Fundamentalen durch Zweifarbenionisation von Xenon gemessen. Xenon besitzt keine Zwischenniveaus, die von der fünften Harmonischen resonant angeregt werden können, weswegen die Ionisation instantan

vonstatten geht. Neben der Ionisation durch einen Prozess mit Photonen von Anrege- und Abfrageimpuls kann die Ionisierung auch durch Photonen von nur einem Impuls ausgelöst werden (Einfarbenionisation). Bei Verwendung von Xenon und Photonen einer Wellenlänge von 800 nm sind acht Photonen zur Ionisation notwendig. Bei Verwendung von 160 nm sind es nur zwei Photonen. Beide Signale sind jedoch unabhängig von der zeitlichen Verschiebung der Impulse zueinander, was sich als ein zeit-invariantes Ionensignal äußert. Dieses kann von vom Zweifarbensignal abgezogen werden. Der für die Messungen interessante Kanal ist die Ionisation mit einem VUV Photon und 3 Photonen der Fundamentalen ($7,75 \text{ eV} + 3 \cdot 1,55 \text{ eV} = 12,4 \text{ eV} > 12,15 \text{ eV}$).

Unter der Annahme Gauß-förmiger Impulse der Form $I(t) = A \cdot \exp(-t^2/T_g^2)$, wobei A die Amplitude des Impulses ist und T_g die $1/e$ Breite, kann man die Kreuzkorrelation darstellen als:

$$\begin{aligned} S(\tau) &= \int_{-\infty}^{\infty} I_{\text{VUV}}(t) \cdot I_{\text{Probe}}^n(t - \tau) dt \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} A_{\text{VUV}} \cdot e^{-\frac{t^2}{2w_{\text{VUV}}^2}} \cdot A_{\text{Probe}}^n \cdot e^{-\frac{(t-\tau)^2 \cdot n}{2w_{\text{Probe}}^2}} dt \end{aligned} \quad (2.26)$$

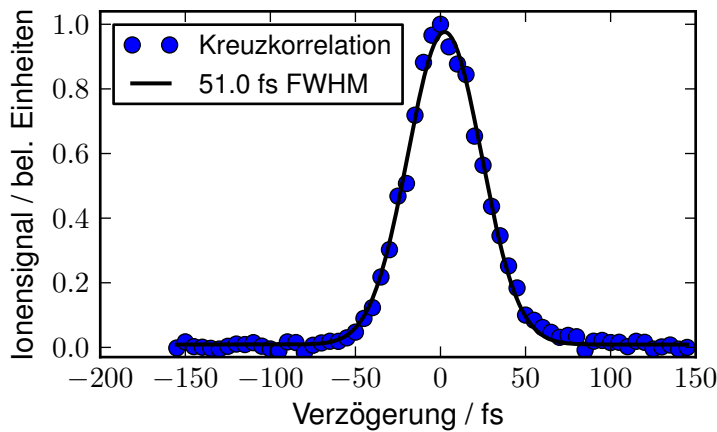


Abbildung 2.4.: Beispiel einer Kreuzkorrelation zwischen Fundamentaler und fünfter Harmonischer durch Zweifarbenionisation von Xenon. Die blauen Punkte stellen die gemessenen relativen Ionensignale dar, die schwarze Kurve zeigt eine Anpassung mithilfe einer Gauß-Funktion.

Durch Vergleich der Koeffizienten in 2.26 ergibt sich die Impulsdauerrelation zu:

$$w_{\text{XC}}^2 = w_{\text{VUV}}^2 + w_{\text{Probe}}^2/n \quad (2.27)$$

wobei hier n die Ordnung des Prozesses (also in unserem Falle $n = 3$) für den Abfrageimpuls ist und w_{XC} , w_{VUV} und w_{Probe} die jeweilige Breiten der Impulse.

2.4. Nichtlineare Wechselwirkung von Licht und Materie

Die nichtlineare Wechselwirkung von Licht mit Materie wird seit der Erfindung des Lasers intensiv untersucht und eine ganze Reihe von Literatur beschäftigt sich damit. Eine umfangreiche Übersicht über das Thema ist zum Beispiel in [Boy1994] zu finden. Hier soll nur ein kurzer Einblick gewährt werden.

Die Ausbreitung von elektromagnetischen Wellen wird durch die Maxwell-Gleichungen beschrieben. Bei der Propagation von Licht nimmt man an, dass die Felder quellen- und stromfrei sind, weswegen sich die Maxwell-Gleichungen zu

$$\nabla \vec{B} = 0 \quad (2.28a) \quad \nabla \times \vec{E} + \frac{\partial}{\partial t} \vec{B} = 0 \quad (2.28c)$$

$$\nabla \vec{D} = 0 \quad (2.28b) \quad \nabla \times \vec{H} - \frac{\partial}{\partial t} \vec{D} = 0. \quad (2.28d)$$

vereinfachen.

Für den Fall, dass die Ausbreitung nicht im Vakuum stattfindet, errechnet sich die magnetische Induktion \vec{B} aus der Summe von Magnetfeld \vec{H} und der Magnetisierung \vec{M} multipliziert mit der magnetischen Feldkonstante μ_0 . Die elektrische Verschiebung errechnet sich analog aus der Summe des elektrischen Feldes \vec{E} multipliziert mit der elektrischen Feldkonstante ϵ_0 und der Polarisation \vec{P} .

$$\vec{B} = \mu_0(\vec{M} + \vec{H}) \quad (2.29)$$

$$\vec{D} = \epsilon_0 \vec{E} + \vec{P} \quad (2.30)$$

Die Lösung der Maxwell-Gleichungen unter der Annahme, dass die Magnetisierung $\vec{M} = 0$ ist, führt zu der Wellengleichung in dielektrischen Medien.

$$\left(\nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \vec{E}(\vec{r}, t) = \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}(\vec{r}, t)}{\partial t^2} \quad (2.31)$$

Die Gleichung besagt, dass die Dipole des Dielektrikums vom Licht angeregt werden und wiederum als Quelle agieren und ihrerseits Licht aussenden. Eine mögliche Lösung dieser Gleichung sind ebene Wellen, wie Sie schon in Kapitel 2.1 eingeführt wurden.

Beim Vorhandensein hoher Feldstärken ist die Annahme einer linearen Reaktion der Dipole auf das Feld nicht mehr vertretbar. Um diesen Fall korrekt zu beschreiben ist die Entwicklung der Polarisation in eine Taylorreihe notwendig (siehe [HeS2010] Kap. 15.8)

$$\vec{P} = \vec{P}^L + \vec{P}^{NL} = \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} \vec{E} + \chi^{(2)} \vec{E} \vec{E} + \chi^{(3)} \vec{E} \vec{E} \vec{E} + \dots \right). \quad (2.32)$$

Die hier dargestellte Form ist natürlich nur eine starke Vereinfachung. Die Suszeptibilitäten $\chi^{(n)}$ sind Tensoren (n+1)-ter Stufe, die über Multiplikation mit den einzelnen Komponenten der elektrischen Feldvektoren auf die Komponenten der Polarisation führen. Mathematisch korrekt und selbsterklärend ist die Schreibweise, welche die einzelnen Komponenten der Polarisation getrennt darstellt. Es gilt:

$$P_i = \epsilon_0 \left(\sum_{j=1}^3 \chi_{ij}^{(1)} E_j + \sum_{j,k=1}^3 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \sum_{j,k,l=1}^3 \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \right) \quad (2.33)$$

Der Term $\vec{P}^L = \epsilon_0 \chi^{(1)} \vec{E}$ wird als lineare Polarisation bezeichnet, alle weiteren Terme werden oft zur nichtlinearen Polarisation \vec{P}^{NL} zusammengefasst. Die Größe $\chi^{(1)}$ (lineare Suszeptibilität) ist dimensionslos, alle folgenden Suszeptibilitäten $\chi^{(n)}$ tragen die Einheit (m/V)ⁿ.

Welche Art von Wechselwirkungen auftreten, hängt neben der Intensität auch von Symmetrieeigenschaften des verwendeten Materials ab. So ist zum Beispiel in Materialien mit Inversionssymmetrie kein Prozess gerader Ordnung möglich, da beim Tauschen des Koordinatenvorzeichens auch das Vorzeichen der Polarisation tauschen muss. Für die Annahme des eindimensionalen Falles kann leicht geschrieben

werden:

$$\begin{aligned} P(-x) &= \epsilon_0 \left(\chi^{(1)} E(-x) + \chi^{(2)} E^2(-x) + \chi^{(3)} E^3(-x) + \dots \right) \\ &\stackrel{!}{=} -\epsilon_0 \left(\chi^{(1)} E(x) + \chi^{(2)} E^2(x) + \chi^{(3)} E^3(x) + \dots \right) = -P(x) \end{aligned} \quad (2.34)$$

Wegen der Annahme der Inversionssymmetrie muss gelten $E(-x) = -E(x)$. Durch Koeffizientenvergleich kann man erkennen, dass diese Relation ist nur dann erfüllt ist, wenn alle geraden Terme verschwinden, also $\chi^{(2n)} = 0$.

2.4.1. Dreiwellenmischung in nichtlinearen Kristallen

Die im vorherigen Kapitel eingeführte Gleichung 2.31 kann genutzt werden, um die Frequenzkonversion von Laserimpulsen zu beschreiben. Wie schon erwähnt, so sind ebene Wellen eine mögliche Lösung dieser Gleichung. Für den Fall der Summenfrequenz lässt sich nach Kapitel 2.2 von [Boy1994] eine Bedingung herleiten, die zur effizienten Umwandlung notwendig ist. Berücksichtigt man nur die Einhüllenden der Impulse $A(z,t)$ und benutzt SVEA, so kann die Größe

$$\Delta \vec{k} = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 - \vec{k}_3 \quad (2.35)$$

eingeführt werden, die als Wellenzahlfehler bezeichnet wird. Zur effizienten Frequenzkonversion muss $\Delta \vec{k} = 0$ gelten. Dieses Kriterium wird Phasenanpassung genannt. Da in den meisten Materialien normale Dispersion herrscht ($dn/d\omega \geq 0$), ist dies nicht zu erreichen, da der Wellenvektor der Summenfrequenz stets größer ist als die Summe der beiden anderen Wellenvektoren. Um Phasenanpassung zu erreichen werden deshalb doppelbrechende Kristalle verwendet. Bei diesen unterscheiden sich die Brechungsindices unterschiedlicher Polarisationsrichtungen (ordentliche (*engl.: ordinary*, o) und außerordentliche (*engl.: extra ordinary*, e) Welle), wodurch unter einem gewissen Einstrahlungswinkel des Lichts Phasenanpassung erreicht werden kann. Der Brechungsindex in einem einachsigen Kristall (es existiert nur ein außerordentlicher Brechungsindex) kann unter Verwendung folgender Gleichung in Abhängigkeit des Einstrahlungswinkels angegeben werden.

$$\frac{1}{n(\theta)^2} = \left(\frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2} + \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2} \right)^{-1} \quad (2.36)$$

Um ein Maß für die „Nichtlinearität“ des verwendeten Kristalls, also die Suszeptibilität in Abhängigkeit der Einstrahlrichtung des Impulses, angeben und vergleichen zu können, wird die sogenannte effektive Nichtlinearität d_{eff} eingeführt. Sie ist zu berechnen aus dem Tensor zweiter Ordnung $\chi_{ijk}^{(2)}$, der in Kapitel 2.4 eingeführt wurde. Für die vorgegebenen Werte von verwendeter Polarisation, Wellenlänge und Schnittwinkel des Kristalls, ergibt sie sich im Falle des einachsigen Kristalls BBO zu (siehe [Boy1994] Kap. 1.5ff)

$$d_{\text{eff}} = d_{31} \sin \theta - d_{22} \cos \theta \sin 3\phi \quad (2.37)$$

Die Koeffizienten d_{ij} ergeben sich aus der Reduktion der Suszeptibilität zweiter Ordnung χ_{ijk} aufgrund von Symmetrien des Kristalls. Sie haben, wie auch die χ_{ijk} , die physikalische Einheit m/V, wegen des geringen Betrags hat sich aber die Nutzung der Einheit pm/V durchgesetzt.

Die heutzutage am häufigsten für Femtosekundenimpulse genutzten nichtlinearen Kristalle sind β -Bariumborat (BBO) [Nik1991], Kaliumdihydrogenphosphat (KDP) und Lithiumborat (LBO) [CWJ1989]. Mit ihnen lassen sich Femtosekundenimpulse mit hoher Effizienz in den ultravioletten Bereich konvertieren. Mithilfe von BBO lassen sich Wellenlängen bis hinab zu 186 nm [KoK1999] erzeugen, eine weitere Verringerung der Wellenlänge wird durch Absorption innerhalb des Kristalls verhindert. Die Erzeugung der zweiten Harmonischen ist durch die Brechungseigenschaften begrenzt und nur bis hinab zu einer Wellenlänge von 204 nm möglich. LBO ist transparent bis zu einer Wellenlänge von 160 nm, kann aber für die zweite Harmonische nur bis zu einer Wellenlänge von ca. 280 nm phasenangepasst werden.

Es gibt nur wenige Kristalle, die sowohl transparent als auch phasenangepasst bei einer Wellenlänge von 160 nm sind. Dies sind die Kristalle $\text{KBe}_2\text{BO}_3\text{F}_2$ [CWW2009] und $\text{Sr}_2\text{Be}_2\text{B}_2\text{O}_7$ [CWX1995] (kurz: KBBF bzw. SBBO). Mit ihnen ist es teilweise möglich die in dieser Arbeit gezeigten Wellenlängen im VUV zu erzeugen. Leider sind sie jedoch kommerziell nicht verfügbar.

2.4.2. Erzeugung der dritten Harmonischen des Titan-Saphir Lasers

Zur Erzeugung der VUV Impulse werden intensive Impulse im UV Bereich, in unserem speziellen Fall bei der dritten Harmonischen des Titan-Saphir Lasers (ca. 266 nm) benötigt. Diese sollen möglichst effizient erzeugt werden, gleichzeitig aber nicht deutlich länger als der Impuls der Fundamentalen werden. Als Kompromiss wurde ein optischer Aufbau gewählt, der in Abbildung 2.5 dargestellt ist und im Nachfolgenden beschrieben wird. Eine ausführliche Beschreibung aller Komponenten ist in [Enq2004] zu finden. An dieser Stelle soll eine kurze Beschreibung des Aufbaus statt finden, die Charakterisierung der Impulse wird in Kapitel 4 erfolgen.

In manchen der durchgeführten Experimente wurde der Strahl der Fundamentalen mit einem Galilei-Linsenteleskop (Linsen L1 und L2) auf einen kleineren Durchmesser kollimiert um die Intensität der Impulse zu erhöhen und damit die Konversionseffizienz zu verbessern. Wie später im Text noch erwähnt wird, zeigte sich dabei, dass die Intensität in der zweiten Linse so hoch wird, dass es zur Selbstphasenmodulation der Impulse kommt. Zunächst tritt der Strahl durch einen 0,5 mm dicken BBO (SH), geschnitten für die Erzeugung der zweiten Harmonischen ($\theta = 29^\circ$ bzgl. der optischen Achse), was einer Typ I Frequenzkonversion entspricht (beide eingehenden Strahlen haben die gleiche Polarisationsrichtung, $o + o \rightarrow e$). Eine Umwandlung von ca. 35% der Fundamentalen in die zweite Harmonische

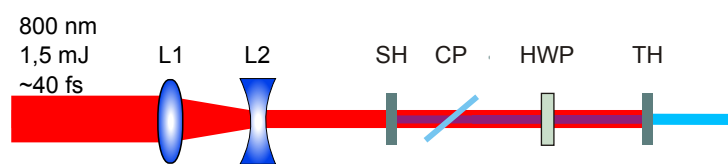


Abbildung 2.5.: Aufbau zur Erzeugung der dritten Harmonischen. Nach einer Reduzierung des Strahldurchmessers mit den Linsen L1 und L2 wird im ersten BBO Kristall (SH) die zweite Harmonische erzeugt. Die mit CP gekennzeichnete Kalzitplatte dient zur Kompensation der Laufzeitunterschiede von Fundamentaler und zweiter Harmonischer. Die Wellenplatte HWP sorgt anschließend für die parallele Ausrichtung beider Polarisationen um im Summenfrequenzkristall (TH) die dritte Harmonische zu erzeugen. Aus Gründen der Übersicht ist nach der Summenfrequenz nur die dritte Harmonische dargestellt, tatsächlich ist die unkonvertierte Fundamentale und zweite Harmonische immer noch vorhanden und wird durch die Verwendung dielektrischer Spiegel von der dritten Harmonischen separiert.

findet statt, die kollinear mit der verbliebenen Fundamentalen propagiert, jedoch unterschiedliche Polarisierung aufweist. Da der Durchmesser der Fundamentalen ($1/e^2$) bei mehr als 10 mm liegt, kann der seitliche Versatz der beiden Strahlen (sog. *walk-off*) von $34\ \mu\text{m}$ bei gegebener Kristalldicke vernachlässigt werden. Anschließend treffen beide Strahlen auf eine Kalzitplatte (CP), die als Laufzeitkompensation der beiden Impulse dient. Dabei ist die Platte so ausgerichtet, dass die optische Achse senkrecht zur Polarisierung der Fundamentalen steht. Somit wird die zweite Harmonische zur außerordentlichen Welle innerhalb des Kristalls. Da Kalzit, genauso wie BBO, ein negativ einachsiger Kristall ist, ist die Gruppengeschwindigkeit v_g der außerordentlichen Welle kleiner als die der ordentlichen Welle. Als Folge davon bewegt sich die zweite Harmonische bei gewissen Einstrahlwinkeln schneller durch die Kalzitplatte als die Fundamentale, eine Kompensation des Gruppengeschwindigkeitsunterschieds der anderen Komponenten des Aufbaus ist somit möglich. Die Anpassung erfolgt grob über die Wahl der Plattendicke, zur Feinabstimmung wird der Einfallswinkel auf die Platte geändert.

Die nächste Komponente ist eine Wellenplatte (HWP), welche die Polarisierung der Fundamentalen um 90° dreht während es die Polarisierung der zweiten Harmonischen um 180° dreht. Beide Impulse treffen nun kollinear, mit gleicher Polarisierung und zum selben Zeitpunkt auf einen weiteren BBO Kristall (TH) mit 0,3 mm Dicke, dessen Oberfläche einen Winkel von $\theta = 44^\circ$ mit der optischen Achse einschließt. Dieser Winkel ist wiederum optimal für eine Typ I Wechselwirkung ($o + o \rightarrow e$). Der Vorteil der Typ I Wechselwirkung gegenüber Typ II (eingehende Strahlen haben unterschiedliche Polarisierungsrichtungen, $e + o \rightarrow e$) liegt in der größeren effektiven Nichtlinearität d_{eff} ($1,87\ \text{pm/V}$ gegenüber $0,69\ \text{pm/V}$) und rechtfertigt die Nutzung der Wellenplatte. Die genutzte Schreibweise für die Unterscheidung von ordentlichem (o) und außerordentlichem (engl.: *extra ordinary*, e) Strahl ist gemeinhin üblich. Die Reihenfolge bezeichnet stets die langwellige Komponente zuerst (800 nm), danach die kurzwellige Komponente (400 nm), die sich dann zur Summe ergeben (ca. 266 nm), dargestellt durch den Pfeil.

Mit diesem experimentellen Aufbau können bei Verwendung von 1,5 mJ Impulsenergie der Fundamentalen bis zu $230\ \mu\text{J}$ dritte Harmonische erzeugt werden, was einer Konversionseffizienz von 15% entspricht. Bei Verwendung von 2 mJ der Fundamentalen konnten bis zu $400\ \mu\text{J}$ erzeugt werden (20% Konversionseffizienz).

2.4.3. Nichtlinearer Brechungsindex und Vierwellenmischung

Bei der Verwendung von Laserimpulsen hoher Intensität kann der Brechungsindex nicht mehr als konstant angesehen werden. Er ist für die meisten Materialien durch Entwicklung und Abbruch nach der ersten Ordnung darstellbar durch

$$n(I) = n_0 + n_2 \cdot I, \quad (2.38)$$

mit n_0 als dem schon bekannten Brechungsindex und n_2 als einer neuen Materialgröße, dem nichtlinearen Brechungsindex mit der physikalischen Einheit cm^2/W . Wie aus Kapitel 2.4 bekannt, lässt sich die Polarisation optischer Materialien in eine Taylor-Reihe entwickeln was der Suszeptibilität die Natur einer Summe von Tensoren (multipliziert mit einer Potenz des elektrischen Feldes) verleiht. Nach [Boy1994] (Gleichung 1.2.14b und der Umrechnung $\epsilon_0 = 1/4\pi$ vom CGS-System in das SI-System) kann durch Vergleich der Variablen gezeigt werden, dass der nichtlineare Brechungsindex im Falle eines isotropen Mediums und der Anwesenheit nur eines Laserimpulses einen linearen Zusammenhang zur Suszeptibilität aufweist.

$$n_2 = \frac{3\pi\chi^{(3)}}{4n_0^2c\epsilon_0} \quad (2.39)$$

Bei der Ausbreitung eines intensiven Laserimpulses unter Berücksichtigung dieses nichtlinearen Brechungsindex kommt es zu einer zeitabhängigen Änderung der zeitlichen Phase $\phi(t)$ wegen der zeitabhängigen Intensität des Impulses $I(t)$. Als Folge davon wird während der Ausbreitung sowohl die Phase als auch das Spektrum des Impulses verändert. Da die Änderung vom Impuls selber verursacht wird, spricht man auch von Selbstphasenmodulation (SPM).

Eine ähnliche Betrachtung ist auch für die räumliche Entwicklung eines Impulses angebracht. Nimmt man für die laterale Intensitätsverteilung eines Laserimpulses eine Gauß'sche Glockenkurve an, so hat diese im Zentrum ihr Maximum und fällt zu den Seiten hin ab. Aufgrund des nichtlinearen Brechungsindex ist somit n in Strahlmitte höher als am Rande, was bewirkt, dass das Licht zur Strahlmitte hin gebrochen wird. Übersteigt dieser Effekt die natürliche Beugung des Lichts, so ist führt sich der Strahl selber (man spricht im englischen von „self trapping“). Interessanterweise hängt dieser Effekt nicht von der Intensität des Impulses ab, sondern nur von dessen Leistung. Man spricht in diesem Zusammenhang von kri-

tischer Leistung (siehe z.B. [DiR2006], Gleichung 3.132):

$$P_{krit} = \frac{3.77\lambda^2}{8\pi n_0 n_2} \quad (2.40)$$

Natürlich kann diese Vereinfachung nicht allen Wechselwirkungen gerecht werden und eine tensorielle Betrachtung ist notwendig. Da anhand Gleichung 2.32 zu sehen ist, dass insgesamt vier elektrische Felder in einer Wechselwirkung beteiligt sind (die einfallenden elektrischen Felder E_i , E_j und E_k sowie das durch die nichtlineare Polarisation getriebene Feld) wird dieser Prozess als Vierwellenmischung bezeichnet. Je nach Wechselwirkung und Frequenz der beteiligten Impulse berechnet sich die nichtlineare Polarisation des Mediums (wiederum unter Annahme von SVEA) zu ([Rei1984] Kap.2, Gleichung 2):

$$P^{NL}(\omega_4 = \omega_i + \omega_j + \omega_k) = \epsilon_0 6\pi \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_i, \omega_j, \omega_k) A_i A_j A_k \quad (2.41)$$

$$P^{NL}(\omega_4 = \omega_i + \omega_j - \omega_k) = \epsilon_0 6\pi \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_i, \omega_j, -\omega_k) A_i A_j A_k^* \quad (2.42)$$

$$P^{NL}(\omega_4 = \omega_i - \omega_j - \omega_k) = \epsilon_0 6\pi \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_i, -\omega_j, -\omega_k) A_i A_j^* A_k^* \quad (2.43)$$

$$P^{NL}(\omega_4 = 2\omega_i + \omega_j) = \epsilon_0 3\pi \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_i, \omega_i, \omega_j) A_i^2 A_j \quad (2.44)$$

$$P^{NL}(\omega_4 = 2\omega_i - \omega_j) = \epsilon_0 3\pi \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_i, \omega_i, -\omega_j) A_i^2 A_j^* \quad (2.45)$$

Die beiden unteren Gleichungen stellen dabei Spezialfälle der ersten und zweiten Gleichung dar. Die letzte Gleichung ist im Laufe dieser Arbeit von besonderem Interesse, da Sie den Prozess der Differenzfrequenz zweier Impulse darstellt. Nur dieser Prozess wird für die Erzeugung der VUV Impulse genutzt.

Betrachtet man den einfachsten Fall nur eines elektrischen Feldes A_1 und nimmt man weiterhin an, dass die Näherung ebener Wellen gültig ist, so lässt sich der Verlauf der Einhüllenden des getriebenen Feldes schreiben als ([Rei1984] Kap. 2.1, Gleichung 7):

$$\frac{dA_1}{dz} = i \frac{3\pi^2}{n_1 \lambda_1} \chi^{(3)} A_3 (A_1^*)^2 e^{i\Delta k z} \quad (2.46)$$

$$\frac{dA_3}{dz} = i \frac{3\pi^2}{n_3 \lambda_1} \chi^{(3)} A_1^3 e^{-i\Delta k z} . \quad (2.47)$$

Dabei ist A_1 die Einhüllende des treibenden Feldes und A_3 das Feld der dritten Harmonischen $\omega_3 = 3 \cdot \omega_1$. Die Intensität dieser dritten Harmonischen lässt sich unter der Annahme, dass die Intensität gering bleibt im Vergleich zur Fundamen-

talen (engl.: *non-depleted pump approximation*), schreiben als (siehe [Rei1984] Kap. 2.1, Gleichung 12 sowie Umrechnung in SI-System)

$$I_3 = \frac{72\pi^4}{n_3 n_1^3 \lambda_1^2 c_0^2 \epsilon_0^2} |\chi^{(3)}|^2 I_1^3 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k \cdot \frac{L}{2})}{(\Delta k \cdot \frac{L}{2})^2}. \quad (2.48)$$

Hierbei ist L die gesamte Wechselwirkungslänge und Δk der Wellenzahlunterschied beider Impulse. Analog dazu lassen sich die Intensitäten auch für die anderen Wechselwirkungen berechnen. Das erzeugte Signal hängt also quadratisch von der Wechselwirkungslänge ab und in der dritten Potenz von der Intensität.

2.5. Energiemessung von VUV Impulsen

Die Messmethoden zur Bestimmung der Impulsenergie bzw. Durchschnittsleistung im sichtbaren und infraroten Bereich (pyro- bzw. thermoelektrisch) sind im VUV Bereich nicht oder nur schlecht anwendbar. Zum einen ist die Durchschnittsleistung im höchsten Fall bei wenigen mW, meist nur um einige hundert μW . Schon eine kleine eingebrachte Wärmequelle, z.B. die Abwärme einer Pumpe oder auch die Handfläche des Experimentators, macht Messungen mittels thermoelektrischer Messgeräte zunichte. Pyroelektrische Messgeräte hingegen sind meist nicht für den Betrieb innerhalb von Vakuumanlagen geeignet. Die Messung mithilfe von Photodioden ohne Abdeckglas ist zwar prinzipiell möglich und wurde schon mit Synchrotronquellen untersucht [KRR1998], ist aber unüblich.

Wir verwenden daher ein kalibriertes, kommerzielles Energiemessgerät (Startech Instruments QF-16C) in dem durch den eingestrahnten VUV Impuls ein Medium zur Fluoreszenz angeregt wird. Die genaue Zusammensetzung des Mediums wird vom Hersteller nicht mitgeteilt. Nach Anregung mit den VUV Impulsen erfolgt eine Fluoreszenz im nahen Infraroten (um 850 nm), die von einer Photodiode detektiert wird. Nach Einstrahlen des VUV Impulses und Anstieg des Signals innerhalb von wenigen μs , fällt das Signal mit einer Zeitkonstante von etwa 50 μs wieder ab. Ein Transimpedanzverstärker wandelt den von den Photodioden gemessenen Strom in eine Spannung um, die mit einem Oszilloskop (Eingangswiderstand 1 M Ω) gemessen wird. Die Spitzenspannung ist proportional zur eingestrahnten Energie der VUV Impulse. In Abbildung 2.6 ist der typische Signalverlauf zu sehen. Bei einer Wellenlänge von 157 nm ist, laut Kalibration des Herstellers, der Umrechnungs-

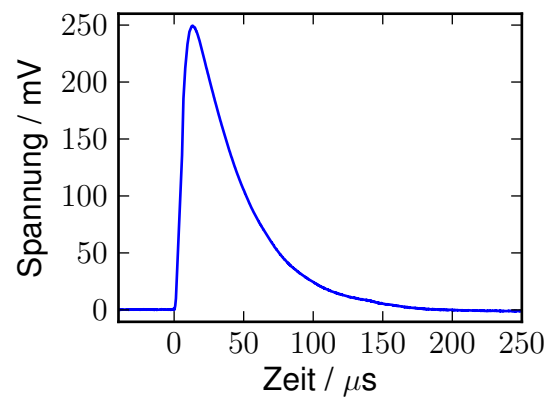


Abbildung 2.6.: Typischer Signalverlauf des verwendeten VUV Impulsenergiemessgerätes. Die Zeitkonstante bis zum Abfall des Signals auf $1/e$ beträgt etwa $50 \mu\text{s}$.

faktor von Spannung zu Impulsenergie bei $1,2 \text{ nJ/mV}$. Diese Werte wurden in der Vergangenheit in der Arbeitsgruppe bei einer Wellenlänge von 193 nm überprüft.

3. Beschreibung des verwendeten Lasersystems

In diesem Kapitel findet eine kurze Beschreibung des für die Erzeugung ultrakurzer, verstärkter Impulse notwendige Verfahren der „chirped pulse amplification“ statt. Des weiteren ist der prinzipielle Aufbau der für diese Arbeit verwendeten Lasersystems dargestellt.

3.1. Chirped Pulse Amplification

Würden die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten ultrakurzen Laserimpulse in Festkörper fokussiert, so würde die hohe Intensität unweigerlich zu dessen Zerstörung führen. Eine Fokussierung ist jedoch notwendig um eine hohe Fluenz (also Energie/Fläche) zu erzeugen, die wiederum für eine effiziente Konversion der Pumpenergie vonnöten ist. Der Weg aus diesem Dilemma besteht in der Verwendung der sogenannten *chirped pulse amplification* [StM1985], kurz CPA, die in Abbildung 3.1 schematisch dargestellt ist.

Kurze Laserimpulse von wenigen als 20 fs Dauer und mit niedriger Energie (wenige Nanojoule) werden zum Beispiel in einem modengekoppelten Titan-Saphir Laser erzeugt [SKS1991], dem sogenannten Oszillator. In einem optischen Aufbau bestehend aus zwei antiparallelen Beugungsgittern und einem Teleskop dazwischen (siehe [Mar1987]) wird dieser Impuls auf typischerweise mehrere hundert Piko-sekunden Dauer gestreckt. Dabei sinkt die Spitzenleistung und damit auch die Spitzenintensität proportional zum Streckungsfaktor, die Fluenz als das zeitliche Integral der Intensität bleibt jedoch konstant. Ein solcher Aufbau, welcher einen großen Betrag positiver Dispersion erzeugt, wird Impulsstreckler, oder kurz: Strecker, genannt.

Diese Impulse mit niedriger Energie werden nun in einem regenerativen Verstär-

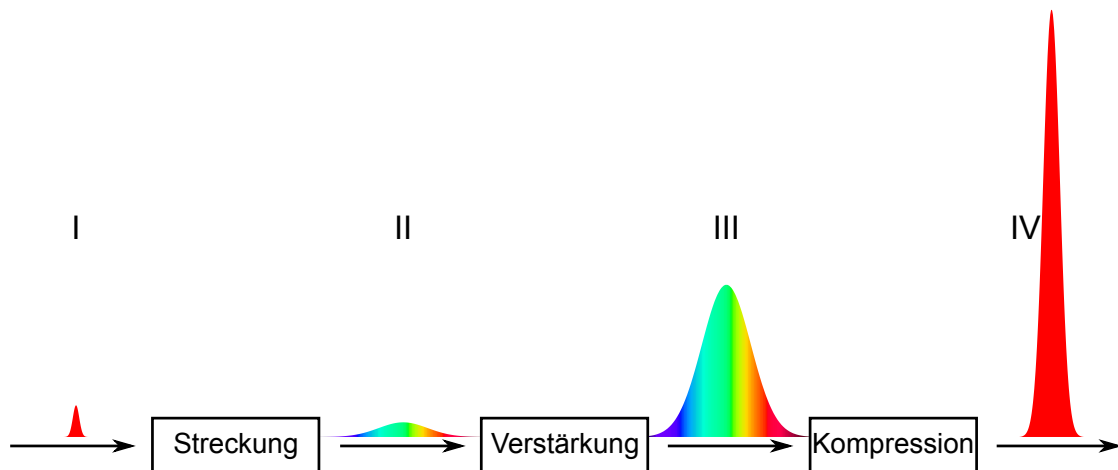


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung der „chirped pulse amplification“. Der kurze Impuls mit niedriger Energie (I) wird um einen erheblichen Faktor zeitlich gestreckt (II), um im Verstärker bei gleichbleibender großer Impulsdauer verstärkt zu werden (III). Anschließend erfolgt die Kompression (IV).

ker, also einem Laserresonator mit elektro-optischem Schalter („Pockelszelle“) und Polarisator ausgestattet, von wenigen Nanojoule auf mehrere Millijoule verstärkt. Die erhebliche Streckung der Impulse verhindert nun die Zerstörung des Lasermediums (Titan-Saphir Kristall) bzw. der anderen Komponenten.

Anschließend erfolgt die Kompensation der vom Strecker und den anderen eingebrachten Medien verursachte Dispersion im Impulskompressor [Tre1969]. Dieser besteht aus der in Kapitel 2.2 gezeigten Anordnung von vier Beugungsgittern mit identischer Gitterkonstante.

3.2. Das Titan-Saphir Lasersystem

Der für sämtliche Experimente genutzte Laser ist ein kommerzielles Titan-Saphir CPA Lasersystem mit einer Impulsenergie von 3 mJ bei einer Zentralwellenlänge von etwa 800 nm. Die Dauer der Impulse beträgt dabei ca. 40 fs und die Wiederholrate 1 kHz.

Der schematische Aufbau ist in Abbildung 3.2 zu sehen: Ein frequenzverdoppelter, diodengepumpter und kontinuierlicher („continuous wave“, cw) Nd:YVO Laser mit einer Wellenlänge von 532 nm wird genutzt um den Femtosekunden-Oszillator zu pumpen (*Tsunami*, gebaut von der Firma *Spectra Physics*). Die Impulse mit einer Wiederholrate von ca. 80 MHz, einer Impulsenergie von 2,5 nJ und weniger als

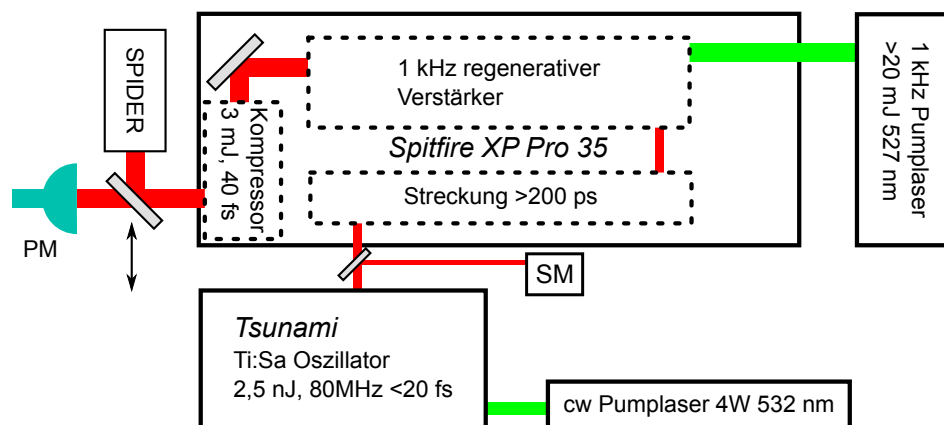


Abbildung 3.2.: Prinzipskizze des verwendeten Ti:Sa Verstärkersystems. Die in der Grafik verwendeten Abkürzungen PM, SM und SPIDER stehen für das Energiemessgerät (power meter PM), ein Faserspektrometer (SM) sowie das Impulsdauermessgerät (SPIDER). Beschreibung siehe Text.

20 fs Dauer werden nun in den Verstärker *Spitfire XP Pro 35* (ebenfalls *Spectra Physics*) geleitet. An dessen Eingang erzeugt ein Impulstrecker eine große positive Dispersion, die den Impuls von 20 fs auf über 200 ps streckt.

Der sich anschließende regenerative Verstärker wird von einem frequenzverdoppelten Nd:YLF Laser gepumpt, welcher Impulse von maximal 20 mJ bei einer Wiederholfrequenz von 1 kHz erzeugt. Mit Hilfe einer schnellen Pockelszelle und eines Dünnschichtpolarisators wird einer von ca. 80.000 Impulsen aus dem Impulszug von 80 MHz selektiert. Dies wird erreicht durch ein schnelles Drehen der Polarisationsrichtung der linear polarisierten Laserimpulse. Der Impulszug von nun 1 kHz Wiederholrate wird in einen Resonator eingekoppelt, welcher vom Nd:YLF Laser gepumpt wird. Eine weitere schnelle Pockelszelle nach dem Dünnschichtpolarisator, die mit der ersten Pockelszelle synchronisiert ist, wird bei jedem Resonatorumlauf durchlaufen. Dreht auch diese Pockelszelle die Polarisationsrichtung des Lichts, so kann der Impuls den Resonator nicht mehr verlassen und wird verstärkt. Durch die vom Nd:YLF Pumplaser erzeugte Inversion im Verstärkerkristall wird nach ca. 12 bis 15 Umläufen die anfängliche Impulsenergie von 2,5 nJ auf etwa 4 mJ erhöht. Anschließend erfolgt die Auskopplung aus dem Resonator durch eine wiederholte Drehung der Polarisationsrichtung des Impulses und Reflexion an einem Dünnschichtpolarisator.

Durch Passage der verstärkten Impulse durch einen Impulskompressor wird die Dispersion des Streckers wieder kompensiert. Den Kompressor verlassen Impulse

von etwa 40 fs Dauer und einer Impulsenergie von 3 mJ. Die Wiederholfrequenz ist durch den Pumplaser vorgegeben und beträgt 1 kHz.

In der Abbildung nicht dargestellt ist der optisch parametrische Verstärker (*optical parametric amplifier*, OPA), welcher in Kapitel 7 genauer beschrieben wird. Dieser basiert auf dem neuen nichtlinearen Kristall Bismuthtriborat (BiB_3O_6 , BIBO). Mit diesem OPA können Impulse von weniger als 30 fs Dauer in einem Wellenlängenbereich zwischen 1100 und 1600 nm bei etwa 100 μJ Impulsenergie erzeugt werden [GPN2010].

4. Charakterisierung der dritten Harmonischen des Titan-Saphir Lasers

Mit dem in Kapitel 2.4.2 beschriebenen experimentellen Aufbau wurden ultrakurze und energiereiche Impulse im UV Bereich bei ca. 266 nm erzeugt. Ihre zeitliche Charakterisierung erfolgte durch Selbstbeugungs-FROG. Der schematische Aufbau dieses Gerätes ist in Abbildung 4.1 zu sehen: Ein Teil des zu vermessenden Strahles wird in die Apparatur eingekoppelt. Um zwei zeitlich identische Repliken des Impulses zu erzeugen wird der Strahl räumlich getrennt. Dazu wird ein aluminiumbedampfter Spiegel genutzt, welcher eine Hälfte des Strahlprofils reflektiert, die andere jedoch ungehindert passieren lässt. Dieser Anteil passiert eine variable Strecke und wird mit dem anderen Teilstrahl wieder parallel überlagert. Danach erfolgt die Fokussierung mithilfe eines $f = 30$ cm Fokussierspiegels in eine 0,1 mm

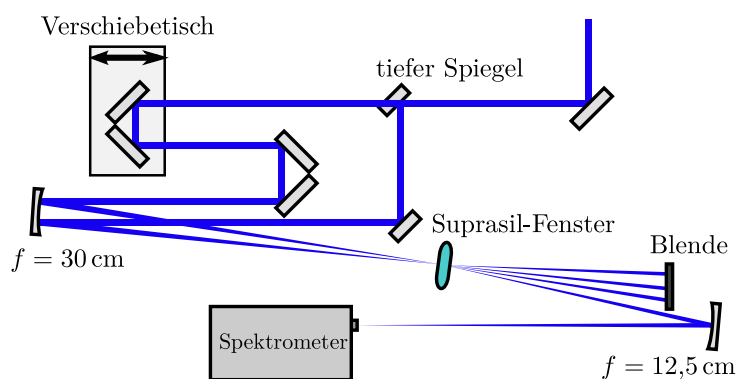


Abbildung 4.1.: Schematischer Aufbau des verwendeten SD-FROG. Der einfallende Strahl wird durch räumlich geteilt durch einen metallischen Spiegel, der die untere Hälfte des Strahlprofils reflektiert und die obere ungehindert passieren lässt. Fokussierung in eine dünne Scheibe Suprasil geschieht durch einen $f = 30$ cm Spiegel, Fokussierung in das Spektrometer durch einen $f = 12,5$ cm Spiegel.

dünne Scheibe eines UV-transparenten Glases (SUPRASIL). Überlagern sich beide Teilstrahlen sowohl räumlich als auch zeitlich innerhalb des Glases, so werden zwei weitere zusätzliche Strahlen sichtbar, die sich neben den beiden Hauptstrahlen befinden. Einer von diesen wird nun in ein Spektrometer gelenkt und bildet die Quelle für die im Folgenden gezeigten Spektrogramme.

Wenige μJ wurden durch Fresnelreflexion an einer Glasplatte vom Hauptstrahl abgetrennt und in diesen SD-Autokorrelator/FROG geschickt. In Abhängigkeit der Kristalldicken, der Pumpenergie und der Verwendung eines Teleskops variiert die Impulsdauer und Energie der dritten Harmonischen.

Die in den meisten Fällen verwendete Impulsenergie der Fundamentalen lag bei 1,5 mJ. Um den optimalen Kompromiss aus kurzer Impulsdauer und hoher TH Energie zu erreichen wurden zunächst verschiedene Kristalldicken getestet, die zur Verfügung standen.

Abbildung 4.2 zeigt die gemessene und die rekonstruierte FROG Spur für Kristalldicken von 0,3 mm in der Verdopplung und 0,2 mm in der Summenfrequenz. In Ab-

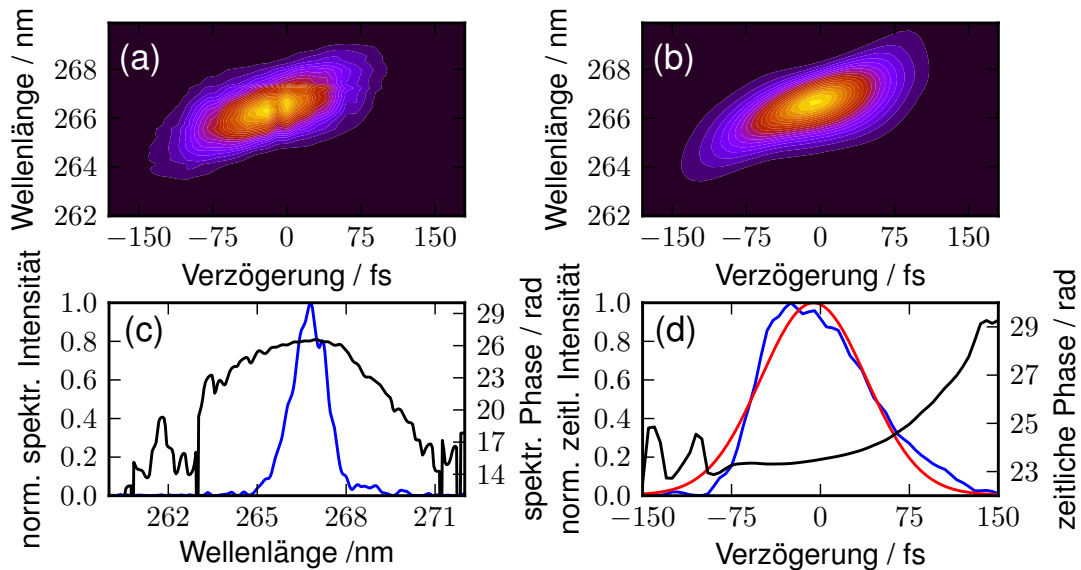


Abbildung 4.2.: Charakterisierung der dritten Harmonischen unter Verwendung eines 0,3 mm BBO zur Verdopplung und eines 0,2 mm BBO für die Summenfrequenz. Abbildung a) zeigt die gemessene FROG Spur, Abbildung b) die errechnete. Abbildung c) zeigt die spektrale Intensität (blau) und Phase (schwarz), in Abbildung d) ist die zeitliche Intensität (blau) und Phase (schwarz) dargestellt. Die Impulsdauer beträgt 105 fs (FWHM) bei einem FROG Fehler von 0,0116.

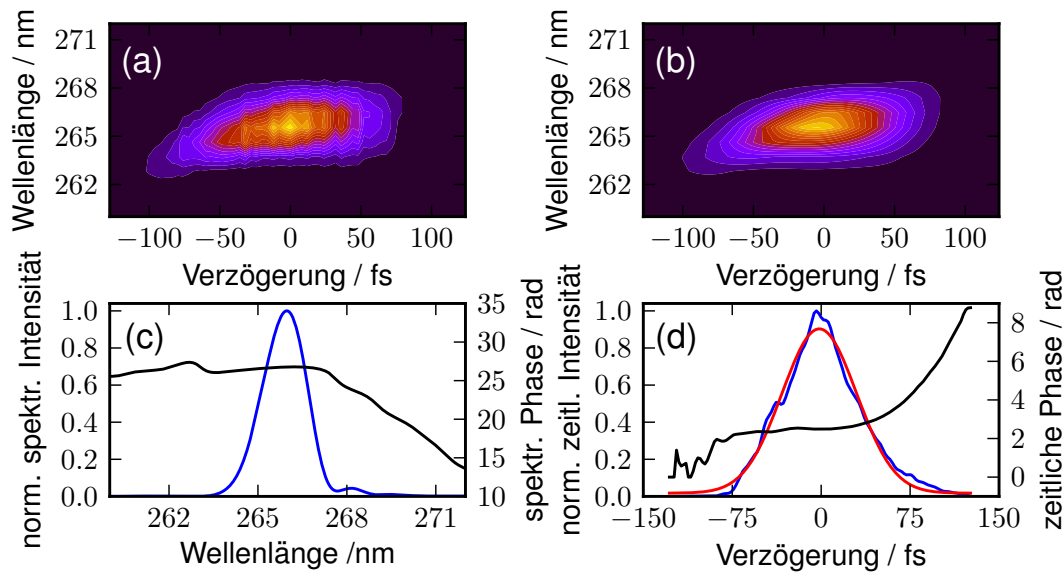


Abbildung 4.3.: Charakterisierung der dritten Harmonischen unter Verwendung eines 0,1 mm BBO zur Verdopplung und eines 0,2 mm BBO für die Summenfrequenz. Abbildung a) zeigt die gemessene FROG Spur, Abbildung b) die rekonstruierte. Abbildung c) zeigt die spektrale Intensität (blau) und Phase (schwarz), in Abbildung d) ist die zeitliche Intensität (blau) und Phase (schwarz) dargestellt. Die Impulsdauer beträgt 75 fs (FWHM) bei einem FROG Fehler von 0,0103.

Abbildung 4.2 (a) ist eine typische gemessene SD-FROG Spur (Spektrogramm) dargestellt, welche das Spektrum über der Verzögerung beider Teilimpulse zueinander aufgetragen zeigt. Der FROG Algorithmus (siehe Kapitel 2.3) sucht eine Lösung für das elektrische Feld, welche einen möglichst kleinen Unterschied zwischen dem gemessenen Spektrogramm und dem aus der Lösung konstruierten Spektrogramm aufweist (der FROG-Fehler). Die rekonstruierte Lösung ist in 4.2 (c) (spektral) bzw. 4.2 (d) (zeitlich) dargestellt. Es ist zu beachten, dass hier die Intensitäten dargestellt sind, nicht die elektrischen Felder! Die Impulsdauer beträgt ca. 105 fs bei einer spektralen Breite von 1,3 nm. Im Vergleich dazu hat die Fundamentale eine Dauer von etwa 40 fs. Das Zeit-Bandbreiten-Produkt der dritten Harmonischen hat einen Wert von 0,58, was bedeutet, dass der erzeugte Impuls etwa 30% länger ist als die Fouriergrenze. Die erzeugte Impulsenergie ist dabei 235 μJ . Dabei wurde kein Teleskop zur Fokussierung verwendet.

Die Charakterisierung bei Verwendung eines 0,1 mm dünnen Kristalls in der Verdopplung ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Die Impulsdauer verringert sich auf 75 fs

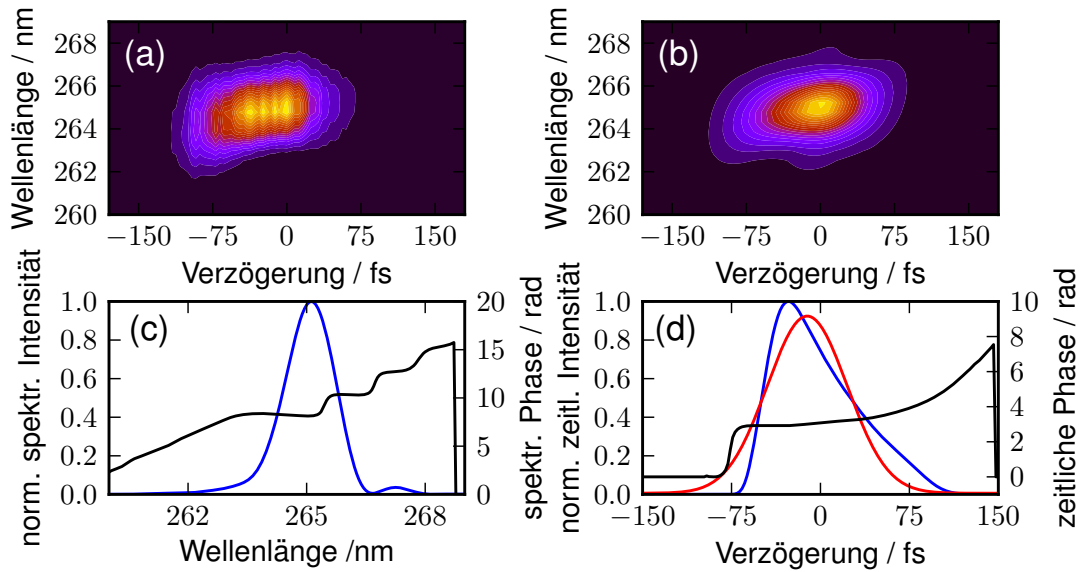


Abbildung 4.4.: Charakterisierung der dritten Harmonischen unter Verwendung eines 0,1 mm BBO zur Verdopplung und eines 0,2 mm BBO für die Summenfrequenz. Abbildung a) zeigt die gemessene FROG Spur, Abbildung b) die rekonstruierte. Abbildung c) zeigt die spektrale Intensität (blau) und Phase (schwarz), in Abbildung d) ist die zeitliche Intensität (blau) und Phase (schwarz) dargestellt. Die Impulsdauer beträgt 76 fs (FWHM) bei einem FROG Fehler von 0,0103.

bei einer reduzierten Impulsenergie von 215 μJ . Die Bandbreite der Impulse erhöht sich auf 1,7 nm bei einem fast identischen Zeit-Bandbreiten-Produkt von 0,52. Die erzeugten Impulse sind, wie im ersten Fall auch, wieder ca. 30% durch positive Dispersion verbreitert. Eine Verlängerung der Impulsdauer in dieser Größenordnung kann nicht durch die Dispersion der BBO Kristalle ($75 \text{ fs}^2/\text{mm}$ für 800 nm bzw. $146 \text{ fs}^2/\text{mm}$ für 400 nm) und des Kalzit ($72 \text{ fs}^2/\text{mm}$ für 800 nm bzw. $150 \text{ fs}^2/\text{mm}$ für 400 nm) allein erklärt werden. Die für eine solche Verlängerung der Impulsdauer nötige GDD beträgt ca. 1000 fs^2 . Wie weiter unten im Text noch besprochen wird, kann dieser Effekt nur durch die Wellenplatte verursacht werden.

Verwendet man für die Summenfrequenz einen noch dünneren Kristall (0,1 mm), so ist die Impulsdauer beinahe identisch zum Fall der Verwendung des 0,2 mm dicken Kristalls. Hier sollte sich eigentlich eine noch größere Bandbreite ergeben, welche die Impulsdauer der Fundamentalen beinahe unterstützen sollte. Der GVM des Verdopplungskristall ist bereits kleiner als 20 fs bei gegebener Dicke und sollte den Impuls nur unwesentlich verbreitern. Gemessen wird jedoch wieder eine

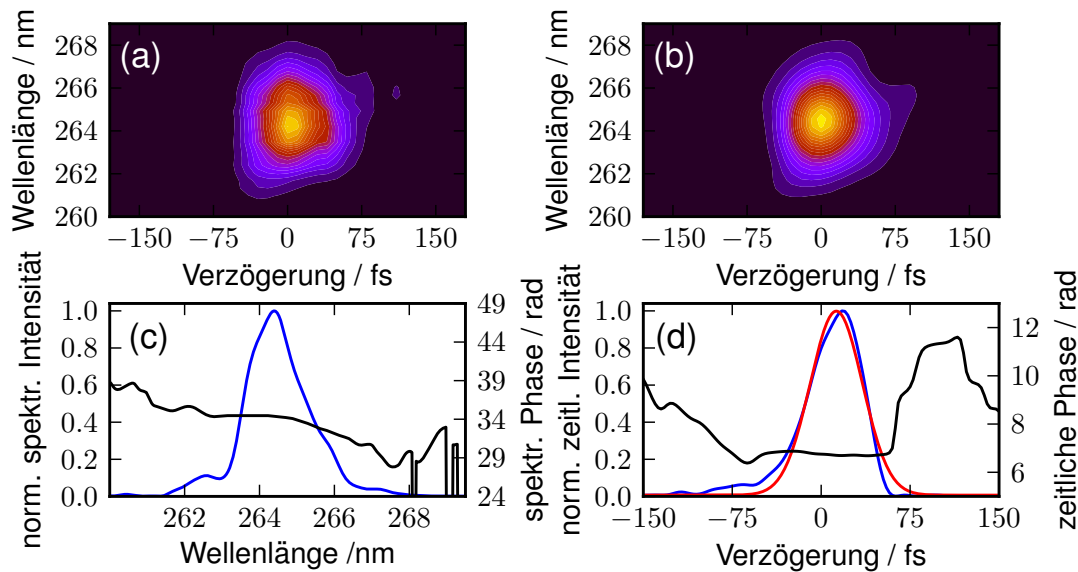


Abbildung 4.5.: Charakterisierung der dritten Harmonischen unter Verwendung eines 0,1 mm BBO zur Verdopplung und eines 0,2 mm Typ II BBO für die Summenfrequenz. Abbildung a) zeigt die gemessene FROG Spur, Abbildung b) die rekonstruierte. Abbildung c) zeigt die spektrale Intensität (blau) und Phase (schwarz), in Abbildung d) ist die zeitliche Intensität (blau) und Phase (schwarz) dargestellt. Die Impulsdauer beträgt 50 fs (FWHM) bei einem FROG Fehler von 0,0125.

Impulsdauer von 76 fs bei ähnlicher Bandbreite (1,65 nm), was im Rahmen der Messungenauigkeit identisch ist (Abbildung 4.4). Die Verbreiterung der Impulsdauer kommt von einer anderen Komponente im Aufbau. Die Impulsenergie ist dabei $195 \mu\text{J}$, was geringfügig weniger als der Wert des 0,2 mm Kristalls ist.

Wird die Halbwellenplatte entfernt, so kann, unter Verwendung von Typ II Wechselwirkung, ebenfalls die Summenfrequenz erzeugt werden ($\theta = 55^\circ$). Unter Verwendung eines 0,2 mm dicken BBO mit diesem Schnittwinkel wurden lediglich $65 \mu\text{J}$ erzeugt, allerdings mit der in Abbildung 4.5 dargestellten kurzen Impulsdauer von 50 fs. Die in den bisherigen FROG Messungen gezeigte asymmetrische Impulsform ist hier nicht zu sehen. Stattdessen ist der Impuls annähernd gaußförmig. Die in Typ I verwendete Halbwellenplatte führt offenbar zu einer deutlichen Verlängerung der Impulsdauer. Trotzdem ist die Typ I Summenfrequenz gegenüber Typ II zu bevorzugen, da die erzeugte Impulsenergie um den Faktor 3 höher ist bei einer Steigerung der Impulsdauer von 1,5 bis 2. Die zur Verfügung stehende Spitzenleistung der dritten Harmonischen ist bei der Konfiguration von 0,3 mm in

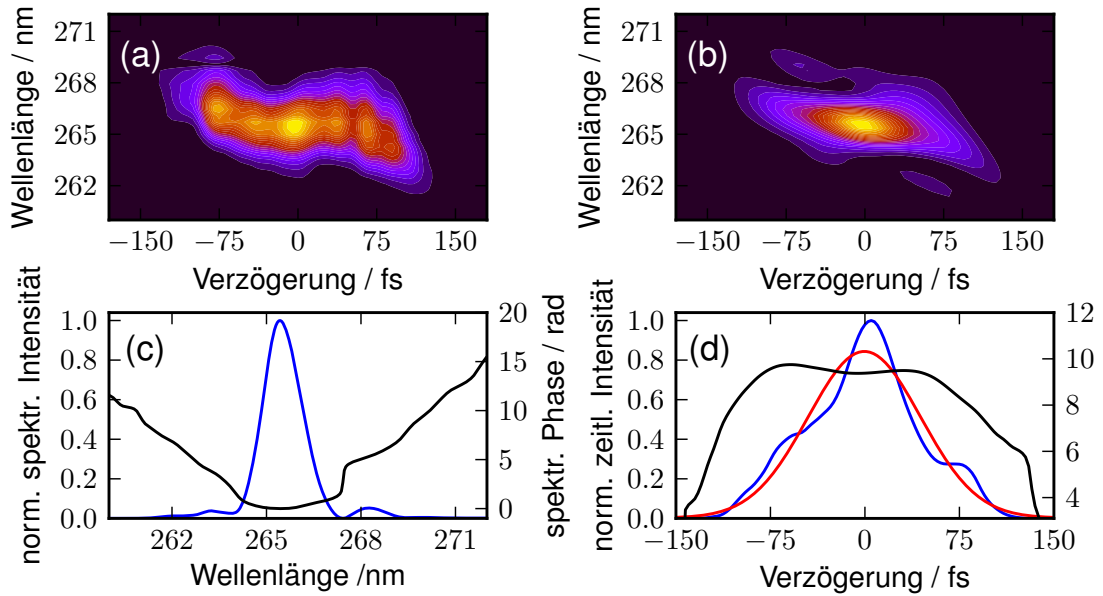


Abbildung 4.6.: Charakterisierung der dritten Harmonischen unter Verwendung eines 0,1 mm BBO zur Verdopplung und eines 0,2 mm BBO für die Summenfrequenz und eines 2:1 Teleskops in der Fundamentalen. Abbildung a) zeigt die gemessene FROG Spur, die deutliche Zeichen von SPM zeigt, Abbildung b) die rekonstruierte FROG Spur. Abbildung c) zeigt die spektrale Intensität (blau) und Phase (schwarz), in Abbildung d) ist die zeitliche Intensität (blau) und Phase (schwarz) dargestellt. Die Impulsdauer beträgt 115 fs (FWHM) bei einem FROG Fehler von 0,0125.

der Verdopplung und 0,2 mm in der Summenfrequenz am höchsten und wird in den meisten Experimenten verwendet.

Abschließend ist noch die Charakterisierung eines Impulses in Abbildung 4.6 gezeigt, der unter Verwendung eines 2:1 Linsenteleskopes in der Fundamentalen erzeugt wurde (0,1 mm Verdopplung, 0,2 mm Summenfrequenz). Die FROG Spur zeigt deutliche Zeichen eines selbstphasenmodulierten Impulses (siehe [KaT1993] für ein anschauliches Beispiel), die ihren Ursprung in der hohen Intensität in der zweiten Linse des Teleskops hat. Ein solcher Impuls kann mit dem üblichen Algorithmus nicht korrekt rekonstruiert werden, was sich im hohen FROG Fehler der Spur von 0,0387 (also $\sim 4\%$) niederschlägt (siehe [DFT1996] Abschnitt VII.). Die Impulsdauer ist gegenüber dem normalen Wert nochmals verbreitert. Eine solche Impulsform hat negativen Einfluß auf die Phase und die Effizienz der VUV Impulse haben, geht SPM doch mit einer Verschlechterung des Strahlprofils einher ("hotspots").

5. Kollineare Vierwellenmischung

Dieses Kapitel behandelt die Erzeugung von ultrakurzen VUV Impulsen durch Vierwellendifferenzfrequenzmischung von dritter Harmonischer und Fundamentaler in Edelgasen. Im Besonderen wird auf die Ergebnisse in Argon eingegangen. Da Phasen Anpassung im Falle kollinear er Strahlen nicht m"oglich ist, wird auf die Zuhilfenahme der Phasen"anderung Gau"o'scher Strahlen beim Fokussieren (Gouy-Phase) zur"uckgegriffen. Dabei wurden Impulse mit Energien von bis zu 240 nJ erzeugt, deren Dauern 42 fs betragen. Dies ist nur wenig mehr als die Impulsdauer des erzeugenden Lasers.

5.1. Wechselwirkung fokussierter Gau"o'scher Strahlen

Die Wechselwirkung intensiver fokussierter Strahlung in isotropen Medien wird schon seit langem untersucht. Schon im Jahre 1975 wurde durch Bjorklund eine umfassende Theorie zur optimierten Vierwellenmischung fokussierter Laserimpulse in isotropen Medien erstellt [Bjo1975]. Die detaillierte Darstellung der Theorie ist dem Buch von Reintjes ([Rei1984] Kap.2 S.40ff) entnommen.

Die in den Grundlagen dargestellte N"aherung (Kapitel 2.4.3) der ebenen Wellen f"uhrt zu der Notwendigkeit, dass der Wellenzahlfehler Δk stets f"ur jede der Wechselwirkungen verschwinden muss, um maximale Konversionseffizienz zu erreichen (Gleichung 2.48). Anders ist dies im Falle fokussierter, Gau"o'scher Strahlen. Hier f"uhrt die Fokussierung zu einem zus"atzlichen Phasenterm, der sogenannten „Gouy-Phase“. Sie l"asst sich durch die Relation ([HeS2010] Kap13.2.1, S. 154)

$$\phi_G(z) = -\arctan \frac{z}{z_R} \tag{5.1}$$

berechnen, wobei z_R die Rayleigh-Länge ist und $z = 0$ die Position der Strahltaile beschreibt. Die Rayleigh-Länge gibt die Ausbreitungsdistanz in z -Richtung von der Strahltaile w_0 an, an dem sich der Durchmesser des Strahls um den Faktor $\sqrt{2}$ vergrößert hat.

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \cdot n(\lambda) \quad (5.2)$$

Wie an der Formel 5.1 zu sehen ist, beträgt der gesamte Phasenunterschied für den Durchgang durch den Fokus (also von $z = -\infty$ bis $z = \infty$) gleich π . Durch die Dispersion und die Gouy-Phase werden die Phasen von Impulsen verschiedener Frequenz (also z.B. eine treibende Welle und eine erzeugte Welle) gegeneinander verschoben. Gelingt es, beide Effekte gegeneinander auszugleichen, kann eine effiziente Frequenzkonversion stattfinden.

Generell sind bei der Vierwellenmischung drei verschiedene Wechselwirkungen möglich: zum einen (I) die Summenfrequenz ($\omega_1 + \omega_2 + \omega_3 = \omega_4$), welche im Falle der Gleichheit der treibenden Wellen zur Erzeugung der dritten Harmonischen führt. Die entsprechende Differentialgleichung ist Gleichung 2.41. Der Prozess der reinen Differenzfrequenzmischung (II) ($\omega_1 - \omega_2 - \omega_3 = \omega_4$), siehe Gleichung 2.42 und schließlich (III) der Prozess der kombinierten Summen- und Differenzfrequenzmischung $\omega_1 + \omega_2 - \omega_3 = \omega_4$, Gleichung 2.43.

Für die VUV Erzeugung praktisch relevant sind nur die Wechselwirkungen (I) und (III). Die Wechselwirkung $\omega_1 - \omega_2 - \omega_3 = \omega_4$ ist ohne praktische Bedeutung, da ω_1 ebenfalls im VUV-Bereich liegen muss, während die anderen Fälle den gesamten Bereich vom infraroten bis in den ultravioletten Bereich abdecken können. Um die Komplexität zu verringern (maximal zwei verschiedene treibende Frequenzen) wird im folgenden bei der Summendifferenzfrequenzmischung (III) nur vom degenerierten Falle ausgegangen, bei dem $\omega_1 = \omega_2 = \omega_{\text{TH}}$ und $\omega_3 = \omega_{\text{FF}}$ ist. TH sei konkret die dritte Harmonische des Titan-Saphir Lasers bei einer Wellenlänge von 266 nm. FF entspricht der Fundamentalen, also einer Wellenlänge von 800 nm. ω_4 entspricht dem gewünschten VUV-Signal, also einer Wellenlänge von 160 nm.

Mit Hilfe der in Gleichung 2.41 genannten nichtlinearen Polarisierungen P^{NL} lassen sich die gekoppelten Differentialgleichungen der Einhüllenden der beteiligten Felder schreiben:

$$\nabla_{\perp}^2 A_j + 2ik_j \frac{\partial A_j}{\partial z} = -\frac{4\pi\omega_j^2}{c_0^2} P^{NL}(\omega_j) e^{-i\Delta k_j z}, \quad (5.3)$$

wobei j der Index für die jeweilige Welle ist. Die räumliche Ausdehnung der Strahlen wird als gaußförmig angenommen, die Amplitude der treibenden Wellen lässt sich somit schreiben als

$$A_j(r, z) = \frac{A_{j0}}{1 + i\xi} e^{-k_j r^2 / b(1 + i\xi)}. \quad (5.4)$$

Hier ist die Größe $b = 2z_R$ der konfokale Parameter, welcher doppelt so groß wie die Rayleigh-Länge ist und $\xi = 2(z - z_0)/b$ der auf b skalierten Koordinate der Ausbreitungsrichtung (z_0 ist Ort der Strahltaile). Nach ausführlicher Rechnung in [Bjo1975], die Reintjes in seinem Buch [Rei1984] zitiert, folgt für die Leistung \mathcal{P}_4 des erzeugten Lichts nach Durchlauf der Fokusregion (also deutlich weiter als der konfokale Parameter von der Strahltaile entfernt) und unter der Annahme, dass die Änderung der Leistung der eingehenden Strahlen vernachlässigt werden kann (sog. *non-depleted pump approximation*), folgende Formel ([Rei1984] Kap. 2.2.2. Gleichung (41) in SI-System übertragen):

$$\mathcal{P}_4 = \frac{9 n_4}{c_0^2 \epsilon_0^2} \frac{k_0^2 k_{\text{TH}}^2 k_{\text{FF}}}{k' n_{\text{TH}}^2 n_{\text{FF}}} N^2 |\chi^{(3)}|^2 \mathcal{P}_{\text{TH}}^2 \mathcal{P}_{\text{FF}} \cdot F_3. \quad (5.5)$$

Sie enthält die Substitutionen $k_0 = \omega_4/c_0 = 2\pi/\lambda_4$ (Wellenvektor des erzeugten VUV Lichts), k' als Summe bzw. Differenz der Wellenvektoren der beteiligten treibenden Felder (im Fall der gemischten Summendifferenzfrequenz (III) $k' = 2k_{\text{TH}} - k_{\text{FF}}$) und die Effizienzfunktion F_3 . N ist die Teilchenzahldichte der Gasatome innerhalb des Strahlvolumens, $\chi^{(3)}$ die Suszeptibilität dritter Ordnung und \mathcal{P}_{TH} bzw. \mathcal{P}_{FF} die Leistung der dritten Harmonischen bzw. der Fundamentalen. Für die Wechselwirkung zweier Felder in Differenzfrequenz lautet die Effizienzfunktion (siehe [Rei1984], Kap. 2.2.2, Gl. 42)

$$F_3 = F_3 \left(b\Delta k, \frac{b}{L}, \frac{f}{L}, \frac{k''}{k'} \right) = \frac{2k'}{\pi b} \int_0^{2\pi} 2\pi r \, dr \left| \int_{-\xi}^{\xi} \frac{e^{-ib\Delta k \xi''/2} e^{-r^2/bH}}{(1 + i\xi'')(k'' - ik'\xi'')H} \right|^2 \quad (5.6)$$

Diese Gleichung lässt sich im Allgemeinen nur numerisch lösen. Die Substitutionen $k' = 2k_{\text{TH}} - k_{\text{FF}}$, $k'' = 2k_{\text{TH}} + k_{\text{FF}}$ sowie $H = \frac{1 + \xi''^2}{k'' - ik'\xi''} - \frac{i(\xi'' - \xi)}{k'}$ dienen der Vereinfachung der Formel. Für den Spezialfall, dass der konfokale Parameter vollständig innerhalb der Wechselwirkungszone liegt (enge Fokussierung, engl. *tight focusing*)

und der Annahme, dass $k'' \approx k'$ ist (der Wellenvektor der Fundamentalen k_{FF} sei deutlich kleiner als der Wellenvektor der dritten Harmonischen k_{TH}), lässt sich näherungsweise eine Lösung angeben ([Bjo1975] Gl. 33):

$$F_3(b\Delta k, 0, 0.5, 1) = \pi^2 e^{-b|\Delta k|}. \quad (5.7)$$

Aus dieser Näherungslösung sowie aus der numerischen Integration der exakten Lösung folgt, dass die maximale Umwandlungseffizienz bei $\Delta k = 0$ liegt, also verschwindendem Wellenzahlfehler. Dies ist jedoch nur im Vakuum der Fall, also bei einer Teilchenzahldichte von 0. Wie in Gleichung 5.5 zu sehen ist, ist die Effizienz der erzeugten Strahlung aber auch vom Quadrat der Teilchenzahldichte N abhängig. Um eine maximale Umwandlungseffizienz zu erreichen muss also das Produkt von $F_3 \cdot N^2$ nach Gleichung 5.5 optimiert werden.

Da Teilchenzahldichte und Wellenzahlfehler wegen der Dispersion proportional zusammenhängen, ($\Delta k \propto N$), muss also die Größe $\Delta k^2 \cdot F_3(b\Delta k, \frac{b}{L}, \frac{f}{L}, \frac{k''}{k'})$ optimiert werden. Um dimensionslos zu rechnen kann die Funktion G_3 eingeführt werden ([Bjo1975], Gl. 41):

$$G_3(b\Delta k, \frac{b}{L}, \frac{f}{L}, \frac{k''}{k'}) = (\Delta kb)^2 \cdot F_3(b\Delta k, \frac{b}{L}, \frac{f}{L}, \frac{k''}{k'}). \quad (5.8)$$

Verwendet man nochmals die Näherung der engen Fokussierung so vereinfacht sich Gleichung 5.8 entsprechend. Nun kann auf einfachem Wege der optimale Wert von $(b\Delta k)_{\text{opt}}$ durch Differentiation von G_3 nach $b\Delta k$ errechnet werden

$$|b\Delta k|_{\text{opt}} = 2. \quad (5.9)$$

Da die Handhabung des Wellenzahlfehlers für den Experimentator nicht intuitiv ist, erscheint das Umschreiben der Abhängigkeit von G als eine Funktion des Gasdrucks p sinnvoll. Unter Verwendung des experimentellen Wertes der Zellenlänge $L = 30$ cm, der Position des Fokus nahe der Mitte der Zelle ($f = 15$ cm) und der Dispersion des im Experiment verwendeten Gases Argon, lässt sich für verschiedene konfokale Parameter b die Druckabhängigkeit der Funktion G berechnen. Um G zu berechnen wurde Gleichung 5.8 numerisch mit Hilfe des Programmes MATCAD (siehe Anhang A.1) für Gasdrücke zwischen 1 mbar und 500 mbar gelöst. Abbildung 5.1 zeigt das Ergebnis der numerischen Rechnung für verschiedene

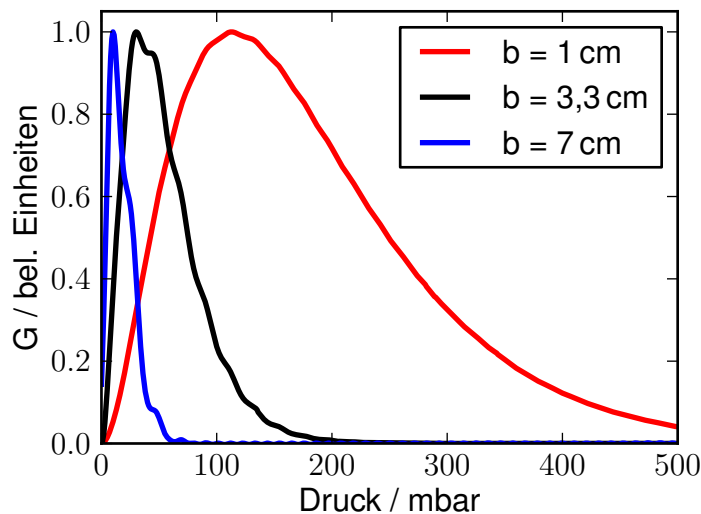


Abbildung 5.1.: Abhängigkeit der Funktion G vom Gasdruck von Argon, dargestellt für verschiedene konfokale Parameter b , die für FF und TH als identisch angenommen werden (bei gleichen Strahlradien vor der Fokussierung bedeutet dies wegen Gleichung 5.2 die Verwendung von Linsen unterschiedlicher Brennweite). Die Länge der Gaszelle wird mit 30 cm angenommen, der Fokus beider Strahlen sei an der gleichen Stelle in Ausbreitungsrichtung, genau in der Mitte der Zelle (somit $f = 15$ cm).

b -Parameter. Zu erkennen ist, dass der Druck der optimalen Frequenzkonversion mit steigendem b abnimmt. Liegt er bei einem b von 1 cm noch bei etwa 120 mbar, so ist der Druck bei 3,3 cm nur noch bei ca. 30 mbar. Steigt der Parameter auf 7 cm, so ist die optimale Umwandlungseffizienz schon bei 10 mbar erreicht.

5.2. experimenteller Aufbau

Die Experimente zur kollinearen VUV Erzeugung wurden am im Kapitel 3.2 beschriebenen Lasersystem durchgeführt. Impulse von ca. 2,8 mJ Energie und 42 fs Dauer standen bei einer Wiederholrate von 1 kHz zur Verfügung. Abbildung 5.2 zeigt ein Schema des verwendeten Aufbaus. Etwa 3% der Fundamentalen wird durch eine 3 mm dünne Glasplatte (ST1) vom Hauptstrahl abgetrennt und dient, nach Verzögerung über den motorisierten Verzögerungstisch VT2, zur Messung der Kreuzkorrelation. Der Rest des Fundamentalstrahls wird mittels eines dielektrischen 2:1 Strahlteilers (ST2) aufgeteilt. Der größere Teil wird in einem Aufbau zur Frequenzverdreifung in UV Strahlung konvertiert (siehe Kapitel 2.4.2), wäh-

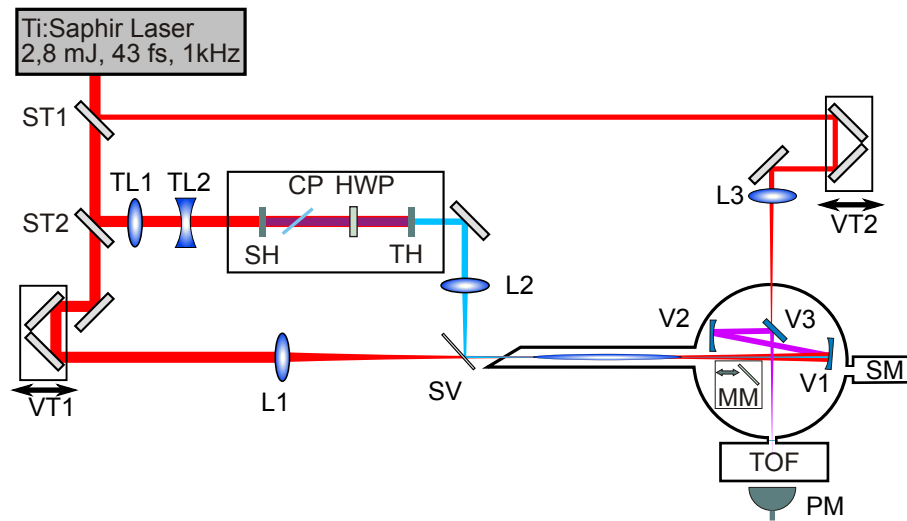


Abbildung 5.2.: Experimenteller Aufbau zur kollinearen Vierwellenmischung. ST1: Strahlteiler mit $R = 3\%$, ST2: Strahlteiler mit $R = 66\%$, TL1 und TL2: Linsen zur Reduktion des Strahldurchmessers, SH: BBO Kristall zur Frequenzverdopplung, CP: Kalzitplatte zur Zeitkompensation, HWP: Wellenplatte zur Rotation der Polarisationsrichtung, TH: Kristall zur Summenfrequenzbildung von Fundamentaler und zweiter Harmonischer, VT1: Zeitkompensation von Fundamentaler und dritter Harmonischer, VT2: Verzögerungseinheit zur Kreuzkorrelation, L1: $f = 1$ m Linse, L2: $f = 0,5$ m Linse, L3: $f = 1$ m Linse, SV: Spiegel zur Strahlvereinigung, V1-V3: dielektrische Spiegel für VUV, MM: Einkopplung zum Spektrometer, SM: VUV-Spektrometer, TOF: Flugzeitmassenspektrometer, PM: VUV-Impulsenergiemessgerät.

rend der Rest eine geeignete Verzögerungsstrecke inklusive eines manuellen Verzögerungstisches (VT1) durchläuft um am Ort der Wechselwirkung den zeitlichen Überlapp der beiden zu gewährleisten. Für die Frequenzverdreifung wird der Strahl durch ein Linsenteleskop vom galileischen Typ um den Faktor 4:3 verkleinert (TL1 = 20 cm, TL2 = -15 cm). Die Beschreibung der Frequenzverdreifung ist in Kapitel 2.4.2 nachzulesen. Die Impulse haben eine Energie von ca. 230 μJ und eine Impulsdauer von annähernd 100 fs. Die Fundamentale von ca. 750 μJ wird nun kollinear mit der dritten Harmonischen überlagert, indem die Fundamentale durch einen dünnen dielektrischen Spiegel, hochreflektierend für die dritte Harmonische, transmittiert wird (Strahlvereinigung SV). Die Fokussierung der Fundamentalen erfolgt durch eine antireflexbeschichtete BK7 Linse von 1 m Brennweite (L1). Unabhängig davon wird die dritte Harmonische mittels einer unbeschichteten Magnesiumfluoridlinse von 0,5 m Brennweite fokussiert (L2). Die Einkopplung in die Vakuumkammer, die für die Vierwellenmischung mit Gas befüllt wird, ist

entweder ein 0,3 mm dünnes Fenster aus Quarzglas oder ein 0,5 mm dünnes Fenster aus Kalziumfluorid (CaF_2), beide jeweils im Brewsterwinkel angeordnet. Die beiden Strahlen werden an die gleiche Stelle fokussiert und haben einen Fokussdurchmesser von ca. $130 \mu\text{m}$ (gemessen als $1/e$ -faches der maximalen Intensität).

Am Brennpunkt erzeugen beide Strahlen eine dünne, wenige Zentimeter lange Plasmasäule, die gut mit dem bloßen Auge erkennbar ist. Werden beide Foki nicht nur räumlich sondern auch zeitlich überlagert, so leuchtet die Säule deutlich intensiver als bei einer Verzögerung beider Impulse zueinander.

Der Vakuumbereich des experimentellen Aufbaus ist in Abbildung 5.3 nochmals vergrößert dargestellt. Die VUV Impulse werden durch eine Anordnung von 3 dielektrischen Spiegeln von der Fundamentalen und der dritten Harmonischen getrennt. Dabei ist der erste Spiegel (V1) mit einer Brennweite von 50 cm gekrümmt und dient der Kollimierung des VUV. Der zweite Spiegel (V2) fokussiert den VUV Strahl in das nachfolgende Massenspektrometer (TOF) bzw. in das Spektrometer (SM). Das TOF wird in [Ste2003a] beschrieben: Es handelt sich um ein Flugzeitmassenspektrometer mit nur einem Beschleunigungsfeld mit einer Massenauflösung von $m/\Delta m \approx 30$. Das Spektrometer ist ein kommerzielles Gerät der Firma McPherson, Modell 234/302 mit einer angeschlossenen CCD-Kamera (Andor D0420-BN-995) mit einer spektralen Auflösung $\lambda/\Delta\lambda$ von ≈ 3000 .

Spiegel V3 ist für die Fundamentale transparent und dient der kollinearen Über-

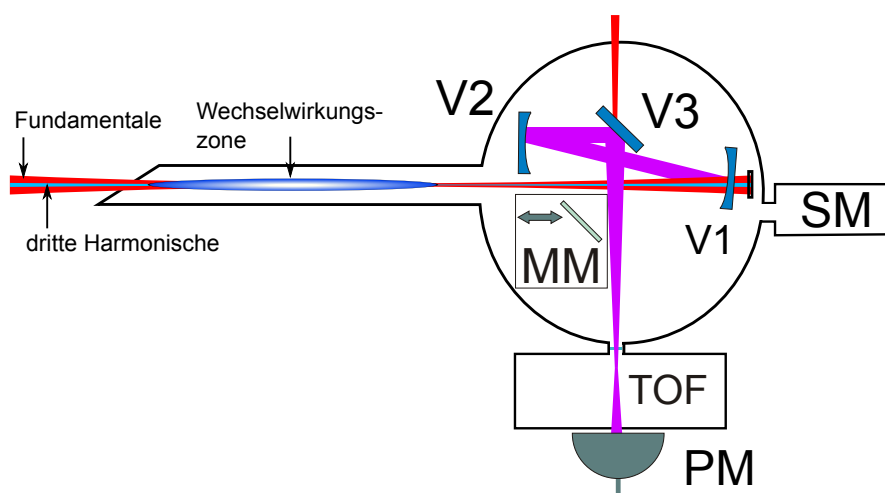


Abbildung 5.3.: Schema der Vakuumanlage aus Abbildung 5.2. Fundamentale und dritte Harmonische werden exakt kollinear in die mit Argon befüllte Vakuumkammer fokussiert. Zur Beschreibung der Abkürzungen siehe Bildunterschrift 5.2.

lagerung mit dem von ST1 abgespaltenen Teil der Fundamentalen zur zeitlichen Charakterisierung der VUV Impulse (siehe Kapitel 2.3.1). Nach Transmission durch ein 0,1 oder 0,2 mm dünnes Fenster aus Magnesiumfluorid, welches auch für VUV nur eine geringe Absorption aufweist, gelangen beide Strahlen in das mit einem Partialdruck von ca. 10^{-5} mbar Xenon befüllte TOF. Mit diesem kann die Kreuzkorrelation aus Fundamentaler und VUV bestimmt werden. Direkt an das TOF angeschlossen ist ein Impulsenergiemessgerät für die VUV Impulse (Kapitel 2.5), welches durch ein Oszilloskop ausgelesen werden kann. Die Absorption der VUV Impulse durch das im TOF befindliche Gas ist zu gering um nachgewiesen werden zu können.

5.3. Vergleich der Druckabhängigkeit

Die in Abbildung 5.1 dargestellte Abhängigkeit der VUV Ausbeute soll nun überprüft werden. Dazu wurde bei konstanter Geometrie des Lasers der Gasdruck innerhalb der Zelle verändert.

Die Foki von TH und FF befanden sich an gleicher Stelle, der konfokale Parameter

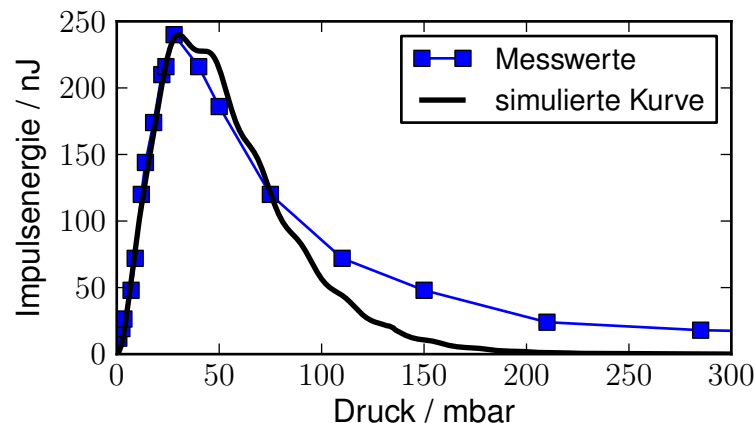


Abbildung 5.4.: Vergleich zwischen theoretischer Druckabhängigkeit (siehe auch Abbildung 5.1) der VUV Ausbeute (berechnet nach Gleichung 5.8 mit 5.7) aufgrund der Gouy-Phase (schwarze Linie) und den gemessenen Werten (blaue Rechtecke) in Argon. Die experimentell bestimmten Werte wurden bei Impulsenergien von $680 \mu\text{J}$ der FF und $230 \mu\text{J}$ der TH gemessen. Die gerechnete Kurve geht von einem konfokalen Parameter von $b=3,3 \text{ cm}$ aus, einer Kammerlänge L von 30 cm und einer Fokusposition in der Mitte der Kammer ($f/L = 0,5$). Dabei wurde die theoretische Kurve auf die maximale gemessene VUV Impulsenergie normiert.

der Fundamentalen beträgt 3,3 cm und wurde bestimmt über Messung des Strahldurchmessers von 130 μm und Verwendung von Formel 5.2. Die Impulsenergien von Fundamentalenergie und dritter Harmonischer betragen 680 μJ bzw. 230 μJ . Abbildung 5.4 zeigt den Vergleich aus gemessenen Werten und theoretischer Kurve für Argon. Wie zu sehen ist, wird die Messung durch die Theorie recht gut wiedergegeben. Die maximale VUV Ausbeute liegt bei einem Druck von 28 mbar. Zusammen mit dem konfokalen Parameter und den Sellmeierkoeffizienten für Argon ergibt sich somit ein $|b\Delta k = 1,8|$, was sehr nahe am Wert der Theorie von $|b\Delta k \sim 2|$ liegt. Allerdings ist ersichtlich, dass die Effizienz im Experiment bei Drücken jenseits von 100 mbar weniger stark abfällt als von der Theorie vorhergesagt. Eine Erklärung kann sein, dass die konfokalen Parameter beider Strahlen nicht identisch sind, was in der theoretischen Kurve nicht wiedergegeben werden kann.

5.4. Abhängigkeit vom konfokalen Parameter

Wie in Abbildung 5.1 ersichtlich, hängt der Druck maximaler VUV Ausbeute, den G_3 wiedergibt, auch vom konfokalen Parameter b ab, wobei für den optimalen Druck $|b\Delta k \sim 2|$ gilt. Ändert man die Fokussierung von FF und TH, so sollte sich auch der optimale Druck ändern.

Es wurde nun die VUV Ausbeute für verschiedene Fokussierungsbedingungen gemessen und in Abbildung 5.5 dargestellt. Die Brennweiten der FF war jeweils 1 m (blaue Rechtecke), 0,75 m (grüne Kreise) und 0,5 m (schwarze Rauten), entsprechend war die Brennweite der dritten Harmonischen 0,5 m (blaue Rechtecke), 0,4 m (grüne Kreise) und 0,4 m (schwarze Rauten). Die zur Verfügung stehende Energie der dritten Harmonischen war diesmal bedeutend größer (345 μJ anstelle von 230 μJ), da die gesamte Impulsenergie des Lasers in diesem Experiment bei 3,2 mJ lag anstatt der 2,8 mJ der anderen Experimente. Außerdem zeigte sich, dass die vorher verwendeten BBO Kristalle in der Frequenzverdreifung überaltert waren, sodass mit identischer Kristalldicke der neuen Kristalle eine weit höhere Konversionseffizienz erreichen konnten. Die maximale VUV Ausbeute findet sich bei einem Argondruck von ~ 28 mbar (blau), 60 mbar (grün) bzw. etwa 70 mbar (schwarz).

Wie in der Abbildung 5.5 zu erkennen ist, steigt der Druck optimaler VUV Energie mit sinkender Brennweite der Fokussierung. Leider wurden in diesem Experiment

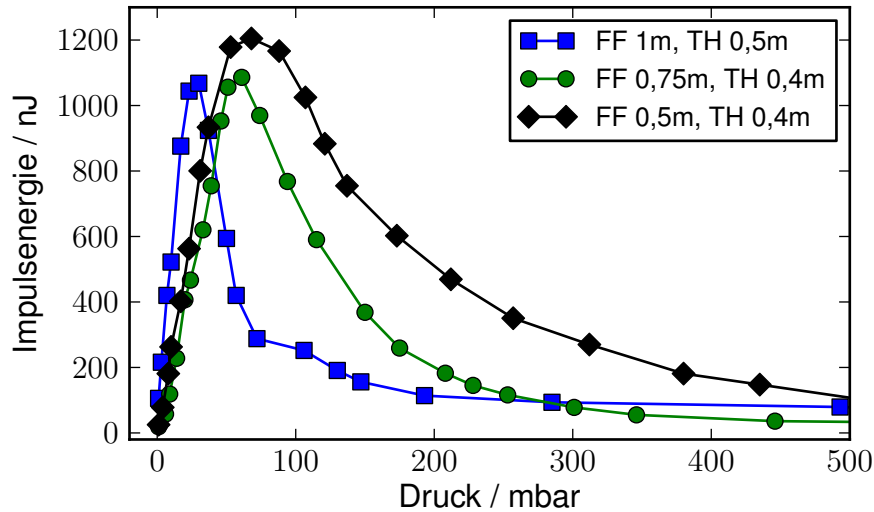


Abbildung 5.5.: VUV Impulsenergie für verschiedene Fokussierungsbedingungen der Eingangsstrahlen. Die Brennweiten für die blaue Kurve betragen jeweils 1 m für die Fundamentale und 0,5 m für die dritte Harmonische. Für die grüne Kurve betragen die Brennweiten 0,75 m (FF) bzw. 0,4 m (TH). Für die schwarze Kurve wurden 0,5 m (FF) bzw. 0,4 m (TH) genutzt. Die leicht erhöhte VUV Energie im Falle der schwarzen Kurve (kürzeste Brennweite) resultiert aus der etwas höheren Impulsenergie der Fundamentalen in diesem Experiment (900 μ J an Stelle von 840 μ J). Die Impulsenergie der dritten Harmonischen beträgt in allen drei Experimenten jeweils 345 μ J.

nicht der konfokale Parameter gemessen. Da der Fokusbereich jedoch linear von der Brennweite abhängt ($w_0 \propto f$) kann b für die verschiedenen Brennweiten der Fundamentalen nach Gleichung 5.2 leicht berechnet werden. Die Druckabhängigkeit des Wellenzahlfehlers Δk kann über die bekannten Dispersionseigenschaften des Gases ermittelt werden. Nutzt man nun Gleichung 5.9 so ist eine Abschätzung der optimalen Größe des konfokalen Parameters möglich. In Abbildung 5.6 ist der Vergleich zwischen diesem errechneten optimalen Wert (blaue Kurve) und den aus der Messung ermittelten Werten (schwarze Rauten) dargestellt. Es zeigt die gute Übereinstimmung des gemessenen Drucks und des konfokalen Parameters mit der Näherung aus Gleichung 5.9.

Leider wurde im Experiment der konfokale Parameter der dritten Harmonischen nicht gemessen, weswegen nicht davon ausgegangen werden kann, dass dieser mit dem der Fundamentalen identisch ist. Diese Situation wird in der Theorie jedoch gar nicht berücksichtigt! Die errechnete Kurve in Abbildung 5.6 ist jedoch durch

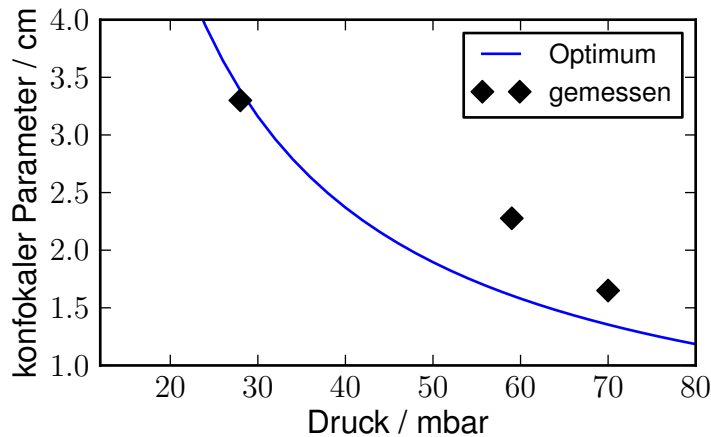


Abbildung 5.6.: Vergleich des optimalen konfokalen Parameters b in Abhängigkeit des Argon Drucks. In blau dargestellt ist der optimale Wert für b , der sich nach Gleichung 5.2 ergibt, die schwarzen Rauten zeigen den konfokalen Parameter für die drei verwendeten Brennweiten der Fundamentalen, berechnet aus dem gemessenen Strahldurchmesser des Experimentes bei $p = 28$ mbar.

die gemessenen Werte sehr gut wiedergegeben.

5.5. Impulscharakterisierung

In Abbildung 5.7 ist eine typische Kreuzkorrelation für die kollineare Vierwellenmischung dargestellt, gemessen durch die in Kapitel 2.3.1 beschriebene Methode. Die Kreuzkorrelation hat eine Halbwertsbreite von 49 fs (Gaußfit), woraus sich unter Kenntnis der Impulsdauer der Fundamentalen (43 fs) eine Dauer von 42 fs ergibt (siehe Gleichung 2.27).

Um abschätzen zu können, wie nahe sich die erzeugten Impulse an der Fouriergrenze befinden, wurde das entsprechende Spektrum aufgenommen. Es ist in Abbildung 5.8 links als blaue Kurve dargestellt. Die Fouriertransformierte wurde errechnet und deren Quadrat in 5.8 rechts dargestellt (grüne Kurve). Der Gaußfit durch diese Kurve hindurch ergibt eine minimale Halbwertsbreite der Impulsdauer von 38,4 fs. Dies entspricht der Fouriergrenze der Fundamentalen, wie sie vom Verstärker emittiert wird. Tatsächlich ist die Dauer der VUV Impulse also fast identisch mit der Impulsdauer der Fundamentalen, so dass die spektrale Breite und die Impulsdauer der VUV Impulse nur von den Parametern der Fundamentalen abhängen.

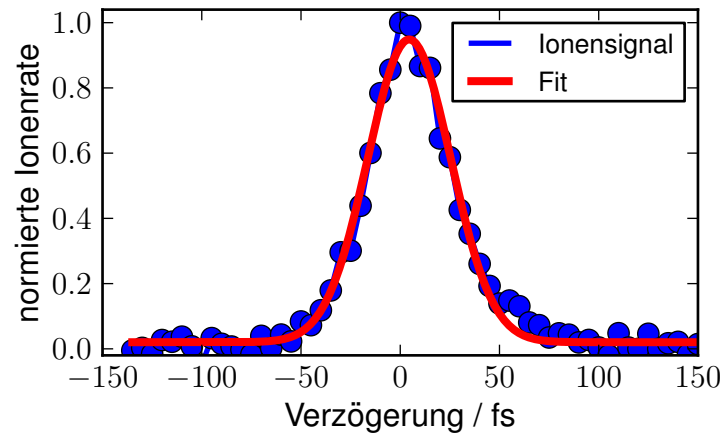


Abbildung 5.7.: Kreuzkorrelation der VUV Impulse der kollinearen Vierwellenmischung mit der Fundamentalen bei einem optimalen Argondruck von 28 mbar. Blau dargestellt ist das normierte Ionensignal, die rote Kurve zeigt einen Gaußfit mit einer Halbwertsbreite von 49 fs.

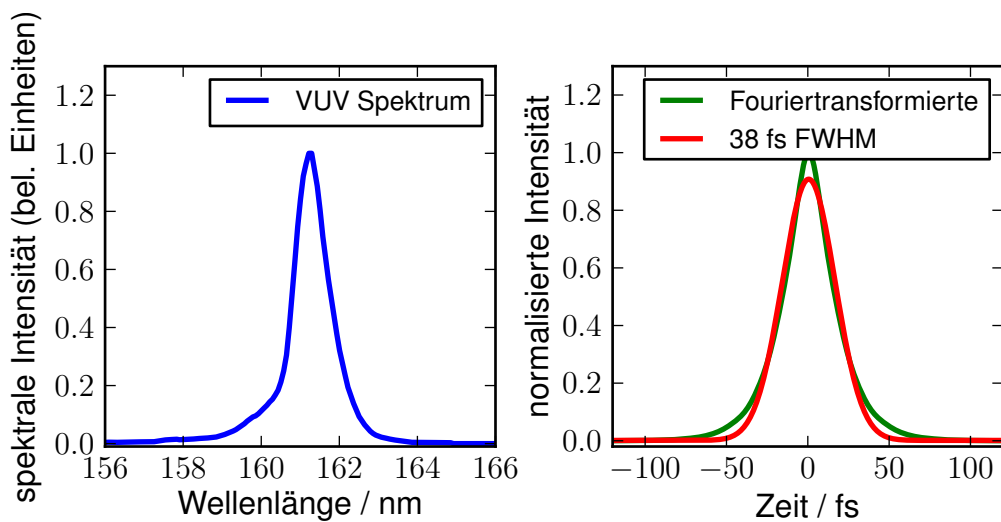


Abbildung 5.8.: links: typisches Spektrum der VUV-Impulse in kollinearer Wechselwirkung, dargestellt als blaue Kurve. rechts: Quadrat der Fouriertransformierten des VUV Spektrums (grün) und entsprechender Gaußfit mit einer Halbwertsbreite von 38 fs (rot).

6. Effiziente Frequenzkonversion durch nicht-kollineare Vierwellenmischung

Die Gouy-Phase führte im Fall der kollinearen Wechselwirkung von Fundamentaler und dritter Harmonischen zu einer durchaus hohen Effizienz, vergleichbar mit der Vierwellenmischung im Hohlwellenleiter von Tzankov et al. [TSZ2007]. Das folgende Kapitel befasst sich nun mit einer weiteren Steigerung der VUV Impulsenergie mithilfe der Methode der nicht-kollinearen Phasenanpassung. Fundamentale und dritte Harmonische werden unter einem kleinen Winkel ϕ zueinander überlagert, welcher dazu führt, dass der Wellenzahlfehler bei einem gewissen Druck verschwindet. Diese Methode wurde schon vor längerer Zeit bei der Vierwellenmischung von Nano- und Pikosekundenimpulsen (z.B. [KiB1978]) angewendet und funktioniert prinzipiell in allen isotropen Medien.

Nach Darlegung der theoretischen Grundlagen der Phasenanpassung wird die experimentell bestimmte Druckabhängigkeit des Phasenanpassungswinkels für die Gase Argon und Krypton verglichen. Um die erreichten Konversionseffizienzen bei verschiedenen Gasdrücken zu erklären wird eine numerische Simulation durchgeführt, die diverse lineare und nichtlineare Prozesse in einem vereinfachten Modell beschreibt.

Außerdem wird gezeigt, dass die kurzen Impulsdauern aus dem kollinearen Fall auch unter nicht-kollinearer Wechselwirkung erhalten bleiben.

6.1. Phasenanpassung und Wechselwirkungslänge

Trotz der Minimierung des Wellenzahlfehlers $\Delta\vec{k}$ durch die Gouy-Phase in Kapitel 5, kann im Fall normaler Dispersion ($\frac{dn}{d\lambda} < 0$) niemals vollständige Phasenanpassung

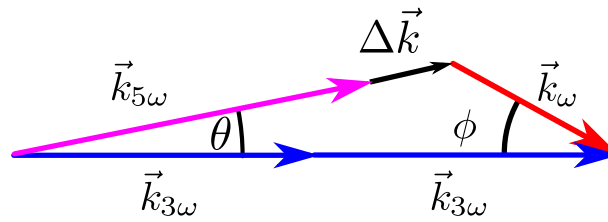


Abbildung 6.1.: Wellenvektordiagramm für den allgemeinen Fall der nicht-kollinearen Vierwellenmischung. Es verbleibt ein Wellenzahlfehler $\Delta\vec{k}$ der eine effiziente Frequenzkonversion verhindert.

erreicht werden: Der Betrag des Wellenvektors des VUV Impulses $\vec{k}_{5\omega}$ ist stets größer als die Summe der Wellenvektoren von Fundamentaler und dritter Harmonischer.

Anders ist die Situation, wenn ein Winkel zwischen beiden erzeugenden Strahlen eingeführt wird. In Abbildung 6.1 ist ein Wellenvektordiagramm für den allgemeinen Fall der nicht-kollinearen Wechselwirkung mit ebenen Wellen abgebildet. Dabei ist ϕ der Winkel zwischen dritter Harmonischer und der Fundamentalen und θ bezeichnet den Winkel zwischen dritter Harmonischer und erzeugtem VUV Strahl. In der Regel verbleibt auch im nicht-kollinearen Fall ein Wellenzahlfehler $\Delta\vec{k}$. Um Phasenanpassung zu erreichen, muss ein bestimmter Winkel ϕ gewählt werden, der sich bei normaler Dispersion stets finden lässt. Die Winkel θ und ϕ sind dabei abhängig von der Art des verwendeten Gases, dem Druck, der Temperatur und natürlich von den Wellenlängen der Eingangsimpulse. Experimentell wird Phasenanpassung erreicht, indem für gegebene Wellenlängen bei gegebenem Winkel der Gasdruck angepasst wird bzw. der Winkel ϕ bei konstantem Gasdruck optimiert wird um maximale Konversionseffizienz zu erreichen.

Da die Brechzahlunterschiede in den verwendeten Gasen relativ klein sind, kann ohne Probleme in Kleinwinkelnäherung gerechnet werden. Nach dem Buch von Reintjes ([Rei1984], Kap. 3.3, Gl. 49a und 49b) ergeben sich zur Berechnung der

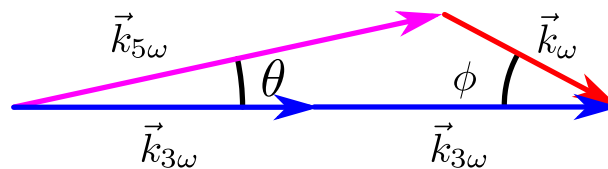


Abbildung 6.2.: Wellenzahlendiagramm für nicht-kollineare Phasenanpassung zur Erzeugung der fünften Harmonischen.

Winkel die Formeln:

$$\theta = \sqrt{\frac{(n_{\text{FF}}/\lambda_{\text{FF}})^2 - [(2n_{\text{TH}}/\lambda_{\text{TH}}) - (n_{\text{VUV}}/\lambda_{\text{VUV}})]^2}{2n_{\text{TH}}n_{\text{VUV}}/(\lambda_{\text{TH}}\lambda_{\text{VUV}})}} \quad (6.1)$$

$$\phi = \sqrt{\frac{(n_{\text{VUV}}/\lambda_{\text{VUV}})^2 - [(2n_{\text{TH}}/\lambda_{\text{TH}}) - (n_{\text{FF}}/\lambda_{\text{FF}})]^2}{2n_{\text{TH}}n_{\text{FF}}/(\lambda_{\text{TH}}\lambda_{\text{FF}})}} \quad (6.2)$$

Dabei stehen TH, VUV und FF wieder jeweils für dritte Harmonische, VUV und Fundamentale. Da der Brechungsindex $n(\lambda)$ mithilfe der Sellmeier-Gleichung (2.14) errechnet werden kann und die Koeffizienten z.B. aus [BHK2008] bekannt sind, lässt sich der Winkel ϕ zwischen den Eingangsstrahlen leicht berechnen. In Abbildung 6.3 ist ϕ für sämtliche Edelgase (außer Radon) aufgetragen.

Bis auf Xenon ist zu erkennen, dass bei gleichem Druck der Winkel ϕ mit zu-

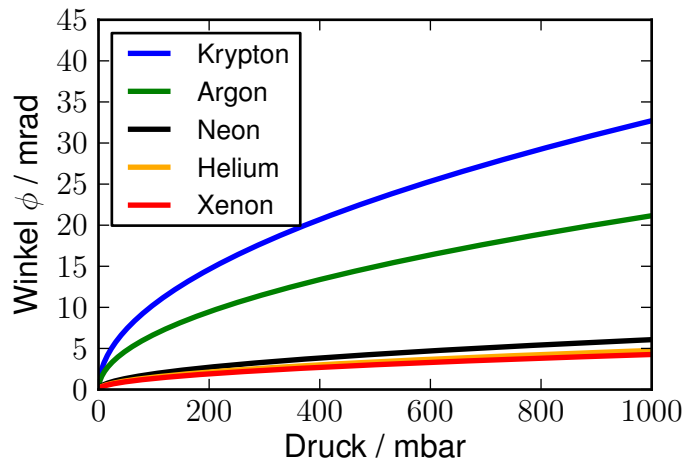


Abbildung 6.3.: Phasenanpassungswinkel ϕ in Abhängigkeit vom Druck für verschiedene Edelgase zur Erzeugung der fünften Harmonischen aus dritter Harmonischer (266 nm) und Fundamentaler (800 nm) des Ti:Saphir Lasers.

nehmender Ordnungszahl des Gases ansteigt. Xenon hat, wie im nachfolgenden Kapitel 7 noch von Bedeutung sein wird, bei einer Wellenlänge von 149,1 nm eine Resonanz, was die Dispersionseigenschaften natürlich beeinflusst. Es fällt auf, dass im Falle von Krypton und Argon der Winkel schon bei relativ kleinen Drücken stark ansteigt. Im Gegensatz dazu ähneln sich die Gase Neon, Helium und Xenon in ihrem Verlauf sehr stark und der Phasenanpassungswinkel bleibt auch bei hö-

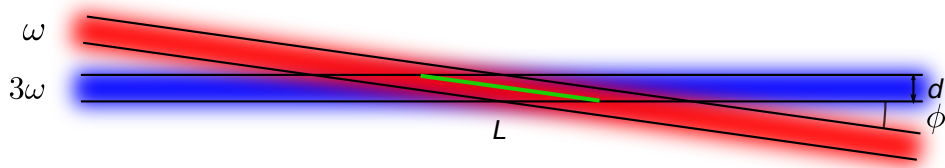


Abbildung 6.4.: Auswirkung des Phasenanpassungswinkels ϕ auf die Wechselwirkungslänge L (grün markiert). Mit steigendem Winkel verringert sich die Wechselwirkungslänge proportional zum Inversen des Sinus des Winkels.

heren Drücken noch vergleichsweise klein.

Der Winkel ϕ hat eine unmittelbare Auswirkung auf die mögliche Wechselwirkungslänge L zwischen Fundamentaler und dritter Harmonischer. Sind die Durchmesser $2w_0$ von Fundamentaler und dritte Harmonischer identisch und geht man von der Näherung ebener Wellen aus, was angesichts des konfokalen Parameters von mehr als 3 cm noch zulässig ist, so ist die Wechselwirkungslänge proportional zum Durchmesser $2w_0$ der Strahlen. Verdeutlicht wird dies in Abbildung 6.4: Die Wechselwirkungslänge L ist als grüne Linie dargestellt und beschreibt den gemeinsamen Ausbreitungsweg der beiden Strahlen. Der Winkel ϕ ist nach Gleichung 6.2 zu berechnen. Da bei der Verwendung von Strahlen mit gaußförmiger lateraler Intensitätsverteilung die Beschreibung des Durchmessers sowohl durch die Halbwertsbreite als auch durch die $1/e$ oder die $1/e^2$ Breite möglich ist, kann die effektive Wechselwirkungslänge angegeben werden durch:

$$L_{\text{eff}} = m' \cdot \frac{w_0}{\sin \phi} \approx m' \cdot \frac{w_0}{\phi} . \quad (6.3)$$

wobei m' ein dimensionsloser Vorfaktor der Größenordnung von 1 ist. Da der Winkel ϕ sehr klein ist kann auch ohne weiteres anstatt des Sinus der Winkel selbst genutzt werden.

6.2. Wahl des optimalen nichtlinearen Mediums

Die Intensität der erzeugten VUV Impulse lässt sich nach [Rei1984] Kap. 2.2, Gleichung 34b in der Näherung ebener Wellen und in Kleinsignalnäherung (kein Abbau der dritten Harmonischen und Fundamentalen) durch folgende Gleichung

beschreiben:

$$I_{\text{VUV}}(t) \propto N^2 L^2 |\chi^{(3)}|^2 \frac{I_{\text{FF}} I_{\text{TH}}^2}{n_{\text{FF}} n_{\text{TH}}^2 \lambda_{\text{VUV}}^2} \text{sinc}^2(\Delta k L / 2) \quad (6.4)$$

$\chi^{(3)}$ ist die Suszeptibilität dritter Ordnung pro Atom, die sich nach Gleichung 2.39 aus dem nichtlinearen Brechungsindex n_2 (dividiert durch die Teilchenzahldichte) errechnet. Es ist zu sehen, dass die VUV Intensität bei verschwindendem Wellenzahlfehler eine quadratische Abhängigkeit von der Teilchenzahl N und damit vom Gasdruck p hat. Dies verdeutlicht, warum die nicht-kollineare Vierwellenmischung von so großem Vorteil ist: Während bei der kollinearen VUV Erzeugung unter gegebenen Bedingungen bei Verwendung von Argon ein Druck von 28 mbar das Optimum darstellte, kann nun problemlos bei einem Druck von mehreren 100 mbar gearbeitet werden, was eine deutliche Steigerung der VUV-Impulsenergie zur Folge hat. In Tabelle 6.1 ist für die zur Verfügung stehenden Gase der nichtlineare Brechungsindex n_2 sowie das Ionisationspotential IP aufgeführt.

Wie anhand der Tabelle zu sehen ist, unterschreiten die nichtlinearen Brechungsindices der Gase Neon und Helium die der anderen drei Gase um mehr als eine Größenordnung, was eine effiziente Konversion behindert. Jedoch ist in diesen Gasen, wie aus Abbildung 6.3 ersichtlich, der Phasenanpassungswinkel ϕ sehr klein, was die Wechselwirkungslänge L wiederum vergrößert. Die geringe Suszeptibilität kann also durch die ebenfalls geringe Suszeptibilität des Gases zumindest teilweise kompensiert werden. Generell ist das quadrierte Produkt aus Teilchenzahldichte N , nichtlinearer Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ und durch die Phasenanpassung vorgegebener Wechselwirkungslänge $L = L(N)$ zu maximieren. Man kann auch wegen ihrer direkten Proportionalität auch den Druck p und den nichtlinearen Brechungsindex n_2 als Kenngrößen nutzen. Wegen der hohen Werte für n_2 sind die Gase Xenon

Gas	$n_2 \cdot 10^{-19} \text{ cm}^2 \text{ W}^{-1} \text{ bar}^{-1}$	IP / eV
Xenon	9,16	12,18
Krypton	3,07	13,99
Argon	1,27	15,76
Neon	0,13	21,56
Helium	0,05	24,59

Tabelle 6.1.: Nichtlinearer Brechungsindex n_2 und Ionisationspotential IP für Edelgase. Die Werte wurden entnommen aus [BDS2011], Tabelle 1.

und Krypton hervorragend für die Vierwellenmischung geeignet. Es ist aber zu beachten, dass die Ionisationspotentiale von Krypton und Xenon gering genug sind, um durch eine Zwei-Photonenabsorption des VUV (7,75 eV) ionisiert werden zu können. Das kann die Ausbeute wiederum reduzieren. Dies sollte insbesondere bei der Erzeugung hochenergetischer VUV Impulse berücksichtigt werden, da sonst in diesen Gasen eine hohe Zweiphotonenabsorption zu einer geringeren Konversions-effizienz führen kann.

Für die Impulsenergie des verwendeten 1 kHz Titan-Saphir Verstärkersystems erscheint Argon als die optimale Wahl des nichtlinearen Mediums. Einerseits ist die Zweiphotonenionisation durch VUV nicht möglich, was geringe Verluste zur Folge hat, andererseits ist der nichtlineare Brechungsindex im Vergleich zu den anderen Gasen hoch. Stehen jedoch nur geringe Impulsenergien der Fundamentalen und dritten Harmonischen zur Verfügung (zum Beispiel bei Femtosekundenlasern mit sehr hoher Wiederholrate), so sind Gase wie Krypton oder gar Xenon sogar gegenüber Argon, Neon und Helium zu bevorzugen! Umgekehrt kann eine Skalierung zu höheren Impulsenergien erreicht werden, wenn z.B. Neon als nichtlineares Medium genutzt wird. Erstens sollte die Mehrphotonenionisation wegen des hohen Ionisationspotentials deutlich geringer sein als bei Argon und zweitens kann der geringere nichtlineare Brechungsindex teilweise durch die größere Wechselwirkungslänge kompensiert werden, die sich, bei gleichen Fokussierungsbedingungen, aus dem kleineren Phasenangepassungswinkel ϕ ergibt (siehe Abbildung 6.3). Die Wahl des nichtlinearen Mediums ergibt sich also stets aus den Parametern der zur Verfügung stehenden Laserimpulse.

6.3. Experimenteller Aufbau

Der in Kapitel 5.2 verwendete Aufbau wurde mit einigen Veränderungen wieder verwendet (siehe Abbildung 6.5): Es zeigte sich, dass die Verwendung einer unbeschichteten Linse zur Fokussierung der dritten Harmonischen problematisch ist. Einerseits geht durch Fresnelreflexion etwa $2 \times 4\%$ des Lichts verloren. Andererseits verringerte sich mit der Zeit die Transmission der Linse, was auf die Entstehung von Farbzentren im Linsenmaterial zurückgeführt werden kann.

Aus diesem Grund wurde statt dessen mit einem dielektrischen Spiegel von $f=50$ cm Brennweite (FS1) fokussiert, noch bevor die Vereinigung beider Strahlen erfolgte.

Der zwischen beiden Strahlen eingebrachte Winkel ϕ ist bei weitem zu klein um im Schema dargestellt werden zu können.

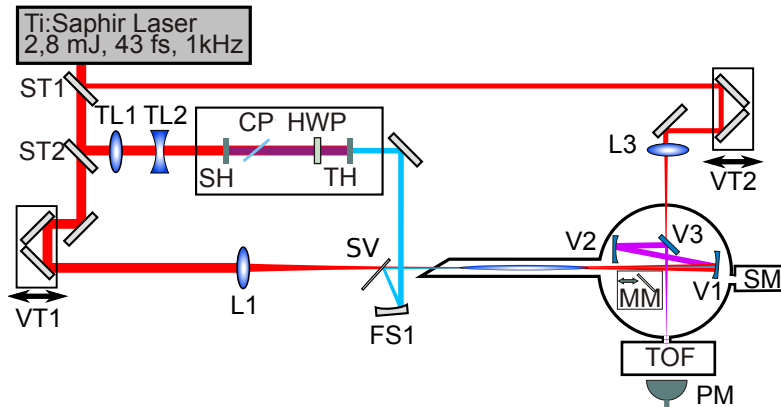


Abbildung 6.5.: Schema des experimentellen Aufbaus zur nicht-kollinearen Vierwellenmischung. Zur Erklärung der Abkürzungen siehe Abbildung 5.2. Vom dort gezeigten Aufbau unterscheidet sich dieser hier nur durch die Ersetzung von L2 durch FS1, einen Fokussierspiegel mit einer Brennweite $f = 0,5$ m.

6.4. druckabhängiger Phasenangepassungswinkel von Argon

Das Gas Argon wurde bezüglich der Druckabhängigkeit des Phasenangepassungswinkels untersucht. Wie in Kapitel 6.2 schon besprochen wurde, ist Argon (neben Krypton) die optimale Wahl für die Impulsparameter des verwendeten Lasersystems. Helium zeichnet sich durch eine nur kleine Suszeptibilität (siehe Tabelle 6.1) aus, die eine effiziente Vierwellenmischung behindert. Außerdem ist der zu erwartende Winkel, genauso wie auch bei Neon und Xenon, nur sehr klein. Eine Messung, die auch zu größeren Phasenangepassungswinkeln führt, würde den höchstmöglichen Druck in der Gaszelle von etwas mehr als 1 bar überschreiten. Die Messung des Winkels erfolgte nach folgendem Vorgehen: Nach Einstellen des Gasdrucks wurde der Winkel zwischen dritter Harmonischer und Fundamentaler verstellt, anschließend die Strahlen wieder in der Fokusregion räumlich überlagert und schließlich der sich aus Veränderung des Winkels ergebende Laufzeitunterschied korrigiert. Die Justage erfolgte stets nach maximaler VUV Impulsenergie, die mit dem Energiedetektor zu messen war. Wurde ein Optimum gefunden, so wurden die Strahlen

noch vor der Vakuumkammer mit einem Spiegel mehrere Meter durch das Labor geleitet und z.B. die Abstände der Reflexe auf einer Wand gemessen um den Winkel bestimmen zu können.

Abbildung 6.6 zeigt die theoretische Phasen Anpassungskurve nach Gleichung 6.2 für Argon und die gemessenen Winkel höchster VUV Impulsenergie. Es ist zu erkennen, dass die Winkel in guter Übereinstimmung mit der theoretischen Kurve sind, wenn auch fast immer, bis auf den kollinearen Fall, systematisch ein wenig größer ausfallen. Die relative Genauigkeit des verwendeten Druckmessers beträgt 0,1% und kommt somit für die Diskrepanz nicht infrage. Das simple Modell ebener Wellen zeigt trotzdem eine sehr gute Übereinstimmung zwischen gemessenen Werten und der Theorie.

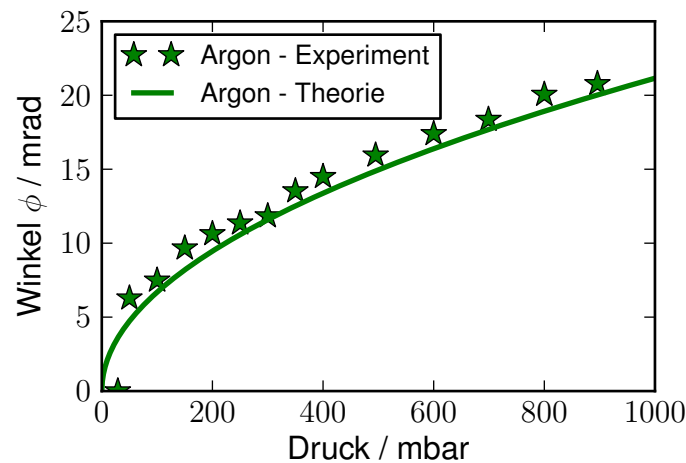


Abbildung 6.6.: Phasen Anpassungskurve des Winkels ϕ für Argon (grüne Linie) aus Gleichung 6.2 und gemessene Werte (grüne Sterne). Der Winkel von ca. 20 mrad stellt den maximalen Winkel dar, der durch das Eintrittsfenster vorgegeben ist.

6.5. Druckverhalten und Transmission

Um das Verhalten der Konversionseffizienz zu untersuchen, wurde bei einem Phasen Anpassungswinkel von $\phi = 14$ mrad der Druck in der Apparatur variiert. Dieser Winkel sorgt bei einem Druck von ca. 440 mbar für Phasen Anpassung. Unterscheidet sich der Druck von diesem Wert, so wird der Wellenzahlfehler Δk nicht verschwinden und als Folge davon die Konversionseffizienz sinken. Die VUV Im-

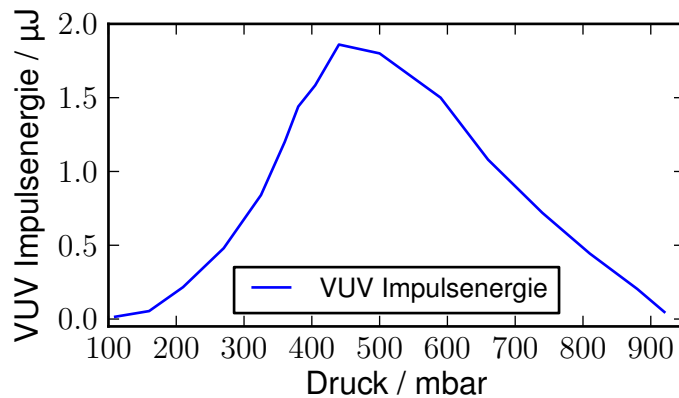


Abbildung 6.7.: VUV Impulsenergie bei einem konstanten Phasenanpassungswinkel von $\phi = 14$ mrad bei Variation des Argondrucks.

pulsenergie ist in Abbildung 6.7 über dem Druck aufgetragen. Es ist zu erkennen, dass bei Abweichung vom optimalen Druck die Konversionseffizienz sehr stark zurückgeht. Bei einem Druck von weniger als 100 mbar bzw. mehr als 900 mbar sinkt die Impulsenergie auf nur noch wenige Nanojoule.

Zur gleichen Zeit wurde die gemeinsame Impulsenergie von Fundamentaler und dritter Harmonischer gemessen, welche durch die Apparatur transmittiert wird. Dazu wurde das mit „SM“ im schematischen Aufbau (Abbildung 6.5) gekennzeichnete VUV-Spektrometer entfernt und durch ein Quarzglas Fenster ersetzt. Ein dahinter positioniertes Energiemessgerät kann nun die Summe der beiden Impulsenergien messen. In Abbildung 6.8 ist diese summierte Impulsenergie über dem Druck aufgetragen, zusammen mit der schon in Abbildung 6.7 gezeigten, gleichzeitig gemessenen VUV Impulsenergie. Dargestellt sind die Messwerte in nicht-kollinearer Geometrie als blaue Linien: Die durchgezogene blaue Linie zeigt die Transmission wenn TH und FF um einige Pikosekunden zueinander verzögert durch die Apparatur geleitet werden. In dieser Situation wird kein VUV erzeugt und die druckabhängigen Verluste stammen nur von Absorptionsprozessen an denen nur eine Farbe beteiligt ist (FF oder TH). Die blaue Punkt-Strich-Linie zeigt die druckabhängige Transmission wenn die Zeitverzögerung zwischen FF und TH Null ist, also maximales VUV Signal erzeugt wird. Es ist zu erkennen, dass die Transmission mit verschwindender Verzögerung deutlich geringer ist als bei verzögertem Eintreffen der Impulse. Einerseits wird ein Teil der Energie in VUV umgewandelt (bis zu $1,5 \mu\text{J}$), der Unterschied zwischen den Transmissionskurven

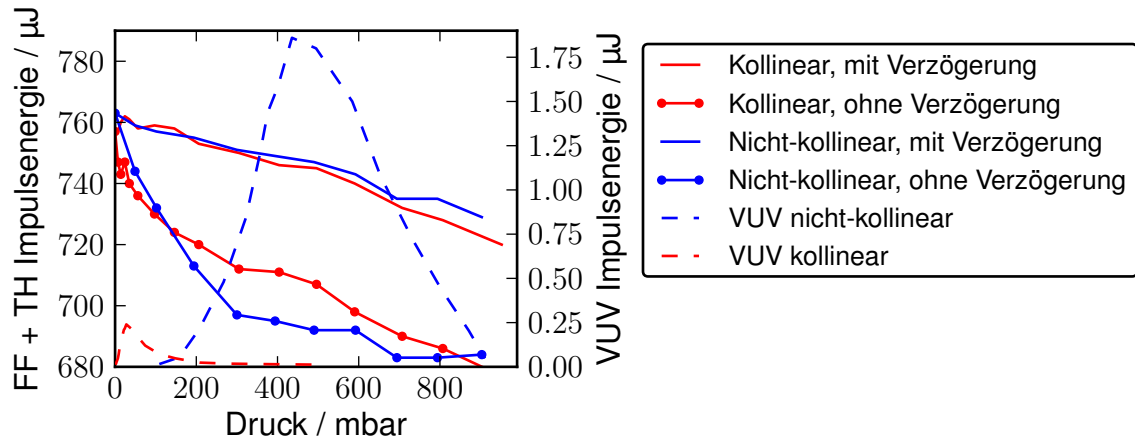


Abbildung 6.8.: Transmission von FF und TH durch die experimentelle Apparatur in Abhängigkeit des Drucks und Vergleich mit der VUV Ausbeute. In rot dargestellt ist das Experiment in kollinearere Geometrie, in blau bei nicht-kollinearere Geometrie bei einem Winkel von 14 mrad. Die durchgezogenen Linien zeigen die Transmission bei großer zeitlicher Verzögerung von FF und TH, die Strich-Punkt-Linien die Transmission wenn maximales VUV Signal erzeugt wird (gestrichelte Linien).

liegt jedoch bei etwa $50 \mu\text{J}$! Die fehlende Impulsenergie kann nur durch zusätzliche Verluste durch Mehrphotonenionisation im Gas erklärt werden, an der Photonen verschiedener Farben (FF, TH und VUV) beteiligt sind. Sie führt zu einer erhöhten Ionisationsrate des Argon. Dies äußert sich auch im Experiment in einer deutlich helleren Plasmasäule wenn FF und TH sich zeitlich überlappen.

Um den Einfluss verschiedener Ionisationskanäle abschätzen zu können, wurde das gleiche Experiment nochmals in kollinearere Geometrie von FF und TH durchgeführt und als rote Linien dargestellt. Die VUV Impulsenergie (rote gestrichelte Kurve) zeigt das aus Kapitel 5 bekannte Verhalten, siehe Abbildung 5.4. Die maximale VUV Impulsenergie wird bei einem Druck von ca. 30 mbar erreicht. Auch hier stellt die rote durchgezogene Linie die Transmission dar, die bei einer großen Zeitverzögerung von FF und TH zueinander gemessen wird. Sie überlappt sehr gut mit der blauen durchgezogenen Linie des nicht-kollineareren Experiments. Unterschiede der beiden Kurven liegen im Bereich der Messungenauigkeit des Energiemesskopfes. Bei gleichzeitiger Einstrahlung der beiden Impulse zeigt sich jedoch ein deutlicher Unterschied der Kurven: Die Transmission in nicht-kollinearere Geometrie ist bei einem Druck von ca. 200-600 mbar deutlich geringer als im kollineareren Experiment. Dies entspricht auch dem Druckbereich bei dem VUV effizient erzeugt wird

(blau gestrichelte Kurve bzw. Abbildung 6.7)! Die Differenz muss also durch MPI verursacht werden, an der VUV Photonen auf jeden Fall beteiligt sind. Freilich kann anhand dieser Messung nicht der bevorzugte Ionisationskanal bestimmt werden.

Bei einem Druck von etwa 30 mbar ist die Situation umgekehrt: die Transmission im kollinearen Fall (rote Strich-Punkt-Linie) ist geringer als im nicht-kollinearen Experiment. Vergleicht man die beiden Punkt-Strich-Kurven bei ca. 1 bar miteinander (also ein Druck bei dem in keinem der Experimente messbare VUV Impulse erzeugt werden), so überlappen sich beide Kurven wieder gut. Die Differenz zur Messung mit zeitlicher Verzögerung von FF und TH kann also nur durch Mehrfarben MPI verursacht worden sein, an der FF und TH beteiligt ist. Anhand dieser beiden Experimente kann auf jeden Fall darauf geschlossen werden, dass sowohl (FF+TH) als auch (FF+VUV)/(FF+TH) MPI zu gesteigerten Verlusten führen. In Tabelle 6.2 sind sämtliche möglichen Ionisationskanäle aufgeführt, die unter Verwendung der im Experiment vorhandenen Wellenlängen möglich sind. Neben der Nummer P , die zum Aufzählen genutzt wird, ist die Zahl K die Ordnung des Ionisationsprozesses, also wie viele Photonen insgesamt zur Ionisation notwendig sind.

Prozess P	a (FF)	b (TH)	c (VUV)	$K=a+b+c$	Zahl der Farben
I	0	0	3	3	1
II	0	4	0	4	1
III	11	0	0	11	1
IV	1	0	2	3	2
V	0	1	2	3	2
VI	6	0	1	7	2
VII	0	2	1	3	2
VIII	8	1	0	9	2
IX	5	2	0	7	2
X	2	3	0	5	2
XI	3	1	1	5	3

Tabelle 6.2.: Mögliche Ionisationskanäle für Argon bei Anwesenheit von FF (800 nm), TH (266 nm) und VUV (160 nm).

6.6. Modell der numerischen Simulation

Um die Effizienz der Vierwellenmischung und die Richtigkeit des verwendeten Modells zu untersuchen, ist die Lösung der gekoppelten Wellengleichungen für Fundamentale, dritte Harmonische und VUV notwendig. Da die Impulsdauern lang gegenüber der Periode der Trägerfrequenz sind, kann in SVE-Approximation gerechnet werden (es erfolgt nur die Betrachtung der Einhüllenden). Wie im vorherigen Kapitel gezeigt wurde, können Verluste sowohl durch Absorption von Photonen einer einzelnen Farbe aber auch durch gleichzeitige Absorption von Photonen unterschiedlicher Farbe verursacht werden. Bei den üblicherweise während des Experiments erzeugten Intensitäten (die höchste Einzelfarbenintensität wird durch die Fundamentale verursacht und ist bis zu 55 TW/cm^2 hoch) ist die Betrachtung durch MPI ausreichend. Erst wenn die Intensitäten ca. 100 TW/cm^2 übersteigen ist auch die Tunnelionisation (TI) als möglicher Ionisationsweg zu berücksichtigen. Die in dieser Arbeit erreichten Intensitäten gestatten aber noch eine ausschließliche Betrachtung durch die MPI.

Für die Einfarben-MPI erfolgte die erste theoretische und auch heute noch oft verwendete Betrachtung durch Keldysh [Kel1965]. Die kurz darauf erweiterte Theorie von Perelomov, Popov und Terent'ev, die häufig durch die Initialen der Autoren als PPT-Theorie [PPT1966] bezeichnet wird, ist die in dieser Arbeit verwendete. Die Wahl der Variablennamen erfolgt an dieser Stelle analog zur Publikation von Couairon und Mysyrowicz über nichtlineare Propagation von Licht in transparenten Medien [CoM2007]. Die Ionisierungsrate W bei MPI ist eine Funktion der Frequenz des Lichts und seiner Intensität ([CoM2007], Gl. 88):

$$W(\omega_o, I(t)) = \sigma_K(\omega_o) \cdot I^K(t) \quad (6.5)$$

Dabei ist $I(t) = \epsilon_o n_o c |E(t)|^2 / 2$ die Intensität des Impulses, $\hbar\omega$ die Photonenenergie und $\sigma_K(\omega_o)$ der auf die Photonenenergie $\hbar\omega$ normierte nichtlineare Absorptionsquerschnitt (nicht die sonst übliche Definition wie sie zum Beispiel in [HeS2008], Gl. (5.31) zu finden ist).

Zur Berechnung dieser nichtlinearen Absorptionsquerschnitte wird folgende Formel genutzt, die ihre Gültigkeit bei Betrachtung von MPI hat (Gl. (89) in [CoM2007]):

$$\sigma_K(\omega) = \omega_{a.u.} \frac{4^{2n^*}}{\pi\sqrt{2}} |C_{n^*, l^*}|^2 \frac{U_0}{2U_H} \nu_0^{2K+2n^*-3/2} e^{2K-\nu_0} \times \Phi_0(\sqrt{2(K-\nu_0)}) \times \frac{1}{I_0^K} \quad (6.6)$$

Dabei ist $\nu_0 \equiv U_i/(\hbar\omega_0)$ der Quotient aus Ionisationspotential und Photonenenergie, U_H das Ionisationspotential von Wasserstoff, $n^* = (U_i/U_H)^{-1/2}$ die inverse Wurzel aus dem Quotienten des Ionisationspotential mit dem von Wasserstoff, $\omega_{a.u.} = 2U_H/\hbar$ und I_0 eine Intensität, die vom elektrischen Feld zwischen Kern und Elektron des Wasserstoff Atoms abhängt. Es gilt: $I_0 = \epsilon_0 n_0 c |E_0|^2/2$ mit $E_0 = E_H \times (U_i/U_H)^{3/2}$ und $E_H = e^5 m_e^2 / h^4 (4\pi\epsilon_0)^3$. $|C_{n^*,l^*}|^2$ schließlich ist ein dimensionsloser Vorfaktor, der sich nach folgender Formel berechnet ([CoM2007], Gl. 78):

$$|C_{n^*,l^*}|^2 = \frac{2^{2n^*}}{n^* \Gamma(n^* + l^* + 1) \Gamma(n^* - l^*)}. \quad (6.7)$$

$\Gamma(x)$ ist die Gammafunktion und $n^* = n - \delta_l$, $l^* = l - \delta_l$ sogenannte effektive Quantenzahlen mit $\delta_l = n - (U_i/U_H)^{-1/2}$.

Der Term $\Phi_0(\sqrt{2(K - \nu_0)})$ ist definiert über die Formel ([CoM2007], Gl. 81)

$$\Phi(x) = \frac{x}{2} \int_0^1 \frac{e^{-x^2 t}}{\sqrt{1-t}} dt = e^{-x^2} \int_0^x e^{y^2} dy. \quad (6.8)$$

Die Ionisationsrate W lässt sich nun leicht für Einfarbenionisation errechnen. Leider ist die PPT-Theorie aber nicht imstande die Absorptionsquerschnitte für Mehrfarbenionisation (*engl.: multi-color multi-photon ionisation*, MCMPI) zu berechnen. Um Mehrfarbeneffekte zu betrachten wäre eine erweiterte Theorie, die sogenannte Keldysh-Faisal-Reiss-Theorie [Rei1980] zu benutzen. Dies würde aber den Verlust der SVE-Approximation bedeuten und als Folge davon einen deutlich gestiegenen numerischen Aufwand. Um die MCMPI jedoch trotzdem mit diesem vereinfachten Modell berücksichtigen zu können, wurde das Modell unter Berücksichtigung der Messungen aus Kapitel 6.5 erweitert. Für die nichtlinearen Absorptionsquerschnitte der Mehrfarbenprozesse wurden effektive Werte der Wellenlängen angenommen, die sich aus der Summe der am jeweiligen Ionisationskanal beteiligten Photonen ergeben. Die Ordnung des Prozesses und die Gesamtenergie bleibt auf diese Weise erhalten.

$$\frac{K}{\lambda_{\text{eff}}} = \frac{a}{\lambda_{\text{FF}}} + \frac{b}{\lambda_{\text{TH}}} + \frac{c}{\lambda_{\text{VUV}}} \quad K\omega_{\text{eff}} = a\omega_{\text{FF}} + b\omega_{\text{TH}} + c\omega_{\text{VUV}} \quad (6.9)$$

Diese effektiven Wellenlängen können dann in Gleichung 6.6 zur Berechnung eines effektiven Mehrfarben-Wirkungsquerschnittes genutzt werden. Um in der späteren

Simulation eine Übereinstimmung mit den empirischen Daten zu erzielen, wird dieser Querschnitt mit einem Faktor normiert: $\sigma_{K,\text{eff}} = \kappa \cdot \sigma_K(\omega_{\text{eff}})$, κ wird also gewählt um eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment zu erzielen. Man sollte annehmen, dass für jeden der Mehrfarbenprozesse ein anderer Faktor κ zu wählen ist. Um das Modell aber nicht zu kompliziert zu gestalten wird für alle Mehrfarbenprozesse der gleiche κ -Faktor genutzt. Analog zu Gleichung 6.5 gilt für die Ionisationsrate eines der Kanäle die Formel:

$$W(\omega_{\text{eff}}, I) = \sigma_{K,\text{eff}} \cdot I_{\text{FF}}^a I_{\text{TH}}^b I_{\text{VUV}}^c \quad (6.10)$$

wobei $K = a + b + c$ gilt (siehe Tabelle 6.2). Summiert man über sämtliche Kanäle, so erhält man nun die gesamte Ionisationsrate für alle Prozesse.

Bezieht man die Absorption durch MPI sämtlicher Kanäle aus Tabelle 6.2 und die Anwesenheit freier Elektronen in die Wellengleichung der beteiligten Impulse (Gleichung 5.3) mit ein, so erweitern sich diese zu (hier nur exemplarisch für die Amplitude des VUV Impulses):

$$\left[\frac{1}{v_{\text{VUV}}} \frac{\partial \hat{A}_{\text{VUV}}}{\partial t} + \frac{i}{2k_{\text{VUV}}} \nabla_{\perp}^2 + i \frac{g_{\text{VUV}}}{2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} + \frac{\partial}{\partial z} \right] \hat{A}_{\text{VUV}} = \quad (6.11)$$

$$= i\gamma_{\text{VUV}} \hat{A}_{\text{VUV}} (|\hat{A}_{\text{VUV}}|^2 + 2|\hat{A}_{\text{FF}}|^2 + 2|\hat{A}_{\text{TH}}|^2) \quad (6.12)$$

$$+ i\gamma_{\text{VUV}} \hat{A}_{\text{FF}}^* \hat{A}_{\text{TH}}^2 e^{i\Delta kz} \quad (6.13)$$

$$- \sum_{P=P(\text{VUV})} \frac{\beta_P I_{0,\text{pump}}^{K-1}}{2} (\rho_{\text{at}} - \rho) |\hat{A}_{\text{FF}}|^{2a} |\hat{A}_{\text{TH}}|^{2b} |\hat{A}_{\text{VUV}}|^{2c-2} \hat{A}_{\text{VUV}} \quad (6.14)$$

$$- \frac{\delta_{\text{VUV}}}{2} (1 + i\omega_{\text{VUV}}\tau_c) \rho A_{\text{VUV}} \quad (6.15)$$

Sämtliche Amplituden sind auf die anfängliche Spitzenamplitude der dritten Harmonischen (also des Pump-Impulses mit der Spitzenintensität $I_{0,\text{pump}}$) normiert, um die Amplituden einheitenlos werden zu lassen ($\hat{A}_{\text{VUV}} = A_{\text{VUV}} / \sqrt{2I_{\text{TH}}/\epsilon_0 n_0 c}$). Die Terme der linken Seite beschreiben der Reihe nach die zeitliche Änderung (v_{VUV} ist die Gruppengeschwindigkeit), die Beugung, die Dispersion (mit der GVD g_{VUV} in s^2/m) und die Ausbreitung in z-Richtung. Der erste Term der rechten Seite

(Term 6.12) beschreibt die Beeinflussung des Impulses durch den Kerr-Effekt, also Selbstphasenmodulation und Kreuzphasenmodulation mit $\gamma_{VUV} = K_{VUV} \cdot n_2 \cdot I_0$ als dem Koeffizienten der nichtlinearen Wechselwirkung, welcher wegen $n_2 = n_2(p)$ eine Druckabhängigkeit besitzt. Der nächste Term 6.13 ist die eigentliche Vierwellenmischung mit Δk als dem Phasenfehler (welcher bei Phasen Anpassung verschwindet).

Der nächste Term 6.14 beinhaltet die Multiphotonenabsorption mit β_P als Proportionalitätsfaktor. Hier sind die Prozesse aus Tabelle 6.2 zu nutzen, an welchen VUV Photonen beteiligt sind. Dies sind die Prozesse I, IV-VII und XI der Tabelle. Für den Einfarbigenprozess ist also $\beta_P = K_{VUV} \hbar \omega_{VUV} \sigma_K$, für die Mehrfarbigenprozesse entsprechend $\beta_P = K_{\text{eff}} \hbar \omega_{\text{eff}} \sigma_{K,\text{eff}}$. Die Teilchenzahldichte schließlich ist als ρ_{at} vertreten, die Dichte der erzeugten Elektronen in der Variable ρ .

Der letzte Term 6.15 beinhaltet den Einfluss der Elektronen: Der erste Teil bedeutet eine Absorption durch die Elektronen des Plasmas (sog. inverse Bremsstrahlung) während der zweite Term eine Verringerung des Brechungsindex des Mediums bewirkt und somit auch ähnlich einem Phasenfehler Δk wirkt. Dies wird auch als Plasma-Defokussierung bezeichnet.

Die Elektronendichte $\rho = \rho(t)$ muss durch eine weitere Differentialgleichung dargestellt werden:

$$\frac{d\rho}{dt} = (\rho_{at} - \rho) \cdot \sum_P \sigma_{K,P} I_0^K |\hat{A}_{FF}|^{2a} \cdot |\hat{A}_{TH}|^{2b} \cdot |\hat{A}_{VUV}|^{2c} \quad (6.16)$$

$$+ \frac{\rho}{U_i} I_0 \cdot \sum_{i=TH,FF,VUV} \delta_i |\hat{A}_i|^2 - \alpha \rho^2 \quad (6.17)$$

Der erste Term 6.16 beschreibt die Erzeugung freier Elektronen durch Multiphotonen-Ionisation der neutralen Atome, wobei wieder über alle Ein- und Mehrfarbigenkanäle aus Tabelle 6.2 aufsummiert wird. Der Anfang des zweiten Terms 6.17 ist die Ionisation durch einen kaskadierten Prozess (Stoßionisation durch bereits vorhandene Elektronen). Der letzte Term $\alpha \rho^2$ schließlich reduziert die Zahl der Elektronen durch Rekombination zu neutralen Atomen. Alle Gleichungen sind der während der Erstellung dieser Dissertation noch nicht veröffentlichten Publikation [SBH2012] entnommen.

Die Entwicklung der VUV-Amplitude $A(z)$ (eigentlich ist die Intensität der Einhüllenden $|A_{VUV}(z)|^2$ von Interesse) kann nun numerisch simuliert werden. Es wur-

de ein MATLAB-Programm zur Lösung dieser Differentialgleichungen geschrieben ([Sap2011] bzw. A.2), welches eine schrittweise Integration über den Wechselwirkungsbereich von $z = 0$ bis $z = L$ durchführt. An Stelle der nicht-kollinearen Wechselwirkung wird im Modell angenommen, dass sich die Strahlen kollinear um L ausbreiten, aber trotzdem verschwindenden Phasenfehler haben. Dies ermöglicht die numerisch effiziente Möglichkeit, die Ausbreitung nur in einer räumlichen Dimension und der zeitlichen Dimension berechnen zu müssen. Genutzt wird die sogenannte „Fourier-split-step Methode“, bei der die linearen und nichtlinearen Terme getrennt voneinander betrachtet werden. Die lineare Betrachtung erfolgt im Frequenzraum, wo die Ausbreitung als eine Multiplikation des Feldes mit dem Integrationsschritt dz erfolgt. Anschließend wird ein Runge-Kutta-Verfahren fünfter Ordnung verwendet um die nichtlinearen Anteile der 3 gekoppelten Wellengleichungen für Fundamentale, dritte Harmonische und VUV zu lösen. Ein weiteres Runge-Kutta-Verfahren vierter Ordnung wird genutzt um die Plasmadichte zu berechnen. Um den numerischen Aufwand gering zu halten werden, neben der SVEA, noch folgende Vereinfachungen genutzt: Zum einen wird der Beugungsterm (∇_{\perp}^2) vernachlässigt und stattdessen ein im Durchmesser invarianter Strahl mit gaußförmiger radialer Intensitätsverteilung angenommen. Dies ist bei Wechselwirkungslängen unterhalb der Rayleighlänge zulässig, genauso wie das Ignorieren der Dispersion ($\frac{\partial^2}{\partial t^2}$), welches eine weitere Vereinfachung ist. Erfolgt die Berechnung im mitbewegten Zeitrahmen ($t' = t - z/v_g$) anstelle des Laborsystems, so entfällt die zeitliche Ableitung $\frac{\partial}{\partial t}$. Das vereinfachte Differentialgleichungssystem lautet nun:

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{A}_{VUV}}{\partial z} = & i\gamma_{VUV} \left[\hat{A}_{VUV} (|\hat{A}_{VUV}|^2 + 2|\hat{A}_{FF}|^2 + 2|\hat{A}_{TH}|^2) \right. \\ & \left. + \hat{A}_{FF}^* \hat{A}_{TH}^2 e^{i\Delta kz} \right] - \frac{\delta_{VUV}}{2} (1 + i\omega_{VUV}\tau_c) \rho A_{VUV} \\ & - \sum_P \frac{\beta_P I_{0,pump}^{K-1}}{2} (\rho_{at} - \rho) |\hat{A}_{FF}|^{2a} |\hat{A}_{TH}|^{2b} |\hat{A}_{VUV}|^{2c-2} \hat{A}_{VUV} \end{aligned} \quad (6.18)$$

$$\begin{aligned} \frac{\partial \hat{A}_{FF}}{\partial z} = & i\gamma_{FF} \left[\hat{A}_{FF} (2|\hat{A}_{VUV}|^2 + |\hat{A}_{FF}|^2 + 2|\hat{A}_{TH}|^2) \right. \\ & \left. + \hat{A}_{VUV}^* \hat{A}_{TH}^2 e^{i\Delta kz} \right] - \frac{\delta_{FF}}{2} (1 + i\omega_{FF}\tau_c) \rho A_{FF} \end{aligned} \quad (6.19)$$

$$\begin{aligned}
& - \sum_P \frac{\beta_P I_{0,pump}^{K-1}}{2} (\rho_{at} - \rho) |\hat{A}_{FF}|^{2a-2} |\hat{A}_{TH}|^{2b} |\hat{A}_{VUV}|^{2c} \hat{A}_{FF} \\
\frac{\partial \hat{A}_{TH}}{\partial z} = & i\gamma_{TH} \left[\hat{A}_{TH} (2|\hat{A}_{VUV}|^2 + 2|\hat{A}_{FF}|^2 + |\hat{A}_{TH}|^2) \right. \\
& \left. + 2\hat{A}_{TH}^* \hat{A}_{FF} \hat{A}_{VUV} e^{i\Delta kz} \right] - \frac{\delta_{TH}}{2} (1 + i\omega_{TH}\tau_c) \rho A_{TH} \\
& - \sum_P \frac{\beta_P I_{0,pump}^{K-1}}{2} (\rho_{at} - \rho) |\hat{A}_{FF}|^{2a} |\hat{A}_{TH}|^{2b-2} |\hat{A}_{VUV}|^{2c} \hat{A}_{TH}
\end{aligned} \tag{6.20}$$

Mit diesem Modell (3 Wellengleichungen und die Elektronendichte nach Gleichung 6.16) wird für Drücke zwischen 50 und 1000 mbar die Konversionseffizienz simuliert.

6.7. Vergleich von Simulation und Experiment

Um die Konversionseffizienz der nicht-kollinearen Vierwellenmischung in Abhängigkeit des Argondrucks zu untersuchen, wurde für die in Abbildung 6.6 dargestellten Winkel die gemessene VUV Impulsenergie über dem Druck aufgetragen (Abbildung 6.9). Ein drastischer Anstieg der VUV Energie ist bis zu einem Wert von etwa 250 mbar festzustellen. Jedoch stagniert die VUV Energie mit zunehmendem Druck bei einem annähernd festen Wert. Wie wir aus Kapitel 6.5 wissen, ist sowohl die MPI als auch die MCMPI auf jeden Fall zu berücksichtigen.

Die Impulsparameter von FF (350 μ J, 40 fs) und TH (230 μ J, 100 fs) wurden in das in Kapitel 6.6 beschriebene Modell eingesetzt. An Stelle des gemessenen Strahldurchmessers von 135 μ m (1/e) wurde jedoch ein Wert von 175 μ m (1/e) genutzt. Mit diesem Durchmesser ließ sich die Simulation besser mit den experimentellen Messungen aus Abbildung 6.9 ein Einklang bringen. Das Resultat der Simulation ist in Abbildung 6.10 als blaue Kurve zusammen mit den gemessenen Daten (grüne Quadrate) dargestellt. Der dimensionslose Faktor κ wurde angepasst um gute Übereinstimmung mit dem Experiment zu erreichen und beträgt für sämtliche Mehrfarbenprozesse 40. Die ebenfalls gezeichnete rote Kurve nutzt nur die Einfarbenprozesse als Verlustterme in den Wellengleichungen bzw. zur Berechnung der Ionisationsrate. Es ist zu erkennen, dass diese Kurve keineswegs mit dem Experiment in Übereinstimmung liegt. Die Abweichungen zwischen der Simulation und dem Experiment können, neben der Wahl von κ , auch durch weitere Effekte erklärt werden. Mit Hilfe von Gleichung 2.40 und den Werten des

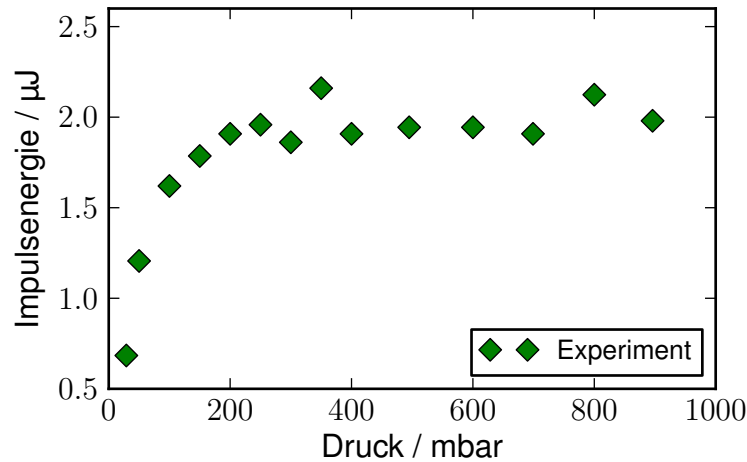


Abbildung 6.9.: VUV Impulsenergie in nicht-kollinearer Wechselwirkung bei optimalem Winkel ϕ über dem Druck aufgetragen. Die Impulsenergie der Fundamentalen betrug $350 \mu\text{J}$ bei einer Impulsdauer von 40 fs, die Energie der dritten Harmonischen $230 \mu\text{J}$ bei ca. 100 fs Impulsdauer.

nichtlinearen Brechungsindex in Tabelle 6.1 kann leicht die kritische Leistung der Selbstfokussierung berechnet werden. Für die Fundamentale ergibt sich ein Wert von etwa 7,5 GW bei 1 bar Argondruck, bei der dritten Harmonischen ergibt sich ein Wert von 0,8 GW bei 1 bar. Die vorhandenen Leistungen der FF und TH Impulse sind 8,8 GW sowie 2,3 GW, liegen also deutlich darüber. Es sollte also eine druckabhängige Veränderung der Strahldurchmesser zu beobachten sein, die sich bei beiden Strahlen unterschiedlich stark auswirkt, aber im Modell wegen der dafür notwendigen Simulation in (3+1) Dimensionen keine Berücksichtigung findet. Diese Selbstfokussierung sollte, besonders bei hohem Gasdruck, die Konversionseffizienz nochmals verringern. Da die Messung des Strahldurchmessers durch die Rasierklingen-Methode bei niedriger Intensität erfolgte, kann der tatsächliche Strahldurchmesser bzw. der konfokale Parameter bei der vollen Intensität also durchaus abweichen. Die Sättigung der Impulsenergie bei höherem Argon Druck ist aber auch sehr gut durch die MCMPI erklärbar und aus der simulierten Kurve ersichtlich.

In einem weiteren Experiment wurde die Abhängigkeit der VUV Impulsenergie von der Impulsenergie von TH und FF bestimmt. Die dritte Harmonische wurde, bei konstantem Druck und dem entsprechenden optimalen Winkel, durch Verdre-

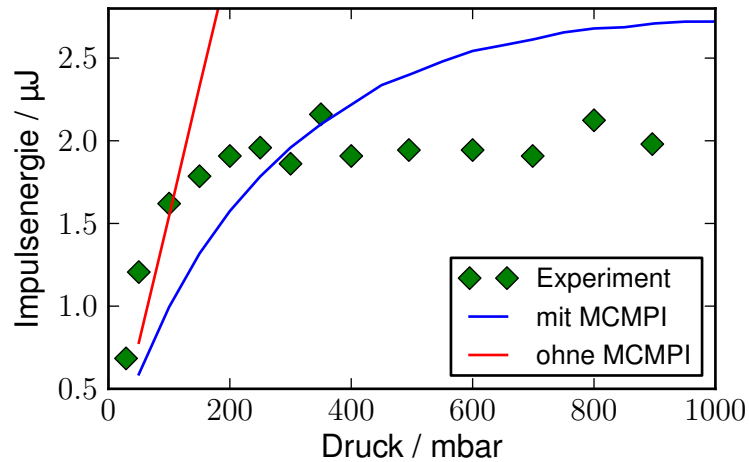


Abbildung 6.10.: Vergleich der simulierten Konversionseffizienz der nicht-kollinearen Vierwellenmischung mit den gemessenen Werten der Impulsenergie (grüne Quadrate). Die experimentellen Daten sind identisch zu Abbildung 6.9 (FF: $350 \mu\text{J}$, 40 fs; TH: $230 \mu\text{J}$, 100 fs). Während die blaue Linie die Mehrfarben-Mehrphotonenionisation der drei Impulse in die Simulation einbezieht, wird für die rote Kurve nur die Einfarben-Ionisation berücksichtigt.

hen der Wellenplatte vor dem Summenfrequenzkristall abgeschwächt (siehe Abbildung 2.5). Dies hat keinen Einfluss auf die geometrischen Parameter, das Spektrum

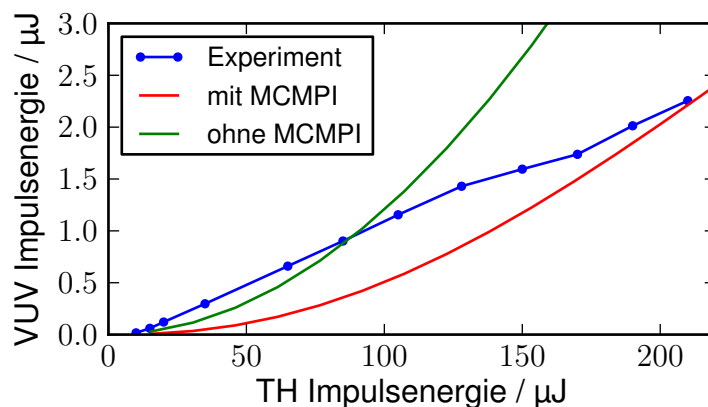


Abbildung 6.11.: VUV Impulsenergie in Abhängigkeit der TH Energie. In blau dargestellt sind die experimentell gewonnenen Daten, die rote Kurve zeigt die Simulation mit, die grüne Kurve ohne Einbezug der MCMPI. Die Fundamentale hatte eine Energie von $450 \mu\text{J}$, der Druck war konstant bei 440 mbar bei dem für Phasenanpassung optimalen Winkel ϕ .

oder die Impulsdauer der dritten Harmonischen. Die jeweiligen Werte für VUV und TH Impulsenergie sind in Abbildung 6.11 dargestellt. Wie aus Gleichung 6.4 leicht abzulesen ist, sollte die Konversionseffizienz in Kleinsignalnäherung quadratisch mit der Teilchenzahldichte N (und somit dem Druck p) steigen. Dies ist in der Simulation (sowohl mit als auch ohne MCMPI) sehr gut erkennbar. Steigt die Impulsenergie immer weiter, so ist auch in der Simulation, wie zu erwarten, ein annähernd linearer Anstieg zu erkennen, der aus der MPI resultiert. Die gemessenen Werte steigen jedoch schon bei kleiner Impulsenergie linear an, können durch die Simulation also nicht gut wiedergegeben werden. Sollte auch hier wegen der hohen Leistung Selbstfokussierung einen Einfluss haben, so ist diese Diskrepanz nicht weiter erstaunlich. Auch hier fällt wieder der große Unterschied zwischen der Simulation mit und ohne MCMPI auf: Bei der vollen TH Impulsenergie ist die ohne MCMPI simulierte VUV Impulsenergie dreimal größer als mit der Absorption mehrerer Farben!

Im Falle der Abhängigkeit von der Fundamentalen fällt der Unterschied noch größer aus (siehe Abbildung 6.12). Um die Fundamentale im Experiment abzuschwächen wurde eine Blende kurz vor dem Fokussierspiegel eingebaut und so die äußeren Bereiche des Strahls abgeschnitten. Der Strahldurchmesser $2w_0$ kann sich deswegen ändern, was zusätzlich die Überlappung von TH und FF beeinflussen mag. Insofern ist ein Vergleich der experimentellen Daten mit den Werten aus der Simulation (als konstant angenommener Strahlradius) schwierig. Wie in Abbildung 6.12 zu sehen ist, hat die VUV Impulsenergie im Experiment bei einem Wert von etwa $400 \mu\text{J}$ Fundamentale ein Maximum von $2 \mu\text{J}$ VUV und sinkt danach wieder ab. Wird die MCMPI in die Simulation einbezogen, so kann ebenso auch dieses Verhalten beobachtet werden! Grund hierfür ist die sehr hohe Intensität der FF von mehr als $65, \text{TW}/\text{cm}^2$. Dies ist deutlich höher als die Intensität der dritten Harmonischen (ca. $16 \text{TW}/\text{cm}^2$). Die große Zahl an möglichen Ionisationskanälen, an denen die Fundamentale beteiligt ist, begünstigt so eine deutlich stärkere Ionisationsrate.

Als abschließende Erkenntnis zu diesen beiden Experimenten der Impulsenergieabhängigkeit ist zu sagen, dass zu einer weiteren Steigerung der VUV Konversionseffizienz eher das Hauptaugenmerk auf eine Steigerung der TH Impulsenergie zu legen ist um dafür eher auf FF Impulsenergie zu verzichten. Zum Abschluss dieses Kapitels soll mit dem vorgestellten vereinfachten Modell die qualitative Überein-

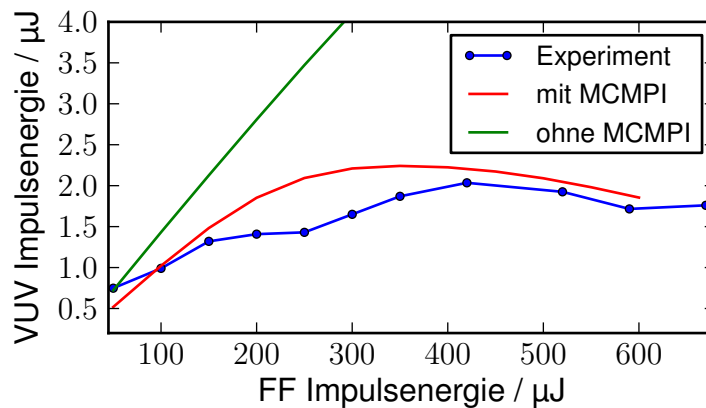


Abbildung 6.12.: VUV Impulsenergie in Abhängigkeit der Impulsenergie der Fundamentalen. In rot ist das Ergebnis der Simulation unter Einbezug der MCMPI dargestellt, in grün die Simulation ohne MCMPI. Beide gehen von konstanter Geometrie aus. Die in blau gezeigten experimentellen Daten wurden durch Veränderung des Strahldurchmessers der Fundamentalen gewonnen. Die TH Impulsenergie beträgt wieder $210 \mu\text{J}$ bei einem Argondruck von 440 mbar und dem optimalen Winkel.

stimmung mit der Messung von Transmission und VUV Impulsenergie bei festem Phasenanpassungswinkel, wie es in Kapitel 6.5 experimentell durchgeführt wurde, gezeigt werden. Anstelle der gesamten Impulsenergie von bis zu $760 \mu\text{J}$ wie in Abbildung 6.8 gezeigt, wurde eine etwas geringere Impulsenergie von insgesamt $635 \mu\text{J}$ genutzt. Hier zeigt die blaue, durchgezogene Linie eine Simulation mit sehr großen Wellenzahlfehler Δk (keine VUV Erzeugung) und einem Wert von $\kappa = 0$ (keine MCMPI), was die Einstrahlung der Impulse mit großer zeitlicher Verzögerung simulieren soll (keine Wechselwirkung zwischen den Impulsen). Die rote Strich-Punkt-Kurve schließt die MCMPI Terme mit ein, hat jedoch noch immer den großen Wellenzahlfehler. Dies soll im Modell den kollinearen Fall verdeutlichen, bei dem bei hohem Druck kein VUV erzeugt wird. Gleichzeitig wird hier die Wechselwirkungslänge L auf ca. 4 cm gesetzt (im nicht-kollinearen Fall ist diese etwa $1,8 \text{ cm}$). Freilich ist dies bei kleinem Druck nicht mit dem Experiment vereinbar, da dann die Erhöhung der Konversioneffizienz durch die Gouy-Phase zu berücksichtigen wäre. Die blaue Strich-Punkt-Linie schließlich zeigt die Transmission wenn VUV effizient erzeugt wird ($\Delta k = 0$). Es ist auch hier zu sehen, dass bei Phasenanpassung die Transmission durch die Kammer deutlich geringer ist als bei fehlender Phasenanpassung. Die gemessene Transmission aus Kapitel 6.5 kann somit durch die Anwesenheit von MCMPI nachvollzogen werden.

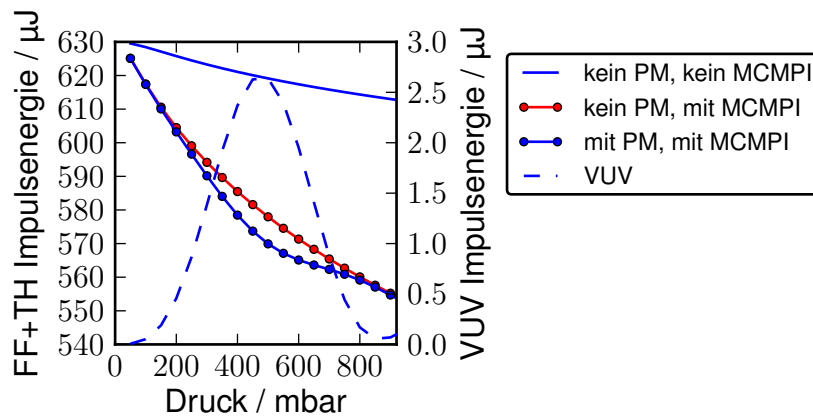


Abbildung 6.13.: Simulierte Transmission und VUV Impulsenergie bei festem Phasenanpassungswinkel und variablem Druck. Die blaue durchgezogene Linie zeigt die Transmission unter Abwesenheit von Phasenanpassung und Mehrfarbenionisation. Die rote Strich-Punkt-Kurve schließt die Mehrfarbenionisation ein, ist jedoch noch immer nicht phasenangepasst. Die blaue Strich-Punkt-Kurve zeigt die Transmission unter Phasenanpassung. PM in der Legende steht für Phasenanpassung ($\Delta k = 0$), MCMPI für Mehrfarbenionisation. Fehlende Phasenanpassung wird in der Simulation durch einen sehr großen Wert für Δk realisiert.

6.8. Phasenanpassungswinkel und Effizienz in Krypton

Die Messung der Phasenanpassung und die Simulation der Konversionseffizienz wurde ebenfalls für Krypton durchgeführt. Abbildung 6.14 zeigt die theoretische Phasenanpassungskurve und die experimentell gemessenen Winkel. Auch hier liegen die optimalen Werte des Winkels nahe der theoretischen Kurve bzw. tendenziell leicht darüber. Der durch das Eintrittsfenster begrenzte Maximalwinkel von 20 mrad wird hier schon bei einem Druck von etwa 350 mbar erreicht, da die Dispersion von Krypton und damit der zu korrigierende Wellenzahlfehler deutlich größer ist als bei Argon.

Analog zum vorherigen Kapitel soll hier ebenfalls die Konversionseffizienz durch das numerische Modell simuliert und mit der Messung verglichen werden. Wieder wurde für die in Abbildung 6.14 gemessenen Winkel die VUV Impulsenergie bestimmt und über dem Druck aufgetragen (siehe Abbildung 6.15). Es ist zu erkennen, dass trotz identischer Impulsparameter die maximale VUV Impulsenergie nur etwa die Hälfte des Wertes von Argon beträgt. Bei dem durch das Eintrittsfenster

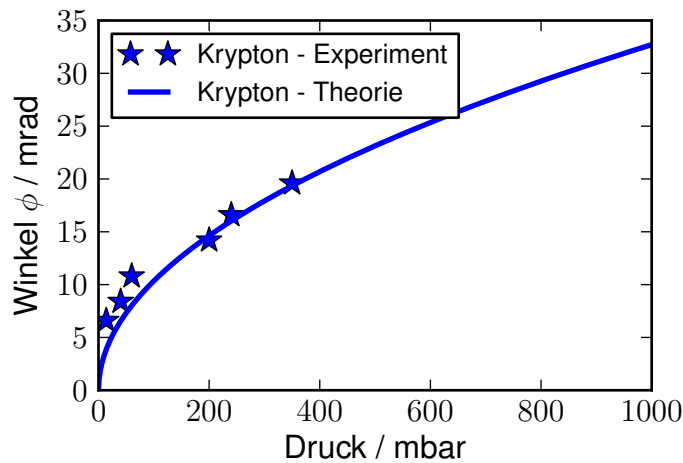


Abbildung 6.14.: Phasenanpassungskurve für Krypton (blaue Linie) und gemessene Werte (blaue Sterne). Der Winkel von ca. 20 mrad stellt den maximalen Winkel dar, der durch das Eintrittsfenster vorgegeben ist.

vorgegebenen maximalen Phasenanpassungswinkel von ca. 20 mrad ist der Druck (bei gleicher Wechselwirkungslänge) lediglich ein Drittel des Drucks bei Argon. In Kapitel 6.2 wurde besprochen, dass das Produkt aus Teilchenzahl (Druck), Wechselwirkungslänge und Suszeptibilität dritter Ordnung (nichtlinearer Brechungsindex) zu maximieren sei. Da der nichtlineare Brechungsindex von Krypton ca. das dreifache des Indexes von Argon beträgt, bei dem durch das Eintrittsfenster vorgegebenen Winkel der Druck von Krypton aber nur ein Drittel des Drucks von Argon betragen kann, so bedeutet dies eigentlich eine annähernd identische Nichtlinearität. Die große Differenz zum Argon kann aber durch das niedrigere Ionisationspotential des Krypton von 13,998 eV erklärt werden. Die zur Ionisation notwendige Photonenzahl ist somit geringer, beispielsweise reichen nun schon zwei VUV Photonen zur Ionisation aus.

Da das Ionisationspotential beinahe ein Vielfaches der Fundamentalwellenlänge ist, ergibt sich für die Simulation ein Problem: Nutzt man eine Wellenlänge von 800 nm, so sind zur Ionisation 10 Photonen notwendig. Unterschreitet die Wellenlänge jedoch den Wert von 797 nm, was angesichts der Bandbreite des Lasers für beinahe die Hälfte der Photonen zutrifft, so sind es nur noch 9 Photonen, was eine stärkere Absorptionsrate zur Folge hat. In der Tabelle 6.3 sind die Ionisationskanäle aufgelistet, die von einer solchen kleineren Wellenlänge (und entsprechender

Prozess P	a	b	c	$K=a+b+c$	Zahl der Farben
I	0	0	2	2	1
II	0	3	0	3	1
III	9	0	0	9	1
IV	4	0	1	5	2
V	0	2	1	3	2
VI	6	1	0	7	2
VII	3	2	0	5	2
IX	1	1	1	3	3

Tabelle 6.3.: Ionisationskanäle für Krypton bei Verwendung von FF, TH und VUV.

Anpassung der TH und VUV-Wellenlänge) ausgehen.

Diese Ionisationskanäle wurden für die numerische Simulation verwendet. Wieder wurde der empirische Faktor $\kappa = 40$ gewählt wie auch in den Simulationen für Argon. Das Ergebnis dieser Simulationen, einmal unter Verwendung der Mehrfarbenionisation und einmal ohne, ist in Abbildung 6.15 gezeichnet (grüne bzw. rote Kurve). Die Übereinstimmung der grünen Kurve (mit Mehrfarbenionisation) mit den experimentell gemessenen Werten (blaue Quadrate) ist wieder sehr gut, während die rote Kurve die gemessenen Werte um ein Vielfaches übersteigt.

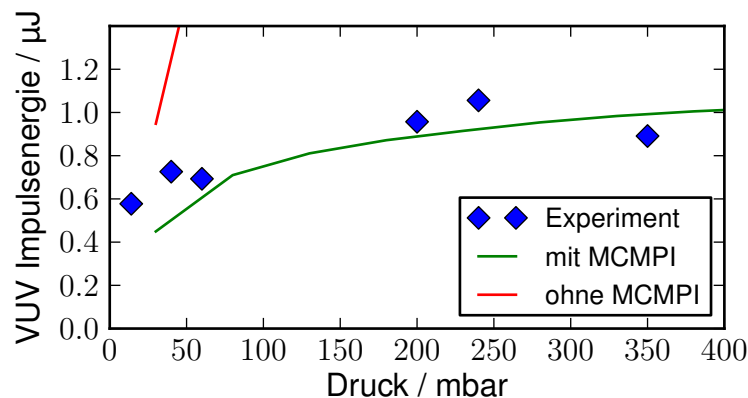


Abbildung 6.15.: VUV Impulsenergie in nichtkollinearer Wechselwirkung in Abhängigkeit des Druckes. Die Impulsenergie der dritten Harmonischen beträgt $230 \mu\text{J}$, die Energie der Fundamentalen $350 \mu\text{J}$. Die Simulation unter Einbezug der MPI ist als rote Kurve dargestellt, die Simulation ohne MPI als grüne Kurve. Die experimentellen Daten sind als blaue Quadrate gekennzeichnet.

6.9. Impulscharakterisierung

Die spektrale und zeitliche Charakterisierung der VUV Impulse erfolgte in gleicher Weise wie in Kapitel 5.3: Die Spektren wurden wieder mit dem McPherson 0.2 m Monochromator, Modell 234/302 und einer VUV-CCD Kamera (Andor D0420-BN-995) gemessen, während die zeitliche Charakterisierung durch Kreuzkorrelation mit der Fundamentalen durch Zweifarben-Ionisation von Xenon in dem in [Ste2003a] beschriebenen Flugzeitmassenspektrometer erfolgte. Berechnet man die Fouriertransformierte des in Abbildung 6.16 (b) dargestellten Spektrums, so erhält man eine Impulsdauer (FWHM) von 39 fs für das elektrische Feld, bzw. 27 fs für die Intensität. Die Halbwertsbreite der Kreuzkorrelation beträgt 53 fs, was bei der bekannten Impulsdauer des Lasers von 43 fs nach Gleichung 2.27 einer Impulsdauer im VUV von 47 fs der Intensitätshalbwertsbreite entspricht. Das Verhältnis von erreichter zu theoretisch möglicher Impulsdauer erscheint relativ schlecht. Jedoch muss erwähnt werden, dass die spektrale Halbwertsbreite des Lasers etwa einer Impulsdauer von 35 fs entspricht, die Kompression jedoch nur bis hinab zu einer Impulsdauer von 43 fs möglich war. Grund hierfür ist vermutlich unkompenzierte Dispersion dritter bzw. höherer Ordnung, die sich mit dem Gitterkompressor des *Spitfire* nicht kompensieren ließ. Die gemessene Impulsenergie dieses Experimentes liegt bei $3,3 \mu\text{J}$. Im Vergleich zur Impulsenergie des Pump-Impulses (dritte Har-

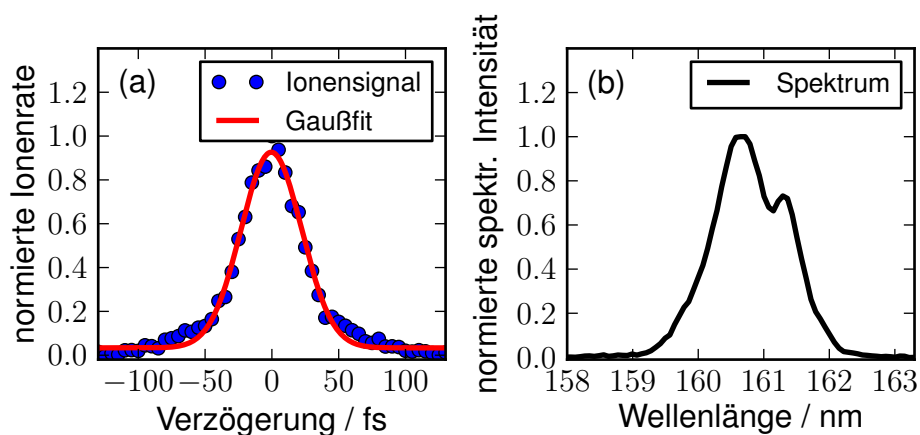


Abbildung 6.16.: zeitliche und spektrale Charakterisierung der VUV Impulse in nichtkollinearer Wechselwirkung in 440 mbar Argon. Abbildung (a) zeigt die zeitliche Charakterisierung per Kreuzkorrelation mit der Fundamentalen (blau) und einen Gaußfit mit einer Halbwertsbreite von 53 fs. Dies entspricht einer Impulsdauer von 47 fs des VUV Impulses. Das Spektrum ist in (b) als schwarze Kurve dargestellt.

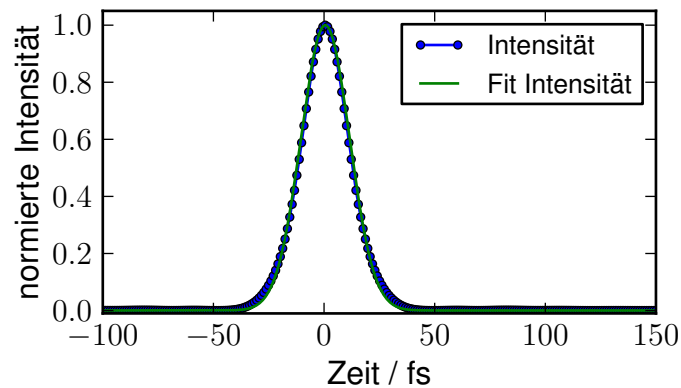


Abbildung 6.17.: Fouriertransformation des in Abbildung 6.16 (b) dargestellten Spektrums unter der Annahme konstanter spektraler Phase. Die blaue Kurve zeigt den Intensitätsverlauf und in grün ist ein entsprechender Gaußfit dargestellt, dessen Halbwertsbreite 27 fs beträgt.

monische), welcher bei diesem Experiment eine vergleichsweise hohe Energie von ca. $300 \mu\text{J}$ hatte, bedeutet dies eine Konversionseffizienz von mehr als 1%! Dies ist für eine nicht-resonante Vierwellenmischung ein sehr hoher Wert.

Ein weiterer Grund für die Vergrößerung der Impulsdauer ist wohl möglicherweise Selbstphasenmodulation: Der Pumpimpuls der Frequenzverdreifung wurde bei diesem Experiment mit einem 2:1 Teleskop auf die Kristalle fokussiert. Die dadurch entstehende hohe Intensität in der zweiten Linse des Teleskops führt zu unkomensierbarer zusätzlicher Phase, die sich in der dritten Harmonischen zeigt (siehe Abbildung 4.6) und im weiteren auch auf den VUV Impuls übertragen wird.

Ein weiterer, wahrscheinlicher Ort, an dem Selbstphasenmodulation stattfinden kann, ist der Punkt der Vierwellenmischung selbst. Die kritische Leistung in Argon liegt bei einem Druck von 440 mbar bei ca. 17 GW für die Fundamentale und 5,7 GW für die dritte Harmonische. Dabei sind die Leistungen von Fundamentaler (8,8 GW) und dritter Harmonischer (3 GW) jeweils unterhalb dieser Leistung, eine Kreuzphasenmodulation kann von den Zahlen her jedoch nicht ausgeschlossen werden. Die Spektren von Fundamentaler und dritter Harmonischer wurden nach der Wechselwirkungszone gemessen und mit den Spektren vor der Kammer verglichen. Es wurde kein Unterschied im Verlauf festgestellt, was die Vermutung nahelegt, dass Selbstphasenmodulation hier keine Rolle spielt.

7. Abstimmbare VUV Impulse

Die Vierwellenmischung ermöglicht, wie in vorangegangenen Kapiteln 5 und 6 gezeigt, die effiziente Erzeugung intensiver Vakuum UV Impulse. Die Verwendung von Titan-Saphir Lasern bietet, wegen der großen Verstärkungsbandbreite des Lasermediums, prinzipiell die Möglichkeit die Mittenwellenlänge in einem Bereich zwischen 680 nm und 1100 nm durchzustimmen. Auf die fünfte Harmonische bezogen wäre dies somit eine Zentralwellenlänge zwischen 136 nm und 220 nm. In der Praxis wird diese Abstimmbarkeit jedoch meist nicht benutzt. Zum einen ist die erreichbare Impulsdauer am Rand der Verstärkungsbandbreite nur begrenzt, zum anderen trifft dies auch auf die Verstärkung zu. Deswegen werden Titan-Saphir Verstärker meist nahe an ihrem Verstärkungsmaximum bei etwa 800 nm betrieben.

Die Abstimmbarkeit der VUV-Wellenlänge lässt sich mittels optisch parametrischer Verstärker (OPA) realisieren. Mithilfe nichtlinearer Frequenzkonversion in doppelbrechenden Kristallen lässt sich so die Wellenlänge in einem großen Bereich durchstimmen. Ein solcher OPA wurde verwendet, um Impulse von weniger als 40 fs Dauer zu erzeugen, die sich zwischen 1150 nm und 1600 nm durchstimmen ließen [GPN2010]. Im Vierwellenmischprozess wurde die Fundamentale durch diese IR-Impulse ersetzt und so ein Abstimmbereich von 145 nm bis 151 nm realisiert, in dem eine Impulsdauer von unter 50 fs gewährleistet werden konnte. Dabei konnten Impulsenergien von zum Teil mehr als 100 nJ erreicht werden.

In den folgenden Kapiteln wird auf die Eigenschaften von OPAs eingegangen (Kapitel 7.1). Danach erfolgt die Beschreibung des experimentellen Aufbaus in Kapitel 7.2 und danach gesondert die Problematik der Impulsdauermessung bei diesen Wellenlängen in Kapitel 7.3. Das sich anschließende Kapitel 7.4 stellt die erreichten Ergebnisse übersichtlich zusammen.

7.1. parametrische Verstärkung

Wegen der beschränkten Abstimmbarkeit von Titan-Saphir Verstärkern sind Methoden der nichtlinearen Optik notwendig, um Impulse über einen größeren Wellenlängenbereich zur Verfügung zu stellen. Die Verwendung optisch parametrischer Verstärker hat sich als Mittel der Wahl erwiesen, um wahlweise hochenergetische, abstimmbare Impulse im sichtbaren [TZM2006] oder infraroten [GBP2009] Spektralbereich zu erzeugen. Das Grundprinzip ist in beiden Fällen ähnlich: Nach Erzeugung eines Impulses kleiner Energie und meist sehr hoher Bandbreite durch Kontinuumszeugung („*white-light continuum*“, (WLC)), wird dieser durch geeignete räumliche und zeitliche Überlagerung mit einem Pumpimpuls, der häufig nur eine geringe Bandbreite aber große Energie hat, in einem nichtlinearen Kristall verstärkt. Aus Gründen der Energieerhaltung entsteht noch ein weiterer Impuls, dessen Photonen die Differenzenergie zwischen dem Pumpimpuls und dem verstärkten Impuls tragen. Diese beiden Impulse werden als „Signal“ und „Idler“ bezeichnet, wobei der kurzwellige Impuls als „Signal“ bezeichnet wird und der langwellige als „Idler“. Außerdem muss Phasenanpassung realisiert sein (siehe Kapitel 2.4.1), was nichts anderes als die Impulserhaltung darstellt und in Gleichung 7.1b in Form der Wellenvektoren dargestellt ist.

$$\omega_{pump} = \omega_{signal} + \omega_{idler} \quad (7.1a) \quad \vec{k}_{pump} = \vec{k}_{signal} + \vec{k}_{idler} \quad (7.1b)$$

Häufig wird der nichtlineare Kristall β -Bariumborat (BBO) verwendet. Im Falle des für die Experimente genutzten Infrarot OPAs wurde der neuartige Kristall "Bismuthtriborat"(BIBO), der eine höhere effektive Nichtlinearität als BBO aufweist bei gleichzeitig höherer Zerstörschwelle. Außerdem erstreckt sich der Transparenzbereich bis zu 3 μm , während BBO jenseits von etwa 2,4 μm nicht mehr transparent ist.

7.2. experimenteller Aufbau

Der aus Kapitel 5.3 bekannte Aufbau (Abbildung 5.2) wurde abgeändert, und statt der Mischung mit der Fundamentalen wurde der in Abbildung 7.1 schematisch dargestellte OPA verwendet.

Die folgende Beschreibung des OPA ist der Publikation [GPN2010] entnommen:

Die Gesamtenergie zum Pumpen des OPA betrug 1,5 mJ, was der Hälfte der zur Verfügung stehenden Impulsenergie des Laserverstärkers entsprach. Ein kleiner Teil davon, weniger als 20 μJ (gesteuert durch eine Blende B bzw. durch einen Graufilter GF), wurde mittels einer Linse mit 5 cm Brennweite in eine 3 mm dicke Yttrium-Aluminium-Granat (YAG) Platte fokussiert, wodurch ein Kontinuum erzeugt wurde, welches sich vom sichtbaren Bereich bis ins nahe Infrarot hinein erstreckt. Eine weitere Linse mit 3 cm Brennweite bildet dieses Weißlicht, nach Filterung der verbliebenen Fundamentalen durch einen dünnen Langpassfilter, in den ersten BIBO-Verstärker ab. Ein weiterer Strahlteiler sorgt für das Aufspalten der

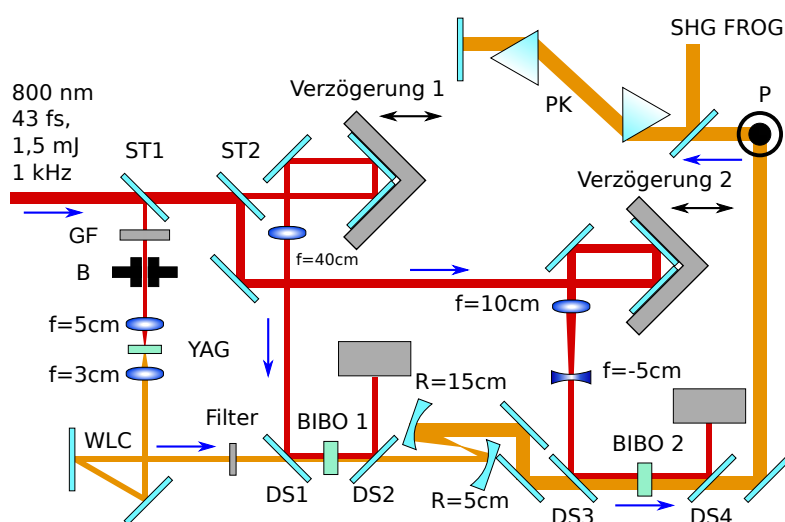


Abbildung 7.1.: Aufbau des optisch parametrischen Verstärkers für das nahe Infrarot. ST1: Strahlteiler $R=3\%$, ST2: Strahlteiler $R=75\%$, GF: variabler Graufilter, B: Blende, YAG: 3 mm dicke Platte aus Yttrium-Aluminium-Granat, WLC: Strahlengang des Weißlichtkontinuums, DS1-DS4: dichroitische Spiegel, hochreflektierend für 800 nm, BIBO1: erster Verstärker, BIBO2: zweiter Verstärker, P: Periskop mit 90° um die Hochachse verdrehten Spiegel, PK: Prismenkompressor, SHG FROG: Impulscharakterisierung. Die blauen Pfeile zeigen die Ausbreitungsrichtung des Lichts an.

verbliebenen Energie im Verhältnis 4:1. Der kleinere Teil dient nun zum Pumpen der ersten Verstärkerstufe (BIBO1) und wird mittels dünner, hochreflektierender Spiegel (dichroitische Spiegel DS1-DS4) mit dem Weißlicht kollinear überlagert. Dabei wird das Weißlicht durch die Spiegel transmittiert, während der Pumpstrahl von diesem reflektiert wird. Der BIBO Kristall in der ersten Stufe ist 1,5 mm dick und im Winkel von $\theta = 42^\circ$ in der xz -Ebene geschnitten, somit phasengangepasst für Typ II Wechselwirkung ($o \rightarrow e + o$). Die erzeugten Signal-Impulse haben ei-

ne Energie von nur wenigen μJ und müssen in der zweiten Stufe nachverstärkt werden um im Experiment nutzbar zu sein. Diese wird von der verbliebenen Impulsenergie der Fundamentalen gepumpt. Der Signal-Strahl der ersten Stufe wird mit einem reflektiven 1:3 Teleskop vergrößert während der Pumpstrahl mit einem Galileiischen Linsenteleskop um den Faktor 2 im Durchmesser verkleinert wird. Der Verstärkerkristall in der zweiten Stufe ist ein für Typ I ($e \rightarrow o + o$) Wechselwirkung geschnittener, 3 mm dicker BIBO Kristall ($\theta = 11^\circ$).

Die Signal Impulse des OPA werden mit einem gefalteten Prismenkompressor (PK) bestehend aus zwei SF11 Prismen komprimiert. Die Impulsenergie der Signalwellenlänge (zwischen 1100 und 1600 nm) liegt dabei im Bereich zwischen 50 und 80 μJ bei einer Impulsdauer, die unter 40 fs liegt. Lediglich nahe am Entartungspunkt ($\omega_{\text{signal}} = \omega_{\text{idler}}$) beträgt die Impulsdauer meist nur noch ca. 50 fs.

Die komprimierten IR-Impulse werden mit den TH Impulsen überlagert (266 nm), die nach der in Kapitel 2.4.2 beschriebenen Methode erzeugt werden. Gepumpt wird dieser Aufbau mit 1,5 mJ ohne dass diesmal der Durchmesser vor der Verdreifachung durch ein Teleskop geändert wird. Entsprechend ist die Impulsenergie der dritten Harmonischen geringer und beträgt zwischen 130 und 165 μJ zum Zeit-

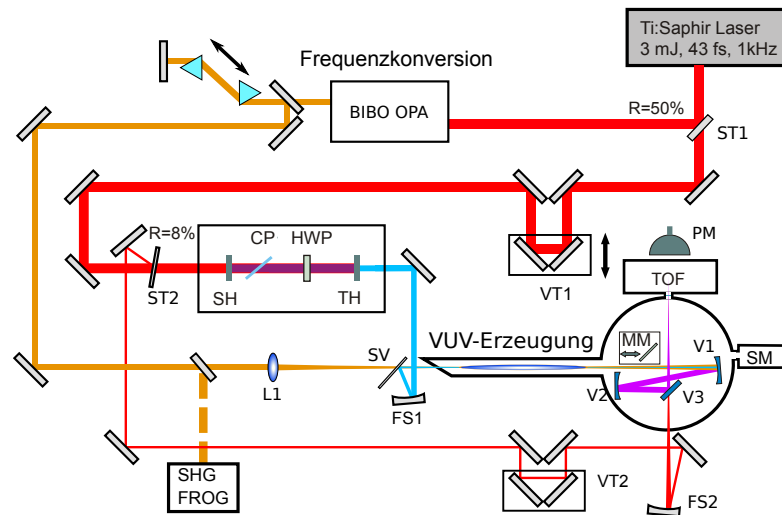


Abbildung 7.2.: Experimenteller Aufbau zur Erzeugung abstimmbarer VUV Impulse. Die Details sind in der Bildunterschrift von Abbildung 5.2 aufgelistet. Gegenüber diesem Aufbau sind folgende Änderungen vorgenommen worden: ST1: Strahlteiler $R = 50\%$, BIBO OPA: parametrischer Verstärker (siehe Abbildung 7.1), L1: $f=0,5$ m Linse, FS1: $f=0,5$ m dielektrischer Spiegel, FS2: $f=1$ m Silberspiegel, SV: Spiegel zur Strahlvereinigung, V1-V3: dielektrische Spiegel für VUV.

punkt dieser Experimente. Dabei ist die Impulsdauer wieder etwa 100 fs. TH und Signal Impulse werden getrennt voneinander mit einem Spiegel von 50 cm Brennweite (FS1) bzw. einer antireflex-beschichteten BK7 Linse (L1) mit ebenfalls 50 cm Brennweite in die gasgefüllte Zelle (siehe Abbildung 5.3) fokussiert. Die annähernd kollineare Überlagerung erfolgt durch einen 1 mm dünnen, für TH hochreflektierenden Spiegel, der im 45° Winkel im Strahlengang der IR Impulse steht (Strahlvereiner SV). Die beiden fokussierten Strahlen schließen wieder den bekannten Winkel ϕ (siehe Gleichung 6.2) ein, der für die gegebenen Bedingungen für Phasen Anpassung sorgt und in Kapitel 6.1 beschrieben wird. Da die Wellenlänge des IR-Impulses nun eine andere ist, ist der Wellenzahlfehler Δk größer und der einzustellende Winkel ist ebenfalls größer.

Die Gaszelle ist mit Argon befüllt bei einem Druck von typischerweise ca. 300 mbar. Die beiden Strahlen sorgen wieder für die Erzeugung einer dünnen, wenige Zentimeter langen Plasmasäule, wobei Plasmabildung durch die Signal-Impulse alleine nicht erkennbar ist. Grund hierfür ist einerseits die nur geringe Intensität der Impulse und außerdem die nun viel größere Zahl an notwendigen Photonen zur Ionisation ($IP_{Argon} = 15,76 \text{ eV}$, somit $n \geq 18$). Im Nachfolgenden befinden sich 3 hochreflektierende Spiegel für VUV (V1-V3), von denen V1 eine Brennweite von 50 cm besitzt, V2 von 1 m und V3 ein 2 mm dünner 45° Spiegel ist. Er dient dazu, die VUV Impulse wieder kollinear mit dem Probeimpuls zu überlagern. Dieser wird kurz vor der Frequenzverdreifung durch den Strahlteiler ST2 (R=8%) vom Hauptstrahl abgeteilt und über eine Verzögerungsstrecke (VT2) geschickt. Die Fokussierung des Probestrahls erfolgt über einen Silberspiegel (FS2) mit einer Brennweite von 1 m, sodass die Foki von VUV und IR wieder im TOF überlagert sind. An das andere Ende des TOF ist wieder das VUV-Impulsenergiemessgerät befestigt, der bewegliche Spiegel (MM) innerhalb der Gaszelle ermöglicht das Steuern des Strahls in den Monochromator des VUV-Spektrometers (SM).

7.3. Fitprozedur für Kreuzkorrelationen

In den vorangegangenen Kapiteln wurde von einer nichtresonanten Ionisation der Xenon Atome ausgegangen, weil die fraglichen Wellenlängen weit von jeglicher Resonanz entfernt waren. Im Gegensatz dazu haben wir nun mit der abstimmbaren Quelle die Möglichkeit, eine Resonanz in Xenon zu treffen: Der Zustand

$5p^5(^2P_{3/2}^{\circ})6s^2[3/2]_1^{\circ}$ hat vom Grundzustand einen Abstand von 8,32 bzw. 8,44 eV, was einer Wellenlänge von 149,1 nm bzw. 146,96 nm entspricht.

Da das Spektrum der VUV Impulse deutlich breiter als die Absorptionslinie ist, stehen zur Ionisation der Xenon Atome nun zwei Kanäle zur Verfügung: Einmal ist dies die gewohnte nichtresonante Mehrfarben-Mehrphotonen Anregung, bei der ein VUV Photon und 3 Photonen der Fundamentalen zur Ionisation des Xenon führen. Beim Durchfahren der Verzögerungsstrecke VT2 ergibt dies die aus Kapitel 2.3.1 bekannte Formel 2.26 für das Ionensignal, wenn man von einem gaußförmigen Intensitätsprofil von Anrege- und Abfrageimpuls ausgeht.

Der spektrale Bereich des VUV Impulses, der mit der Absorptionslinie überlagert, führt zu einem anderen zeitlichen Verlauf des Ionensignals. Da die Lebensdauer des Zustandes im Nanosekundenbereich liegt (sprich: es gilt $\tau_{\text{VUV}} \ll \tau_{\text{Zustand}}$), kann man vom sogenannten *kohärenten Grenzfall* der Anregung ausgehen. Nach ([HeS2010] Kap. 20.7.3) kann der zeitliche Verlauf der Anregung in diesem Fall als proportional zum Betragsquadrat des Integrals über die Einhüllende des VUV Impulses angenommen werden. Unter Benutzung der Substitution $\vartheta = t/\tau$ kann die zeitabhängige Zustandsdichte $\rho_{bb}(t)$ des angeregten Zustandes berechnet werden ([HeS2010], Gl. 20.67):

$$\rho_{bb}(t) = \frac{\tau^2 \Omega_R^2}{4} \left| \int_{-\infty}^{t/\tau} d\vartheta' A(\vartheta') \right|^2 = \frac{1}{8} \pi \tau^2 \Omega_R^2 \left[\text{erf} \left(t / (\tau \sqrt{2}) \right) + 1 \right]^2 \quad (7.2)$$

Ω_R ist die Rabi-Frequenz, und $A(\vartheta)$ ist die Einhüllende des Laserimpulses. Unbedingt zu beachten ist, dass hier τ nicht die Halbwertsbreite des Impulses ist, sondern die $1/e$ Breite! Um die Halbwertsbreite zu berechnen, ist die Relation $\tau_{\text{FWHM}} = \tau / \sqrt{\ln 2}$ zu benutzen. $\text{erf}(x)$ steht dabei für die Gaußsche Fehlerfunktion (*engl.: error function „erf“*), die definiert ist als

$$\text{erf}(x) := \frac{2}{\sqrt{\pi}} \int_0^x e^{-t^2} dt. \quad (7.3)$$

Da die Abfrage der Zustandsdichte $\rho_{bb}(t)$ durch die Ionisation mit dem Abfrageimpuls geschieht, ist diese Funktion auch proportional zum Ionensignal.

Das gemessene Ionensignal ist nun die Summe aus beiden Kanälen. Unter der Annahme, dass sämtliche Impulse als gaußförmig angenommen werden, ergibt sich

die Fitfunktion des Ionensignals $S(t)$ somit zu

$$S(t) = A_1 \cdot \exp \left[-\frac{(t - t_0)^2}{2\tau^2} \right] + A_2 \cdot \left[\operatorname{erf} \left(\frac{t - t_0}{\sqrt{2}\tau} \right) + 1 \right]^2 + y_0, \quad (7.4)$$

wobei A_1 und A_2 jeweils die Amplitude der Signale der einzelnen Kanäle darstellen und t_0 den Zeitpunkt der Überlappung beider Impulse angibt („zeitlicher Nullpunkt“). y_0 ist ein konstantes Untergrundsignal, welches zum Beispiel durch die Ionisation mit nur einer Farbe hervorgerufen wird und nicht von der Verzögerung t beider Impulse abhängt. Aus dieser Breite τ lässt sich wieder durch die Formel 2.27 die Impulsdauer abschätzen. Hierbei ist der Faktor n stets gleich 3, da im gesamten Abstimmbereich der VUV Impulse (8,1 - 8,55 eV) die Ionisationsenergie nur durch mindestens 3 weitere Photonen der Fundamentalen überschritten werden kann. Abbildung 7.3 zeigt beispielhaft das Ionensignal für eine solche Messung (blaue Punkte). Die einzelnen Anteile von Gauß- und Fehlerfunktion sind als grüne bzw. violette Linie dargestellt.

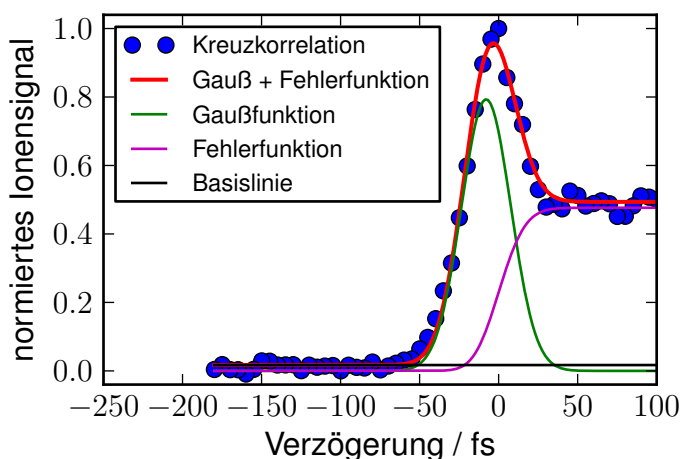


Abbildung 7.3.: Beispiel der Fitprozedur für Kreuzkorrelationen von abstimmbaren VUV Impulsen mit der Fundamentalen bei 800 nm in Xenon. Die blauen Punkte zeigen reale gemessene Werte, der Fit aus Summe von Stufen- und Gaußfunktion ist als rote Linie dargestellt. Zur Veranschaulichung der Anteile beider Kurven sind die Fitkurven von Gaußfunktion (grün) und Stufenfunktion (violett) nochmals gesondert geplottet, ebenso eine konstante Basislinie (schwarz).

7.4. Vergleich der Abstimbarkeit im IR und VUV

Der Abstimmbereich der Signalwellenlänge des IR-OPA bestimmt die möglichen erreichbaren VUV Wellenlängen. Sie liegt prinzipiell für die Signalwellenlänge zwischen ~ 1100 nm und 1600 nm und für den Idler zwischen 1600 nm und ~ 3000 nm. Dabei sind die obere und untere Grenze bestimmt durch die Absorptionsgrenze der BIBO Kristalle bei etwa $3 \mu\text{m}$. Wegen der Energieerhaltung ergibt sich somit für die Wellenlänge des VUV Impulses gemäß $\omega_{VUV} = 2\omega_{THG} - \omega_{OPA}$ ein prinzipieller Abstimmbereich von 151,7 nm (8,2 eV) bis hinab zu 139,5 nm (8,9 eV). Es ergeben sich mehrere prinzipielle Schwierigkeiten, die verhindern, dass der volle Abstimmbereich auch genutzt werden kann. Dies ist zum einen die prinzipielle Schwierigkeit der Dispersionskontrolle von Impulsen im Infrarot. Der Dispersionsnullpunkt ($\frac{dn}{d\lambda} = 0$) der meisten Gläser liegt im nahen IR. Nach Gleichung 2.19 verschwindet somit der Term zur negativen Dispersion des Kompressors und macht ihn nutzlos. Das in den unseren Experimenten verwendete Glas SF11 hat den Dispersionsnullpunkt bei $1,84 \mu\text{m}$. Für nahegelegene IR Wellenlängen (und dementsprechende VUV Wellenlängen) ist somit keine Dispersionskontrolle vorhanden.

Eine andere Limitierung ist die begrenzte Bandbreite der benutzten dielektrischen Spiegel: Während die Hochreflektoren für den senkrechten Einfall noch vergleichsweise breitbandig sind (141 bis 159 nm), sind die Spiegel für 45 Grad nur von 144 bis 156 nm verwendbar. Wie in Kapitel 7.2 beschrieben wird dieser jedoch zur kol-

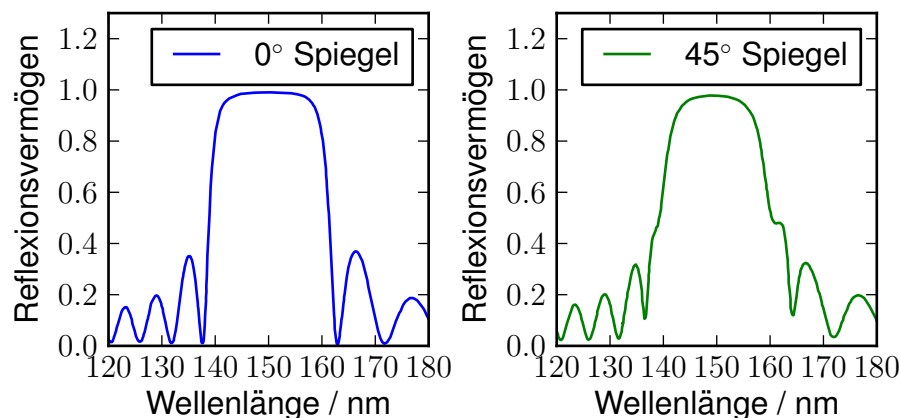


Abbildung 7.4.: Reflexionsvermögen der dielektrischen Spiegel für die abstimmbaren VUV Spiegel, optimiert für einen Einfallswinkel von 0° (links) sowie 45° (rechts). (Quelle: Layertec GmbH)

linearen Vereinigung von VUV und Fundamentaler benötigt. Laut Angaben des Herstellers verringert sich die verfügbare Bandbreite um weitere 10-20% (genauere Angaben leider nicht bekannt) wenn Licht in p-Polarisation verwendet wird (elektrischer Feldvektor ist innerhalb der durch die Reflexion aufgespannten Ebene), was die nutzbare Bandbreite somit noch mehr einschränkt. Zur Verdeutlichung der verfügbaren Bandbreite sind in Abbildung 7.4 die Reflexionsbandbreiten der Spiegel für unpolarisiertes Licht dargestellt.

Aus oben genannten Gründen wurde die Abstimmbarkeit lediglich mithilfe des Signalbereichs des OPA (1100 bis 1600 nm) realisiert. Für ausgewählte Mittenwellenlängen des Signal Impulses wurde Vierwellenmischung mit der dritten Harmonischen realisiert. Dazu wurden Kreuzkorrelationen zwischen VUV und dem 800 nm Abfrageimpuls wieder mittels Zweifarbenionisation von Xenon gemessen (siehe Ka-

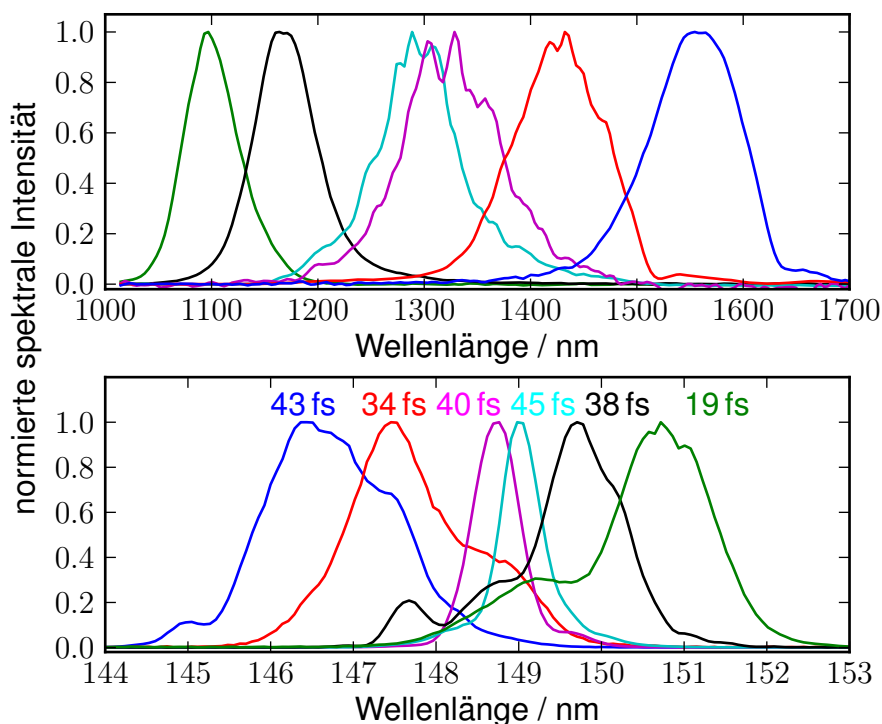


Abbildung 7.5.: Infrarot- und VUV Spektren der abstimmbaren Vierwellenmischung zwischen 146 (blau) und 151 nm (grün). Die dargestellten Farben der oberen Abbildung entsprechen jeweils den Farben der unteren Abbildung und zeigen so, dass sich die Wellenlängen von IR und VUV genau umgekehrt verhalten. Die erreichten Impulsdauern sind ebenfalls in der Abbildung neben den entsprechenden Spektren eingetragen.

pitel 2.3.1). Um möglichst kurze VUV Impulse zu erzeugen, wurden Messreihen durchgeführt in denen der Abstand der Prismen im Kompressor systematisch geändert und anschließend wieder die Impulsdauer gemessen wurde. Dabei muss nach jedem Verschieben der Prismen der zeitliche Nullpunkt zwischen dritter Harmonischer und IR wiedergefunden werden. Abbildung 7.5 zeigt eine Übersicht der IR Spektren für welche die Impulsdauer optimiert wurde. Außerdem sind die dazugehörigen VUV Spektren dargestellt zusammen mit der minimalen Impulsdauer die erreicht wurde.

Die entsprechenden Kreuzkorrelationen sind in Abbildung 7.6 dargestellt. Sichtbar wird hier, dass die Spektren die mit der Absorptionslinie bei 149,6 nm überlappen einen deutlichen Anteil einer Stufenfunktion in der Kreuzkorrelationsfunktion haben (blau und rot), während bei den anderen Wellenlängen ein Fit mit einer einfachen Gaußfunktion durchaus ausreichend gewesen wäre, um die Impulsdauer anzunähern. Ebenfalls dargestellt ist die jeweilige Breite der Kreuzkorrelation. Da die Kreuzkorrelationen mit einem Teil der Fundamentalen durchgeführt wurden, deren Dauer ca. 43 fs zum Zeitpunkt der Experimente betrug, lässt sich wieder mit Formel 2.27 die Impulsdauer abschätzen. In der Übersicht der gemessenen Spektren Abbildung 7.5 sind die kürzesten Impulsdauern eingetragen und sie liegen je nach Wellenlänge 19 und 43 fs. Dabei ist die Begrenzung der Impulsdauer nicht allein durch die verfügbare spektrale Breite gegeben. Stattdessen begrenzt Dispersion dritter Ordnung, die vom Prismenkompressor herrührt, die kürzestmögliche Impulsdauer. Besonders bei der in grün dargestellten Kreuzkorrelation (Zentralwellenlänge ca. 151 nm) treten Fehler in der Charakterisierung der Fundamentalen deutlich hervor. Nutzt man zur Abschätzung eine Impulsdauer von 39 fs an Stelle von 43 fs so wächst die VUV Impulsdauer auf 21 fs. Die Kreuzkorrelation mit einem Impuls, welcher die gleiche Dauer wie der VUV Impuls hat, wäre hier zu bevorzugen.

Die in Abbildung 7.5 und Abbildung 7.6 blau gezeichnete Kurve hebt sich von den anderen Kurven ab, da diese Messungen ohne einen Prismenkompressor im IR-Strahl durchgeführt wurden. Bei Wellenlängen jenseits von 1,5 μm ist der Einfluss der Dispersion dritter Ordnung des Prismenglases schon vergleichbar oder höher als die negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion, die durch die Kompressor-geometrie selber verursacht wird. Glücklicherweise konnten trotzdem vergleichsweise kurze Impulse erzeugt werden, da der Dispersionsnullpunkt der verwendeten Ma-

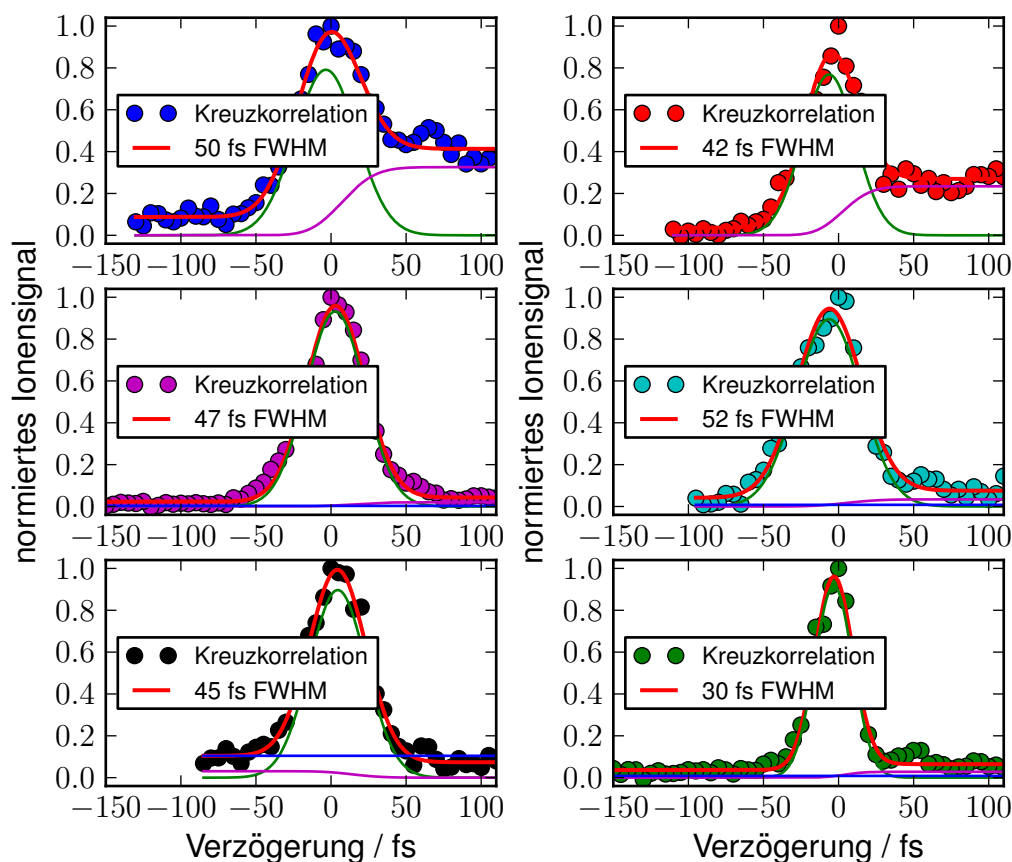


Abbildung 7.6.: Kreuzkorrelationen der abstimmbaren VUV-Impulse mit der Fundamentalen durch Ionisation von Xenon (farbige Kreise), wobei die Farbe der Kreuzkorrelation jeweils der Farbe des Spektrums in Abbildung 7.5 entspricht. Die Kurven wurden mit der in Gleichung 7.4 angegebenen Funktion (rote Linie) gefittet, die sich ergebende Halbwertsbreite ist in den Legenden angegeben. Die Impulsdauer des Abfrage-Impulses beträgt ca. 43 fs.

terialen (BK7, CaF₂) recht nahe liegt und die Streckung des IR Impulses nach dem OPA deswegen verhältnismäßig gering ist.

Der kürzeste Impuls wurde bei der niedrigsten IR Wellenlänge von ca. 1100 nm erreicht. Hier arbeitet der Prismenkompressor in einem sehr vorteilhaften Regime, da die Dispersion dritter Ordnung des SF11 Glases ein Minimum erreicht und somit nur Dispersion 2. Ordnung übertragen wird.

Die erzeugte VUV-Impulsenergie lag im gesamten Abstimmbereich deutlich über 50 nJ, bei etwa 149 nm Zentralwellenlänge wurden sogar über 100 nJ erzeugt. Die

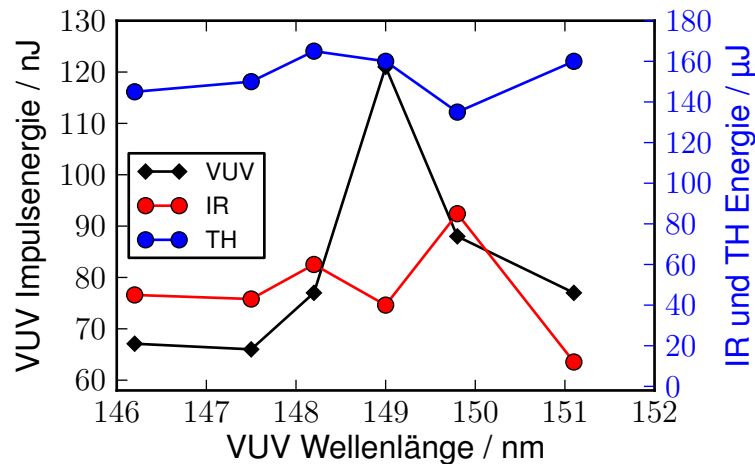


Abbildung 7.7.: Zusammenfassung der mit der abstimmbaren VUV Quelle erreichten Impulsenergie in Abhängigkeit der Zentralwellenlänge (schwarze Sterne). Die blauen Kreise bezeichnen die bei dem jeweiligen Experiment verfügbare Impulsenergie der dritten Harmonischen, die roten Kreise zeigen die Impulsenergie der IR Impulse.

hier auftretende höhere Impulsenergie trotz geringerer IR Impulsenergie erscheint außergewöhnlich. Der Autor vermutet, dass das Strahlprofil der IR Impulse über den Abstimmbereich veränderlich ist und bei genau dieser Wellenlänge sein Optimum hat.

Die erreichten Impulsenergien sind ausreichend für Anrege-Abfrage Experimente an Molekülclustern. Selbst der Vergleich mit den Impulsenergien bei der Erzeugung der fünften Harmonischen brauchen diese Zahlen nicht zu scheuen, sind doch die Impulsenergien, die der OPA erzeugt, nur zwischen $12 \mu\text{J}$ und $80 \mu\text{J}$, routinemäßig wurden zwischen 40 und $50 \mu\text{J}$ vom OPA erzeugt. Da zum Pumpen des OPAs die Hälfte der zur Verfügung stehenden Energie (3 mJ) genutzt werden musste, stellt dies eine sehr schlechte Konversionseffizienz dar, die der Preis für die vergleichsweise kurzen IR-Impulse ist.

8. Sub-20-fs VUV-Impulse durch nichtlineare Impulskompression

In diesem Kapitel soll auf die Möglichkeit der Erzeugung sehr kurzer Femtosekunden VUV Impulse eingegangen werden. Dies wurde im Rahmen dieser Dissertation durch die spektrale Verbreiterung der Fundamentalwellenlänge mithilfe von optischen Filamenten realisiert, welche die Erzeugung sehr kurzer Impulse im sichtbaren bzw. nahen infraroten Spektralbereich ermöglichen. Diese breitbandigen Fundamentalimpulse wurden mit den vergleichsweise langen, schmalbandigen Impulsen der dritten Harmonischen unter Verwendung der nicht-kollinearen Vierwellenmischung gemischt und konnten in geeigneter Weise ultrakurze Impulse von unter 20 fs am Ort der Impulscharakterisierung erreichen.

8.1. Phasenübertrag bei der Vierwellenmischung

Die Arbeit mit ultrakurzen Impulsen bringt immer wieder die Problematik mit sich, dass die Dispersion der transparenten Medien zur zeitlichen Streckung der Impulse führt. Die Impulsdauer erreicht nur an einem gewissen Ort in der Ausbreitung ihren kürzesten Wert, weitere Ausbreitung führt unweigerlich zur Vergrößerung der Impulsdauer. Die Materialdispersion nimmt enorme Ausmaße im VUV Bereich an. Während Magnesiumfluorid (MgF_2) bei 800 nm nur eine GVD von $20 \text{ fs}^2/\text{mm}$ aufweist, beträgt sie bei 160 nm schon $350 \text{ fs}^2/\text{mm}$. Ein bandbreitenbegrenzter VUV Impuls von 10 fs Dauer würde durch nur 1 mm MgF_2 auf fast die zehnfache Dauer gestreckt werden! Folglich wird auch das dünnste Fenster im VUV-Strahlengang zu einer Verlängerung der Impulsdauer führen. Die Kompensation mithilfe von Elementen mit negativer GVD wie Prismen- oder Gitterkompressoren weist erhebliche Probleme bezüglich Effizienz, Komplexität und Kompensation von Dispersion hö-

herer Ordnung auf.

Der Prozess der Vierwellenmischung bietet jedoch die Möglichkeit, die GDD der erzeugten Impulse gezielt zu steuern. Hierzu betrachte man das elektrische Feld der VUV-Strahlung, welches geschrieben werden kann als (Herleitung ist [ZFS2010] entnommen):

$$\tilde{E}_{\text{VUV}}(\omega) \propto i \iint d\omega' d\omega'' \tilde{E}_{\text{TH}}(\omega') \tilde{E}_{\text{TH}}(\omega'') \tilde{E}_{\text{FF}}^*(\omega' + \omega'' - \omega) \quad (8.1)$$

$$= i \int d\Omega' \tilde{E}_{\text{6HG}}(\Omega') \tilde{E}_{\text{FF}}^*(\Omega - \omega) \quad (8.2)$$

wobei $\omega' + \omega'' = \Omega'$ und $\tilde{E}_{\text{6HG}}(\omega) = \tilde{E}_{\text{TH}}^2(\omega)$ ist. Die zweite Zeile ist identisch mit der Betrachtung von Phasenübertrag in Dreiwellenmischung, wie es zum Beispiel bei optisch parametrischen Verstärkern der Fall ist. Die Lösung dieses Integrals ist nur auf numerischem Wege möglich. Man mag aber den Fall betrachten (zum Beispiel wie in [ZFS2010] geschehen), dass die Bandbreite der TH bedeutend kleiner ist als die Bandbreite der Fundamentalen $\Delta\omega_{\text{TH}} \ll \Delta\omega_{\text{FF}}$. In diesem Fall kann das Spektrum der dritten Harmonischen als Delta-Funktion ($E_{\text{TH}}(\omega) = E_{\text{TH0}}\delta(\omega - 2\omega_{\text{TH}})$) angenähert werden und das Spektrum der erzeugten VUV Impulse vereinfacht sich zu:

$$\tilde{E}_{\text{VUV}}(\omega) \propto i \tilde{E}_{\text{6HG}} \tilde{E}_{\text{FF}}^*(2\omega_{\text{TH}} - \omega). \quad (8.3)$$

Für die spektrale Phase des VUV Impulses $\beta_{\text{VUV}}(\omega)$ ergibt sich in diesem Fall die vereinfachte Form

$$\begin{aligned} \beta_{\text{VUV}}(2\omega_{\text{TH}} - \omega) &= -\beta_{\text{FF}}(\omega_{\text{FF}}) + \beta'_{\text{FF}}(\omega_{\text{FF}})(\omega - \omega_{\text{FWM}}) \\ &\quad - \frac{1}{2}\beta''_{\text{FF}}(\omega_{\text{FF}})(\omega - \omega_{\text{FWM}})^2 + \frac{1}{6}\beta'''_{\text{FF}}(\omega_{\text{FF}})(\omega - \omega_{\text{FWM}})^3 - \dots, \end{aligned} \quad (8.4)$$

wobei $\omega_{\text{FWM}} = 2\omega_{\text{TH}} - \omega_{\text{FF}}$ gilt. Die GVD der Fundamentalene β''_{FF} geht also mit negativem Vorzeichen in die Phase des VUV Impulses β_{VUV} ein! Somit kann auf einfache Weise negativer Chirp des VUV Impulses erzeugt werden, in dem zum Beispiel Materialdispersion in den Strahlengang der Fundamentalene eingebracht wird. Die Dispersion dritter Ordnung (TOD) und alle anderen ungerade Terme haben jedoch wiederum ein positives Vorzeichen.

In Abbildung 8.1 ist die Vierwellenmischung mit gechirpter Fundamentaler schematisch dargestellt: Der linke Graph verdeutlicht die Energieerhaltung des Pro-

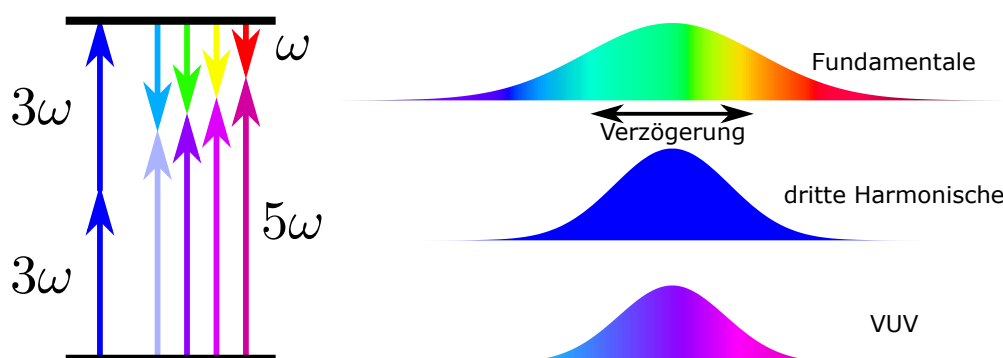


Abbildung 8.1.: Vierwellenmischung mit gechirpten Impulsen. Der linke Graph verdeutlicht die Energieerhaltung des Prozesses und die Entstehung der breitbandigen VUV Impulse. Die Kurven auf der rechten Seite symbolisieren das zeitliche Intensitätsprofil der Impulse, wobei die Fundamentale (oben) einen Up-Chirp oder Down-Chirp aufweist, die dritte Harmonische (Mitte) jedoch schmalbandig und bandbreitenbegrenzt ist. Als Folge der Wechselwirkung entsteht der VUV Impuls (untere Kurve), welcher einen, der Fundamentalen entgegengesetzten Chirp aufweist

zesses. Die Energie der Pump photons 3ω bleibt zeitlich konstant während die Fundamentale ω eine Vielzahl von verschiedenen Frequenzen umfasst und sich bei gechirpten Impulsen auch mit der Zeit ändert. Dieser Chirp zeigt sich in umgekehrter Richtung im VUV Impuls.

Die oben beschriebene Vereinfachung soll bei den weiteren Berechnungen in diesem Kapitel jedoch nicht genutzt werden. Sie dient nur dem Verständnis des Sachverhaltes. Stattdessen wird Formel 8.1 in den Zeitraum transformiert, was die Betrachtungen (und die numerische Vorgehensweise) erleichtert. Unter der Annahme, dass die Impulsdauer deutlich länger ist als die Oszillation der Trägerfrequenz (SVEA) genügt die Betrachtung der Einhüllenden und der zeitlichen Phase $A(t) = |A(t)| \cdot e^{i\beta(t)}$. Nimmt man an, dass die Bandbreite der Phasen Anpassung groß genug ist um ignoriert werden zu können, so ergibt sich:

$$\begin{aligned} \mathcal{F} [\tilde{A}_{\text{VUV}}(\omega)] &\propto A_{\text{VUV}}(t) \propto A_{\text{TH}}^2(t) \cdot A_{\text{FF}}(t)^* \propto \\ &\propto \mathcal{F} [\tilde{A}_{\text{TH}}(\omega)]^2 \cdot \mathcal{F} [\tilde{A}_{\text{FF}}(\omega)]^* . \quad (8.5) \end{aligned}$$

Die Faltung wurde in ein einfaches Produkt zweier Funktionen überführt, das leicht auszuführen ist. Unter Verwendung der Taylor-Entwicklung der spektralen Phase (siehe Gleichung 2.10) lässt sich der rechte Term nutzen, unter Kenntnis der GDD

der erzeugenden Impulse die effektive GDD der VUV Impulse berechnen. Das Vorgehen ist wie folgt: Aus den gemessenen Spektren von FF und TH, die proportional zu $|E_{\text{FF}}(\omega)|^2$ und $|E_{\text{TH}}(\omega)|^2$ sind, wird $|E_{\text{FF}}(\omega)|$ und $|E_{\text{TH}}(\omega)|$ bestimmt. $E_{\text{FF}}(\omega)$ wird mit einem definierten Phasenterm $\exp(i\beta(\omega))$ multipliziert, der einer eingebrachten Materialdispersion entspricht. Anschließend werden die Felder in den Zeitraum fourier-transformiert. Wie oben schon erwähnt wurde, ist die Vierwellenmischung eine Multiplikation des Quadrats der dritten Harmonischen mit der Komplex-Konjugierten der Fundamentalen. Der nun errechnete VUV Impuls $A_{\text{VUV}}(t)$ kann durch eine Rücktransformation in den Frequenzraum genutzt werden um das Spektrum des Impulses $A_{\text{VUV}}(\omega)$ zu errechnen.

Breitet sich der VUV Impuls nach seiner Erzeugung in einem dispersiven, nicht absorbierenden Medium aus, so bewirkt dies eine Änderung der spektralen Phase um $\beta_{\text{Medium}}(\omega)z$. Die spektrale Einhüllende $|A(\omega)|$ jedoch bleibt konstant. Unter Benutzung der Gleichung 2.7 kann diese Dispersion und die sich dadurch ergebende Änderung des zeitlichen Intensitätsprofils $|A_{\text{out}}(t)|^2$ errechnet werden.

$$A_{\text{out}}(t) = \mathcal{F} \left[A_{\text{VUV}}(\omega) \cdot e^{i\beta_{\text{Medium}}(\omega)z} \right] \quad (8.6)$$

Da davon auszugehen ist, dass man es nicht immer mit bandbreitenbegrenzten Impulsen zu tun hat, stellt sich unweigerlich die Frage, wie sich Spektrum und Phase der VUV Impulse bei gechirpten Vierwellenmischung ändern. Deswegen wurde numerisch das Spektrum des VUV Impulses für verschiedene Impulsparameter der Fundamentalen und dritten Harmonischen berechnet.

8.2. Vierwellenmischung mit schmalbandiger TH

Wie weiter unten nochmals erwähnt wird, ist die allgemeine experimentelle Situation, dass die Bandbreite der verwendeten dritten Harmonischen wegen der großen GVM in BBO nur gering ist, während die Bandbreite der Fundamentalen durch Filamentierung stark verbreitert ist, also $\Delta\omega_{\text{TH}} \ll \Delta\omega_{\text{FF}}$. Wir gehen im Falle der dritten Harmonischen von einer Fouriergrenze von 65 fs aus, was einer Bandbreite von 6,8 THz entspricht. Die Bandbreite der Fundamentalen sei ausreichend für eine Impulsdauer von 10 fs (44 THz). Abbildung 8.2 zeigt das VUV Spektrum für die drei Situationen des Chirps der Eingangsimpulse. Während die Streckung der

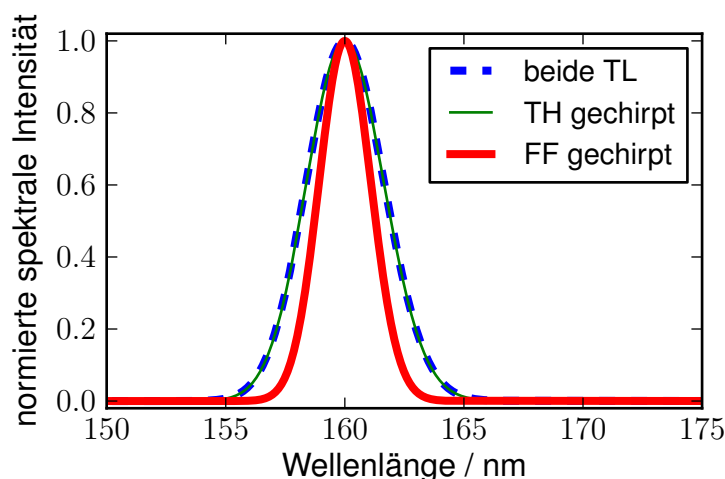


Abbildung 8.2.: Einfluss des Chirps auf die Bandbreite des VUV Spektrums. Die blaue, unterbrochene Linie zeigt das VUV Spektrum im Falle fourier-limitierter Impulse von 65 bzw. 10 fs Dauer. Die grüne Kurve zeigt das Spektrum im Falle einer von 65 auf 80 fs gestreckten Impulsdauer (1000 fs^2). Die rote Linie ist das Spektrum im Falle eines von 10 auf 55 fs gestreckten FF Impulses (200 fs^2).

schmalbandigen dritten Harmonischen um 1000 fs^2 (dies entspricht einer Vergrößerung der Impulsdauer von 65 fs auf 80 fs) zu einer unmerklichen Änderung der Bandbreite führt (grüne Kurve), bewirkt eine deutlich kleinere GVD der Fundamentalen von 200 fs^2 (Vergrößerung der Impulsdauer von 10 fs auf 55 fs) eine starke Verringerung der Bandbreite (rote Kurve). Die Verringerung der Bandbreite von ungefähr 4 nm auf nur noch 2,6 nm bewirkt die Vergrößerung der Fouriergrenze von 10 auf 14,5 fs. Anschaulich betrachtet wird dies sofort klar, ist doch nun der Überlapp der vielen Frequenzen der Fundamentalen mit der größten Leistung des TH Impulses bei diesem großen Chirp nicht mehr gewährleistet. Diese Situation ist schematisch in Abbildung 8.3 dargestellt. Der (in dieser Abbildung stark übertriebene) Chirp der Fundamentalen bewirkt eine Selektion eines geringeren Spektralbereichs weil die vollständige zeitliche Überlappung der Impulse nicht mehr gegeben ist. Die Konversion der äußeren Teile des Spektrums ist nun geringer, was zur beobachteten Verringerung der Bandbreite führt.

Man kann die Änderung des Spektrums auch dazu nutzen, gezielt eine Möglichkeit der Wellenlängenabstimmbarkeit einzuführen. In Abbildung 8.3 ist diese Situation schematisch dargestellt: der breitbandige Impuls der Fundamentalen wird gegen den Impuls der dritten Harmonischen verzögert. Dabei wird die Streckung der Fundamentalen aus Gründen der Anschaulichkeit übertrieben dargestellt. Ändert sich

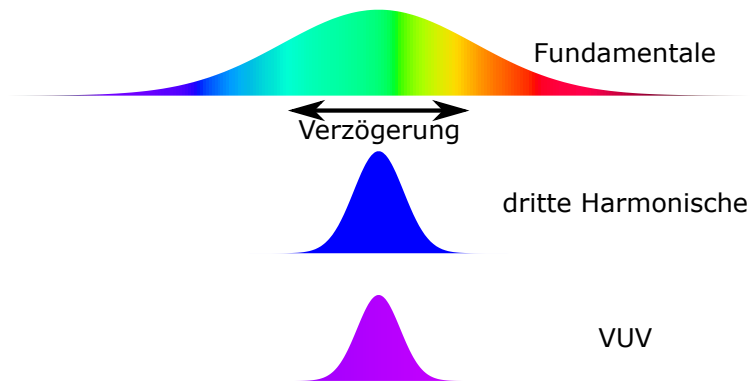


Abbildung 8.3.: Schema zur Abstimmbarkeit der Vierwellenmischung. Ein durch Dispersion verbreiteter Impuls der Fundamentalen ω wird mit dem schmalbandigen Impuls der dritten Harmonischen gemischt. Der entstehende VUV Impuls hat eine nun verringerte Bandbreite. Das Vorzeichen des Chirps ist noch immer entgegengesetzt dem der Fundamentalen.

die Verzögerung der beiden Impulse, so ist der Überlapp der dritten Harmonischen nur mit einem Teil des Spektrums der Fundamentalen gewährleistet. Da nur die Frequenzen an der Vierwellenmischung teilnehmen, die sich überlappen, findet so eine Auswahl statt. Es ist auch gleich ersichtlich, dass beim Durchstimmen die Intensität des VUV Impulses reduziert wird, wenn man sich von der Mittenfrequenz entfernt.

In Abbildung 8.2 wurde der zeitliche Unterschied der beiden Impulse Null gesetzt, was einer maximalen Effizienz der VUV-Erzeugung entspricht. Verzögert man die beiden Eingangsimpulse geeignet gegeneinander, so kann - mit einer gewissen Verringerung der Konversionseffizienz der erzeugten VUV Strahlung - die Zentralwellenlänge verändert werden.

In Abbildung 8.4 sind verschiedene VUV Spektren gezeigt, die jeweils durch die Mischung des oben genannten schmalbandigen TH Impulses mit dem um -200 fs^2 gestreckten Fundamentalimpuls entstanden sind. Der einzige Parameter, der von Spektrum zu Spektrum geändert wurde, ist die Verzögerung zwischen den beiden Impulsen. Beschränkt man sich auf eine Verringerung der VUV Impuls-Energie bis zu auf 25% der maximalen Energie, so bedeutet dies einen Abstimmbereich von ca. 4 nm oder etwa 0.2 eV. Genügen nur 10% der Maximalleistung, so ist in diesem Falle ein Abstimmbereich von 5 nm oder 0.25 eV möglich (nicht in Abbildung 8.4 dargestellt).

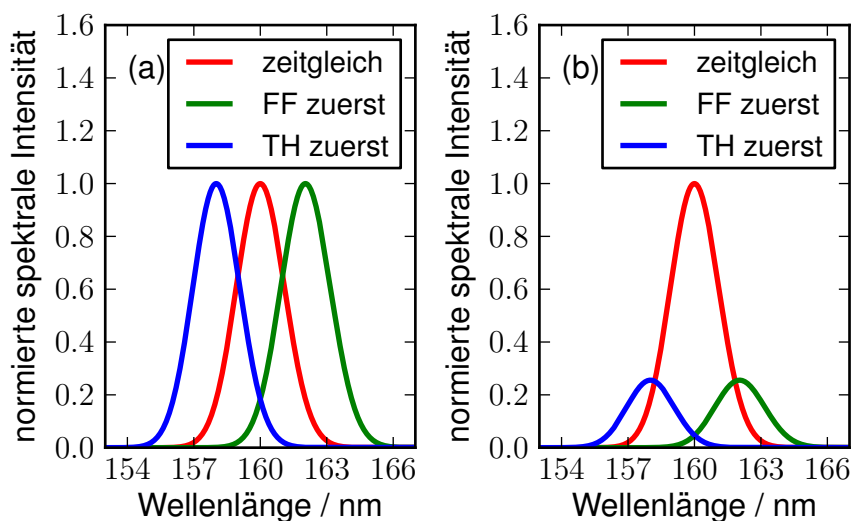


Abbildung 8.4.: Abstimmung der Wellenlänge mittels Verzögerung der beiden Impulse. Während die Fundamentale stets mit -200 fs^2 gestreckt ist, bleibt die dritte Harmonische bandbreitenbegrenzt. Der einzige freie Parameter ist die Verzögerung der beiden Impulse zueinander. Die rote Kurve stellt das Spektrum bei vollständiger Überlagerung beider Impulse dar, die grüne Kurve zeigt das rot-verschobene Spektrum durch die Wechselwirkung mit der hochfrequenten Komponente der Fundamentalen. Die blaue Kurve zeigt den umgekehrten Fall der Wechselwirkung der dritten Harmonischen mit dem niederfrequenten Anteil der breitbandigen Fundamentalen. Während Abbildung (b) die Relation der VUV Leistungen relativ zur Null-Verzögerung wiedergibt, sind alle Spektren in Abbildung (a) auf Maximum normiert und illustrieren so besser den Bereich der Abstimbarkeit.

8.3. Impulskompression durch Filamentierung

Zur Erzeugung von Impulsen mit nur wenigen Zyklen im VUV Bereich sind mehrere Grundvoraussetzungen nötig. Zum einen ist dies die notwendige Bandbreite mindestens eines der erzeugenden Impulse. Zum anderen ist die Komprimierbarkeit oder genauer gesagt: die Kontrolle über die Dispersion eines der Impulse, von entscheidender Bedeutung.

Die Bandbreite der direkt aus dem Verstärker emittierten Impulse liegt bei nur etwa 25 bis 35 nm. Zur Erzeugung breitbandiger Impulse haben sich mehrere Möglichkeiten etabliert. Zum einen finden nicht-kollineare optisch parametrische Verstärker (NOPA) Verwendung [WPR1997]. Diese werden entweder mit der zweiten Harmonischen des Titan:Saphir Lasers (400 nm) oder mit der zweiten Harmonischen eines Neodym- oder Ytterbium-basierten Lasers (ca. 532 oder 515 nm)

gepumpt, welche Impulse im sichtbaren (gepumpt mit Titan:Saphir Laser) bzw. nahen Infrarot (gepumpt mit Ytterbium/Neodym-dotierten Lasern) erzeugen. Auf diese Weise konnten beispielsweise Impulse mit bis zu 300 μJ Impulsenergie und unter 30 fs Impulsdauer durch Verwendung eines Titan-Saphir Lasers erzeugt werden [TZM2006]. Mithilfe spezieller Pumplaser sind aber auch schon Impulse von 2,7 mJ Impulsenergie und 5,5 fs Impulsdauer gezeigt worden [AIK2008].

Ytterbium-dotierte Laser werden meist entweder bei sehr hohen Repetitionsraten [HDR2011] oder relativ niedrigen mit hoher Spitzenleistung [WZW2006] verwendet. Nachteil parametrischer Verstärker mit ultrakurzen Impulsen ist meist ihre relativ schlechte Konversionseffizienz vom Pumpimpuls zum verfügbaren Femtosekundenimpuls sowie besonders hohe Anforderungen an Impulsdauer und Synchronisation des Pumplasers.

Eine weitere Methode der spektralen Verbreiterung besteht darin, die vergleichsweise schmalbandigen Impulse des Verstärkers in einen mit (Edel)-gas gefüllten Hohlwellenleiter zu fokussieren, der eine Länge im Bereich zwischen 50 cm und 2 m hat. Die geführte Ausbreitung in einem kleinen Querschnitt (üblicherweise einige hundert μm) und die dadurch bedingte hohe Intensität, sorgen für die Erzeugung neuer Frequenzkomponenten durch Selbstphasenmodulation (SPM). Dabei werden an der Vorderflanke des Impulses neue niederfrequente Komponenten erzeugt, während sich an der Rückflanke die hochfrequenten Komponenten ausbilden. Nach Austritt des Impulses aus dem Wellenleiter wird der entstandene Impuls meist mit geschichteten Spiegeln, manchmal auch mit einem Prismenkompressor [NSS1996] oder einer Kombination von beidem komprimiert [NDS1997]. Gezeigt wurde aber auch schon die Nutzung adaptiver Methoden [SBK2003]. Letzteres Zitat beinhaltet auch die Nutzung zweier solcher Hohlwellenleiter zur weiteren Verbreiterung des Spektrums. Die bisher kürzesten Impulse, die durch diese Methode erzeugt werden konnten, hatten eine Dauer von 3,3 fs [GSH2008]. Die Schwierigkeit der Nutzung von Hohlwellenleitern besteht einerseits in der limitierten Impulsenergie, die ohne Zerstörung des Wellenleiters eingekoppelt werden kann. Hier wurde in jüngerer Zeit jedoch die Nutzung von Impulsen mit bis zu 5 mJ gezeigt [PLN2009]. Außerdem ist die Richtungsstabilität des Laserstrahls entscheidend um die Zerstörung des Wellenleiters zu vermeiden.

Die dritte übliche Methode besteht darin, den Impuls direkt in eine mit Edelgas gefüllte Zelle zu fokussieren. Die hohe Intensität führt zur Selbstfokussierung des

Impulses und dem Kollaps des Strahls. Ist die Intensität hoch genug um das Gas zu ionisieren, so wirkt die Verringerung des Brechungsindex, bedingt durch die freien Elektronen, dem Kollaps entgegen und es kommt zu der Ausbildung eines Gleichgewichts. Als Folge davon entsteht ein Filament, dessen Länge die Rayleighlänge um ein Vielfaches übersteigen kann.

Die Entdeckung dieser Selbstkanalisierung von intensiven Femtosekunden Impulsen in gasförmigen Medien Mitte der 90er Jahre [BKL1995] führte dann zur Erzeugung von Impulsen mit wenigen Zyklen ("few-cycle pulse", FCP) durch Hauri et al. [HKH2004]. Hier wurden die Impulse mittels Filamentierung spektral verbreitert und anschließend durch gechirpte Spiegel komprimiert. Es wurde von Stibenz et al. [SZS2006] gezeigt, dass durch Filamentierung aber auch eine Selbstkompression der Impulse möglich sein kann.

Der Vorteil der Filamentierung liegt im einfachen experimentellen Aufbau. Das Fehlen eines Hohlwellenleiters verringert die Anforderungen an die Richtungsstabilität. Gleichzeitig ist die Energieeffizienz der Methode recht hoch: 50% und mehr der eingesetzten Impulsenergie stehen als kurzer Impuls zur Verfügung. Charakteristisch ist die in den Spektren zu beobachtende Blauverschiebung der Mittenwellenlänge, die aus der Anwesenheit freier Elektronen herrührt. Oft wird eine „Schulter“ im kurzwelligen Teil des Spektrums erzeugt, die sich bis in den ultravioletten Bereich erstrecken kann [Zha2009]. Die kürzeste Impulsdauer, die bisher gezeigt werden konnte, liegt bei 4,9 fs [ZGS2007]. In letztgenannter Publikation fand auch eine eingehende Untersuchung der Impulsdauer in Abhängigkeit der Position innerhalb des Strahlquerschnittes statt. Das zeitliche Intensitätsprofil ist keineswegs konstant über den Strahlquerschnitt hin gesehen, sondern gestattet lediglich im zentralen Teil des Querschnittes die Erzeugung von Impulsen kürzester Dauer. Am Rande des Strahls wird häufig die Ausbildung von ausgeprägten vorweg- oder nachlaufenden Impulsen beobachtet (siehe die informative Abbildung 2 in [ZGS2007]).

Wie im späteren Kapitel 8.5 noch beschrieben wird, wurde letztere Methode zur spektralen Verbreiterung genutzt. Abbildung 8.5 zeigt den Vergleich von Spektren des zur Vierwellenmischung genutzten Laserimpulses jeweils vor und nach Filamentierung. Deutlich zu erkennen ist die Blauverschiebung des Spektrums und die Ausbildung der breiten Schulter bis in den sichtbaren Bereich hinein. Wird dieses Spektrum, unter der Annahme konstanter spektraler Phase, fouriertransformiert,

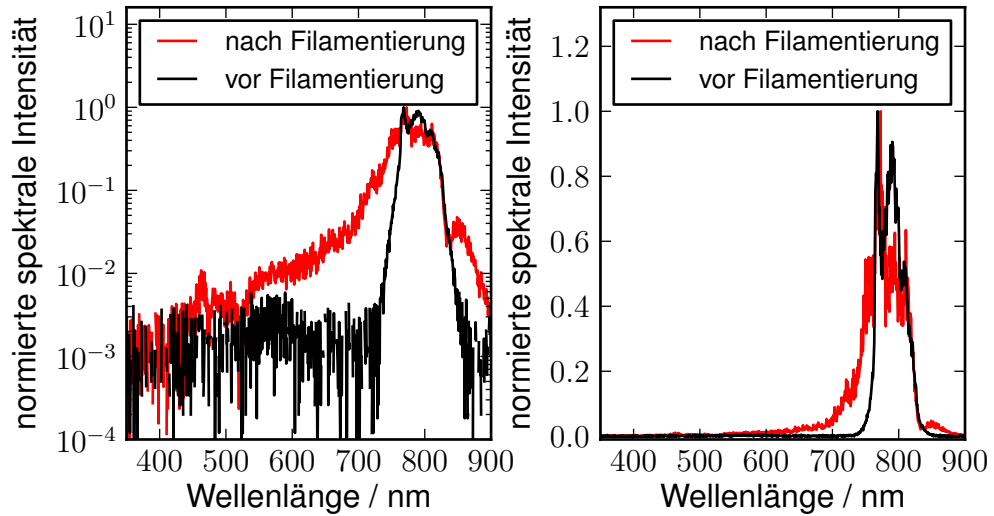


Abbildung 8.5.: Spektren der Fundamentalen vor und nach der Filamentierung in linearer und logarithmischer Skalierung. Die schwarze Kurve zeigt das gemessene Spektrum des Impulses unmittelbar nach dem Titan-Saphir Verstärker, die rote Kurve nach der Fokussierung in eine mit 1,1 bar Argon gefüllte Gaszelle mittels eines sphärischen Spiegels von 1 m Brennweite. Deutlich zu erkennen, speziell in der logarithmischen Darstellung, ist die Ausbildung der Schulter auf der kurzwelligen Seite. Das Signal in der schwarzen Kurve bei etwa 550 nm rührt von der Umgebungsbeleuchtung des Labors. Die Fouriertransformation dieses Spektrums bei konstanter Phase zeigt eine kürzestmögliche Impulsdauer von 8,9 fs

ergibt sich eine kürzest mögliche Impulsdauer von 8,9 fs.

8.4. Phasenanpassungsbandbreite

Da der Phasenanpassungswinkel ϕ zwischen Fundamentaler und dritter Harmonischer, wie aus Gleichung 6.1 ersichtlich, wellenlängenabhängig ist, muss bei Nutzung besonders breitbandiger Impulse auf die mögliche anpassbare Bandbreite geachtet werden. In Gleichung 6.4 ist die Phasenanpassung durch die sinc-Funktion am Ende gegeben. Man spricht von Phasenanpassung, wenn der Phasenfehler $|\Delta\vec{k}| \cdot L \leq 2\pi$ ist. Dabei ist Δk der Fehler der Wellenzahlen und L die Wechselwirkungslänge. Für den Fall der Vierwellenmischung gilt:

$$\Delta\vec{k} = \vec{k}_{3\omega} + \vec{k}_{3\omega} - \vec{k}_{\omega} - \vec{k}_{5\omega} \quad (8.7)$$

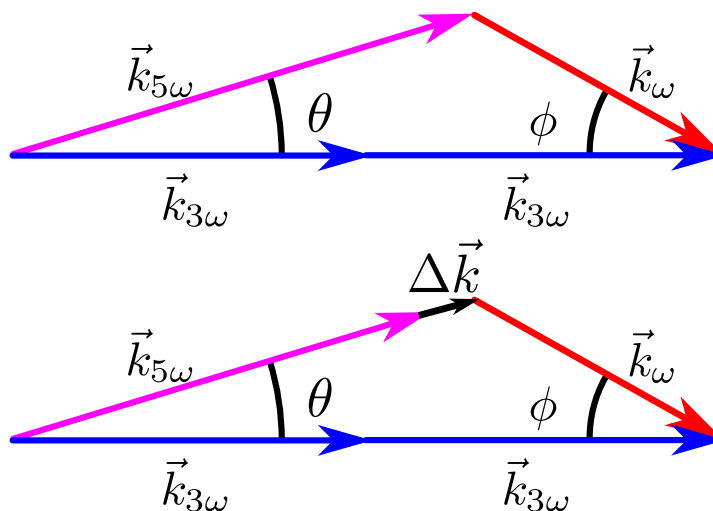


Abbildung 8.6.: Oben: Phasenanpassete nicht-kollineare Vierwellenmischung. Unten: Allgemeiner Fall der nicht-kollinearen Vierwellenmischung mit nicht-verschwindendem Wellenzahlfehler $\Delta\vec{k}$.

Somit ergeben sich für jeden Satz von \vec{k} -Vektoren ($\vec{k}_{3\omega}, \vec{k}_{\omega}, \vec{k}_{5\omega}$) unterschiedliche Winkel von θ und ϕ , die zur Phasenanpassung möglich sind.

Im Experiment stellt der Winkel ϕ eine Konstante dar, da die beiden Strahlen idealerweise keine Winkeldispersion aufweisen. Daraus folgt, dass nur für eine einzige VUV-Wellenlänge der Phasenanpassungswinkel getroffen werden kann und für die anderen im Allgemeinen $\Delta k \neq 0$ ist, siehe hierzu Abbildung 8.6.

Der Wellenzahlfehler lässt sich nun durch Vergleich der Länge der \vec{k} -Vektoren für VUV $\vec{k}_{5\omega}$ und der Summe der erzeugenden Vektoren \vec{k}_{ω} und $\vec{k}_{3\omega}$ errechnen.

$$|\Delta\vec{k}| = \left| |\vec{k}_{3\omega} + \vec{k}_{3\omega} - \vec{k}_{\omega}| - |\vec{k}_{5\omega}| \right| \quad (8.8)$$

Im Falle der in dieser Arbeit durchgeführten Experimente, ist die Bandbreite der dritten Harmonischen gering und somit kann $\vec{k}_{3\omega}$ als eine Konstante angenommen werden. Wie in Kapitel 8.3 erwähnt, haben wir es jedoch mit einer durch SPM verbreiterten Fundamentalen zu tun. Der Wellenzahlfehler kann nun leicht berechnet werden. Abbildung 8.7 zeigt den Wellenzahlfehler, berechnet für verschiedene Gasdrücke zwischen 50 mbar und 1000 mbar in Argon unter der Annahme, dass der Phasenanpassungswinkel ϕ stets für eine Wellenlänge von 800 nm gewählt wurde. Es ist zu erkennen, dass bei steigendem Gasdruck der Wellenzahlfehler stärker an-

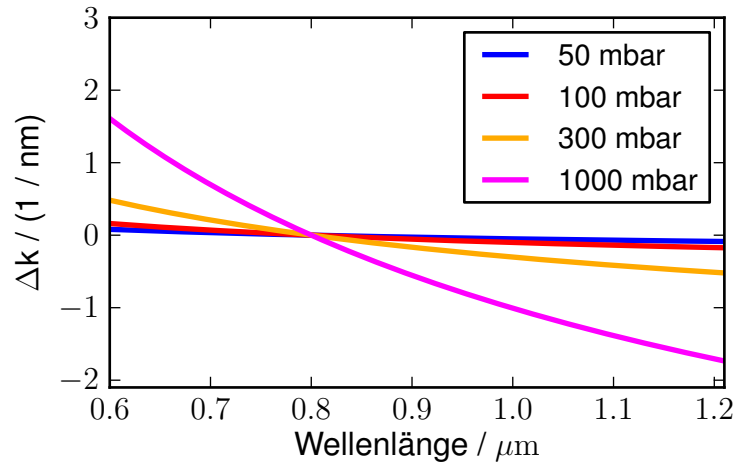


Abbildung 8.7.: Wellenzahlfehler Δk für die nicht-kollineare Vierwellenmischung schmalbandiger dritter Harmonischer mit einer breitbandigen Fundamentalen bei verschiedenen Phasen Anpassungsdrücken.

wächst je mehr man sich von der Mittenwellenlänge von 800 nm entfernt.

Wie weiter oben schon besprochen wurde, ist das Produkt aus Wellenzahlfehler und Wechselwirkungslänge für die Phasen Anpassung wichtig. Die Wechselwirkungslänge errechnet sich zu $L \approx 2w_0/\sin(\phi)$ (vgl. Kapitel 6.4) und nimmt mit steigendem Winkel ϕ und somit steigendem Gasdruck stetig ab. Dabei ist die Größe $2w_0$ die Breite der Fokusregion.

Für die im Experiment verwendeten Fokussierbedingungen ist $2w_0 \approx 130\mu\text{m}$. Nun kann der Phasenfehler ΔkL leicht berechnet werden. In Abbildung 8.8 ist er für verschiedene Argondrücke (und somit nach Gleichung 6.1 der Wechselwirkungswinkel ϕ) aufgetragen. Die gelbe Fläche stellt dabei den Bereich $\Delta kL \leq 2\pi$ dar. Wie zu erkennen ist, verringert sich bei einem hohen Gasdruck die verfügbare Bandbreite beträchtlich: bei einem Argondruck von 1 bar ist nur noch eine Bandbreite der Fundamentalen von ca. 80 nm gegeben. Es ist zu beachten, dass die nutzbare Halbwertsbreite (FWHM) viel geringer sein muss. Man geht etwa von der Hälfte bzw. nur einem Drittel des Wertes für die FWHM eines gaußförmigen Impulses aus. Soll eine Vierwellenmischung mit einem 10 fs Impuls der Fundamentalen (etwa. 100 nm Halbwertsbreite) so ist ein Gasdruck von 300 bis 350 mbar eine obere Schranke für den verwendbaren Gasdruck. Wie anhand der Abbildung 6.9 zur Effizienz der Vierwellenmischung in Abhängigkeit des Gasdrucks gezeigt wurde, ist auch hier schon von einem Optimum des Drucks auszugehen. Eine weitere Erhöhung des

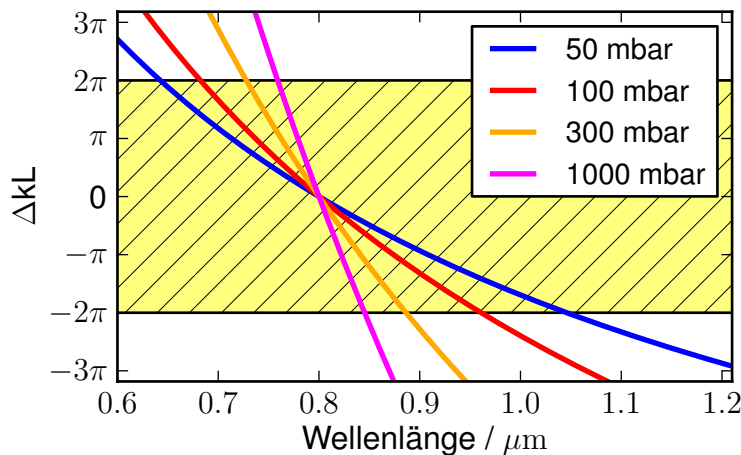


Abbildung 8.8.: Phasenfehler ΔkL bei nicht-kollinearer Wechselwirkung in Argon, phasenangepasst für 800 nm und 266,6 nm. Die Fundamentale ist breitbandig und der Phasenfehler ist in deren Abhängigkeit aufgetragen. Der schwarz schraffierte Bereich ist $\leq 2\pi$ und somit noch phasenangepasst.

Drucks führt zu keiner gesteigerten Effizienz, da die Wechselwirkungslänge L wiederum geringer wird. Sind noch größere Bandbreiten gefordert, so muss der Druck weiter reduziert und gegebenenfalls auf Effizienz verzichtet werden.

8.5. Beschreibung des experimentellen Aufbaus

Zur experimentellen Überprüfung der oben genannten Berechnungen wurde der aus Kapitel 5 und 6 bekannte Aufbau modifiziert und um eine weitere Gaszelle zur Generierung eines Weißlichtfilamentes erweitert. Diese ist mit Argon bei einem Druck von 1,1 bar befüllt. Durch den Strahlteiler ST1 wird der Strahl des Ti:Saphir Lasers in zwei gleiche Teile aufgespalten. Mit der einen Hälfte werden wieder Impulse der dritten Harmonischen (siehe Kapitel 2.4.2) erzeugt, die etwa 200 μJ Impulsenergie tragen und eine Länge von ca. 90-100 fs aufweisen. Die zweite Hälfte wird mit einem $R=2\text{m}$ gekrümmten Spiegel in die Gaszelle fokussiert und erzeugt dort ein etwa 20 cm langes Filament. Analog der Arbeit von Zhavoronkov [Zha2009] wird mit einer Blende die spektrale Verbreiterung und die Qualität des Strahlprofils nach dem Filament gesteuert. Bei zu niedriger fokussierter Impulsenergie ist die spektrale Verbreiterung zu gering, bei zu hoher kommt es zur Entstehung mehrerer Filamente in der Gaszelle, was das Strahlprofil deutlich verschlechtert. Optimale

Bedingungen bezüglich Strahlqualität und spektraler Verbreiterung wurden bei einer Blendenöffnung gefunden, die etwa 60% der Impulsenergie noch transmittiert. Durch die Filamentierung ist es möglich, die spektrale Halbwertsbreite auf über 100 nm zu erhöhen (siehe Abbildung 8.5), was einer fourierlimitierten Impulsdauer von 8,9 fs entspräche. Die dielektrischen gechirpten Spiegel (CS1), die pro Reflexion eine GVD von -50 fs^2 erzeugen, ermöglichen es die Impulse mit sechs Reflexionen auf etwa 13 fs zu komprimieren. Die Anzahl der Reflexionen wurde jedoch auf insgesamt acht erhöht, um die Dispersion im Abfragestrahl der Impulscharakterisierung zu kompensieren. Dieser läuft nach der Reflexion von Strahlteiler ST2 (4% Reflexion) durch eine Verzögerungsstrecke um dann durch ein separates Fenster in die Vakuumkammer eingeleitet zu werden. Dort wird er per Transmission durch einen 2 mm dünnen dielektrischen Spiegel, der hochreflektierend für den VUV Impuls ist, wieder mit diesem kollinear vereint und in das Flugzeitmassenspektrometer (TOF) fokussiert. Der transmittierte Anteil von ST2 ist nahezu fourierlimitiert, da die Materialdispersion des Strahlteilers etwa der Dispersion des VUV Spiegels entspricht. Jedoch ist es, wie in Kapitel 8.1 beschrieben, notwendig, dass die

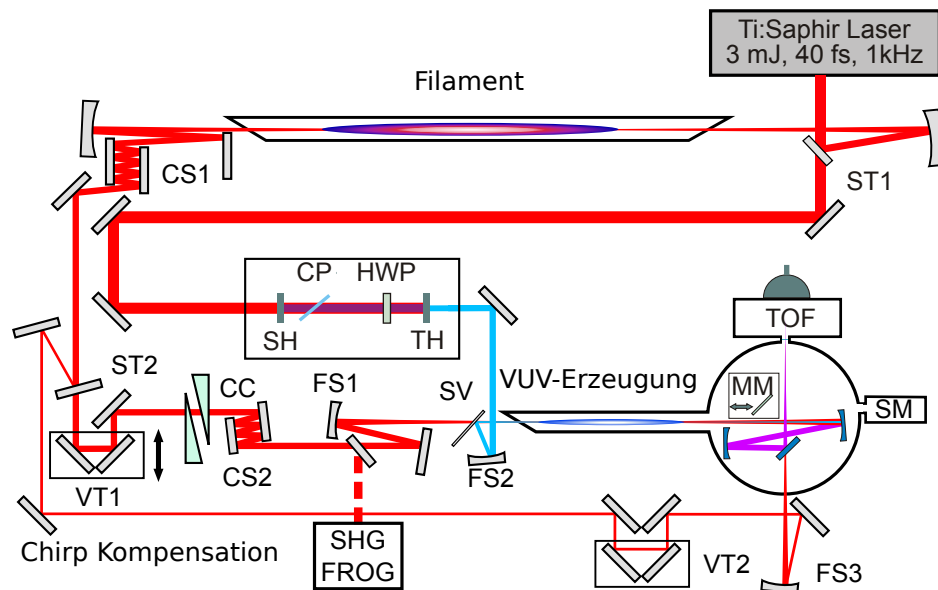


Abbildung 8.9.: Schema des experimentellen Aufbaus zur Erzeugung von sub-20-fs VUV Impulsen. Die Erklärungen zu den Bauteilen sind der Bildunterschrift von Abbildung 5.2 zu entnehmen. Die veränderten Bauteile sind: ST2: Strahlteiler mit $R = 3\%$, CS1: ein Paar gechirpte Spiegel, CS2: ein Paar gechirpte Spiegel zur Kompensation der Glaskeile, FS1: $f=0,75 \text{ m}$ Fokussierspiegel, FS2: $f=0,5 \text{ m}$ dielektrischer Fokussierspiegel, FS3: $f=1 \text{ m}$ Fokussierspiegel.

Impulse positiv gechirpt sind um Materialdispersion im VUV Strahlengang auszugleichen. Aus diesem Grund sind zwei Glaskeile (CC - chirp compensation) in den Strahlengang der Fundamentalen eingebracht, die zur Feineinstellung der Dispersion dienen. Die beiden Glaskeile (minimale Dicke an der Spitze: 3 mm) sorgen jedoch selbst bei minimalem Einschub für eine Dispersion, welche durch die optischen Komponenten im VUV Strahlengang nicht kompensiert werden kann und somit zur Erzeugung von zu viel negativem Chirp des VUV Impulses führen. Dies kann prinzipiell durch ein dickeres MgF_2 -Fenster zwischen der Erzeugungskammer und dem TOF kompensiert werden. Jedoch standen Fenster größerer Dicke zum Zeitpunkt des Experiments nicht zur Verfügung. Aus diesem Grunde wurden zwei weitere gechirpte Spiegel (CS2) in den Strahlengang der Fundamentalen eingebracht, die pro Reflexion etwa -40 fs^2 GVD erzeugen. Je nach experimenteller Situation wurden zwei bis sechs Reflexionen auf diesen Spiegeln verwendet.

8.6. Kompression und Charakterisierung der VUV- und Abfrage-Impulse

In diesem Kapitel soll der Vergleich zwischen den Überlegungen aus Kapitel 8.1 und den experimentellen Ergebnissen hergestellt werden. Dazu wurden sämtliche Parameter konstant gelassen, lediglich der Einschub der Glaskeile (CC) aus Quarzglas mit einem Steigungswinkel von 15° wurde geändert und dabei die Impulsdauer von VUV (durch Kreuzkorrelation) und Fundamentalenergie (durch SHG-FROG) gemessen. Da im Strahlengang nach Erzeugung des VUV Impulses weitere Dispersion in Form von Gas (ca. 0,8 m Argon bei etwa 350 mbar) und einem Fenster (0,2 mm MgF_2 -Fenster zur Separation von Erzeugung und Charakterisierung) befindet, ist davon auszugehen, dass optimale Kompression des Fundamentalenergie nicht zum kürzest möglichen VUV Impuls führt, sondern nach Kapitel 8.1 ein positiver Chirp der Fundamentalenergie die Dispersion von Gas und Fenster ausgleicht.

Die zeitliche und spektrale Charakterisierung erfolgte wieder analog zu den vorherigen Experimenten (siehe Kapitel 2.3.1): Als Referenzimpuls diente ein Teil des spektral verbreiterten Fundamentalimpulses nach dem Filament. Wie im Kapitel 8.5 schon erwähnt, wurde die Dispersion nach dem Filament durch die gechirpten Spiegel überkompensiert. Dies hatte den Zweck, den Probeimpuls am Punkt der Messung so kurz wie möglich zu halten. Der Probeimpuls wurde, wie in Abb

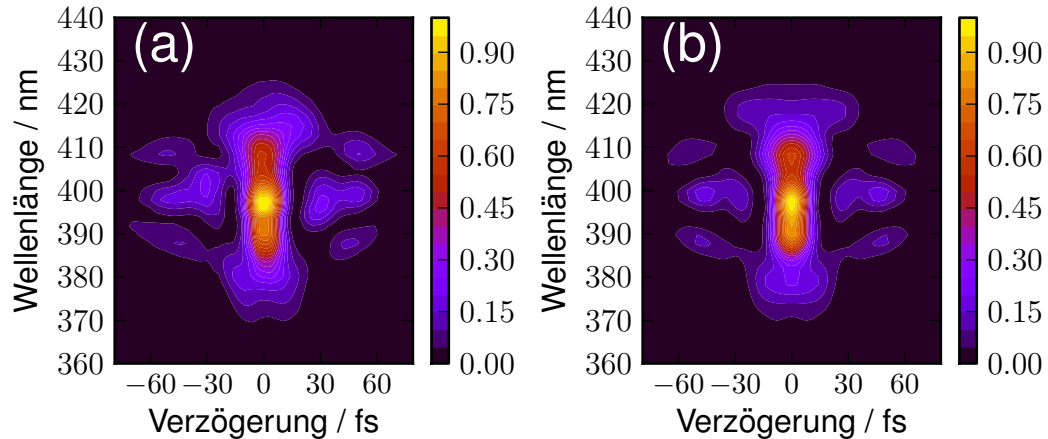


Abbildung 8.10.: Gemessenes (a) und rekonstruiertes (b) SHG-FROG Spektrogramm des Abfrage Impulses der Kreuzkorrelation. Der FROG-Fehler der Rekonstruktion beträgt $\epsilon_{\text{FROG}} = 0,011$ für ein Feld der Größe 128x128.

8.9 gezeigt, mit dem VUV Impuls kollinear überlagert indem der Probeimpuls durch einen 2 mm dünnen dielektrischen VUV Spiegel (V3) gesendet wurde, dessen Dispersion der Überkompensation durch die geschirpten Spiegel nach dem Filament entspricht. Dieser Abfrageimpuls wurde mithilfe der frequenz aufgelösten Autokorrelation zweiter Ordnung (SHG-FROG) gemessen. Abbildung 8.10 zeigt das gemessene FROG Spektrogramm dieses Impulses sowie das durch den FROG-Algorithmus rekonstruierte Spektrogramm. Zwischen beiden ist eine gute Übereinstimmung zu erkennen, was sich auch durch den „FROG-Fehler“ $\epsilon_{\text{FROG}} = 0,011$ [TrK1993] widerspiegelt.

Die errechnete zeitliche und spektrale Information ist in Abbildung 8.11 dargestellt. Wie der Verlauf der spektralen Phase in Abbildung 8.11 (a) andeutet, so ist der Impuls nahe der Fouriergrenze (11,3 fs) mit einer Halbwertsbreite von 13 fs (siehe Abbildung 8.11 (b)). Die Verringerung der Fouriergrenze resultiert aus der Kompression durch das Spiegelpaar CS1, deren Reflexionsbandbreite geringer ist als die spektrale Bandbreite nach der Filamentierung. Die irreguläre Struktur des Spektrums hat ihre Ursache in den komplexen Prozessen der Filamentierung und ist auch andeutungsweise in der roten Kurve in Abbildung 8.5 zu sehen. Trotz der guten Kompression des Impulses ist in Abbildung 8.11 (b) ein Untergrund im zeitlichen Intervall von 60 fs vor und nach dem Impuls zu erkennen, welches ca. 5 bis 10% das Maximums aufweist.

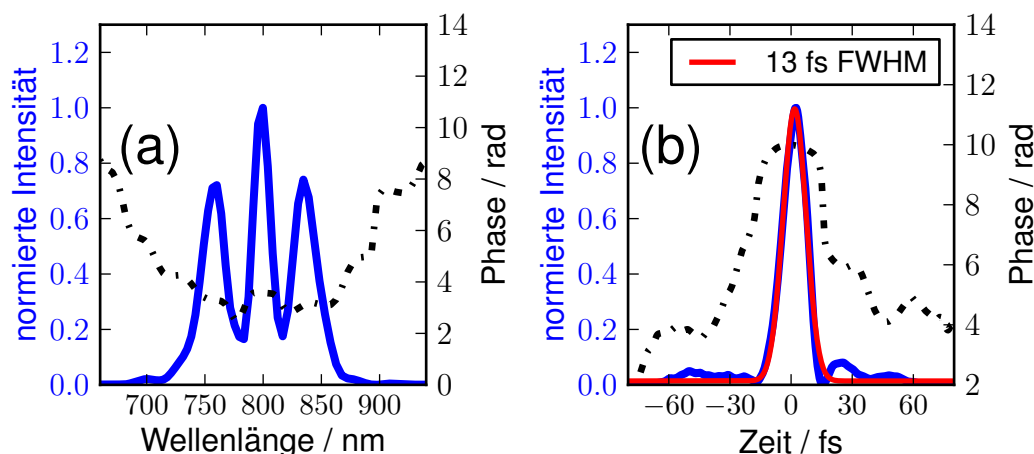


Abbildung 8.11.: Spektrale (a) und zeitliche (b) Charakterisierung des Abfrage-Impulses anhand der FROG-Messung. In Blau dargestellt ist jeweils die Intensitätsverteilung, die schwarze Strich-Punkt Linie stellt den Verlauf der (spektralen und temporalen) Phase dar. Das zeitliche Intensitätsprofil hat eine, durch eine Gauß-Funktion angepasste, Halbwertsbreite von 13 fs.

Die Kreuzkorrelation zur Messung des VUV Impulses wurde für verschiedene Stellungen der Glaskeile durchgeführt, während die anderen Parameter konstant gehalten wurden. Es zeigt sich, dass bei einer zusätzlichen Materialstärke von +1,6 mm der Glaskeile die minimale Impulsdauer erreicht werden kann. Abbildung 8.12 zeigt als blaue Kurve das normierte, gemessene Ionensignal, welches eine komplexe Struktur ausweist. Abgesehen von dem Hauptimpuls ist ein kleineres Nebenmaximum zu sehen, welcher etwa 80 fs vor dem Hauptimpuls kommt. Dessen Ionensignal beträgt ca. 20% des Maximums des Hauptsignals. Da das Signal linear von der VUV-Intensität abhängt, ist davon auszugehen, dass dieser Vorimpuls etwa eine ähnliche Energie tragen sollte. Umgeben sind beide Signale von einem lang andauernden Untergrund, der bis zu 15% zur Ionenausbeute beiträgt.

Zur Abschätzung der Dauer des VUV-Impulses reicht ein simpler Gaußfit nicht mehr aus. Dieser würde zu einer Halbwertsbreite von 17,6 fs des Ionensignals führen (nicht dargestellt), was einer Impulsdauer von $\tau_{vuv} = \sqrt{\tau_{Fit}^2 - 13,4^2/3} = 15,8$ fs entspräche. Statt dieser Betrachtung ist jedoch ein Fit mit mindestens der Summe von 3 Gaußfunktionen sinnvoll, beschreibt doch dies sowohl die Haupt- und Nebenkomponente als auch den Untergrund. Ein solcher Fit ist ebenfalls in Abbildung 8.12 dargestellt und zeigt für die Hauptkomponente eine Halbwertsbreite von 15 fs,

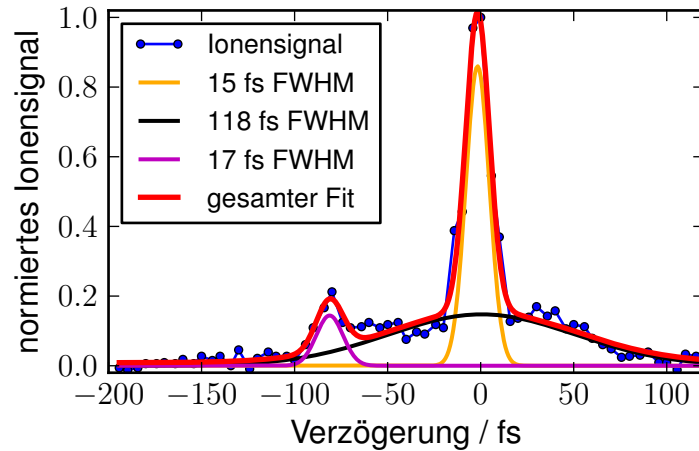


Abbildung 8.12.: VUV-Kreuzkorrelation mit dem 13 fs Probeimpuls bei optimalem Einschub der Glaskeile. Dargestellt ist das normierte Ionensignal (blaue Punkt-Strich-Linie) über der Verzögerung beider Impulse zueinander. Zur Anpassung wurde die Summe von drei Gaußfunktionen genutzt, deren einzelne Beiträge in orange (Hauptkomponente), violett (Nebenimpuls) und schwarz (Untergrund) gezeichnet wurden. Die rote Kurve zeigt die Summe der einzelnen Fit-Kurven. In der Legende sind die Halbwertsbreiten der Einzelkomponenten aufgelistet.

was im VUV einer Impulsdauer von 13 fs entspricht. Die Dauer des Hauptimpulses entspricht also der Dauer des Abfrage-Impulses aus Abbildung 8.11! Die Breite der Nebenkompente ist mit 17 fs bzw. 15 fs für die Dauer des VUV Impulses nur geringfügig länger. Der Untergrund hat eine Dauer von etwa 118 fs und ist somit um ein Vielfaches länger als der Hauptimpuls.

Um Aussagen über die Qualität der Kompression machen zu können, wurde eine Analyse des VUV Spektrums durchgeführt. Das zur gezeigten kürzesten Kreuzkorrelation zugehörige Spektrum ist in Abbildung 8.13 (a) zu sehen: Das Spektrum hat eine komplizierte Struktur, was in gewisser Weise die Komplexität des Spektrums der Fundamentalen (Abbildung 8.5) widerspiegelt. Die Fouriertransformierte ist in Abbildung 8.13 (b) abgebildet sowie der Fit für den Fall eines gaußförmigen Impulses, welcher eine Halbwertsbreite von 11 fs hat. Dies entspricht der spektralen Breite der Fundamentalen und ist die kürzeste Impulsdauer, die erreicht werden kann. Betrachtet man lediglich die kürzeste Komponente der Kreuzkorrelation, so liegt die Dauer des Impulses nur ca. 14% über der Fouriergrenze, die vom Spektrum vorgegeben ist. Dies ist bei einer solch kurzen Impulsdauer ein sehr guter Wert.

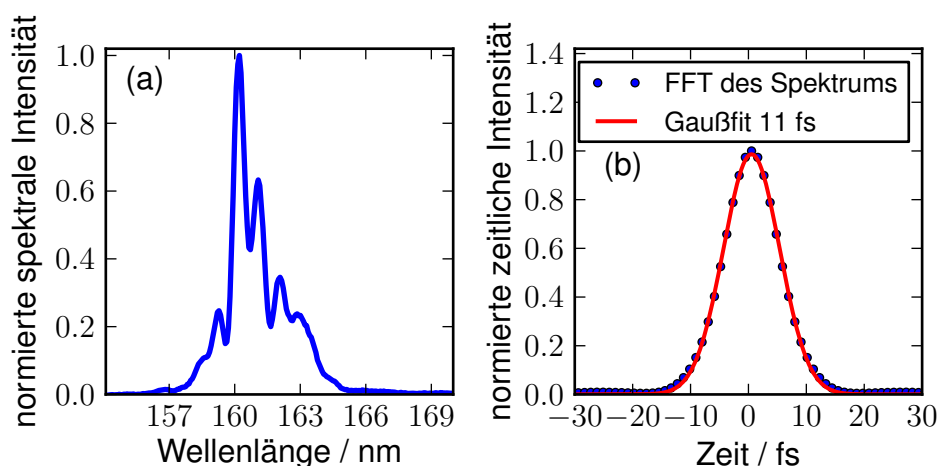


Abbildung 8.13.: Spektrum (a) und Fouriertransformierte mit Gaußfit (b) des zur kürzesten Kreuzkorrelation gehörigen Impulses.

Der lang andauernde Untergrund kann für Experimente mit hoher Zeitauflösung problematisch sein. Sein Ursprung ist nicht sofort offensichtlich: Der bei der Charakterisierung des Abfrage-Impulses ersichtliche Untergrund (siehe Abbildung 8.11 (b)) hat etwa die gleiche zeitliche Ausdehnung von ~ 120 fs, jedoch mit einer um den Faktor 2 geringeren Intensität. Auch ist in diesem Untergrund ein Nebenpeak erkennbar, wenngleich dieser lediglich 30 fs vom Maximum entfernt ist.

Wie in [ZGS2007] eingehend untersucht wurde, hängt die zeitliche Intensitätsverteilung von durch Filamentierung erzeugten Impulsen stark von der lateralen Position im Strahlprofil ab: Während das Spektrum in der Mitte des Strahls am breitesten ist und sich einfach ein einzelner Impuls von kürzester Dauer erzeugen lässt, sind bei größerer Entfernung vom Mittelpunkt Strukturen von Doppelimpulsen oder lang-andauerndem Untergrund zu erkennen. Wird also nur der zentrale Teil des Strahlprofils genutzt, wie dies beispielsweise bei der Messung der Fundamentalen mit dem SHG-FROG geschah, so zeigt sich eine „saubere“ zeitliche Intensität. Bei der Vierwellenmischung wurde ein größerer Teil des Strahlquerschnittes genutzt, was den Untergrund in der Kreuzkorrelation erklären kann: Der äußere Bereich des Strahlprofils führt vermutlich zum beobachteten Untergrund, während der zentrale Teil keinen Untergrund aufweisen sollte.¹

¹Der mögliche Einfluss des Strahlprofils auf die gemessene Impulsdauer wurde leider erst nach Abschluss des Experimentes in Betracht gezogen. Leider stand zu diesem Zeitpunkt der experimentelle Aufbau nicht mehr zur Verfügung. Deswegen konnte die Überprüfung der These durch das simple Einbringen einer Blende in den FF Strahl vor der Vierwellenmischung und

Ist im Experiment also ein Intensitätsprofil mit geringem Untergrund notwendig sein, so sollte mittels einer Blende der äußere Bereich der Fundamentalen (oder des VUV Impulses) blockiert werden. Allerdings wirkt sich dies negativ auf die verwendbare Impulsenergie des VUV auf. Je nach Anforderungen muss also ein Kompromiss zwischen Impulsenergie und Impulsdauer gefunden werden.

In Abbildung 8.14 ist die Abhängigkeit der erzeugten Impulsenergie vom Einschub der Glaskeile dargestellt. Man kann erkennen, dass mit zunehmender Vergrößerung der Impulsdauer der Fundamentalen die Konversionseffizienz abnimmt. Erklärt werden kann dies durch die verringerte zeitliche Überlappung zwischen FF und TH („temporal windowing“). Die Änderung der Impulsenergie ist aber nur gering: Zwischen dem Maximum bei minimaler Dispersion (700 nJ) und der Messung der kürzesten Impulsdauer im TOF (~ 650 nJ) ist nur ein geringer Unterschied.

Wie verhält sich die Impulsdauer in Bezug auf die in Kapitel 8.1 dargestellte Theorie? Dazu wurde die gegebene experimentelle Situation bezüglich der Dispersion numerisch bis zur dritten Ordnung der spektralen Phase nachgestellt. Ausgehend von den FF und TH Spektren und der durch Dispersion eingebrachten Verbrei-

vergleichende Messungen der Kreuzkorrelation nicht mehr durchgeführt werden. Erwartet wird, dass mit Verringerung des Blendendurchmessers der Anteil des Untergrunds weniger werden sollte bzw. verschwindet. Die gleiche Vermutung gilt auch für das Nebenmaximum ca. 80 fs vor dem Hauptmaximum.

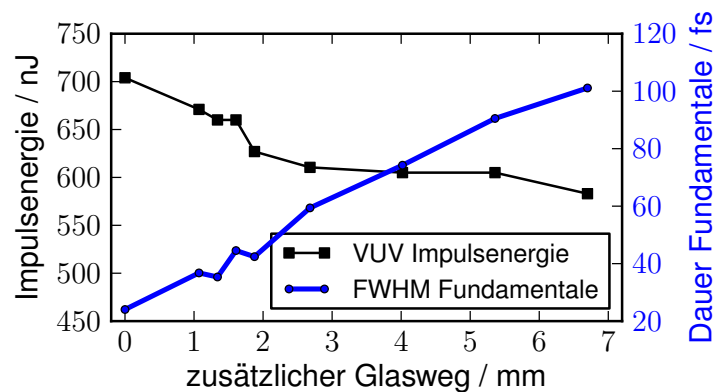


Abbildung 8.14.: Abhängigkeit der VUV Impulsenergie vom Materialeinschub (schwarze Kurve). Es zeigt sich, dass bei minimaler Impulsdauer der Fundamentalen am Ort der Vierwellenmischung die höchste Konversionseffizienz erreicht wird. Mit zunehmender Impulsdauer der Fundamentalen nimmt die Impulsenergie des VUV Impulses ab. Die blaue Kurve zeigt die Impulsdauer der Fundamentalen bei dem jeweiligen Glasweg.

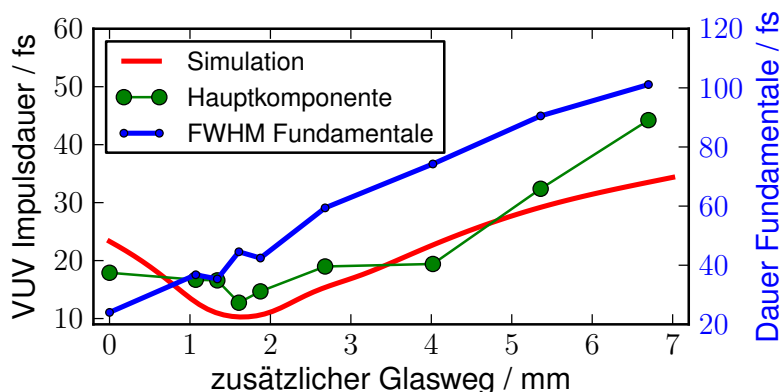


Abbildung 8.15.: Auswirkung der Dispersion im Strahl der Fundamentale auf die Impulsdauer des VUV. Die Glaskeile bestehen aus Quarzglas und haben einen Keilwinkel von 15° . Grün dargestellt ist die Hauptkomponente eines dreifachen Gaußfits durch die Kreuzkorrelationen. Die Impulsdauer der Fundamentale (blau) ist direkt vor Eintritt in die Experimentierkammer gemessen. Auch bei minimalem Glaseinschub ist sie nicht bandbreitenbegrenzt sondern hat eine geringe, von Strahlteiler ST2 hervorgerufene positive Dispersion.

terung wird mit Formel 8.5 Spektrum und Phase der VUV Impulse berechnet. Anschließend wird die Dispersion des MgF_2 Fensters mit Gleichung 8.6 einbezogen. Die errechnete Impulsdauer ist in Abbildung 8.15 als rote Linie dargestellt. Ebenfalls ist die aus dem Fit der Kreuzkorrelation abgeleitete Dauer der kurzen Komponente der Summe dreier Gauß'scher Fits als grüne Kreise dargestellt. Abbildung 8.16 zeigt die einzelnen Kreuzkorrelationen in einer Grafik zum Vergleich. Sie alle zeigen den ausgeprägten Untergrund bzw. mehrfache Impulse, die ihre Ursache im Strahlprofil der Fundamentale haben. Der dreifache Fit zeigt stets eine kürzere Dauer, welche wegen der oben genannten Abhängigkeit des Intensitätsprofils vom Strahlquerschnitt aber als physikalisch sinnvoll angenommen werden kann. Die gemessene Kurve (grün) zeigt in Abbildung 8.15 eine gute Übereinstimmung mit der Simulation (rot). Ebenfalls dargestellt ist die Impulsdauer der Fundamentale (blaue Kurve), die bei minimalem Einschub der Keile beinahe bandbreitenbegrenzt ist, jedoch noch geringfügigen positiven Chirp trägt. Ein etwaiger Chirp der dritten Harmonischen hat, wie in Kapitel 8.2 gezeigt, sicherlich einen verschwindend kleinen Einfluss auf die Impulsdauer.

In Abb. 8.17 sind die VUV Spektren für sämtliche Glaseinschübe der Keile dargestellt. Da es dem bloßen Auge nicht möglich ist, aus solch komplexen Spektren die kürzest mögliche Impulsdauer abzuschätzen, sind in Abbildung 8.18 die entspre-

chenden Fouriertransformierten (blau) inklusive eines Gaußfits (rot) dargestellt. Es ist nicht überraschend, dass bei minimalem Materialeinschub die Bandbreitenbegrenzung am kleinsten ist. Dies wurde schon in Kapitel 8.2 dargelegt und ist nun auch im Experiment zu sehen. Der Anteil der Frequenzkomponenten, die am Vierwellenmischprozess teilnehmen, ist am größten, wenn die Impulsdauer der Fundamentalen am kürzesten ist. Sobald der breitbandige Impuls gestreckt wird, reduziert sich die Bandbreite des VUV Signals. Um jedoch die Dispersion des MgF_2 -Fensters durch Erzeugung negativer GDD auszugleichen, ist ein geringfügiger Verzicht auf Bandbreite notwendig. Die Werte für die jeweiligen Halbwertsbreiten der Fouriertransformierten und die erreichte Impulsdauer ist in Tabelle 8.1 für alle verwendeten Materialstärken zu finden.

Abschließend kann gesagt werden, dass die Dauer der VUV Impulse nur von der Komprimierbarkeit der Fundamentalen abhängt. Es wird beinahe die gleiche kürzeste Impulsdauer wie für die Fundamentale erreicht (~ 13 fs). Wie in Kapitel 8.2

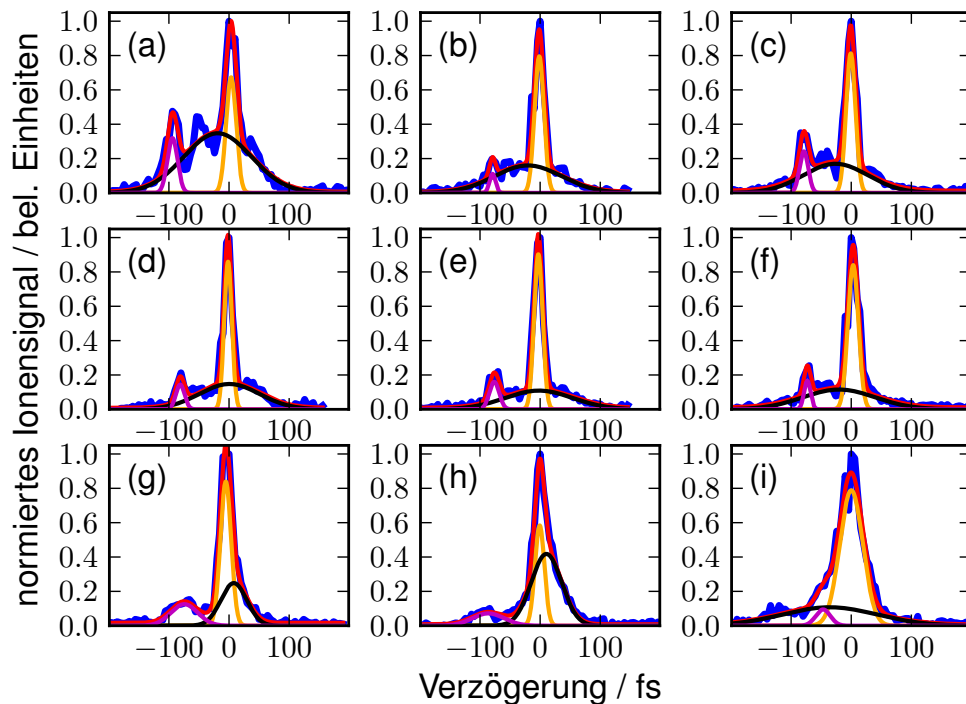


Abbildung 8.16.: Kreuzkorrelationen für verschiedene Einschübe der Glaskeile. Für die Zuordnung der Korrelationen zu den jeweiligen Materialstärken sei auf Tabelle 8.1 verwiesen.

Index	Glas-Einschub / mm	Fourier-Grenze / fs	VUV Impulsdauer / fs
(a)	0	8,6	17,9
(b)	1,07	10,3	16,7
(c)	1,34	11,7	16,6
(d)	1,61	11,4	12,7
(e)	1,88	11,3	14,7
(f)	2,68	13,2	19,0
(g)	4,02	15,4	19,4
(h)	5,36	18,4	32,4
(i)	6,7	20,6	44,2

Tabelle 8.1.: Fourier-Grenze und gemessene Impulsdauer der VUV Impulse in Abhängigkeit der durch die Glaskeile eingebrachten Materialstärke. Die Indizes der ersten Spalte entsprechen denen in den Abbildungen 8.16, 8.17 und 8.18.

gezeigt, erzeugt die Phasenmodulation der breitbandigen Fundamentalen eine Verringerung der VUV Bandbreite. Dies macht also auch weiterhin die Nutzung nur dünner Fenster im VUV Strahlengang nötig, da ansonsten die Bandbreite zu stark reduziert wird. Der Effekt der Bandbreitenreduktion ist dann nur gering und es

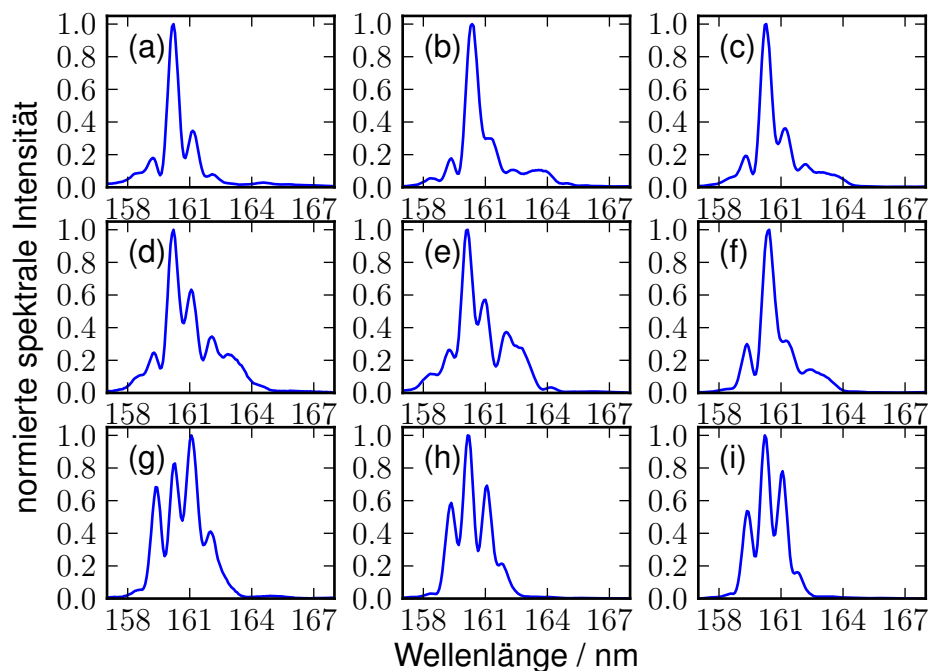


Abbildung 8.17.: VUV Spektren für die verschiedenen Beträge des Glaseinschubs. Mit fortschreitendem Index wird der Einschub immer größer, siehe hierzu Tabelle 8.1.

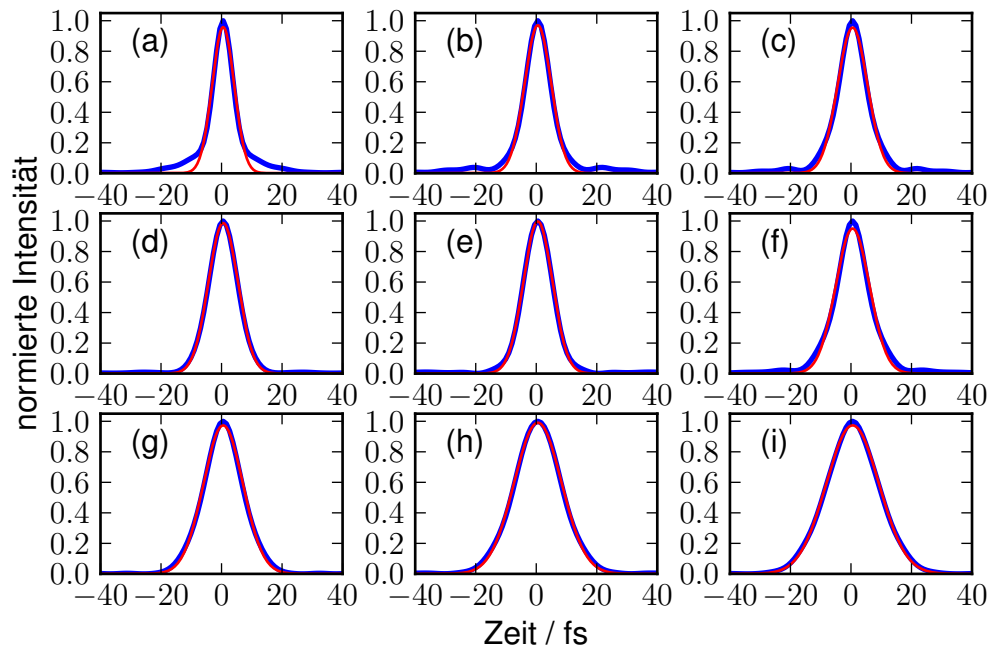


Abbildung 8.18.: Fouriertransformierte der VUV Spektren bei jeweils verändertem Glaseinschub. Blau dargestellt ist das Intensitätsprofil bei konstanter spektraler Phase, die rote Kurve zeigt einen Gaußfit. Die Beschriftung erfolgt analog Abbildung 8.17 und die Beschreibung zu den Abbildungen ist Tabelle 8.1 zu entnehmen.

können fourier-limitierte Impulse für zeitaufgelöste Experimente genutzt werden. Chirpen der Fundamentalen reduziert auch die VUV Impulsenergie. Die Reduktion der Energie macht aber weniger als ein Zehntel der maximalen Impulsenergie aus.

8.7. Abstimmbarkeit der Wellenlänge

Zur Illustration der Abstimmbarkeit der VUV-Wellenlänge wurde die Anzahl der Reflexionen auf den gechirpten Spiegeln CS1 auf 4 reduziert und sämtliche weitere Optik (Glaskeile, Strahlteiler) entfernt. Der Fundamentalimpuls ist nun positiv gechirpt und hat eine Impulsdauer von etwa 45 fs. Ändert man den zeitlichen Überlapp zwischen dritter Harmonischer und dem breitbandigen Fundamentalimpuls, so lässt sich die Mittenwellenlänge des VUV Impulses verschieben.

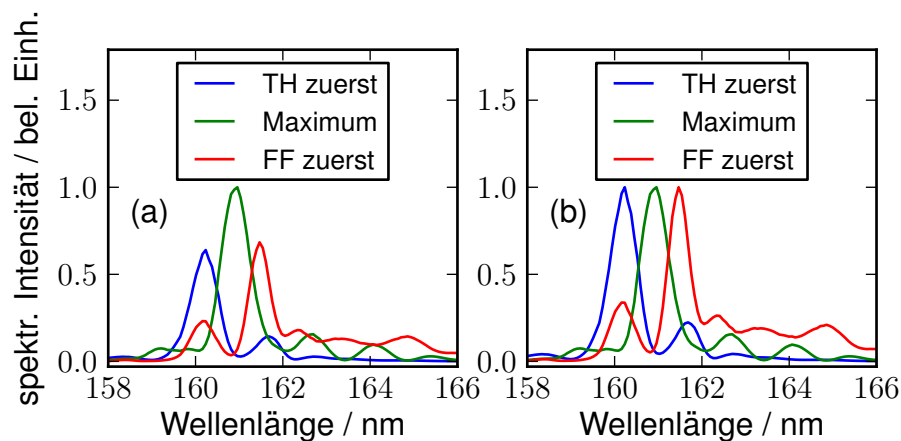


Abbildung 8.19.: VUV Spektren zu jeweils verschiedenen Überlappzeitpunkten. Abbildung (a) zeigt den direkten Vergleich der Spektren relativ zum Signal mit der meisten Leistung (grün), Abbildung (b) ist auf das Maximum normiert um den Abstimmbereich zu verdeutlichen.

In Abbildung 8.19 sind Beispielspektren gezeigt, die dies verdeutlichen: Die grüne Kurve zeigt das Spektrum bei maximaler VUV Impulsenergie (in dieser experimentellen Situation 320 nJ). Dann wurden die Impulse ca. 60 fs gegeneinander verschoben, wobei die rote Kurve das VUV Spektrum zeigt, bei dem die langwellige Vorderflanke der Fundamentalen mit dem Maximum der dritten Harmonischen wechselwirkt. Der „rote“ Anteil der Fundamentalen wird konvertiert und das Maximum des VUV Spektrums verschiebt sich hin zu kürzeren Wellenlängen. Den

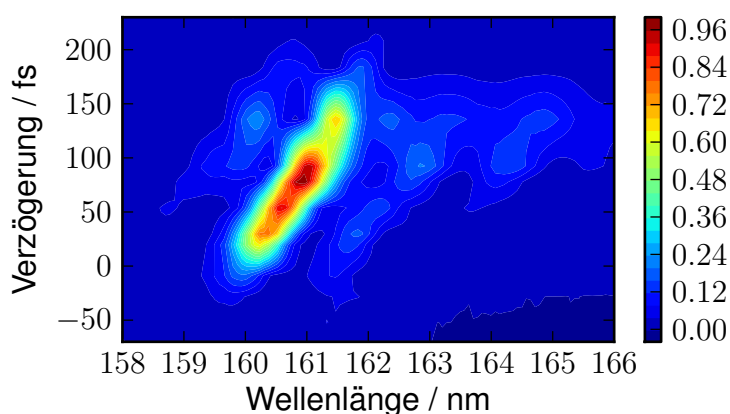


Abbildung 8.20.: Abstimbarkeit der VUV Wellenlänge unter Verwendung von gechirpten Impulsen. Die VUV Spektren sind in Abhängigkeit der Verzögerung von Fundamentaler zur dritten Harmonischen aufgetragen.

umgekehrten Fall zeigt die rote Kurve: Die hintere Flanke des Fundamentalimpulses überlagert mit dem Maximum der dritten Harmonischen und das VUV Signal verlagert sich hin zu größeren Wellenlängen. Speziell bei dieser rot dargestellten Kurve ist die charakteristische Schulter, resultierend aus der Blauverschiebung während der Filamentierung, zu sehen (vgl. Abbildung 8.5). Die Verzögerung von etwa 60 fs wurde gewählt, weil die Impulsenergie auf die Hälfte, also 160 nJ, gefallen ist. Insgesamt kann das Maximum der Zentralwellenlänge um etwa 1,2 nm verschoben werden.

Die Spektren wurden für eine ganze Reihe von Überlappzeitpunkten von Fundamentaler und dritter Harmonischer aufgenommen, deren Darstellung als einzelne Linie nur wenig anschaulich ist. Deswegen wurden in Abbildung 8.20 die gemessenen Spektren als ein Kontur-Plot gezeichnet, der den Abstimmbereich besser darzustellen vermag. Die Impulsdauer wurde nicht gemessen, die hier dargestellten Spektren dienen nur der Illustration. Um fourier-limitierte VUV Impulse zu generieren ist eine erhöhte Menge an Materialdispersion, zum Beispiel durch ein dickeres Fenster, im VUV Strahlengang nötig.

9. Zeitaufgelöste Spektroskopie an Wasserclustern

In diesem Kapitel wird die Anwendung der VUV Impulse zur Lebensdauerermessung des ersten angeregten Zustandes \tilde{A} von Wassermolekülen und kleinen Wasserclustern ($n=2\dots 11$) berichtet. Nach Beschreibung des experimentellen Aufbaus wird kurz auf die zeitaufgelöste Massenspektroskopie des Monomers ($\text{H}_2\text{O}/\text{D}_2\text{O}$) eingegangen.

Die Messungen liefen in enger Zusammenarbeit mit Jan P. Müller ab und sollen an dieser Stelle nur exemplarisch genannt werden. Die eingehende Diskussion der Daten einschließlich der Clustermessungen ist in [Mue2012] nachzulesen bzw. in der gemeinsamen Publikation Liu et al. [LMB2011].

9.1. experimenteller Aufbau

Der aus den Kapiteln 5 und 6 bekannte optische Aufbau (siehe Abbildung 5.2) wurde in einem anderen Laserlabor errichtet. Am dort vorhandenen Lasersystem stehen Impulse von ca. 36 fs Dauer bei einer Impulsenergie von 2,5 mJ und einer Wiederholfrequenz von 1 kHz zur Verfügung. An Stelle des einfachen Massenspektrometers aus [Ste2003a] wurde ein Flugzeit-Massenspektrometer vom Typ Wiley-McLaren mit einer höheren Massenauflösung verwendet. Durch die gemeinsame Expansion von Wasserdampf und Helium durch eine Ultraschalldüse und anschließender Kollimierung mit Hilfe mehrerer Blenden gelingt die Erzeugung eines Strahls von Wassermolekülen sowie Wasserclustern unterschiedlicher Größe. Durch Anpassung der Temperatur und des Gasdrucks kann das Verhältnis von Clustern zu Molekülen optimiert werden. In der unmittelbaren Nähe des Spektrometers, welches aus einem Beschleunigungsfeld, einem feldfreien Flugrohr und

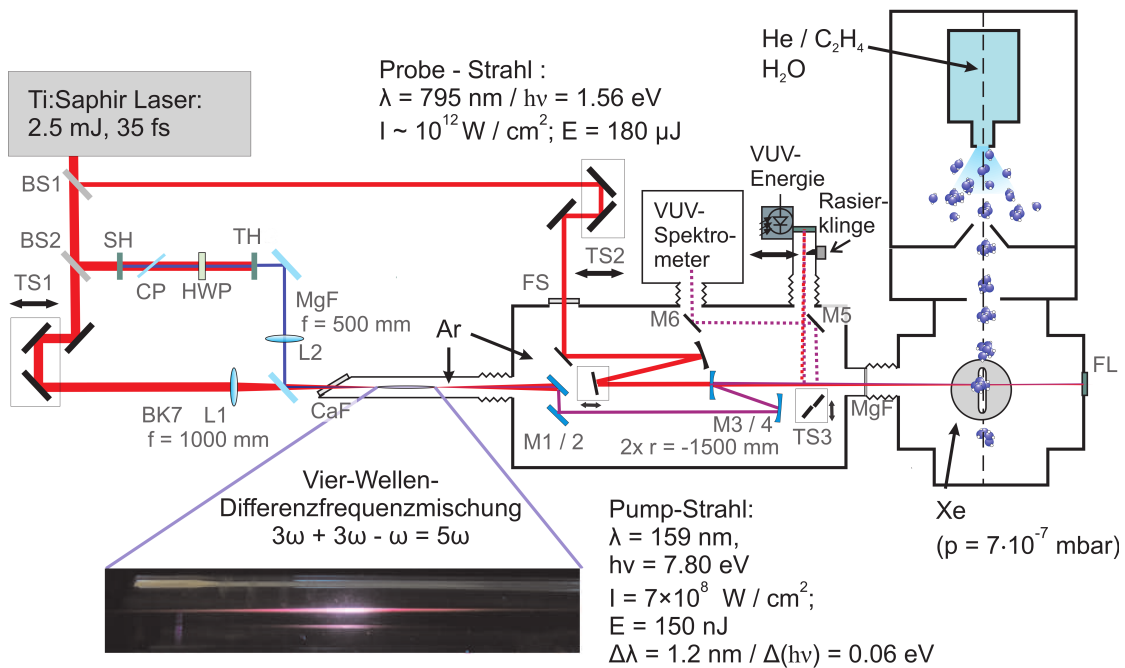


Abbildung 9.1.: Schema des optischen Aufbaus für Anrege-Abfrage-Experimente mit 159 nm und 795 nm an undotierten Wasserclustern. BS1: Strahlteiler $R \approx 10\%$, BS2: Strahlteiler $R = 66\%$, TS1: Translationstisch Zeitkompensation TH/FF, SH: Frequenzverdopplung, CP: Kalzitplatte, HWP: Wellenplatte zur Polarisationsdrehung, TH: Summenfrequenz, L1: Fokussierlinse FF, L2: Fokussierlinse TH, TS2: Translationstisch für Kreuzkorrelation, M1-M4: dielektrische Spiegel VUV, TS3: Translationstisch für VUV-Charakterisierung, MgF: Magnesiumfluoridfenster, FL: fluoreszierendes Austrittsfenster. Das Schema wurde erstellt von Jan P. Müller.

einer Anordnung von Mikrokanalplatten (engl.: *micro channel plate*, MCP) besteht, wird ein VUV Impuls ($\lambda = 159 \text{ nm}$) von etwa 100 nJ bis 150 nJ Energie und ca. 46 fs Dauer mit einigen hundert μJ der Fundamentalen ($\lambda = 795 \text{ nm}$) und 36 fs Dauer räumlich und zeitlich überlagert. Um den Durchmesser der Fokusregion zu bestimmen, wurde eine Rasierklinge an der Wandung eines flexiblen Vakuumbalgs befestigt. Durch einen verfahrbaren Umlenkspiegel (TS3) kann der Strahl in diesen Balg gelenkt werden, an dessen Ende sich das VUV Impulsenergiemessgerät befindet.

Die Photonenenergie des VUV-Impulses ist resonant mit dem ersten angeregten elektronischen Zustand des Wasser \tilde{A} . Das Absorptionsspektrum des Monomer zeigt für den \tilde{A} -Zustand ein Maximum bei etwa 7,5 eV bzw. 165 nm (z.B. zu sehen in [SNR2004]). Nach Anregung dieses Zustands kann eine Ionisation des Moleküls durch einen relativ zum VUV Impuls verzögerbaren Impuls der Fundamentalen

stattfinden. Die massenaufgelöste Detektion der Fragmente durch das Flugzeitmassenspektrometer gestattet die gleichzeitige Untersuchung von Clustern verschiedener Masse. Zusammen mit den Wasserclustern befindet sich eine geringe Menge Xenon Gas im Spektrometer, welches, wie in den vorangegangenen Kapiteln, zur Bestimmung der Impulsdauer dient. Des weiteren hat es in diesem Experiment die Funktion, die genaue Verzögerung von Anrege- und Abfrageimpuls zu bestimmen, da Xenon nur durch einen nicht-resonanten Prozess ionisiert wird. Das Maximum des über der Zeit aufgetragenen Xenon-Ionensignals stellt also den relativen Zeitnullpunkt zwischen beiden Impulsen dar.

9.2. Massenspektrum und zeitaufgelöste Messung am Monomer

Durch die gleichzeitige Messung der Massensignale der Wassercluster und von Xenon ist die relative Verzögerung zwischen Fundamentaler und VUV sehr genau bekannt. Dadurch lassen sich auch Verschiebungen der gemessenen Kreuzkorrelationen der Wassercluster bestimmen, die wesentlich kleiner als die Impulsdauer der zur Verfügung stehenden Impulse ist. In Abbildung 9.2 ist das typische Massenspektrum aufgetragen, welches zur Verzögerung $\Delta t = 0$ beider Impulse gemessen wird. Rot markiert sind die Signale der Wassercluster unterschiedlichster Größe. Abgesehen vom Monomer H_2O^+ ist nur das Dimer $(\text{H}_2\text{O})_2^+$ in der unprotonierten Form messbar, alle anderen Cluster $\text{H}^+(\text{H}_2\text{O})_{n-1}$ tragen ein zusätzliches Proton. Größere Cluster sind nach der Ionisation nicht stabil sondern spalten ein OH^\cdot unter Energiegewinn ab, welches aber nicht detektiert werden kann. Blau markiert ist das Massensignal des Xenon, das zur Impulsdauermessung dient. Der grau eingefärbte Untergrund stammt von Verunreinigungen des Spektrometers, verursacht durch Restgas welches vom Diffusionspumpenöl der Öldiffusionspumpe der Clusterquelle stammt.

In bisherigen experimentellen Arbeiten [TSF2009] konnte nur die Dynamik des \tilde{A} -Zustandes des Monomers untersucht werden. Untersuchungen des Dimers und größerer Cluster fand bisher noch nie statt, was hauptsächlich der fehlenden Quelle ultrakurzer und intensiver VUV Impulse geschuldet ist. Das durchgeführte Experiment stellt somit die erste Untersuchung der Dynamik von kleinen Wasserclustern dar.

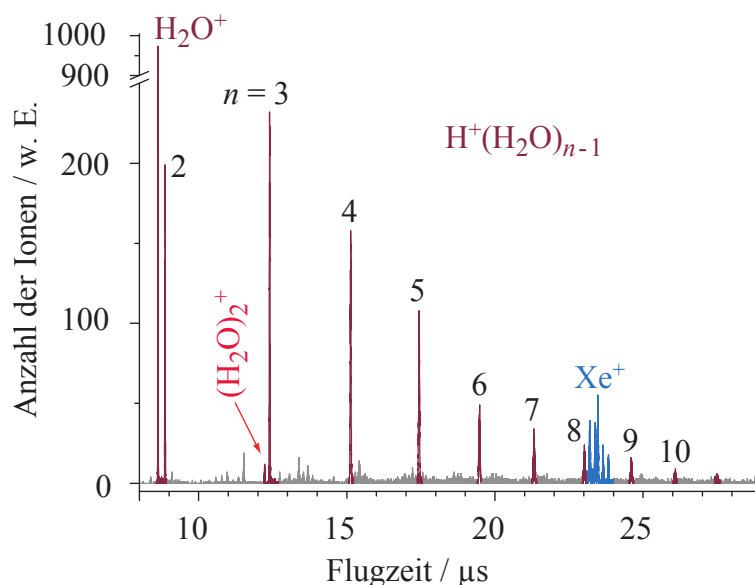


Abbildung 9.2.: Massenspektrum der Wassercluster bei gleichzeitiger Einstrahlung von Anrege- und Abfrageimpuls. Farblich markiert sind die Massensignale der Wassercluster, blau zeigt das Massenspektrum des Xenon.

Um eine Abgrenzung von der Arbeit von J.P. Müller zu gewährleisten, sei an dieser Stelle nur die beobachtete Dynamik des Monomer H_2O und dessen deuterierter Form D_2O erwähnt. Abbildung 9.3 zeigt das über der Verzögerung von Anrege- und Abfrageimpuls aufgetragene Massensignal von a) H_2O und b) D_2O zusammen mit dem integrierten Signal der verschiedenen Xenon-Isotope (entnommen aus [LMB2011]). Anhand dieses Signals ist zu erkennen, dass die Impulsform des VUV Impulses nicht mit einer einzelnen Gauß'schen Glockenkurve anpassbar ist. Deswegen wurde zur Anpassung der Kreuzkorrelation die Summe dreier Gauß-funktionen genutzt, die jeweils als blaue unterbrochene Linie gezeigt sind. Es ist erkennbar, dass sich die Form dieses Signals bei beiden Messungen deutlich voneinander unterscheidet. Da auch die Fundamente gewisse Schwankungen zeigte, ist anzunehmen, dass geänderte Umweltbedingungen im Labor (Temperatur, relative Luftfeuchtigkeit) für die beobachteten Unterschiede verantwortlich sind. Das Massensignal des Monomers hat eine ähnliche Form wie das Xenon-Signal, ist gegenüber diesem aber um wenige Femtosekunden verzögert. Trushin et al. [TSF2009] haben eine ähnliche Messung an gasförmigem Wasser durchgeführt. Die in diesem Experiment verfügbare Impulsdauer von ca. 11 fs ermöglichte die Bestimmung ei-

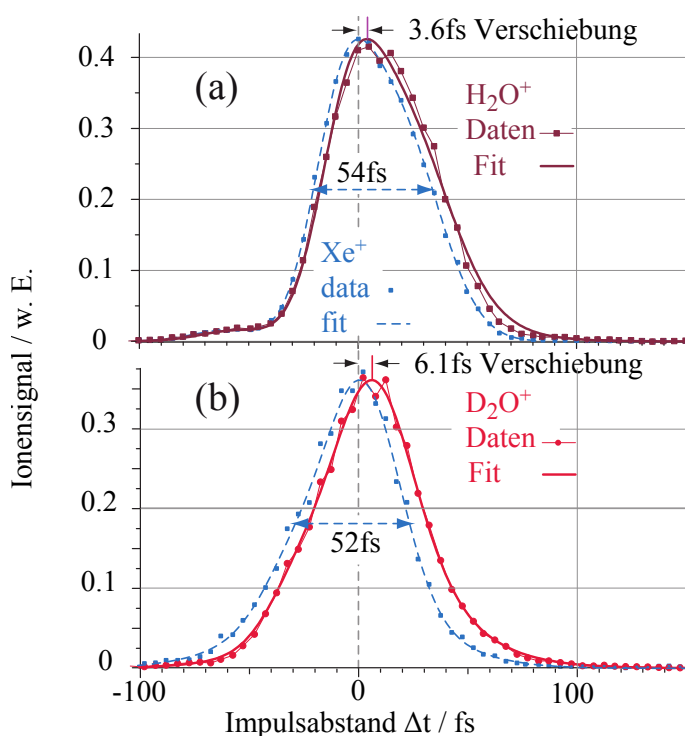


Abbildung 9.3.: Zeitaufgelöstes Ionensignal des H_2O^+ (Abbildung a)) und D_2O^+ -Monomers (Abbildung b)) sowie des gleichzeitig gemessenen Xenon-Signals (blau). Die gemessenen Signale sind jeweils als Punkte dargestellt, die Anpassung als durchgehende (Monomer) bzw. unterbrochene Linie (Xenon). Deutlich zu erkennen ist die Verschiebung des Monomer-Signals relativ zum Xenon-Signal, was ein Zeichen für eine geringe Lebensdauer des Zustandes ist.

ner Verschiebung des Signals relativ zur Kreuzkorrelation von 1,8 fs für H_2O^+ , 2,1 fs für HDO^+ und 2,5 fs für D_2O^+ . Diese Zeitkonstante wurde als die Zeitdauer der Abspaltung eines H-Atoms bzw. D-Atoms vom OH-Rest (OD-Rest) interpretiert. Im hier dargestellten Experiment ist eine größere Verschiebung von 3,6 fs für H_2O^+ bzw. 6,1 fs für D_2O^+ erkennbar. Diese Werte sind in Einklang mit der Arbeit von Trushin, da die Impulsdauer von 11 fs in dieser Arbeit deutlich geringer war als die verfügbare Impulsdauer von annähernd 50 fs. Leider stand die Methode der Impulsverkürzung wie in Kapitel 8 nicht zur Verfügung. Eine Wiederholung dieses Experiments mit dieser verbesserten Zeitauflösung sollte es gestatten, auch die H-Abspaltung von größeren Clustern hinreichend genau messen zu können. Es sei an dieser Stelle nochmals auf die ausführliche Besprechung des Experimentes in [Mue2012] hingewiesen. Durch die hohe VUV Impulsenergie bei gleichzeitig recht kurzer Impulsdauer von unter 50 fs sind die ersten zeitaufgelösten Messungen

der Ionisationsdynamik von Wasserclustern ermöglicht worden. Es ist zu erwarten, dass die verbesserten Quellen mit höherer Zeitauflösung (Kapitel 8) oder abstimmbaren VUV Impulsen (Kapitel 7) helfen können, auch bei größeren Clustern die Dauer der H/D-Abspaltung messen zu können.

10. Ausblick

Die bisher gezeigten Experimente haben in vielen Fällen bis dahin unerreichte Ergebnisse sowohl hinsichtlich der Energie und Impulsdauer als auch der Abstimmbarkeit der VUV Impulse erbracht. Auf den folgenden Seiten soll ein Ausblick auf weitere Verbesserungen für die Zukunft gezeigt werden. Beginnend mit dem Problem der unzureichenden zeitlichen Charakterisierung der VUV Impulse, geht es im daran anschließenden Kapitel um Lösungsansätze für die Erzeugung noch kürzerer VUV-Impulse.

10.1. Messung der spektralen Phase

Die zeitliche Charakterisierung der VUV Impulse hat sich im Laufe der Messungen als unbefriedigend herausgestellt. Die reine Kreuzkorrelation setzt voraus, dass gewisse Annahmen an die Form der beiden beteiligten Impulse gemacht werden müssen. Die bekannte Funktion der Kreuzkorrelation, Gleichung 2.26, ist eine Faltung beider Impulse und hat das vorteilhafte Verhalten, für eine große Anzahl n (Anzahl der Photonen, die zur Ionisation nötig sind) für den Abfrage-Impuls sich einer Delta-Funktion anzunähern. Somit entspräche die gemessene Kreuzkorrelation genau der zeitlichen Intensität des VUV Impulses. Aber auch diese Information alleine gibt keine Möglichkeit, die spektrale Phase der Impulse zu messen.

Prinzipiell gibt es den Weg, unter Zuhilfenahme des gemessenen Spektrums und mithilfe des Gerchberg-Saxton Algorithmus auf die Phase zu schließen [PeR1998]. Numerisch aufwändiger ist die Nutzung der PICASO-Methode („*Phase and Intensity from Cross correlation And Spectrum Only*“) [NJR1999], bei der ein Optimierungs-Algorithmus (Simplex-Downhill, Evolutionärer Algorithmus....) genutzt wird, um aus einer Kreuzkorrelation und dem Spektrum die spektrale Phase abzuleiten. Erfolgreich genutzt wurde PICASO schon für Nichtlinearitäten zweiter und dritter Ordnung und prinzipiell sollte die Nutzbarkeit auch für einen 1+3 Prozess

gegeben sein.

Die wünschenswerte Variante wäre es jedoch, bekannte Methoden zur Bestimmung der spektralen Phase zu nutzen, namentlich SPIDER [IaW1998] bzw. FROG [TrK1993]. Beide Möglichkeiten bedürfen eines nichtlinearen Mediums, in dem der VUV Impuls mit einer entsprechenden Replica seiner selbst oder mit einem Abfrage-Impuls wechselwirken kann (analog zur Auto- bzw. Kreuzkorrelation) und sich das optische Spektrum messen lässt. Denkbare Wege sind die Nutzung einer Nichtlinearität dritter Ordnung in Form von Selbstbeugung (SD). In [GFS2008] wurde schon gezeigt, dass diese Methode selbst zur Messung von Impulsen mit weniger als 4 fs Dauer im UV funktioniert. Da mit diversen Fluoriden (MgF_2 , BaF_2 , LICAF....) verschiedene transparente Medien zur Verfügung stehen, sollte sich der Aufbau eines solchen SD-FROG auch im VUV realisieren lassen. Es wäre auch der Aufbau einer fortgeschrittenen Geometrie der Selbstbeugung denkbar (sog. *transient grating*, TG), die einen dreistrahligen Aufbau benötigt. Der Vorteil dieser Geometrie ist die Phasenanpassung des nichtlinearen Prozesses, was sich in bedeutend niedriger benötigter Impulsenergie niederschlägt. In [LNG1999] wurde ein solcher Aufbau gezeigt, der keinerlei Strahlteiler benötigt. Die im Allgemeinen notwendige Impulsenergie ist meist im Bereich von ~ 100 nJ, was sich mit den bisher gezeigten Ergebnissen somit leicht erreichen lässt. Allerdings ist bei Prozessen dritter Ordnung die nötige Impulsenergie grundsätzlich noch deutlich höher als bei Prozessen zweiter Ordnung. Auch ist die Wellenlänge des Messsignals identisch mit der zu messenden Wellenlänge, was solche Aufbauten gegen Streulicht empfindlich werden lässt.

Eine weitere FROG Geometrie, die gerade untersucht wird, ist die Nutzung einer Differenzfrequenz-Erzeugung von VUV mit einem Referenzimpuls (z.B. die Fundamentale) in einem der wenigen nichtlinearen Kristalle, die im Bereich des VUV nutzbar sind. Konkret handelt es sich um den Kristall Strontiumtetraborat (SrB_4O_7 bzw. SBO), der eine hohe Nichtlinearität bei großem Transparenzbereich zeigt, aber leider eine zu geringe Doppelbrechung aufweist, um hohe Umwandlungseffizienzen zu zeigen [ZAZ2006]. Genutzt wurde dieser Kristall zum Beispiel zur zeitlichen Charakterisierung von UV Impulsen mittels SHG [PNS2004] und es ist denkbar, die VUV Impulse in einer XFROG Geometrie [LGK1998] oder als ZAP-SPIDER [BLR2004a] zu messen. Vorteilhaft ist hier, dass die zu messende Größe ein Spektrum bei ca. 200 nm ist, was fernab der sonst benutzten Wellenlängen

liegt und somit die Probleme durch Streulicht reduziert werden. Die ausschließliche Verwendung von Festkörpern zur Impulsdauermessung ist eine experimentelle Erleichterung. Speziell bei ultrakurzen Impulsen ist aber die hohe Dispersion störend.

Eine weitere Möglichkeit ist die Messung der Photoelektronen, die bei der Ionisation z.B. von Xenon entstehen. Sie erscheint als die flexibelste Möglichkeit in Bezug auf die verwendete Wellenlänge und Impulsdauer, da Dispersions- und Phasenangepasseffekte bei der Messung vernachlässigt werden können. Die Elektronen tragen, nach Abzug des Ionisationspotential, die restliche Energie der Photonen mit sich. Mit Xenon, aber auch mit Krypton, ist eine einfache experimentelle Anordnung zu realisieren, welche die Photoelektronen resultierend aus Zweiphotonenionisation messen kann. Eine bedeutende Arbeit zu diesem Thema stammt von Sekikawa et al. [SKM2002]. Die bekannte Form des Spektrogramms einer FROG Messung ändert sich wegen der Subtraktion des Ionisationspotentials zu

$$I_{FROG} \left(\omega - \frac{I_p}{\hbar} \right) \propto \left| \int_{-\infty}^{\infty} E(t)E(t - \tau)e^{-i\omega t} dt \right|^2 + f \left(\omega - \frac{I_p}{\hbar} \right). \quad (10.1)$$

Der Summand f ist dabei die zeitunabhängige Ionisation, die durch die beiden Einzelimpulse entsteht. Dieses Spektrogramm entspricht dem eines SHG-FROG und kann mit den bekannten Methoden [DTH1994] zur Bestimmung der spektralen Phase genutzt werden. Der Aufwand an Vakuumtechnik und Detektoren ist vergleichbar mit der schon genutzten Messung der Ionen. Allerdings wird ein hochauflösendes Elektronen-Spektrometer benötigt, was den Aufwand im Vergleich zum bisherigen Aufbau deutlich erhöht.

10.2. Erzeugung von VUV Impulsen mit wenigen Zyklen

Im Kapitel 8.2 wurde die Vierwellenmischung eines schmalbandigen Pump-Impulses mit einem durch Filamentierung verbreiterten Idler-Impuls behandelt. Es wurde gezeigt, dass trotz der nötigen Kompensation von dispersiven Medien, beinahe die gleiche spektrale Breite auch im VUV-Signal erreicht werden kann. Die derzeit kürzesten Impulsdauern im sichtbaren bzw. nahen infraroten Bereich lie-

gen bei etwa 3,3 fs [GSH2008]. Erreicht wurde dies durch Selbstphasenmodulation ultrakurzer Impulse in Edelgas-befüllten Hohlwellenleitern. Es existieren eine Reihe von weiteren Beispielen, wie durch diese Methode Impulse von weniger als 5 fs Dauer erzeugt wurden mit Spitzenleistungen von jeweils mehreren hundert Gigawatt (zum Beispiel [PLN2009], [CCM2010] oder [BSK2010]). Auch durch die Verwendung von Filamentierung in Gasen ([SZS2006], [ZGS2007], [SUM2008]) oder optisch parametrische Verstärker [AIK2008] können ähnliche Impulsdauern bereit gestellt werden. Es ist aufgrund der bisherigen Ergebnisse zu erwarten, dass bei Verwendung solch kurzer Idler-Impulse auch ebenso kurze VUV Impulse erzeugt werden können. Die Erzeugung und Dispersionskontrolle von Impulsen von weniger als 5 fs ist jedoch eine gewaltige Herausforderung und nur unter großen Anstrengungen möglich.

Filamentierung ist nicht nur auf die Verwendung von Impulsen nahe des sichtbaren Spektralbereichs beschränkt. Hauri et al. haben Filamente mit Impulsen einer Mittenwellenlänge nahe $2\ \mu\text{m}$ gezeigt [HLB2007]. Berge et al. [BKS2010] zeigten in einer theoretischen Arbeit die Kompression von UV Impulsen durch Filamentierung. Kürzlich [GTB2011] gelang in unserer eigenen Gruppe die Filamentierung und Kompression von ca. 100 fs Impulsen der dritten Harmonischen eines Ti:Saphir Lasers bis zu einer Impulsdauer von weniger als 20 fs. Unter geeigneten Bedingungen ist eine weitere Kompression bis zu 10 fs oder kürzer denkbar.

Die Vierwellenmischung eines solch breitbandigen Impulses mit einem ebenfalls breitbandigen Impuls der Fundamentalen bietet die faszinierende Möglichkeit, VUV Impulse noch größerer Bandbreite zu erzeugen als die einzelnen Impulse selbst ha-

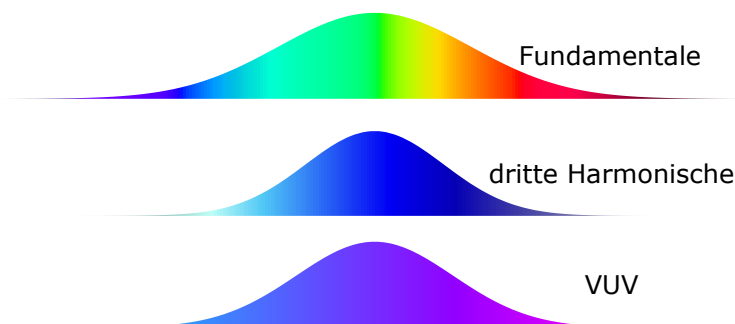


Abbildung 10.1.: Schema zur Abstimmbarkeit der Vierwellenmischung. Die Vierwellenmischung findet zwischen zwei breitbandigen Impulsen statt, die im allgemeinen Fall beide nicht bandbreiten-begrenzte Impulsdauer haben.

ben. Schematisch ist dies in Abbildung 10.1 dargestellt. Ein gechirpter Impuls der dritten Harmonischen (Mitte) wird mit einem gechirpten Impuls der Fundamentalen (oben) zeitlich und räumlich überlagert und erzeugen einen VUV Impuls (unten), wobei Bandbreite und Wellenlänge wieder von der Streckung der Impulse und ihrer Verzögerung zueinander abhängen. Die in Kapitel 8.2 eingeführte Gleichung 8.5 kann wieder angewendet werden um die Einhüllende zu berechnen. Im Gegensatz zur Mischung mit dem schmalbandigen TH Impuls, hat der Chirp der dritten Harmonischen nun einen großen Einfluss auf die spektrale Breite. Abbildung 10.2 zeigt wieder die VUV Spektren, die bei der Mischung entstehen können. In diesem Falle haben sowohl die dritte Harmonische als auch die Fundamentale, unter Annahme eines gauß-förmigen Intensitätsprofils, eine Bandbreite von 44,1 THz, was einer einer bandbreitenbegrenzten Impulsdauer von ca. 10 fs entspricht. Die blaue Strich-Punkt-Kurve zeigt die spektrale Intensität des VUV Spektrums für

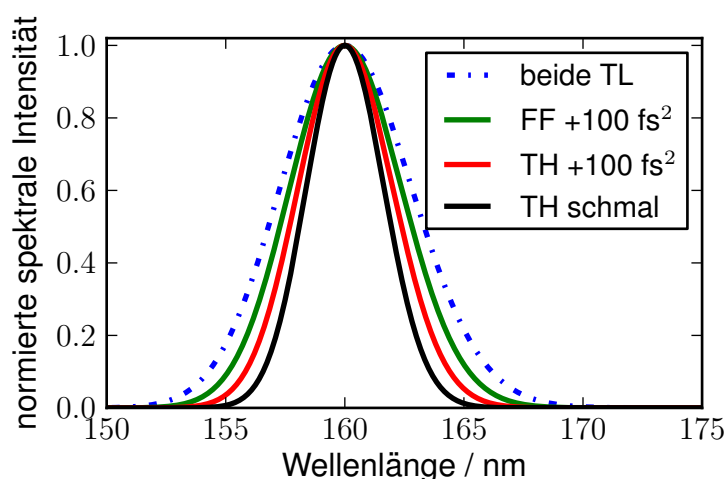


Abbildung 10.2.: Simulation der spektralen Breite der VUV Impulse bei Vierwellenmischung von zwei breitbandigen Impulsen. Die Fundamentale und die dritte Harmonische haben jeweils eine spektrale Breite von 44 THz, entsprechend einer bandbreitenbegrenzten Impulsdauer von 10 fs. Die blaue Strich-Punkt-Linie zeigt das errechnete VUV Spektrum bei bandbreitenbegrenzten Impulsen und hat eine Halbwertsbreite von 6,5 nm (Fourier-Grenze: 5,8 fs). Die grüne Linie zeigt die Mischung mit einem um 100 fs^2 (von 10 auf 30 fs) gestreckten Impuls der Fundamentalen mit einer Halbwertsbreite von 5,5 nm (Fourier-Grenze: 6,8 fs). Die rote Kurve zeigt die Mischung mit einem um 100 fs^2 gestreckten Impuls der dritten Harmonischen mit einer Halbwertsbreite von 4,7 nm (Fourier-Grenze: 8 fs). Die schwarze Kurve zeigt zum Vergleich die Vierwellenmischung eines breitbandigen Impulses der Fundamentalen mit einem schmalbandigen Impuls der dritten Harmonischen wie schon in Kapitel 8.2 dargestellt.

den Fall, dass beide Impulse bandbreitenbegrenzt sind. Die nun erzeugte spektrale Bandbreite ist mit 6,5 nm viel größer als im Kapitel 8.2 (zum Vergleich dargestellt als schwarze Linie). Dies entspricht einer kürzest möglichen Impulsdauer von 5,8 fs! Der erzeugte VUV Impuls ist somit viel kürzer als die Eingangsimpulse es sind. Wird nun einer der beiden Impulse zeitlich gestreckt um Materialdispersion im VUV Strahlengang zu kompensieren (siehe Kapitel 8.6), so wird auch hier die spektrale Breite des VUV Impulses entsprechend verringert. In der Abbildung 10.2 sind die VUV Spektren zu sehen, falls jeweils einer der Impulse um 100 fs^2 zeitlich gestreckt wird. Dies entspricht im Zeitraum einer Streckung von 10 fs auf 30 fs. Die spektrale Bandbreite im Fall der Streckung der Fundamentalen ist als grüne Linie dargestellt. Sie sinkt von 6,5 nm auf 5,5 nm, was einer bandbreitenbegrenzten Impulsdauer von 6,8 fs entspricht. Die rote Kurve zeigt die Streckung der dritten Harmonischen um 100 fs^2 . Hier verringert sich die spektrale Bandbreite deutlich mehr und beträgt nur noch 4,7 nm, was einer Impulsdauer von 8 fs entspricht. Verständlich wird dies dadurch, dass die dritte Harmonische quadratisch in die Gleichung eingeht und deswegen der Chirp doppelt wirkt. Der erzeugte Impuls ist immer noch deutlich kürzer als die jeweiligen Einzelimpulse. Die Kompensation von Materialdispersion kann prinzipiell mit beiden Impulsen erfolgen. Jedoch existiert kein Umkehren des Vorzeichens bei Verwendung der dritten Harmonischen! Positive Dispersion in der dritten Harmonischen kann also keinen negativen Chirp der VUV Impulse erzeugen. Da die spektrale Phase der dritten Harmonischen jedoch doppelt eingeht, ist die notwendige Materialdispersion entsprechend geringer.

Analog zu Kapitel 8.7 können diese breitbandigen Impulse auch wieder genutzt werden um die Zentralwellenlänge des VUV Impulses zu verändern. Um die Möglichkeiten zu veranschaulichen wurde die Vierwellenmischung für Impulse der gleichen Bandbreite wie oben im Text simuliert, jedoch beide Impulse negativ um -100 fs^2 gestreckt. Dies bedeutet für einen 10 fs Impuls eine Streckung um den Faktor 3. Als Folge der Streckung überlagern nicht mehr alle Frequenzkomponenten miteinander und die spektrale Breite wird, wie schon zu Beginn dieses Kapitels, verringert. Werden nun die beiden Impulse gegeneinander verzögert, so verschiebt sich die Zentralwellenlänge des erzeugten VUV Impulses.

In Abbildung 10.3 sind VUV Spektren für diese Vierwellenmischung gezeigt. Während die schwarze Kurve das Ergebnis der vollständigen zeitlichen Überlappung

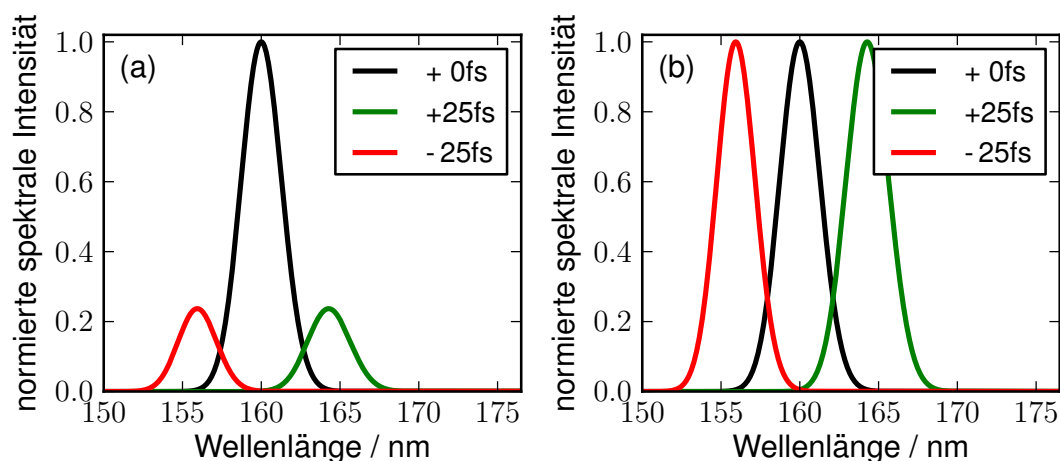


Abbildung 10.3.: Abstimmbare VUV Impulse durch Vierwellenmischung mit zeitlich gestreckten Impulsen.

(keine Verzögerung) beider Impulse ist, zeigt die grüne Kurve den Fall, dass das Maximum der Fundamentalen ca. 25 fs vor dem Maximum der dritten Harmonischen liegt. In beiden Fällen beträgt die Halbwertsbreite ca. 2,9 nm, was einer Fouriergrenze von 12,5 fs entspricht, also eine geringere Bandbreite als die erzeugenden Impulse sie haben. Die Zentralwellenlänge ist um 4,2 nm zu größeren Wellenlängen hin verschoben. Wenn die Fundamentale nun 25 fs nach der dritten Harmonischen ihr Maximum erreicht, so ist die Bandbreite wieder identisch, die Zentralwellenlänge ist jedoch um 4,2 nm zu kürzeren Wellenlängen verschoben. In jedem Fall tragen die erzeugten Impulse negativen Chirp, der durch Materialdispersion wieder kompensiert werden kann. Natürlich bedeutet eine Verzögerung der Impulse zueinander eine geringere Konversionseffizienz. Deswegen sind in Abbildung 10.3 (a) die Spektren auf das Spektrum verschwindender Zeitverzögerung normiert. Die Intensität fällt auf ein Viertel des Maximalwertes ab, was angesichts der hohen Effizienz der Vierwellenmischung sicherlich in Kauf genommen werden kann. Abbildung 10.3 (b) zeigt zur Veranschaulichung des möglichen Abstimmbereiches die auf ihr jeweiliges Maximum normierten Kurven. Diese Methode könnte sich als ein eleganter Weg erweisen, den komplexen Aufbau eines OPA zu umgehen und trotzdem einen großen Abstimmbereich nutzen zu können.

11. Zusammenfassung

Die in dieser Arbeit vorgestellte Methode der Erzeugung breitbandiger ultrakurzer Impulse im VUV durch Vierwellendifferenzfrequenzmischung in Edelgasen stellt einen großen Fortschritt zu den bisherigen Methoden dar, sowohl was die Impulsdauer als auch die Impulsenergie angeht. Die in Kapitel 5 beschriebene kollineare Wechselwirkung hat, trotz des inhärenten Wellenzahlfehlers, eine durch die Gouy-Phase gesteigerte Effizienz, die es ermöglicht hat, VUV Impulsenergien von mehreren hundert Nanojoule zu erzeugen. Die Impulsdauer des treibenden Ti:Saphir Lasers konnte dabei auf die VUV Impulse übertragen werden.

Wird die Methode der nicht-kollinearen Vierwellenmischung (Kapitel 6) genutzt, so ist eine Steigerung der Impulsenergie um mehr als eine Größenordnung möglich. Dabei bleibt die Impulsdauer des Verstärkers annähernd erhalten, nur eine leichte Steigerung der Impulsdauer um ca. 10% wurde gemessen. Die erzeugten VUV Impulse mit einer Energie von $3,3 \mu\text{J}$ bei unter 50 fs Dauer sind die leistungsstärksten, die jemals gemessen wurden und konnten bisher von keiner anderen Gruppe weltweit gezeigt werden. Verglichen mit der ansonsten üblichen Methode der Erzeugung höherer Harmonischer stellt dies einen gewaltigen Fortschritt dar. Selbst bei der Benutzung eines Ti:Saphir Lasers mit einer Spitzenleistung im TW-Bereich wurde eine Impulsenergie von weniger als einem Zehntel des hier gezeigten Wertes gemessen [AWS2010]. Wie die Messungen in Kapitel 6.5 und die Simulationen in Kapitel 6.4 gezeigt haben, begrenzt die Mehrfarben-Mehrphotonenionisation im erzeugenden Medium die Konversionseffizienz in erheblichem Maße. Eine Steigerung ist aber sicherlich durch die Verwendung noch intensiverer Impulse der dritten Harmonischen möglich. Für die Erzeugung von Impulsen noch höherer Energie ist die Nutzung von Neon oder gar Helium als nichtlineares Medium anzuraten, da diese Gase ein deutlich größeres Ionisationspotential haben.

Zur Demonstration der Erzeugung von VUV Impulsen abstimmbarer Wellenlänge wurden in Kapitel 7 die Ergebnisse der Vierwellenmischung der dritten Harmoni-

schen mit einem wellenlängenabstimmbaren Infrarot-Impuls gezeigt. Aufgrund der geringen Konversionseffizienz des optisch parametrischen Verstärkers von weniger als 10% haben die erzeugten Impulse deutlich geringere Impulsenergie. Dennoch konnte durch die Verwendung nicht-kollinearere Geometrie eine Impulsenergie um 100 nJ im gesamten Abstimmbereich zwischen 146 nm und 151 nm gewährleistet werden. Dabei sind die erzeugten Impulse von weniger als 50 fs Dauer, bei ausgewählten Wellenlängen wurden weniger als 30 fs gemessen. Die Mischung mit einem Impuls eines im sichtbaren Bereich arbeitenden nicht-kollinearen OPAs wird den Abstimmbereich zu Wellenlängen größer als 160 nm (ca. 162-190 nm) verlagern können, die Nutzung des Idler des IR-OPA kann den Abstimmbereich zu kürzeren Wellenlängen (140-146 nm) hin verschieben.

Um das große Potential zur Erzeugung sehr kurzer Impulse zu zeigen, wurde in Kapitel 8 die Fundamentale durch Filamentierung spektral verbreitert. Trotz des Vorhandenseins dispersiver Medien im Strahlengang des VUV Impulses konnte eine Impulsdauer von deutlich weniger als 20 fs erreicht werden. Dies wurde erreicht ohne dispersionskompensierende Elemente im VUV Strahlengang, einzig und allein eine geeignete Dispersion der Fundamentalen durch zwei Glaskeile genügte. Die erreichte Impulsenergie ca. 600 nJ ist sowohl ausreichend um zeitaufgelöste Spektroskopie, aber auch um nichtlineare Optik in diesem Spektralbereich zu betreiben. Außerdem wurde eine Möglichkeit zur Erzeugung abstimmbarer und schmalbandiger VUV Impulse durch geeignete zeitliche Verzögerung von Fundamentalenergie und dritter Harmonischer gezeigt.

Die Nutzbarkeit der VUV Impulse in einem Experiment zur zeitaufgelösten Massenspektroskopie wurde in Kapitel 9 kurz dargestellt. Die nicht-kollineare Vierwellenmischung hat sich als zuverlässige Quelle von ultrakurzen VUV Impulsen erwiesen, die über Stunden und Tage gleichbleibende Impulsparameter liefern kann.

Literaturverzeichnis

- [ABB2002] V. Ayvazyan, N. Baboi, I. Bohnet, R. Brinkmann, M. Castellano, P. Castro, L. Catani, S. Choroba, A. Cianchi, M. Dohlus, H. T. Edwards, B. Faatz, A. A. Fateev, J. Feldhaus, K. Flöttmann, A. Gamp, T. Garvey, H. Genz, C. Gerth, V. Gretchko, B. Grigoryan, U. Hahn, C. Hessler, K. Honkavaara, M. Hüning, R. Ischebeck, M. Jablonka, T. Kamps, M. Körfer, M. Krassilnikov, J. Krzywinski, M. Liepe, A. Liero, T. Limberg, H. Loos, M. Luong, C. Magne, J. Menzel, P. Michelato, M. Minty, U.-C. Müller, D. Nölle, A. Novokhatski, C. Pagani, F. Peters, J. Pflüger, P. Piot, L. Plucinski, K. Rehlich, I. Reyzl, A. Richter, J. Rossbach, E. L. Saldin, W. Sandner, H. Schlarb, G. Schmidt, P. Schmüser, J. R. Schneider, E. A. Schneidmiller, H.-J. Schreiber, S. Schreiber, D. Sertore, S. Setzer, S. Simrock, R. Sobierajski, B. Sonntag, B. Steeg, F. Stephan, K. P. Sytchev, K. Tiedtke, M. Tonutti, R. Treusch, D. Trines, D. Türke, V. Verzilov, R. Wanzenberg, T. Weiland, H. Weise, M. Wendt, I. Will, S. Wolff, K. Wittenburg, M. V. Yurkov, and K. Zapfe. Generation of GW Radiation Pulses from a VUV Free-Electron Laser Operating in the Femtosecond Regime. *Phys. Rev. Lett.*, **88**, 104802, (2002). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.88.104802>, Doi: 10.1103/PhysRevLett.88.104802.
- [AIK2008] S. Adachi, N. Ishii, T. Kanai, A. Kosuge, J. Itatani, Y. Kobayashi, D. Yoshitomi, K. Torizuka, and S. Watanabe. 5-fs, multi-mJ, CEP-locked parametric chirped-pulse amplifier pumped by a 450-nm source at 1 kHz. *Opt. Express*, **16** (19), 14341–14352, (2008). URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-16-19-14341>.
- [AWS2010] T. K. Allison, T. W. Wright, A. M. Stooke, C. Khurmi, J. van Tilborg, Y. Liu, R. W. Falcone, and A. Belkacem. Femtosecond spectroscopy with

- vacuum ultraviolet pulse pairs. *Opt. Lett.*, **35** (21), 3664–3666, (2010). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-35-21-3664>.
- [BDS2011] C. Brée, A. Demircan, and G. Steinmeyer. Saturation of the All-Optical Kerr Effect. *Phys. Rev. Lett.*, **106**, 183902, (2011). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.106.183902>, Doi: 10.1103/PhysRevLett.106.183902.
- [BHK2008] A. Börzsönyi, Z. Heiner, M. P. Kalashnikov, A. P. Kovács, and K. Os-
vay. Dispersion measurement of inert gases and gas mixtures at 800
nm. *Appl. Opt.*, **47** (27), 4856–4863, (2008). URL: [http://ao.osa.org/
abstract.cfm?URI=ao-47-27-4856](http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-47-27-4856).
- [Bjo1975] G. C. Bjorklund. Effects of focusing on third-order nonlinear processes
in isotropic media. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **11**, 287–296,
(1975). Doi: 10.1109/JQE.1975.1068619.
- [BKL1995] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou. Self-
channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air. *Opt. Lett.*,
20 (1), 73–75, (1995). URL: [http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=
ol-20-1-73](http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-20-1-73).
- [BKS2010] L. Bergé, C. Köhler, and S. Skupin. Compression of ultrashort UV
pulses in a self-defocusing gas. *Physical Review A*, **81** (1), 011805–+,
(2010). arXiv:0910.0944, Doi: 10.1103/PhysRevA.81.011805.
- [BLR2004a] P. Baum, S. Lochbrunner, and E. Riedle. Zero-additional-phase SPI-
DER: full characterization of visible and sub-20-fs ultraviolet pulses. *Opt.*
Lett., **29** (2), 210–212, (2004). URL: [http://ol.osa.org/abstract.
cfm?URI=ol-29-2-210](http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-29-2-210).
- [Boy1994] R. W. Boyd. Nonlinear optics. Acad. Press, Boston [u.a.], 3. print
edition, (1994).
- [BSK2010] S. Bohman, A. Suda, T. Kanai, S. Yamaguchi, and K. Midorikawa.
Generation of 5.0 fs, 5.0 mJ pulses at 1 kHz using hollow-fiber pulse
compression. *Opt. Lett.*, **35** (11), 1887–1889, (2010). URL: [http://ol.
osa.org/abstract.cfm?URI=ol-35-11-1887](http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-35-11-1887).

- [CCM2010] X. Chen, L. Canova, A. Malvache, A. Jullien, R. Lopez-Martens, C. Durfee, D. Papadopoulos, and F. Druon. 1-mJ, sub-5-fs carrier-envelope phase-locked pulses. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, **99**, 149–157, (2010). Doi: 10.1007/s00340-009-3835-y.
- [CoM2007] A. Couairon and A. Mysyrowicz. Femtosecond filamentation in transparent media. *Physics Reports*, **441** (2-4), 47 – 189, (2007). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S037015730700021X>, Doi: DOI: 10.1016/j.physrep.2006.12.005.
- [CWJ1989] C. Chen, Y. Wu, A. Jiang, B. Wu, G. You, R. Li, and S. Lin. New nonlinear-optical crystal: LiB₃O₅. *J. Opt. Soc. Am. B*, **6** (4), 616–621, (1989). URL: <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-6-4-616>, Doi: 10.1364/JOSAB.6.000616.
- [CWW1995] C. Chen, Y. Wang, B. Wu, K. Wu, W. Zeng, and L. Yu. Design and synthesis of an ultraviolet-transparent nonlinear optical crystal Sr₂Be₂B₂O₇. *Nature*, **373**, 322–324, (1995). Doi: 10.1038/373322a0.
- [CWW2009] C. Chen, G. Wang, X. Wang, and Z. Xu. Deep-UV nonlinear optical crystal KBe₂BO₃F₂—discovery, growth, optical properties and applications. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, **97** (1), 9–25, (2009). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s00340-009-3554-4>.
- [CWX1995] C. Chen, Y. Wang, Y. Xia, B. Wu, D. Tang, K. Wu, Z. Wenrong, L. Yu, and L. Mei. New development of nonlinear optical crystals for the ultraviolet region with molecular engineering approach. *Journal of Applied Physics*, **77**, 2268–2272, (1995). Doi: 10.1063/1.358814.
- [DFT1996] K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, and R. Trebino. Practical Issues in Ultrashort-Laser-Pulse Measurement Using Frequency-Resolved Optical Gating. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **32**, 1253–1264, (1996). Doi: 10.1109/3.517026.
- [DiR2006] J.-C. Diels and W. Rudolph. Ultrashort laser pulse phenomena. Acad. Press/Elsevier, Amsterdam [u.a.], 2. ed. edition, (2006). URL: <http://www.sciencedirect.com/science/book/9780122154935>.

- [DTH1994] K. W. DeLong, R. Trebino, J. Hunter, and W. E. White. Frequency-resolved optical gating with the use of second-harmonic generation. *J. Opt. Soc. Am. B*, **11** (11), 2206–2215, (1994). URL: <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-11-11-2206>.
- [Enq2004] H. Enqvist. A setup for efficient frequency tripling of high-power femtosecond laser pulses. *Diplomarbeit*, Lund, Sweden, (2004).
- [FGS1981] R. L. Fork, B. I. Greene, and C. V. Shank. Generation of optical pulses shorter than 0.1 psec by colliding pulse mode locking. *Applied Physics Letters*, **38** (9), 671–672, (1981). URL: <http://link.aip.org/link/?APL/38/671/1>, Doi: 10.1063/1.92500.
- [FMG1984] R. L. Fork, O. E. Martinez, and J. P. Gordon. Negative dispersion using pairs of prisms. *Opt. Lett.*, **9** (5), 150–152, (1984). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-9-5-150>, Doi: 10.1364/OL.9.000150.
- [GBP2009] M. Ghotbi, M. Beutler, V. Petrov, A. Gaydardzhiev, and F. Noack. High-energy, sub-30 fs near-IR pulses from a broadband optical parametric amplifier based on collinear interaction in BiB3O6. *Opt. Lett.*, **34** (5), 689–691, (2009). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-34-5-689>.
- [GFS2008] U. Graf, M. Fieß, M. Schultze, R. Kienberger, F. Krausz, and E. Goulielmakis. Intense few-cycle light pulses in the deep ultraviolet. *Opt. Express*, **16** (23), 18956–18963, (2008). URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-16-23-18956>.
- [GPN2011] V. Ghotbi, M. Petrov and F. Noack. Efficient Generation of Sub 30 fs pulses in an collinear OPA based on BIBO. *Opt Lett*, **4775**, 347–350, (2011).
- [GPN2010] M. Ghotbi, V. Petrov, and F. Noack. Broadly tunable, sub-30 fs near-infrared pulses from an optical parametric amplifier based on BiB3O6. *Opt. Lett.*, **35** (13), 2139–2141, (2010). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-35-13-2139>, Doi: 10.1364/OL.35.002139.

- [GSH2008] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. L. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Kleineberg. Single-Cycle Nonlinear Optics. *science*, **320**, 1614, (2008). Doi: 10.1126/science.1157846.
- [GTB2011] M. Ghotbi, P. Trabs, and M. Beutler. Generation of high-energy, sub-20-fs pulses in the deep ultraviolet by using spectral broadening during filamentation in argon. *Opt. Lett.*, **36** (4), 463–465, (2011). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-36-4-463>, Doi: 10.1364/OL.36.000463.
- [HDR2011] S. Hädrich, S. Demmler, J. Rothhardt, C. Jocher, J. Limpert, and A. Tünnermann. High-repetition-rate sub-5-fs pulses with 12 GW peak power from fiber-amplifier-pumped optical parametric chirped-pulse amplification. *Opt. Lett.*, **36** (3), 313–315, (2011). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-36-3-313>, Doi: 10.1364/OL.36.000313.
- [HKH2004] C. P. Hauri, W. Kornelis, F. W. Helbing, A. Heinrich, A. Couairon, A. Mysyrowicz, J. Biegert, and U. Keller. Generation of intense, carrier-envelope phase-locked few-cycle laser pulses through filamentation. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, **79**, 673–677, (2004). Doi: 10.1007/s00340-004-1650-z.
- [HLB2007] C. P. Hauri, R. B. Lopez-Martens, C. I. Bлага, K. D. Schultz, J. Cryan, R. Chirila, P. Colosimo, G. Doumy, A. M. March, C. Roedig, E. Sistrunk, J. Tate, J. Wheeler, L. F. DiMauro, and E. P. Power. Intense self-compressed, self-phase-stabilized few-cycle pulses at 2 μm from an optical filament. *Opt. Lett.*, **32** (7), 868–870, (2007). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-32-7-868>.
- [HeS2008] I. V. Hertel and C.-P. Schulz. *Atome, Moleküle und optische Physik 1.* @Springer-Lehrbuch. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, (2008). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-540-30617-7>.
- [HeS2010] I. V. Hertel and C.-P. Schulz. *Atome, Moleküle und optische Physik 2.* @Springer-Lehrbuch. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, (2010). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/978-3-642-11973-6>.

- [IaW1998] C. Iaconis and I. Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Opt. Lett.*, **23** (10), 792–794, (1998). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-23-10-792>.
- [KiB1978] H. Kildal and S. R. J. Brueck. Infrared four-wave sum and difference frequency generation in liquid CO-O₂ mixtures. *Applied Physics Letters*, **32**, 173, (1978). Doi: 10.1063/1.89979.
- [Kel1965] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics JETP*, **20**, 1307, (1965). Doi: 10.1234/12345678.
- [KoK1999] H. Kouta and Y. Kuwano. Attaining 186-nm light generation in cooled β -BaB₂O₄ crystal. *Opt. Lett.*, **24** (17), 1230–1232, (1999). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-24-17-1230>, Doi: 10.1364/OL.24.001230.
- [KRR1998] P. Kuschnerus, H. Rabus, M. Richter, F. Scholze, L. Werner, and G. Ulm. Characterization of photodiodes as transfer detector standards in the 120 nm to 600 nm spectral range. *Metrologia*, **35** (4), 355, (1998). URL: <http://stacks.iop.org/0026-1394/35/i=4/a=23>.
- [KaT1993] D. J. Kane and R. Trebino. Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **29**, 571–579, (1993). Doi: 10.1109/3.199311.
- [KTF2008] K. Kosma, S. A. Trushin, W. Fuss, and W. E. Schmid. Ultrafast Dynamics and Coherent Oscillations in Ethylene and Ethylene-d₄ Excited at 162 nm. *The Journal of Physical Chemistry A*, **112** (33), 7514–7529, (2008). URL: <http://dx.doi.org/10.1021/jp803548c>.
- [KTS2008] K. Kosma, S. A. Trushin, W. E. Schmid, and W. Fuß. Vacuum ultraviolet pulses of 11 fs from fifth-harmonic generation of a Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.*, **33** (7), 723–725, (2008). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-33-7-723>.
- [LGK1998] S. Linden, H. Giessen, and J. Kuhl. XFROG - A new method for amplitude and phase characterization of weak ultrashort pulses. *Physica Status Solidi B-Basic Research*, **206** (1), 119–124, (1998).

- [LMB2011] H. T. Liu, J. P. Müller, M. Beutler, M. Ghotbi, F. Noack, W. Radloff, N. Zhavoronkov, C. P. Schulz, and I. V. Hertel. Ultrafast photo-excitation dynamics in isolated, neutral water clusters. *jcp*, **134** (9), 094305, (2011). URL: <http://link.aip.org/link/?JCP/134/094305/1>, Doi: 10.1063/1.3556820.
- [LNG1999] M. Li, J. P. Nibarger, C. Guo, and G. N. Gibson. Dispersion-free Transient-grating Frequency-resolved Optical Gating. *Appl. Opt.*, **38** (24), 5250–5253, (1999). URL: <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-38-24-5250>.
- [Mar1987] O. E. Martinez. Design of high-power ultrashort pulse amplifiers by expansion and recompression. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **23**, 1385–1387, (1987). Doi: 10.1109/JQE.1987.1073518.
- [MBD2001] L. Misoguti, S. Backus, C. G. Durfee, R. Bartels, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Generation of Broadband VUV Light Using Third-Order Cascaded Processes. *Phys. Rev. Lett.*, **87** (1), 013601, (2001). Doi: 10.1103/PhysRevLett.87.013601.
- [MFL1995] K. Mossavi, L. Fricke, P. Liu, and B. Wellegehausen. Generation of high-power subpicosecond pulses at 155 nm. *Opt. Lett.*, **20** (12), 1403–1405, (1995). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-20-12-1403>.
- [MeZ2011] M. Mero and J. Zheng. Femtosecond optical parametric converter in the 168–182-nm range. *Applied Physics B: Lasers and Optics*, , 1–7, (2011). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/s00340-011-4657-2>.
- [Mue2012] J. P. Müller. Ultraschnelle Dynamik in dotierten und reinen Wasserclustern. *Dissertation*, Freie Universität Berlin, (2012).
- [Nik1991] D. N. Nikogosyan. Beta barium borate (BBO). *Applied Physics A: Materials Science & Processing*, **52**, 359–368, (1991). URL: <http://dx.doi.org/10.1007/BF00323647>.
- [NIO2011] Y. Nomura, Y. Ito, A. Ozawa, X. Wang, C. Chen, S. Shin, S. Watanabe, and Y. Kobayashi. Coherent quasi-cw 153 nm light source at 33 MHz repe-

- tition rate. *Opt. Lett.*, **36** (10), 1758–1760, (2011). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-36-10-1758>, Doi: 10.1364/OL.36.001758.
- [NJR1999] J. W. Nicholson, J. Jasapara, W. Rudolph, F. G. Omenetto, and A. J. Taylor. Full-field characterization of femtosecond pulses by spectrum and cross-correlation measurements. *Opt. Lett.*, **24** (23), 1774–1776, (1999). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-24-23-1774>.
- [NSS1996] M. Nisoli, S. D. Silvestri, and O. Svelto. Generation of high energy 10 fs pulses by a new pulse compression technique. *Applied Physics Letters*, **68** (20), 2793–2795, (1996). URL: <http://link.aip.org/link/?APL/68/2793/1>, Doi: 10.1063/1.116609.
- [NDS1997] M. Nisoli, S. D. Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz. Compression of high-energy laser pulses below 5 fs. *Opt. Lett.*, **22** (8), 522–524, (1997). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-22-8-522>.
- [PLN2009] J. Park, J. Lee, and C. H. Nam. Generation of 1.5 cycle 0.3 TW laser pulses using a hollow-fiber pulse compressor. *Opt. Lett.*, **34**, 2342–+, (2009). Doi: 10.1364/OL.34.002342.
- [PNS2004] V. Petrov, F. Noack, D. Shen, F. Pan, G. Shen, X. Wang, R. Komatsu, and V. Alex. Application of the nonlinear crystal SrB4O7 for ultrafast diagnostics converting to wavelengths as short as 125 nm. *Opt. Lett.*, **29** (4), 373–375, (2004). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-29-4-373>.
- [PPT1966] A. M. Perelomov, V. S. Popov, and M. V. Terent’ev. Ionization of Atoms in an Alternating Electric Field. *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **23**, 924, (1966).
- [PeR1998] J. Peatross and A. Rundquist. Temporal decorrelation of short laser pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, **15** (1), 216–222, (1998). URL: <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-15-1-216>.
- [PRN1999] V. Petrov, F. Rotermund, F. Noack, J. Ringling, O. Kittelmann, and R. Komatsu. Frequency conversion of Ti: sapphire-based femtosecond laser systems to the 200-nm spectral region using nonlinear optical crystals.

- IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **5** (6), 00000, (1999).
- [Rei1980] H. R. Reiss. Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system. *Phys. Rev. A*, **22**, 1786–1813, (1980). URL: <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.22.1786>, Doi: 10.1103/PhysRevA.22.1786.
- [Rei1984] J. Reintjes. Nonlinear optical parametric processes in liquids and gases. Academic Press (New York), (1984).
- [Sap2011] D. U. Sapaev. MatLab Programm zur Berechnung der Vierwellenmischung in Gasen mittels schrittweiser Integration durch Runge-Kutta-Verfahren. (2011).
- [SBK2003] B. Schenkel, J. Biegert, U. Keller, C. Vozzi, M. Nisoli, G. Sansone, S. Stagira, S. D. Silvestri, and O. Svelto. Generation of 3.8-fs pulses from adaptive compression of a cascaded hollow fiber supercontinuum. *Opt. Lett.*, **28** (20), 1987–1989, (2003). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-28-20-1987>.
- [SDK1995] E. Sidick, A. Dienes, and A. Knoesen. Ultrashort-pulse second-harmonic generation. II. Non-transform-limited fundamental pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, **12** (9), 1713–1722, (1995). URL: <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-12-9-1713>.
- [Sel1871] W. von Sellmeier. Zur Erklärung der abnormen Farbenfolge im Spectrum einiger Substanzen. *Annalen der Physik*, **143**, 272–282, (1871).
- [SES1991] D. E. Spence, J. M. Evans, W. E. Sleat, and W. Sibbett. Regeneratively initiated self-mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.*, **16** (22), 1762–1764, (1991). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-16-22-1762>.
- [SFS1994] R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, and F. Krausz. Chirped multi-layer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers. *Opt. Lett.*, **19** (3), 201–203, (1994). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-19-3-201>, Doi: 10.1364/OL.19.000201.

- [SKM2002] T. Sekikawa, T. Katsura, S. Miura, and S. Watanabe. Measurement of the Intensity-Dependent Atomic Dipole Phase of a High Harmonic by Frequency-Resolved Optical Gating. *Phys. Rev. Lett.*, **88** (19), 193902, (2002). Doi: 10.1103/PhysRevLett.88.193902.
- [SKS1991] D. E. Spence, P. N. Kean, and W. Sibbett. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser. *Opt. Lett.*, **16** (1), 42–44, (1991). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-16-1-42>.
- [StM1985] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, **55**, 447–449, (1985). Doi: 10.1016/0030-4018(85)90151-8.
- [SNR2004] O. Steinkellner, F. Noack, H.-H. Ritze, W. Radloff, and I. V. Hertel. Ultrafast predissociation dynamics of water molecules excited to the electronic C-tilde and D-tilde states. *The Journal of Chemical Physics*, **121** (4), 1765–1770, (2004). URL: <http://link.aip.org/link/?JCP/121/1765/1>, Doi: 10.1063/1.1760732.
- [Nis2011] N. I. of Standards and Technology. NIST Atomic Spectra Database. http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels_form.html. URL: http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/levels_form.html.
- [Ste2003a] O. Steinkellner. Ultraschnelle Vibrationsanregung und zeitaufgelöste Untersuchungen zur Dissoziation von Wasser in der Gasphase. *Dissertation*, Freie Universität, (2003). URL: http://www.diss.fu-berlin.de/diss/receive/FUDISS_thesis_000000001136.
- [SUM2008] B. E. Schmidt, W. Unrau, A. Mirabal, S. Li, M. Krenz, L. Wöste, and T. Siebert. Poor man’s source for sub 7 fs: a simple route to ultrashort laser pulses and their full characterization. *Opt. Express*, **16** (23), 18910–18921, (2008). URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-16-23-18910>.
- [SZS2006] G. Stibenz, N. Zhavoronkov, and G. Steinmeyer. Self-compression of millijoule pulses to 7.8 fs duration in a white-light filament. *Opt.*

- Lett*, **31** (2), 274–276, (2006). URL: <http://www.opticsinfobase.org/abstract.cfm?URI=ol-31-2-274>.
- [TrK1993] R. Trebino and D. J. Kane. Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency-resolved optical gating. *J. Opt. Soc. Am. A*, **10** (5), 1101–1111, (1993). URL: <http://josaa.osa.org/abstract.cfm?URI=josaa-10-5-1101>, Doi: 10.1364/JOSAA.10.001101.
- [Tre1969] E. Treacy. Optical pulse compression with diffraction gratings. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **5**, 454–458, (1969). Doi: 10.1109/JQE.1969.1076303.
- [TSF2009] S. A. Trushin, W. E. Schmid, and W. Fuß. A time constant of 1.8 fs in the dissociation of water excited at 162 nm. *Chemical Physics Letters*, **468**, 9–13, (2009). URL: <http://dx.doi.org/10.1016/j.cplett.2008.11.093>.
- [TSZ2007] P. Tzankov, O. Steinkellner, J. Zheng, M. Mero, W. Freyer, A. Husakou, I. Babushkin, J. Herrmann, and F. Noack. High-power fifth-harmonic generation of femtosecond pulses in the vacuum ultraviolet using a Ti:sapphire laser. *Opt. Express*, **15** (10), 6389–6395, (2007). URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-15-10-6389>.
- [TZM2006] P. Tzankov, J. Zheng, M. Mero, D. Polli, C. Manzoni, and G. Cerullo. 300 μ J noncollinear optical parametric amplifier in the visible at 1 kHz repetition rate. *Opt. Lett.*, **31** (24), 3629–3631, (2006). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-31-24-3629>.
- [SBH2012] J. H. U.K. Sapaev, I. Babushkin. Efficient optical parametric amplification and generation by means of four-wave mixing in gas-filled acoustic waveguides, fluctuated by sound: a novel approach.
- [Wei2009] A. M. Weiner. Ultrafast optics. Wiley series in pure and applied optics. Wiley, Hoboken, NJ, (2009).
- [WPR1997] T. Wilhelm, J. Piel, and E. Riedle. Sub-20-fs pulses tunable across the visible from a blue-pumped single-pass noncollinear parametric converter.

- Opt. Lett.*, **22**, 1494–1496, (1997). URL: <http://ol.osa.org/abstract.cfm?URI=ol-22-19-1494>.
- [WWS2000] M. Wittmann, M. T. Wick, O. Steinkellner, P. Farmanara, V. Stert, W. Radloff, G. Korn, and I. V. Hertel. Generation of femtosecond VUV pulses and their application to time resolved spectroscopy in the gas phase. *Optics Communications*, **173**, 323–331, (2000). Doi: 10.1016/S0030-4018(99)00607-0.
- [WZW2006] S. Witte, R. T. Zinkstok, A. L. Wolf, W. Hogervorst, W. Ubachs, and K. S. E. Eikema. A source of 2 terawatt, 2.7 cycle laser pulses based on noncollinear optical parametric chirped pulse amplification. *Opt. Express*, **14** (18), 8168–8177, (2006). URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-14-18-8168>.
- [ZAZ2006] A. Zaitsev, A. Aleksandrovskii, A. Zamkov, and A. Sysoev. Nonlinear optical, piezoelectric, and acoustic properties of SrB₄O₇. *Inorganic Materials*, **42**, 1360–1362, (2006). URL: <http://dx.doi.org/10.1134/S0020168506120132>.
- [ZFS2010] P. Zuo, T. Fuji, and T. Suzuki. Spectral phase transfer to ultrashort UV pulses through four-wave mixing. *Opt. Express*, **18** (15), 16183–16192, (2010). URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-18-15-16183>.
- [ZGS2007] A. Zaïr, A. Guandalini, F. Schapper, M. Holler, J. Biegert, L. Gallmann, A. Couairon, M. Franco, A. Mysyrowicz, and U. Keller. Spatio-temporal characterization of few-cycle pulses obtained by filamentation. *Opt. Express*, **15** (9), 5394–5404, (2007). URL: <http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-15-9-5394>, Doi: 10.1364/OE.15.005394.
- [Zha2009] N. Zhavoronkov. Fine control of self-compression dynamics in a femtosecond filament. *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*, **11** (12), 125201, (2009). URL: <http://stacks.iop.org/1464-4258/11/i=12/a=125201>.

12. Danksagung

Diese Dissertation entstand am Max-Born-Institut für Nichtlineare Optik und Ultrakurzzeitspektroskopie in Berlin. Wie so viele Dissertationen zuvor und sicherlich auch danach, so ist auch diese nicht ohne die Hilfe und den Beistand vieler anderer Menschen entstanden. Ihnen allen bin ich zu großem Dank verpflichtet. Großer Dank gebührt Professor Dr. Ingolf Volker Hertel für seine Entscheidung, mir die Entwicklung der VUV Quelle zu übertragen. Ganz besonders dankbar bin ich ihm für all seine Hinweise bei der Anfertigung dieses Manuskripts und dem Ausmerzen der Fehler.

Ebenso danke ich Professor Dr. Ludger Wöste, der sich dazu bereit erklärt hat, als weiterer Korrektor meiner Dissertationsschrift zu agieren.

Ich danke von ganzem Herzen Dr. Frank Noack für all seine Motivation und seine brillante Fähigkeit, all die Fehler zu finden, die sich sowohl im Labor als auch in meinem Denken einschlichen. Auch war er es, der stets für ein freundschaftlich-familiäres Verhältnis innerhalb der Arbeitsgruppe sorgte.

Ich danke Dr. Masood Ghotbi für all die Geduld die er aufbrachte, mir die Feinheiten parametrischer Prozesse zu erklären. Er brachte mich so manches Mal dazu auch in hoffnungslosen Situationen einfach einen Schritt zurück zu treten und nach gemeinsamem Überlegen doch noch eine Lösung des Problems zu finden.

Zu Dank verpflichtet bin ich auch Dr. Mark Mero und Dr. Jiaang Zheng, die, auch wenn wir nur kurze Zeit zu Beginn meiner Promotion zusammenarbeiteten, mir mit Rat und Tat zur Seite standen als sie mich in die Benutzung des VUV-Lasersystems einführten.

Dr. Usman Sapaev stellte mir seinen MATLAB-Code zur numerischen Simulation der Vierwellenmischung zur Verfügung, den ich dann für meine Anforderungen anpassen und nutzen konnte. Die Zusammenarbeit mit ihm hat mein Verständnis der Theorie der Vierwellenmischung sehr erweitert. Ihm und Dr. Ihar Babushkin bin ich zu großem Dank bei der Realisierung der Simulationen verpflichtet.

Dr. Nickolai Zhavoronkov war über die vielen Jahre ein getreuer Gesprächspartner in unserem gemeinsamen Büro, egal ob es um Physik ging oder den ganzen Rest des Lebens. All seine Anregungen haben, speziell beim Erreichen der sub-20-fs Impulse, so manches Mal den entscheidenden Unterschied ausgemacht.

Ich danke Gabriele Mügge, der Seele von Abteilung A3, für die vielen Male in denen eine Aufmunterung aus ihrem Munde genau in diesem Moment das Richtige war.

Armin Loudovici danke ich für die vielen Male in denen zügig ein mechanisches Teil anzufertigen war und durch seine Bereitschaft es dann auch prompt fertiggestellt wurde.

Ich danke Wolfgang Krüger für seine Hilfe bei Problemen mit der Elektrik und Elektronik. Für jemanden wie mich, der auf Kriegsfuß mit allem steht was mehr als 3 Kabel hat, hatte er immer eine freie Minute.

Michael Dose führte mich in die wundervolle Welt der Programmiersprachen ein. Ohne seine Hilfe beim Erlernen von PERL, was mich anschließend zum Erlernen weiterer Sprachen wie PYTHON führte, wäre die weitgehend automatisierte Auswertung meiner VUV-Kreuzkorrelationen nicht möglich gewesen.

Peter Trabs kam erst gegen Ende meiner Arbeit zum MBI und verfolgt nun meine begonnene Arbeit weiter. Mir hat er besonders beim Lesen meines Manuskripts gute Dienste geleistet.

Jan Philippe Müller half mir anfangs, mich am MBI überhaupt einzufinden und brachte mir immer wieder das große Mysterium namens „Atom- und Molekülphysik“ näher. Durch seine Hilfe wurde ich - nicht unbedingt aus freien Stücken - zum passablen LABVIEW-Programmierer. Uns verbindet seit Jahren eine enge Freundschaft und als Patenonkel meiner Tochter wurde er zum Teil meiner Familie.

Vor allem danke ich auch meiner Verlobten Christiane Finger für ihren Beistand während all der Jahre, die diese Dissertation zur Reife benötigte.

Auch all den anderen, nicht genannten, Menschen, die mir auf dem Wege begegnet sind, möchte ich an dieser Stelle nochmals meinen Dank aussprechen.

A. Anhang

A.1. Berechnung der Effizienzfunktion G

Um die Gasdruckabhängigkeit der Konversionseffizienz berechnen zu können ist eine numerische Integration der Gleichung 5.8 nötig, die sich aus 5.6 ergibt. Dr. Noack (noack@mbi-berlin.de) half dem Autor bei der Implementierung der Rechnung in MATHCAD 2001 PROFESSIONAL. Zu finden ist das genutzte Programm im Netzwerk des MBI unter

`/group/Abteilung-A3/vuv-lab/publications/fwm_collinear/` .

A.2. Numerische Simulation der Vierwellenmischung

Zur Bewertung des Einflusses der MPI auf die Konversionseffizienz ist das gekoppelte Gleichungssystem 6.18 - 6.20 sowie 6.16 zu lösen. Der derzeit am MBI angestellte Postdoc Dr. Usman Sapaev (sapaev@mbi-berlin.de) verfasste einen MATLAB-Code (MATLAB 2010) zur numerischen Berechnung, welches für die Demonstration eines neuen Verfahrens zur Phasenanpassung von Vierwellenmischprozessen gedacht war [SBH2012]. Es konnte mit geringem Aufwand für den hier vorliegenden Prozess der nicht-kollinearen Vierwellenmischung angepasst werden. Dispersions- und Beugungsterme wurden dabei ignoriert. Vom Autor stammt die Erweiterung des Gleichungssystems um die Terme zur Mehrfarben-Mehrphotonenionisation.

Die noch immer komplexen Differentialgleichungen wurden durch eine schrittweise Integration (sogenannte *fourier split-step method*, siehe z.B. [SDK1995]) gelöst, bei der nach einer linearen Ausbreitung um eine kleine Weglänge anschließend die nichtlineare Wechselwirkung betrachtet wird. Der Autor hatte keinen Anteil an der Erstellung dieses Programm-Codes. Lediglich das Implementieren der gasdruckabhängigen Gesamtwechselwirkungslänge L und die Erweiterung der Gleichungen um

die Mehrfarben-Ionisationskanäle wurde implementiert.

Für die Berechnung der üblicherweise wenige cm langen Wechselwirkungslängen benötigt ein üblicher PC eine Zeit von wenigen Minuten für nur einen Druck. Da ein großer Bereich von Gasdrücken berechnet wurde, kann eine solche Rechnung bis zu einer Stunde dauern. Zu finden ist der verwendete MATLAB-Code im MBI Netzwerk unter

`/group/Abteilung-A3/vuv-lab/publications/fwm_noncollinear/` .

B. Liste der eigenen Publikationen

1. M. Beutler, M. Ghotbi, F. Noack, D. Brida, C. Manzoni, G. Cerullo, **Generation of high-energy sub-20 fs pulses tunable in the 250-310 nm region by frequency doubling of a high-power noncollinear optical parametric amplifier**, *Opt. Lett.* **34**, 710-712, (2009)
2. M. Ghotbi, M. Beutler, V. Petrov, A. Gaydardzhiev, F. Noack, **High-energy, sub-30 fs near-IR pulses from a broadband optical parametric amplifier based on collinear interaction in BiB₃O₆**, *Opt. Lett.*, **34**, 689-691, (2009)
3. M. Beutler, M. Ghotbi, F. Noack, I. V. Hertel, **Generation of sub-50-fs vacuum ultraviolet pulses by four-wave mixing in argon**, *Opt. Lett.*, **35**, 1491-1493, (2010)
4. M. Ghotbi, M. Beutler, F. Noack, **Generation of 2.5 μ J vacuum ultraviolet pulses with sub-50 fs duration by noncollinear four-wave mixing in argon**, *Opt. Lett.*, **35**, 3492-3494, (2010)
5. M. Beutler, M. Ghotbi, F. Noack, **Generation of intense sub-20-fs vacuum ultraviolet pulses compressed by material dispersion**, *Opt. Lett.*, **36**, 3726-3728 (2011)
6. M. Ghotbi, P. Trabs, M. Beutler, **Generation of high-energy, sub-20-fs pulses in the deep ultraviolet by using spectral broadening during filamentation in argon**, *Opt. Lett.*, **36**, 463-465, (2011)
7. H. T. Liu, J. P. Müller, M. Beutler, M. Ghotbi, F. Noack, W. Radloff, N. Zhavoronkov, C. P. Schulz, I. V. Hertel, **Ultrafast photo-excitation dynamics in isolated, neutral water clusters**, *JCP*, **134**, 094305, (2011)

C. Lebenslauf

Der Lebenslauf ist in der Online-Version
aus Gründen des Datenschutzes nicht enthalten.

D. Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Dissertation selbstständig und nur unter Verwendung der angegebenen Literatur und Hilfsmittel verfasst habe.

Marcus Beutler

Berlin, den 19. April 2012