

Gutachter

1. Dr. sc. nat. Adrian N. Pfeiffer
Friedrich-Schiller-Universität Jena
2. Prof. Dr. sc. nat. Lukas Gallmann
Eidgenössische Technische Hochschule Zürich
3. Prof. Dr. rer. nat. Milutin Kovacev
Leibniz Universität Hannover

Tag der Disputation: 23. Juli 2020

Abstract

Ultrashort pulses, i. e. pulses with few cycles, which span the visible to infrared (VIS-IR) or extreme ultraviolet spectral range, are widely used tools in strong field and attosecond physics. Such pulses are also required in the deep and vacuum ultraviolet spectral range for time-resolved spectroscopy. However, their generation and successful application has hardly been reported so far. The reason for this is the strong dispersion and absorption of all materials, which in turn makes this spectral range interesting for spectroscopy. Difficulties arise in spectral or spatial separation of harmonics from the generating pulses and subsequent transport to the position of the sample. Suitable optics, such as filters and polarizers are hardly available on the market, expensive and associated with experimental drawbacks.

In this PhD thesis, the close-to-collinear beam geometry is investigated in detail using wide-bandgap dielectrics as samples. By superimposing two VIS-IR pulses, a multifaceted structure of temporal and spatial harmonics is created, which allows the generation and separation of pulses in the deep ultraviolet (DUV) without having to rely on spectral filters or polarizers. Surprisingly, the third harmonic consists of double pulses. A new method for the generation of ultrashort pulses by harmonic concatenation is introduced. DUV pulses with a duration of 1.5 fs are synthesized. A new technique is developed for the temporal characterization of the weak broadband DUV pulses, which is based on delay scans of the cross-phase modulation with intense VIS-IR pulses. The DUV pulses are used in a new, further developed variant of transient absorption spectroscopy, called transient absorption and dispersion spectroscopy (TADS), in which double pulses are used as probe pulses. For example, a 250 nm thick, free-standing diamond membrane with a band gap in the DUV is used as a sample. The experiments and their interpretations are supported by computer simulations in the form of nonlinear pulse propagation.

Kurzfassung

Ultrakurze Pulse, d. h. Pulse mit wenigen Zyklen, die den sichtbaren bis infraroten (VIS-IR) oder extrem ultravioletten Spektralbereich überspannen, sind weit verbreitete Werkzeuge in der Starkfeld- und Attosekundenphysik. Solche Pulse werden auch im fernen und Vakuum-ultravioletten Spektralbereich für die zeitaufgelöste Spektroskopie benötigt. Jedoch wurde von deren Erzeugung und erfolgreicher Anwendung bisher kaum berichtet. Die Ursache hierfür liegt in der starken Dispersion und Absorption aller Materialien, was diesen Spektralbereich wiederum für die Spektroskopie interessant werden lässt. Schwierigkeiten treten bei der spektralen oder räumlichen Trennung der harmonischen Strahlung von den erzeugenden Pulsen und dem Transport zum Ort der Probe auf. Passende Optiken, wie z. B. Filter und Polarisatoren, sind kaum auf dem Markt zu finden, preisintensiv und verbunden mit experimentellen Abstrichen.

In der vorliegenden Doktorarbeit wird die nahezu-kollineare Strahlgeometrie unter Verwendung von Dielektrika mit großer Bandlücke als Proben im Detail erforscht. Durch die Überlagerung von zwei VIS-IR-Pulsen entsteht eine facettenreiche Struktur zeitlicher und räumlicher Harmonischer, die die Erzeugung und Trennung von Pulsen im fernen Ultraviolett (DUV) ermöglicht, ohne auf spektrale Filter oder Polarisatoren angewiesen zu sein. Die dritte Harmonische besteht erstaunlicherweise aus Doppelpulsen. Es wird eine neue Methode zur Erzeugung ultrakurzer Pulse durch „Verknüpfung räumlicher Harmonischer“ (VERAH) eingeführt, die die Synthese von DUV-Pulsen mit einer Pulsdauer von 1.5 fs ermöglicht. Zur zeitlichen Charakterisierung der schwachen, breitbandigen DUV-Pulse wird eine neue Technik entwickelt, die auf Verzögerungsscans der Kreuzphasenmodulation mit intensiven VIS-IR-Pulsen beruht. Diese so erzeugten DUV-Pulse finden Anwendung in einer neuartigen, weiterentwickelten Variante der transienten Absorptionsspektroskopie, der sogenannten transienten Absorptions- und Dispersionsspektroskopie (TADS), bei der Doppelpulse als Abfragepuls verwendet werden. Als Probe wird z. B. eine 250 nm dicke, freistehende Diamantmembran verwendet, deren Bandlücke im DUV liegt. Die Experimente und deren Interpretationen werden durch Computersimulationen in Form der nichtlinearen Pulspropagation unterstützt.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Ausgewählte Grundlagen	7
2.1	Optische Eigenschaften von Festkörpern	7
2.2	Elektrisches Feld und Spektrum	8
2.3	Lineare Propagation ultrakurzer Pulse	10
2.4	Nichtlineare Pulspropagationsgleichung	13
2.5	Effekte der nichtlinearen Optik	15
2.6	Ionisation und Strom	22
2.7	Numerische Pulspropagation	24
2.8	Pulscharakterisierung	25
3	Experimenteller Aufbau	28
3.1	Femtosekundenlaser	28
3.2	Mach-Zehnder-Interferometer	29
3.3	Nahezu-kollineare Fokusgeometrie im Vakuum	33
3.4	Dielektrika – Übersicht	39
3.5	Messprogramm	40
4	Nichtlineare Effekte in nahezu-kollinearer Strahlgeometrie	42
4.1	Selbstbeugung	43
4.2	Dritte Harmonische Erzeugung und Doppelpulse	45
4.3	Graphen als Probe	57
4.4	Seifenlamelle als Probe	60
4.5	Dritte, fünfte und siebte Harmonische im Vergleich	62
5	Zeitliche Charakterisierung der dritten Harmonischen	64
5.1	Experimenteller Aufbau	65
5.2	Analytische Pulsrekonstruktion in zwei Varianten	66
5.3	Pulscharakterisierung experimenteller Daten	70
5.4	Pulscharakterisierung mit simulierten Daten	73
6	Erzeugung Ultrakurzer Pulse im DUV	75
6.1	Experimenteller Aufbau	75
6.2	Verknüpfung räumlicher Harmonischer (VERAH)	76
6.3	Simulation der VERAH	76
6.4	Zeitliche Charakterisierung der VERAH	77
6.5	Diskussion der Methode	78

7	Transiente Absorptions- und Dispersionsspektroskopie (TADS)	80
7.1	Realisierung einer kompakten Strahlführung	80
7.2	Auswertung mit Referenzmessung	82
7.3	Zeitauflösung	84
7.4	Proben	86
7.5	Justage	86
7.6	Pulscharakterisierung mit TADS	87
7.7	Starke Felder in Diamant	90
7.8	TADS mit 2D-Proben	95
8	Ausblick	97
9	Zusammenfassung	99
	Anhang	101
	Literatur	112
	Danksagung	125
	Veröffentlichungen	126
	Konferenzbeiträge	127
	Ehrenwörtliche Erklärung	128

1 Einleitung

Die vorliegende Doktorarbeit wurde am Institut für Optik und Quantenelektronik in der Arbeitsgruppe „Attosekunden-Laserphysik“ verfasst. Der Schwerpunkt liegt in der experimentellen Physik. Um die Experimente besser verstehen zu können, werden sie durch die theoretische Physik in Form von Computersimulationen unterstützt.

Diese Arbeit ist dem Bereich der Starkfeld- und Attosekundenphysik [1, 2] zuzuordnen. Dieser beschäftigt sich mit der Interaktion von starken elektromagnetischen Feldern, d. h. intensiven, ultrakurzen Laserpulsen mit Materie (Atome, Ionen, Moleküle, Plasmen, Flüssigkeiten und Festkörper) und kombiniert somit die Optik/Photonik mit der Atom-, Festkörper- und Quantenphysik sowie bei besonders hoher Intensität sogar mit der relativistischen Physik [3]. In dieser Arbeit liegt der Schwerpunkt auf der Verwendung von Festkörpern mit großer Bandlücke, die mit moderaten Intensitäten unterhalb der Zerstörschwelle (nicht-relativistisch) und mit Pulsen, die wenige Zyklen aufweisen und den sichtbaren bis infraroten Spektralbereich überspannen (VIS-IR-Pulse), bestrahlt werden.

Die Starkfeldphysik gewann in den 90er-Jahren an Bedeutung durch die Untersuchung der Ionisationsdynamik von Gasen [4, 5, 6] und die Erzeugung hoher Harmonischer (HHG¹) in Gasen [7, 8], die durch die rasante Entwicklung der Femtosekundenlaser möglich wurde [9]. Später folgte die Isolation einzelner Attosekundenpulse (ASP) im extrem ultravioletten (EUV) Spektralbereich [10]. Ein typisches Szenario hierfür ist die Bestrahlung eines einatomigen Gases mit einem intensiven VIS-IR-Puls. Die grundlegende Theorie für HHG ist durch die *strong field approximation* nach Lewenstein gegeben [11]. Sie lässt sich in drei bedeutende Schritte unterteilen: Ionisation, Propagation und Rekombination. Eine wichtige Rolle kommt dabei der *carrier-envelope phase* (CEP) zu, d. h. der Phase zwischen der Einhüllenden und der Trägerfrequenz ultrakurzer Pulse. Ein grundlegendes Ziel ist die Dynamik des elektronischen Systems während und nach der Ionisation im Detail zu verstehen. Diese läuft auf der Zeitskala von Attosekunden ab. Kein herkömmliches elektronisches Bauteil ist in der Lage so kurze Schaltzeiten zu erreichen [12]. Jedoch können sogenannte Anrege-Abfrage-Experimente mit ASP durchgeführt werden [13]. Typischerweise erfolgt die Anregung der Atome mit intensiven VIS-IR-Pulsen und die Abfrage erfolgt mit EUV-ASP. Die Messung des EUV-Spektrums in Abhängigkeit der variablen Verzögerung des ASP gegenüber des Anregepulses führt direkt zur transienten Absorptionsspektroskopie (TAS) [14]. Aus der transienten Änderung der Transmission bzw. der Absorption lassen sich Rückschlüsse auf die zeitliche Entwicklung der elektronischen bzw. quantenmechanischen Zustände schließen.

¹HHG: Abk. für *high harmonic generation*.

Bis heute wurden weitere sehr erfolgreiche Messmethoden, wie z. B. Attosecond-Streaking [15, 16], und Messapparaturen, wie z. B. COLTRIMS² [17], Stereo-ATI³ *phase meter* [18] und VMI⁴ [19], innerhalb der Starkfeld- und Attosekundenphysik entwickelt. Das Messsignal ist hierbei der Impuls oder die Energie der ionisierten Elektronen oder Ionen.

In den vergangenen 10 Jahren erhöhte sich das Interesse an der Erforschung von Festkörpern in starken Feldern [20]. Entscheidende Fragen, die es zu beantworten gab und gibt, sind: Ist HHG auch im Festkörper möglich? Welche Ströme dominieren den Prozess, Intra- oder Interbandströme? Wie ändert sich die Bandstruktur in Anwesenheit eines starken Feldes? Und werden optische Computer mit PHz-Schaltzeiten möglich sein? Heute wissen wir: HHG ist auch in Festkörpern möglich [21, 22, 23]. Es gibt Unterschiede, sowohl zwischen HHG-Spektren der Gasphase und von Festkörpern [24], als auch zwischen amorphen und kristallinen Festkörpern [22]. Die Elektronendynamik kann in Interband- und Intra-bandströme eingeteilt werden [25]. Der Interbandstrom entsteht durch Kopplung zwischen den Energiebändern eines Kristalls. Der Intra-bandstrom bezieht sich auf die Bewegung von Elektronen und Löchern innerhalb der Energiebänder. Aus den HHG-Spektren kann auf die Bandstruktur zurückgeschlossen werden [26, 27]. Die Effizienz konnte trotz der rund 10^3 -mal höheren Dichte von Festkörpern gegenüber Gasen nicht erhöht werden, da im Gegenzug die Zerstörschwelle geringer ist, Phasenanpassung bisher nicht gelungen ist und Reabsorption oberhalb der Bandlücke stattfindet [20]. HHG entspricht im Zeitbereich der Erzeugung eines Attosekunden-Pulszugs. Ob die ASP des Pulszugs gechirpt sind (Attochirp) oder nicht, wird heftig debattiert [28]. Ein Attochirp ist durch das Rekollisionsmodell zu erklären. Seine Existenz würde die Dominanz von Interbandströmen untermauern. Wenn die ASP keinen Attochirp tragen, kann dies durch dynamische Bloch-Oszillationen, d. h. Intra-bandströme erklärt werden. Es wurden HHG-Experimente unter unterschiedlichen Bedingungen durchgeführt, die auf einen Attochirp hinweisen [22, 29] und andere, die keinen Hinweis darauf geben [26, 30]. Optische PHz-Computer sind noch in ferner Zukunft, aber auch hier wurden einige Fortschritte erzielt [31, 32, 33, 34]. So konnte z. B. die kohärente und adiabatische Zustandsänderung von Valley-Pseudospins mit optischen Frequenzen erreicht werden [33].

Darüber hinaus gelang es mit ultrakurzen, intensiven Laserpulsen CEP-abhängige, makroskopische Ströme in Dielektrika zu messen [31]. Auch von nichtlinearer Laserverstärkung in angeregten Dielektrika wurde berichtet [35]. Außerdem wurde die Elektronendynamik zwischen Valenz- und Leitungsband mit TAS z. B. in Silizium [36] und Germanium [37] untersucht. Dabei wird die Absorption im Valenzband mit Hilfe von EUV-ASP abgefragt, welche in Resonanz mit inneren (kernnahen) Elektronen sind. Im Gegensatz dazu werden in der vorliegenden Doktorarbeit Abfragepulse im fernen UV (DUV) verwendet, die z. B. bei der

²COLTRIMS: Abk. für *cold target recoil ion momentum spectroscopy*.

³ATI: Abk. für *above threshold ionization*.

⁴VMI: Abk. für *velocity map imaging*.

Verwendung von Diamant als Probe in Resonanz mit der Bandlücke sind, d. h. mit dem Übergang von Valenzelektronen ins Leitungsband.

Ultrakurze Pulse, d. h. Pulse mit wenigen Zyklen, können sowohl im EUV [1] als auch im VIS-IR [38] Bereich des elektromagnetischen Spektrums erzeugt werden, siehe Abb. 1. Im DUV, wo viele Dielektrika und basische aromatische Moleküle, wie z. B. Nukleinbasen [39], Strahlung absorbieren bzw. photochemische Reaktionen durchlaufen, ist es bisher nicht gelungen so extrem kurze Pulse zu erzeugen und anzuwenden [40]. Durch nicht-degenerierte Frequenzmischung in einem dünnen transparenten Dielektrikum [41], in einer Hohlfaser [42] und durch Filamentierung [43] ist es gelungen, Pulse mit einer Dauer von etwa 10 fs zu erzeugen. Eine ähnliche Pulsdauer wird durch achromatische Frequenzverdopplung ultrakurzer VIS-IR-Pulse erreicht [44]. Auch die Selbstkompression von DUV-Pulsen durch Filamentierung wird nachgewiesen und lieferte relativ kurze Pulse von ~ 15 fs [45]. In dieser Arbeit wird ein neues Schema zur Erzeugung ultrakurzer DUV-Pulse vorgestellt, das deutlich kürzere Pulse mit einer Dauer von 1.5 fs liefert [46]. In etwa zur gleichen Zeit wurde von 1.9 fs DUV-Pulsen durch die Erzeugung der dritten Harmonischen mit 5 fs VIS-IR-Pulsen in einer Gaszelle berichtet [47]. Plasma-Defokussierung am hinteren Teil des Pulses wirkt hierbei als *gate* zur zusätzlichen spektralen Verbreiterung.

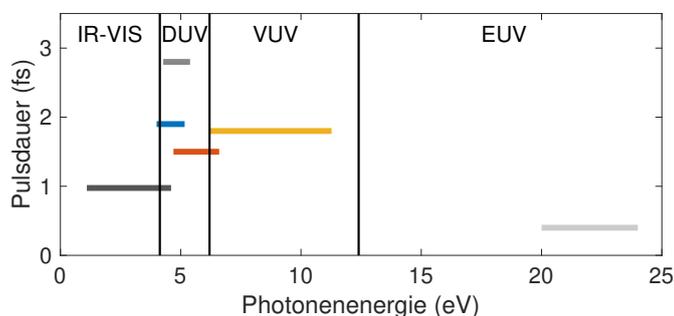


Abbildung 1: Kürzeste, experimentell realisierte Pulsdauern in Abhängigkeit der Photonenenergie vor 2016 (grau) und neu veröffentlicht bis 2020 (farbig). Referenzen: dunkelgrau [38], grau [48], hellgrau [49], blau [47], gelb [50] und diese Arbeit in rot [46]. VUV: Abk. für Vakuum-UV.

Trotz der Forschung mehrerer Arbeitsgruppen an der Erzeugung ultrakurzer Pulse im DUV wird von der Spektroskopie mit sub-10-fs DUV-Pulsen bisher kaum berichtet. Eine grundlegende Schwierigkeit liegt in der großen Dispersion der Gruppengeschwindigkeit jeder optischen Komponente im DUV, wodurch ein DUV-Puls leicht gechirpt wird, bevor er die Probe erreicht. Nur Kobayashi et al. ist es bisher gelungen sub-10-fs DUV-Pulse, die durch Vierwellenmischung gechirpter Pulse erzeugt werden [51], in der TAS einer wässrigen Lösung von Nukleinbasen anzuwenden [39, 52].

Für Anwendungen, wie z. B. die TAS, sind DUV-Pulse mit ultrakurzen Pulsdauern sehr nützlich. Um beispielsweise die subzyklen-abhängige Änderung der Absorption von Dielektrika

in Anwesenheit eines starken Anregepulses zu beobachten, sind Abfragepulse erforderlich, die i) eine kürzere Dauer als die optische Periode des Anregungspulses aufweisen, ii) die Wellenlänge der dielektrischen Bandlücke umfassen und iii) am Ort der Probe verfügbar sind. In der vorliegenden Doktorarbeit wird ein Konzept entwickelt, das solche Experimente ermöglicht.

Einige Methoden, die in der Starkfeldphysik für Atome und Moleküle in der Gasphase entwickelt wurden, können nicht direkt auf Festkörper übertragen werden, d. h. neue Methoden sind notwendig. Innerhalb der Arbeitsgruppe steht die nahezu-kollineare Strahlgeometrie im Zentrum der Forschung. Damit kann im Gegensatz zur kollinearen Geometrie harmonische Strahlung räumlich von den fundamentalen Feldern getrennt werden, ohne an die Verwendung optischer Elemente gebunden zu sein. Bei ultrakurzen Pulsen und daraus resultierenden breiten Spektren ist die Trennung von fundamentalen und harmonischen Pulsen mit Filtern oder Polarisatoren kaum möglich, da sie fast nicht auf dem Markt zu finden, preisintensiv und verbunden mit experimentellen Abstrichen sind. Ein weiterer Vorteil der nahezu-kollinearen Geometrie ist die Interferenz benachbarter räumlicher Harmonischer. Der Überlapp benachbarter räumlicher Harmonischer ermöglicht die Erzeugung ultrakurzer Pulse im DUV. Ein zu großer Kreuzungswinkel birgt Nachteile, wie z. B. geometrische Fehlanpassung der Phase und Winkelchirp, die in der nahezu-kollinearen Strahlgeometrie begrenzt werden. Nichtlineare Messgrößen, die untersucht werden können, reichen von der subzyklenabhängigen Pulsverzögerung [53, 54] und der Selbstbeugung [55], die bei der Grundfrequenz auftreten, bis hin zur Erzeugung von (zeitlicher) harmonischer Strahlung, wie z. B. der dritten Harmonischen im DUV [46]. Die erzeugten ultrakurzen DUV-Pulse werden zur zeitaufgelösten Spektroskopie in Festkörpern angewandt. In dieser Arbeit wurde hierfür eine neuartige, kompakte Strahlgeometrie für die TAS entwickelt.

Die vorliegende Arbeit ist folgendermaßen gegliedert: zunächst werden im folgenden Kapitel die Grundlagen vorgestellt, die für das Verständnis dieser Arbeit notwendig sind. Das dritte Kapitel gibt einen detaillierten Einblick in den experimentellen Aufbau. In Kapitel 4 wird eine Vielzahl von Experimenten in der nahezu-kollinearen Strahlgeometrie vorgestellt und diskutiert. Eine neue Methode zur zeitlichen Charakterisierung von ultrakurzen DUV-Pulsen wird im fünften Kapitel eingeführt. Sie basiert auf dem nichtlinearen Effekt der Kreuzphasenmodulation und enthält ein analytisches Modell zur Pulsrekonstruktion. Die Methode wird für die Charakterisierung von DUV-Pulsen mit sehr geringer Pulsenergie benötigt, so wie sie durch die Technik „Verknüpfung räumlicher Harmonischer“ (VERAH) erzeugt werden. Dieses hier erarbeitete neuartige Konzept zur Erzeugung ultrakurzer Pulse wird im sechsten Kapitel behandelt. Im siebten Kapitel werden die erzeugten DUV-Pulse für die zeitaufgelöste Spektroskopie verwendet. Eine neue Variante der TAS wird eingeführt, die sogenannte transiente Absorptions- und Dispersionsspektroskopie (TADS). Abschließend wird ein Ausblick gegeben und die wesentlichen Errungenschaften werden zusammengefasst.

2 Ausgewählte Grundlagen

In diesem Kapitel werden kurz die wichtigsten Grundlagen dargestellt, auf die sich die vorliegende Doktorarbeit stützt. Um das Zusammenspiel von Licht mit Materie zu verstehen, wird sowohl auf die Optik, als auch auf die Beschreibung und Modellierung der Festkörper eingegangen.

2.1 Optische Eigenschaften von Festkörpern

Dieses Unterkapitel bezieht sich inhaltlich auf das Lehrbuch „Solid-State Physics“ von H. Ibach und H. Lüth [56], sofern nicht anders angegeben.

Festkörper lassen sich nach ihrer elektrischen Leitfähigkeit in Leiter, Halbleiter und Isolatoren einteilen. In Leitern gibt es frei bewegliche Elektronen im höchsten besetzten Band – dem Leitungsband. Bei Halbleitern und Isolatoren ist das höchste besetzte Band vollständig mit Elektronen gefüllt. Unterschieden werden Halbleiter und Isolatoren anhand der Größe der Bandlücke. Halbleiter besitzen kleine Bandlücken unterhalb von 4 eV. Bei Isolatoren ist die Bandlücke so groß, dass die Leitfähigkeit bei Raumtemperatur vernachlässigbar klein ist. Als Dielektrika mit großer Bandlücke werden in dieser Doktorarbeit Isolatoren mit einer Bandlücke > 7 eV bezeichnet, da diese für DUV-Strahlung transparent sind.

Weiterhin lassen sich Festkörper nach ihrer mikroskopischen Struktur einteilen: Einkristalle, polykristalline und amorphe Festkörper. Amorphe Festkörper, wie z. B. Glas, besitzen keine Fernordnung, aber in gewissem Maß liegt eine Nahordnung benachbarter Atome vor. Polykristalle bestehen aus vielen unregelmäßig verbundenen kleinen Kristallen. Hierzu zählen die verwendeten MgF_2 -Proben. Kristalle sind perfekt symmetrisch aus ihren Einheitszellen zusammengesetzt. Sie lassen sich in 32 Punktgruppen einteilen. Diese genügen, um alle Einkristalle eindeutig bezüglich ihrer Symmetrie zu beschreiben und zu unterscheiden. Die zugelassenen Symmetrioperationen sind Drehung und Spiegelung. Relevant für die optischen Eigenschaften eines Kristalls ist die Symmetrie, also die Punktgruppe.

Die makroskopische lineare Interaktion von Licht und Materie wird durch die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}(\omega)$ oder den linearen Brechungsindex n mit der Beziehung $n(\omega) = \sqrt{1 + \chi^{(1)}(\omega)}$ beschrieben. Die Suszeptibilität $\chi^{(1)}(\omega) \sim \frac{P(\omega)}{E(\omega)}$ beschreibt die Stärke der Polarisation im Verhältnis zum elektrischen Feld. Die Kreisfrequenz ω wird in dieser Arbeit in der Einheit eV angegeben.

Der Brechungsindex eines Mediums wird bestimmt durch verschiedene Resonanzen. Im optischen Bereich sind das elektronische Resonanzen, bei kleineren Frequenzen schwingt das (Ionen-) Gitter, d. h. es werden Phononen angeregt. Im Bereich der Resonanzen sind $\chi^{(1)}$ und

n komplexe Größen. Isolatoren lassen sich im optischen Bereich gut durch drei Resonanzen charakterisieren. In der Literatur wird häufig die Sellmeier-Gleichung

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

zur Beschreibung des Brechungsindex verwendet [57]. Dabei ist λ die Wellenlänge und B_i und C_i sind materialabhängige Konstanten. Die Resonanzen befinden sich bei $\sqrt{C_i}$. Eine Dämpfung steckt nicht im Modell, daher kann nur der Realteil des Brechungsindex außerhalb der Resonanzen beschrieben werden.

Eine Erweiterung der Sellmeier-Gleichung kann durch die Addition mehrerer Lorentz-Oszillatoren zur Beschreibung der Resonanzen geschehen, die im Unterkapitel 2.5 ausführlich mit Blick auf die nichtlineare Optik behandelt werden. Für den komplexen Brechungsindex resultiert die Gleichung

$$n^2 - 1 = \sum_i \frac{A_i}{\Omega_i^2 - \omega^2 + 2i\gamma_i\omega}. \quad (2)$$

Hierbei beschreibt A_i die Amplitude, Ω_i die Resonanz und γ_i die Dämpfung. Ein Vergleich der beiden Modelle ist im Anhang in Abb. 50 anhand des Brechungsindex von Quarzglas dargestellt.

In dem für diese Arbeit relevanten Spektralbereich von 1.3–7 eV nimmt der Brechungsindex in den verwendeten Dielektrika, wie z. B. Quarz, Saphir und Magnesiumfluorid, mit der Frequenz zu (normale Dispersion). Die Absorption ist in diesem Bereich nahe 0, was experimentell bestimmte Brechungsindizes belegen [58, 59, 60]. Das Lorentz-Modell zeigt hier eine zu große Absorption. Die Ursache liegt vermutlich darin, dass der Lorentz-Oszillator ein quantenmechanisches 2-Level-System [61] und nicht die Bandstruktur eines Festkörpers beschreibt.

Tabellierte Brechungsindizes haben gegenüber analytischen Gleichungen für Computersimulationen den Nachteil, dass sie interpoliert werden müssen. In Simulationen können wahlweise tabellierte Brechungsindizes, die Sellmeier-Gleichung oder das Lorentz-Modell verwendet werden.

2.2 Elektrisches Feld und Spektrum

Die grundlegenden Definitionen dieses Unterkapitels folgen dem Buch „Ultrashort Laser Pulse Phenomena“ von J. C. Diels und W. Rudolph [62].

Das elektrische Feld \vec{E} verbindet die elektrische Kraft \vec{F}_{el} mit der Ladung q durch den einfachen Zusammenhang $\vec{F}_{el} = q\vec{E}$. Das Feld $\vec{E}(\vec{r}, t)$ ist ein reelles Vektorfeld in Raum und Zeit. Die SI-Einheit ist V/m. Im Folgenden wird ein skalares zeitabhängiges Feld $E(t)$ betrachtet. Das komplexe Spektrum ist definiert durch die Fourier-Transformation⁵

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t)e^{-i\omega t} dt = |\tilde{E}(\omega)|e^{i\tilde{\phi}(\omega)}. \quad (3)$$

Es gilt $\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}^*(-\omega)$, wobei * komplexe Konjugation bedeutet. Die SI-Einheit des Betrags des Spektrums $|\tilde{E}(\omega)|$ ist demnach Vs/m, $\tilde{\phi}(\omega)$ ist die spektrale Phase. Umgekehrt kann das elektrische Feld aus dem Spektrum durch inverse Fourier-Transformation berechnet werden,

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega)e^{i\omega t} d\omega. \quad (4)$$

Es ist nützlich das komplexe elektrische Feld im Zeitbereich zu definieren, welches aus dem Halbspektrum \tilde{E}_+ positiver Frequenzen gewonnen wird:

$$E_+(t) = 2 \int_0^{\infty} \tilde{E}_+(\omega)e^{i\omega t} d\omega, \quad (5)$$

analog wird $E_-(t)$ definiert. Das reelle elektrische Feld ist dann $E(t) = \frac{1}{2}[E_+(t) + E_-(t)] = \text{Re}[E_+(t)]$. In Abb. 2 ist das elektromagnetische Spektrum inklusive wichtiger Kenngrößen dieser Arbeit dargestellt.

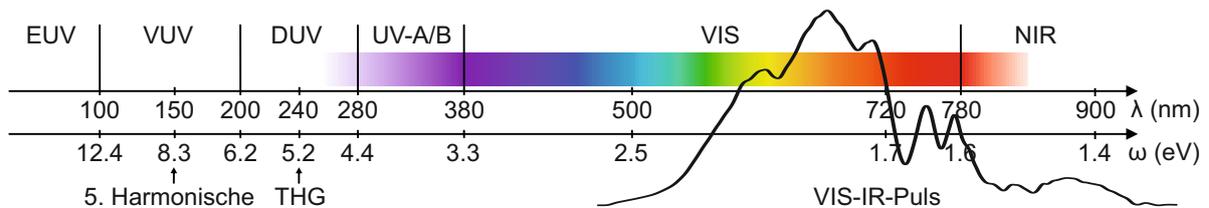


Abbildung 2: Elektromagnetisches Spektrum. EUV: extrem ultraviolette Strahlung, VUV: Vakuum-UV, DUV: fernes UV (im Englischen: deep UV), VIS: sichtbare Strahlung, NIR: nahes Infrarot. Weiterhin sind das Laserspektrum der VIS-IR-Pulse, die 3. Harmonische (THG) und die 5. Harmonische gekennzeichnet.

Der Satz von Parseval besagt, dass die Energie im Zeit- und Frequenzbereich erhalten ist:

$$\int_{-\infty}^{\infty} |E(t)|^2 dt = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{E}(\omega)|^2 d\omega. \quad (6)$$

Das ist besonders wichtig im Hinblick auf Simulationen, in denen häufig zwischen beiden Bereichen gewechselt wird.

⁵In der vorliegenden Doktorarbeit wird die hier eingeführte Konvention für das Vorzeichen in der Fourier-Transformation verwendet. Es ist im Allgemeinen nicht eindeutig definiert.

Die Flächenleistungsdichte, in der Optik besser bekannt als Intensität, ist die zeitliche Mittelung $\langle \dots \rangle_t$ des Poynting-Vektors S . Ausgedrückt mit der Amplitude des elektrischen Feldes E_0 ergibt sich für die Intensität

$$I = \langle S \rangle_t = \frac{1}{2} \epsilon_0 c n E_0^2. \quad (7)$$

Im Experiment wird typischerweise die Intensität im Vakuum bzw. an Luft ($n \sim 1$) bestimmt. Um daraus die Intensität im Medium zu berechnen, muss die Transmission an der ersten Grenzschicht Luft-Glas beachtet werden. Mit Hilfe der Fresnel-Formeln [63] für senkrechten Einfall und nicht magnetische Materialien folgt für die Intensität im Medium mit Brechungsindex n

$$I^{med} = \frac{4n}{(1+n)^2} I^{vak}. \quad (8)$$

Für den Reflexions- R und Transmissionsgrad T an der Grenzschicht gilt nach Fresnel

$$R = \left(\frac{1-n}{1+n} \right)^2 \quad \text{und} \quad T = \frac{4}{(1+n)^2}. \quad (9)$$

2.3 Lineare Propagation ultrakurzer Pulse

Dieses Unterkapitel ist inhaltlich angelehnt an das Buch „Fundamentals of Attosecond Optics“ von Z. Chang [64].

Das zeitabhängige elektrische Feld eines Laserpulses

$$E(t) = \text{Re} \left[\epsilon(t) e^{i(\omega_0 t + \varphi_{CE})} \right] \quad (10)$$

kann in die Einhüllende $\epsilon(t)$, die Trägerfrequenz ω_0 und die Phase zwischen diesen beiden Größen φ_{CE} zerlegt werden. Letztere ist die Träger-Einhüllenden-Phase, besser bekannt als *carrier-envelope phase*⁶ (CEP). Bei einem Gaußpuls ist die Einhüllende definiert als

$$\epsilon(t) = E_0 e^{-2 \log(2) \left(\frac{t}{t^{FWHM}} \right)^2}, \quad (11)$$

dabei ist t^{FWHM} die Pulsdauer⁷ und E_0 ist die Amplitude.

⁶Für die Laser-Präzisionsspektroskopie, einschließlich der optischen Frequenzkammtechnik, in der die CEP eine bedeutende Rolle einnimmt, gab es 2005 den Nobelpreis für Physik.

⁷Definition über die Halbwertsbreite der Intensität, engl. Bezeichnung *full width at half maximum* (FWHM).

Je kürzer ein Puls ist, desto breiter ist sein Spektrum. Das besagt das Pulsdauer-Bandbreite-Produkt, welches analog zur Heisenbergschen Unschärferelation ist. Gaußpulse erfüllen die Ungleichung

$$t^{FWHM}[\text{fs}] \times \Delta\omega[\text{eV}] \geq 1.8 \quad (12)$$

mit der Bandbreite $\Delta\omega$, die genau wie die Pulsdauer über die Halbwertsbreite definiert ist. Für einen Bandbreite-begrenzten Puls, bei dem die Phase der Einhüllenden $\epsilon(t)$ konstant ist, gilt das Gleichheitszeichen. Aus Gleichung 12 folgt, dass ein sub-fs Puls eine Bandbreite von mindestens 1.8 eV benötigt.

Die lineare Propagation durch ein dispersives Material wird am besten im Frequenzbereich beschrieben, da dann die Propagation einer einfachen Multiplikation mit einem Phasenfaktor entspricht. An dieser Stelle wird die Pulsausbreitung in einer Dimension betrachtet. Der allgemeine Fall wird inklusive der nichtlinearen Propagation im Unterkapitel 2.4 hergeleitet. Für die Ausbreitung entlang der z-Koordinate gilt

$$\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{E}(0, \omega)e^{-ik(\omega)z}. \quad (13)$$

Dabei ist $\tilde{E}(0, \omega)$ das elektrische Feld bei $z = 0$. Die Materialeigenschaft steckt in der Dispersionsrelation $k = \omega n(\omega)/c$ in Form des Brechungsindex. Sie kann in der Umgebung der Zentralfrequenz ω_0 genähert werden. Die Wellenzahl $k(\omega)$ wird in eine Taylor-Reihe entwickelt,

$$k(\omega) = k(\omega_0) + \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \left. \frac{d^2k}{d\omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (14)$$

Der Brechungsindex wird somit im relevanten Spektralbereich genähert. Für die ersten Potenzen dieser Entwicklung ergeben sich einige wichtige Definitionen. Die Phasengeschwindigkeit

$$v_{ph} = \frac{k(\omega_0)}{\omega} = \frac{n(\omega_0)}{c} \quad (15)$$

ergibt sich aus der 0. Ordnung der Taylor-Entwicklung. Sie gibt an, mit welcher Geschwindigkeit sich die Phase des schnell oszillierenden elektrischen Feldes ausbreitet. Die Gruppengeschwindigkeit

$$v_{gr} = \left(\left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_0} \right)^{-1} \quad (16)$$

beschreibt die Geschwindigkeit der Einhüllenden eines Pulses. Entsprechend kann der Gruppenindex definiert werden als

$$n_{gr}(\omega_0) = n(\omega_0) + \omega \left. \frac{dn}{d\omega} \right|_{\omega_0}. \quad (17)$$

Die CEP ändert sich bei der linearen Propagation mit

$$\Delta\varphi_{CE} = \omega \left(\frac{1}{v_{ph}} - \frac{1}{v_{gr}} \right) z. \quad (18)$$

Der Term in 2. Potenz $\left. \frac{d^2k}{d\omega^2} \right|_{\omega_0}$ wird als *group velocity dispersion* (GVD) bezeichnet. Die GVD wird meist in der Einheit fs²/mm angegeben. Die sogenannte *group delay dispersion* (GDD = GVD × z) wird in fs² angegeben. Ein Gaußpuls wird durch diesen Term gechirpt, wobei die Einhüllende ein Gaußpuls bleibt. Die Pulsdauer bei Propagation durch ein Medium der Länge z ist

$$t^{FWHM}(z) = t^{FWHM}(0) \sqrt{1 + \frac{(4\log(2)GVD z)^2}{t^{FWHM}(0)^4}}. \quad (19)$$

Dabei ist $t^{FWHM}(0)$ die Pulsdauer eines Bandbreite-begrenzten Gaußpulses.

Als Beispiel: MgF₂ hat bei 720 nm eine GVD von 23 fs²/mm [65]. Ein 5 fs Gaußpuls hat nach der Propagation durch ein 100 μm dickes MgF₂-Plättchen eine Pulsdauer von 5.2 fs, bei einem 1 mm dicken MgF₂-Plättchen ergeben sich bereits 14 fs. Der Puls ist positiv gechirpt, das heißt, blaue Frequenzen werden gegenüber den roten Frequenzen verzögert. Eine Übersicht für weitere Dielektrika ist in Tabelle 1 zu finden. Auf Grund der geringen Dispersion eignet sich 100 μm dickes MgF₂ besonders für die in Kapitel 6 beschriebene Erzeugung ultrakurzer DUV-Pulse.

	0.1 mm	1 mm
MgF₂	5.2	14
Quarzglas	5.5	24
SiO₂	5.7	28
Al₂O₃	6.3	39
MgO	7.4	55

Tabelle 1: Pulsdauer eines Bandbreite-begrenzten 5 fs Pulses nach Propagation durch ein Dielektrikum der Dicke z in fs nach Gleichung 19. Die jeweilige GVD ist in der Materialübersicht in Tabelle 3 zu finden.

Die Form eines Pulses ändert sich durch höhere Terme der Taylor-Entwicklung. Durch die 3. Ordnung können Vor- oder Nachpulse erzeugt werden.

2.4 Nichtlineare Pulspropagationsgleichung

Die Maxwellgleichungen bilden die Grundlage der Wellenoptik. In der linearen und klassischen nichtlinearen Optik werden freie Ladungen und Ströme für gewöhnlich nicht betrachtet [66]. In der Starkfeldphysik spielen sie eine wichtige Rolle, weshalb sie hier nicht vernachlässigt werden sollen. In differentieller Form haben die makroskopischen Maxwellgleichungen die Form [67]:

- Gaußsches Gesetz: $\text{div } \vec{D} = \rho_{frei}$,
- Gaußsches Gesetz für Magnetfelder: $\text{div } \vec{B} = 0$,
- Faradaysches Induktionsgesetz: $\text{rot } \vec{E} + \frac{\partial \vec{B}}{\partial t} = 0$,
- Ampèresches Gesetz: $\text{rot } \vec{H} - \frac{\partial \vec{D}}{\partial t} = \vec{j}_{frei}$.

Dabei ist \vec{E} die elektrische Feldstärke, \vec{D} die dielektrischen Verschiebung, \vec{B} die magnetische Flussdichte und \vec{H} die magnetische Feldstärke. Die Größen ρ_{frei} und \vec{j}_{frei} sind die Ladungsdichte und die Stromdichte von Ladungen, die nicht von den makroskopischen Feldern abgedeckt werden. Aus den Maxwellgleichungen wird nun die Wellengleichung für das elektrische Feld hergeleitet. Das magnetischen Feld hat in dieser Arbeit keine besondere Bedeutung und wird deshalb nicht weiter betrachtet. Unter Anwendung des Differentialoperators rot auf das Faradaysche Induktionsgesetz und durch Einsetzen des Ampèreschen Gesetzes folgt die Gleichung

$$-\text{rot rot } \vec{E}(\vec{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E} + \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P} + \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} \vec{j}_{frei}. \quad (20)$$

Die linke Seite der Gleichung 20 lässt sich zerlegen in:

$$-\text{rot rot } \vec{E} = \Delta \vec{E} - \text{grad div } \vec{E} = \Delta \vec{E} - \frac{1}{\epsilon_0} \text{grad } \rho_{frei} + \frac{1}{\epsilon_0} \text{grad div } \vec{P} \cong \Delta \vec{E}. \quad (21)$$

Die Näherung ist gerechtfertigt, da die freien Ladungsträger keinen Beitrag liefern, solange Elektronen (e) und Löcher (h) nicht wesentlich voneinander getrennt werden. Bei Mittelung über makroskopische Volumina ergibt sich $\rho_{frei} = \rho_{frei}^e + \rho_{frei}^h = 0$. Die Divergenz der Polarisation wird relevant bei der Betrachtung von vektoriiellen Effekten bzw. bei starker Fokussierung. Dies ist nicht relevant für die gegebene Geometrie innerhalb dieser Doktorarbeit. Im weiteren Verlauf wird das elektrische Feld als skalares Feld angenommen und die

Bezeichnung für den Strom wird vereinfacht zu $j = j_{frei}$. Somit nimmt die Wellengleichung die Form

$$\Delta E(\vec{r}, t) = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E + \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} P + \mu_0 \frac{\partial}{\partial t} j \quad (22)$$

an. Diese Gleichung wird durch Fourier-Transformation in den Frequenzbereich ($\partial/\partial t = i\omega$) übertragen und es ergibt sich

$$\Delta \tilde{E}(\vec{r}, \omega) = -\frac{\omega^2}{c^2} \tilde{E} - \mu_0 \omega^2 \tilde{P} + i\mu_0 \omega \tilde{j}. \quad (23)$$

Durch Aufspaltung der Polarisation in einen linearen und nichtlinearen Anteil $\tilde{P} = \epsilon_0 \chi^{(1)} E + \tilde{P}^{NL}$, der Einführung des linearen Brechungsindex $n(\omega)^2 = 1 + \chi^{(1)}$ und der Dispersionsrelation $k(\omega) = \omega n(\omega)/c$ folgt

$$\Delta \tilde{E}(\vec{r}, \omega) + k^2(\omega) \tilde{E} = -\mu_0 \omega^2 \tilde{P}^{NL} + i\mu_0 \omega \tilde{j}. \quad (24)$$

Weiterhin wird der Laplace-Operator aufgespalten in die z-Komponente und einen transversalen Anteil. Anschließend wird eine Fourier-Transformation in den transversalen Koordinaten durchgeführt, somit ergibt sich die Wellengleichung

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial z^2} + \underbrace{k^2 - k_\perp^2}_{=k_z^2(\omega, k_\perp)} \right) \tilde{E}(z, k_\perp, \omega) = -\mu_0 \omega^2 \tilde{P}^{NL} + i\mu_0 \omega \tilde{j}. \quad (25)$$

Daraus lässt sich eine Differentialgleichung erster Ordnung gewinnen indem rückwärts propagierende Felder vernachlässigt werden [68, 69]. Hierbei erfolgt die Zerlegung

$$(\Delta + k_z^2) = \underbrace{\left(\frac{\partial}{\partial z} - ik_z \right)}_{\sim -2ik_z} \left(\frac{\partial}{\partial z} + ik_z \right). \quad (26)$$

Damit ergibt sich die unter der englischen Bezeichnung bekannte *unidirectional pulse propagation equation* (UPPE) [68, 70]:

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{E}(z, k_\perp, \omega) = -ik_z(k_\perp, \omega) \tilde{E} - \frac{\mu_0 \omega}{2k_z} (i\omega \tilde{P}^{NL} + \tilde{j}). \quad (27)$$

Im mit der Gruppengeschwindigkeit v_{gr} mitbewegten Bezugssystem folgt

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{E}(z, k_\perp, \omega) = i \left[\frac{\omega}{v_{gr}} - k_z(k_\perp, \omega) \right] \tilde{E} - \frac{\mu_0 \omega}{2k_z} (i\omega \tilde{P}^{NL} + \tilde{j}). \quad (28)$$

Diese Gleichung ist eine nichtlineare Differentialgleichung erster Ordnung. Die Nichtlinearität steckt in der Polarisation \tilde{P}^{NL} und in der Stromdichte \tilde{j} , die jeweils von Potenzen des

elektrischen Feldes abhängen können. Die Polarisation wird häufig durch eine instantane Antwort dritter Ordnung modelliert. Der Strom kann im einfachsten Fall im Rahmen des Drude-Modells behandelt werden [70], welches im Unterkapitel 2.6 eingeführt wird.

Im Folgenden wird die Gleichung 27 vereinfacht, um ein anschauliches Bild zu erlangen. Im Limes eines kleinen Propagationsschrittes δz ergibt sich für die nichtlineare Propagation unter der Vernachlässigung von Beugung ($k_{\perp} = 0$) die Gleichung

$$\tilde{E}(\delta z, \omega) = \tilde{E}(0, \omega) - \frac{\mu_0 \omega \delta z}{2k_z(\omega)} \left[i\omega \tilde{P}^{NL}(0, \omega) + \tilde{j}(0, \omega) \right]. \quad (29)$$

Nun lassen sich einfache Aussagen zur Wirkung der Nichtlinearitäten treffen. In einem einfachen Beispiel wird die folgende Anfangssituation betrachtet: \tilde{E} , \tilde{P}^{NL} und \tilde{j} haben bei $z = 0$ jeweils eine Phase von 0 und einen beliebigen Betrag. Wird ein kleiner Propagationsschritt δz berechnet, so ergibt sich mit Hilfe der Gleichung 29 das Folgende: Die nichtlineare Polarisation enthält in der Propagationsgleichung die Phase $\arg(-i) = -\pi/2$. Somit wird die Phase des elektrischen Feldes infinitesimal im Uhrzeigersinn gedreht. Der Betrag von \tilde{E} ändert sich nicht. Der Strom enthält in der Gleichung eine Phase von $\arg(-1) = \pi$. Das führt zu einer Verkleinerung der Amplitude des elektrischen Feldes und entspricht einer Absorption. In Abb. 3 wird dieses Beispiel in der komplexen Ebene veranschaulicht. Diese Art der Analyse der Wellengleichung bietet einen anschaulichen Zugang, um Propagationseffekte darzustellen. Die Darstellung der nichtlinearen Propagation ist in der Literatur bekannt als Vibrationsdiagramm [71].

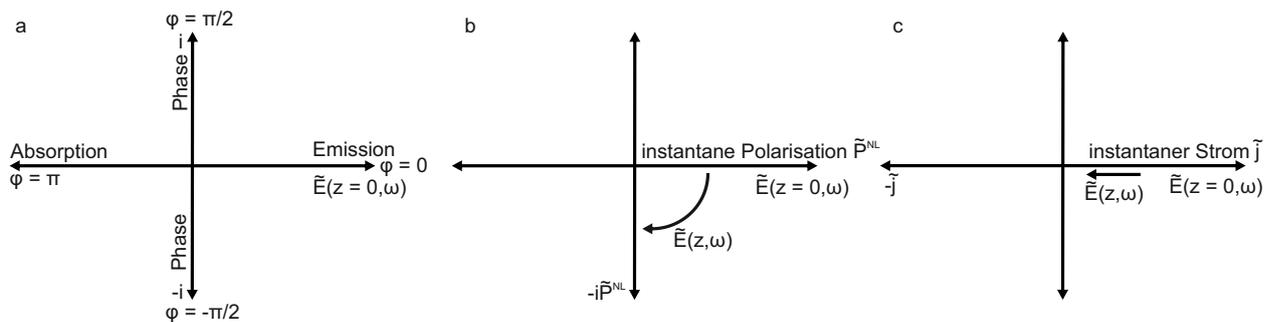


Abbildung 3: Vibrationsdiagramm zur Veranschaulichung der Wirkungsweise der nichtlinearen Wellengleichung. In (a) werden Bezeichnungen in der komplexen Ebene definiert. Die Worte Absorption, Emission und Phase beschreiben die Wirkung, die das elektrische Feld $\tilde{E}(0, \omega)$ erfährt. (b) Die instantane, nichtlineare Polarisation \tilde{P}^{NL} ändert die Phase von \tilde{E} und führt zu einer Drehung des elektrischen Feldes im Uhrzeigersinn. (c) Ein instantaner Strom \tilde{j} resultiert in der Absorption von \tilde{E} .

2.5 Effekte der nichtlinearen Optik

Der folgende Abschnitt ist angelehnt an das Buch „Nonlinear Optics“ von R. W. Boyd [66].

Die Elektronen eines Kristalls befinden sich in einem periodischen Potential. Eine rein lineare Polarisation $\vec{P}(t) = \vec{P}^{(1)}(t)$ liefert **nur** das quadratische Potential, was bedeutet, dass jeder Festkörper über eine nichtlineare Polarisation verfügt. Mit steigender Intensität nimmt die Auslenkung der Elektronen im Potential zu. Bei kleinen Intensitäten ist eine Approximation des Potentials durch eine Parabel ausreichend (lineare Optik). Bei höheren Intensitäten (in Isolatoren $\sim 10^{12}$ W/cm²) sind weitere Taylor-Terme $\vec{P}^{(n)}(t)$ notwendig, um die Polarisation $\vec{P}(t)$ vollständig zu erfassen.

Mit Hilfe der Störungstheorie lässt sich die Taylorentwicklung von $\vec{P}(t)$ analytisch erfassen. Die Störungstheorie kann sowohl auf klassische als auch auf quantenmechanische Modelle angewandt werden. Hier wird der klassische anharmonische Oszillator behandelt, um das grundlegende Konzept der nichtlinearen Optik einzuführen. Befindet sich ein Elektron im ortsabhängigen Potential $\Phi(x) = -\int F(x)dx = m\Omega^2 x^2/2 + max^3/3$, so ist die Bewegungsgleichung eines Elektrons mit Masse m und Ladung e im getriebenen anharmonischen Oszillator gegeben durch

$$\ddot{x} + 2\gamma\dot{x} + \Omega^2 x + ax^2 = -\frac{e}{m}E(t) \quad (30)$$

mit der Dämpfungskonstanten γ und dem reellen Vorfaktor a , der die Stärke der Anharmonizität beschreibt. Die Resonanzfrequenz des linearen Oszillators ist Ω . Zur Lösung mit Hilfe der Störungstheorie wird der Parameter $\lambda \in [0, 1]$ eingeführt, welcher die Stärke der Störung charakterisiert. Das elektrische Feld wird ersetzt durch $\lambda E(t)$ und der Ort wird in die Reihe $x(t) = \lambda x^{(1)} + \lambda^2 x^{(2)} + \lambda^3 x^{(3)} + \dots$ entwickelt. Durch einsetzen der Reihenentwicklung in Gleichung 30 und Sortierung nach Potenzen in λ ergeben sich für die ersten drei Ordnungen die Gleichungen

$$\begin{aligned} \ddot{x}^{(1)} + 2\gamma\dot{x}^{(1)} + \Omega^2 x^{(1)} &= -\frac{e}{m}E(t), \\ \ddot{x}^{(2)} + 2\gamma\dot{x}^{(2)} + \Omega^2 x^{(2)} + a[x^{(1)}]^2 &= 0, \\ \ddot{x}^{(3)} + 2\gamma\dot{x}^{(3)} + \Omega^2 x^{(3)} + 2ax^{(1)}x^{(2)} &= 0. \end{aligned} \quad (31)$$

Dabei wird verlangt, dass alle Terme einer Potenz der Reihenentwicklung jeweils für sich die Gleichung 30 lösen. Die erste Ordnung entspricht der Gleichung des angetriebenen, gedämpften, harmonischen Oszillators. Die Lösung für den Lorentz-Oszillator wird im Frequenzbereich durch Fourier-Transformation der Gleichung 31.1 bestimmt,

$$\tilde{x}^{(1)}(\omega) = -\frac{e}{m} \frac{\tilde{E}(\omega)}{\Omega^2 - \omega^2 + i\omega 2\gamma}. \quad (32)$$

Mit dieser Lösung kann schließlich die zweite Ordnung der Störungstheorie gelöst werden. Analog wird für die höheren Ordnungen vorgegangen.

Die lineare Polarisation ist gegeben durch $P^{(1)}(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)}(\omega) \tilde{E}(\omega) = -Nex^{(1)}(\omega)$. Somit folgt für die lineare Suszeptibilität der Lorentz-Oszillator

$$\chi^{(1)}(\omega) = -\frac{Ne^2}{\epsilon_0 m} \frac{1}{\Omega^2 - \omega^2 + i\omega 2\gamma}. \quad (33)$$

Entsprechend ergibt sich für die nichtlineare Suszeptibilität zweiter Ordnung für die Summe von zwei Frequenzen

$$\chi^{(2)}(\omega_1 + \omega_2, \omega_1, \omega_2) = -\frac{Ne^3 a}{\epsilon_0 m^2} \frac{1}{D(\omega_1 + \omega_2)D(\omega_1)D(\omega_2)}. \quad (34)$$

Dabei wird die Abkürzung $D(\omega_j) = \Omega^2 - \omega_j^2 + i\omega_j 2\gamma$ eingeführt. Für $\chi^{(2)}$ gibt es drei Möglichkeiten resonant zu sein, $\omega_1 + \omega_2 = \Omega$, $\omega_1 = \Omega$ oder $\omega_2 = \Omega$. Es wird noch einmal hervorgehoben, dass schon das Potential $\sim ax^3$ unendlich viele Ordnungen enthält, also alle ganzzahligen vielfachen der Grundfrequenz erzeugt werden können (harmonische Erzeugung). In einem zentrosymmetrischen Potential können hingegen nur ungerade Harmonische erzeugt werden. Zentrosymmetrisch sind amorphe Festkörper und Kristalle der Punktgruppen C_{2h} , C_{4h} , C_{6h} , D_{2h} , D_{4h} , D_{6h} , D_{3d} , T_h , O_h , S_2 und S_6 in Schoenflies-Notation.

Suszeptibilität und Antwortfunktion

Die Gleichungen dieses Abschnitts und insbesondere deren Notation sind dem Buch „The Elements of Non-linear Optics“ von P. Butcher und D. Cotter [61] entnommen worden.

Die nichtlineare Suszeptibilität ist im Allgemeinen ein Tensor $(n+1)$ -ter Stufe (n bezeichnet die nichtlineare Ordnung), der im dreidimensionalen Raum $(n+1)^3$ Einträge enthält, wobei jeder Eintrag von der Frequenz abhängt. Es gibt jedoch Bedingungen, also Symmetrien, die die Anzahl der Freiheitsgrade einschränkt. Die Tatsache, dass elektrische Felder reell sind, führt zu der Bedingung

$$\chi_{\mu, \alpha_1, \dots, \alpha_n}^{(n)}(\omega_\sigma, \omega_1, \dots, \omega_n) = \left[\chi_{\mu, \alpha_1, \dots, \alpha_n}^{(n)}(-\omega_\sigma, -\omega_1, \dots, -\omega_n) \right]^*. \quad (35)$$

Die Symmetrie der Zeitumkehr (T-Symmetrie) liefert interessanterweise den gleichen Zusammenhang. Eine weitere Symmetrie ist die intrinsische Permutationssymmetrie. Für $\chi^{(n)}$ muss gelten

$$\chi_{\mu, \alpha_1, \dots, \alpha_{n-1}, \alpha_n}^{(n)}(\omega_\sigma, \omega_1, \dots, \omega_{n-1}, \omega_n) = \chi_{\mu, \alpha_1, \dots, \alpha_n, \alpha_{n-1}}^{(n)}(\omega_\sigma, \omega_1, \dots, \omega_n, \omega_{n-1}). \quad (36)$$

Die Bedeutung dieser Symmetrie ist, dass es keinen Unterschied machen darf, welches elektrische Feld, $\tilde{E}_{\alpha_{n-1}}$ oder \tilde{E}_{α_n} , an welcher Stelle im Produkt steht.

Der Zusammenhang zwischen der Polarisierung und dem elektrischen Feld wird im Zeitbereich durch die Antwortfunktion \mathbf{R} beschrieben. Sie beschreibt die Reaktion eines Mediums bei Anregung mit einem elektrischen Feld. Die lineare Antwortfunktion erfüllt den allgemeinen Zusammenhang

$$\vec{P}^{(1)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau \mathbf{R}^{(1)}(\tau) \vec{E}(t - \tau). \quad (37)$$

Dabei ist $\mathbf{R}^{(1)}$ ein Tensor zweiter Stufe, welcher zwei Bedingungen erfüllen muss. Zum einen muss Kausalität gelten, d. h. $\mathbf{R}(\tau < 0) = 0$ und zum anderen muss gewährt sein, dass die Felder \vec{E} und \vec{P} reelle Größen sind. Diese Bedingungen sind analog zu den Symmetrien der Suszeptibilität. Für eine beliebige nichtlineare Ordnung gilt allgemein:

$$P_{\mu}^{(n)}(t) = \epsilon_0 \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \dots \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_n \mathbf{R}_{\mu, \alpha_1, \dots, \alpha_n}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n) E_{\alpha_1}(t - \tau_1) \dots E_{\alpha_n}(t - \tau_n). \quad (38)$$

Hier werden Vektoren durch ihre Komponenten mit Indizes bezeichnet. Die Antwortfunktion n -ter Ordnung ist ein Tensor vom Rang $n+1$. Der Zusammenhang zwischen der nichtlinearen Suszeptibilität, definiert im Frequenzbereich, und der Antwortfunktion ist durch Fourier-Transformation gegeben,

$$\chi^{(n)}(\omega_{\sigma}, \omega_1, \dots, \omega_n) = \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_1 \dots \int_{-\infty}^{\infty} d\tau_n \mathbf{R}^{(n)}(\tau_1, \dots, \tau_n) \exp\left(-i \sum_{j=1}^n \omega_j \tau_j\right). \quad (39)$$

Im Frequenzbereich gilt allgemein

$$P_{\mu}^{(n)}(\omega) = \epsilon_0 \sum_{\alpha_1, \dots, \alpha_n} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_1 \dots \int_{-\infty}^{\infty} d\omega_n \chi_{\mu, \alpha_1, \dots, \alpha_n}^{(n)}(\omega_{\sigma}, \omega_1, \dots, \omega_n) E_{\alpha_1}(\omega_1) \dots E_{\alpha_n}(\omega_n) \delta(\omega - \omega_{\sigma}), \quad (40)$$

wobei $\omega_{\sigma} = \omega_1 + \dots + \omega_n$ ist.

Im Folgenden werden diese allgemeinen Zusammenhänge auf wichtige Fälle angewandt. Im ersten Beispiel werden skalare Felder und ein amorphes, nichtlineares Medium angenommen. Dann vereinfacht sich Gleichung 38 für die nichtlineare Polarisierung dritter Ordnung im adiabatischen Limit (instantane Antwortfunktion) zu

$$P^{(3)}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t). \quad (41)$$

Die Antwortfunktion hat dabei die Form $\mathbf{R}^{(3)} = \chi^{(3)} \delta(\tau_1) \delta(\tau_2) \delta(\tau_3)$ mit der Deltadistribution $\delta(\tau)$. Für die Suszeptibilität ergibt sich die Konstante $\chi^{(3)}$. Aus einer instantanen Antwort folgt, dass die Suszeptibilität nicht von der Frequenz abhängt. Dieser Fall ist für Frequenzen weit außerhalb der Resonanzen gewährleistet und bekannt als Kleinman-Symmetrie.

In einem zweiten Beispiel wird die lineare Antwortfunktion einer Lorentzfunktion betrachtet. Die Antwortfunktion kann durch Fourier-Transformation der Suszeptibilität berechnet werden. In Abb. 4a ist der Brechungsindex von Saphir dargestellt. Er wurde aus verschiedenen Quellen zusammengestellt, um die ganze Bandbreite der Resonanz im UV-Bereich abzudecken. Die zugehörige Antwortfunktion befindet sich in Abb. 4b. Sie lässt sich durch die lineare Antwortfunktion eines Lorentz-Oszillators annähern. Hierzu wird die Fit-Funktion

$$\mathbf{R}(t) = \begin{cases} 0, & t < 0 \\ Ae^{-t/t_l} \sin(\omega_r t) & t \geq 0 \end{cases} \quad (42)$$

verwendet. Der optimale Wert für die Abklingzeit ist $t_l = 0.29$ fs und für die Resonanzfrequenz ergibt sich $\omega_r = 10.6$ eV. Dieser Wert liegt etwas über der Bandlücke von 8.7 eV [72] und entspricht der elektronischen Resonanz.

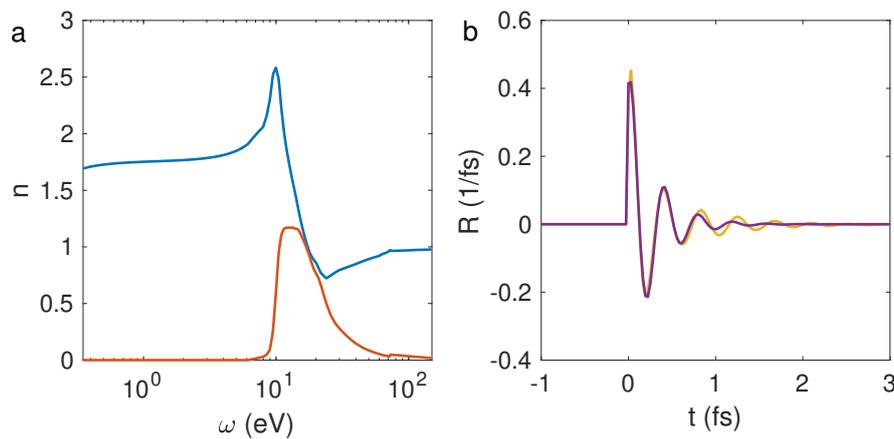


Abbildung 4: (a) Brechungsindex von Saphir [73, 74, 75], Realteil n' (blau) und Imaginärteil n'' (rot). (b) Die zugehörige Antwortfunktion (gelb) und Fit-Funktion (violett).

Nichtlineare Effekte dritter Ordnung

Einen besonderen Stellenwert haben in dieser Arbeit die nichtlinearen Prozesse dritter Ordnung, die von zwei identischen VIS-IR-Pulsen ausgehen. Sie werden hier zunächst als ebene Wellen der Kreisfrequenz ω modelliert, die sich nicht-kollinear, d. h. mit unterschiedlichen Wellenvektoren ausbreiten. Die Polarisation des elektrischen Feldes ist linear und senkrecht zur Ausbreitungsebene in Analogie zur experimentellen Strahlgeometrie (vgl. Abb. 11). Die komplexen elektrischen Felder sind definiert durch $A = A(z, y, t) = A_0 e^{i\omega t} e^{+ik_y y} e^{-ik_z z}$ und $B = B(z, y, t) = B_0 e^{i\omega t} e^{-ik_y y} e^{-ik_z z}$. Die Gesamtheit der nichtlinearen Polarisation 3. Ord-

nung in einem isotropen Medium, wie z. B. einem amorphen Dielektrikum, mit instantaner Antwort ist nach Gleichung 41 gegeben durch

$$P^{(3)}(z, y, t) = \epsilon_0 \chi^3 \frac{1}{8} (A + A^* + B + B^*)^3. \quad (43)$$

Die nichtlineare Polarisation lässt sich in verschiedene Prozesse einteilen (Der Vorfaktor wird vernachlässigt, um die Übersicht zu verbessern.):

- THG: $A^3 + B^3 + A^2B + AB^2 + c.c.$,
- SD: $3AAB^* + 3BBA^* + c.c.$,
- SPM: $3AAA^* + 3BBB^* + c.c.$,
- XPM: $6AA^*B + 6BB^*A + c.c.$.

Dabei steht *c.c.* für die komplex konjugierten Anteile, THG⁸ wird in dieser Arbeit als Abkürzung für die zeitliche dritte Harmonische verwendet, SD ist die Selbstbeugung, besser bekannt als *self-diffraction* sowie SPM und XPM sind jeweils Selbst- und Kreuzphasenmodulation. Die SD sind räumliche Harmonische bei der Grundfrequenz, die sich auf Grund der nicht-kollinearen Geometrie ergeben. Der Phasenterm $(e^{i\omega t})^3 = e^{i3\omega t}$ entspricht der sehr bekannten zeitlichen dritten Harmonischen, während der Term $(e^{ik_y y})^3 = e^{i3k_y y}$ zur räumlichen dritten Harmonischen führt. Die THG besteht wiederum aus mehreren räumlichen Harmonischen.

Experimentell enthalten die Frequenz-entarteten Prozesse SD, SPM und XPM sowohl die elektronische (instantane) Antwort, die hier modelliert wird, als auch eine Verzögerte Komponente des Ionengitters durch Ramanstreuung, bekannt als Raman-Kerr-Effekt [68]. Die THG ist für die Beobachtung ultraschneller, elektronischer Prozesse besser geeignet, da sie nur die elektronische Antwort enthält.

Die Phase jedes Prozesses ergibt sich aus der Summe der Phasen der einzelnen beteiligten Felder. Die Phase wird durch komplexe Konjugation mit -1 multipliziert. Somit ergibt sich für die Phase der SD-Ordnung AAB^* : $\phi_{AAB^*} = \omega t + 3k_y y - k_z z$. Benachbarte räumliche Harmonische unterscheiden sich um den Wellenvektor $2k_x$. Für die Phase der THG-Ordnung A^2B ergibt sich die Phase $\phi_{AAB} = 3\omega t + k_y y - 3k_z z$. Die Frequenz ist hier 3ω . Zum Vergleich sind die Effekte dritter Ordnung in Abb. 5 graphisch durch Vektoraddition dargestellt.

Die Selbstphasenmodulation $AA^*A = |A|^2 A$ ist bekannt als optischer Kerr-Effekt. Die Phase von A ist dabei abhängig von der Intensität. Dies wird mit Hilfe des nichtlinearen Brechungsindex n_2 beschrieben. Für den gesamten Brechungsindex folgt somit $n(I) = n_0 + n_2 I$, wobei

⁸THG: Abk. für *third harmonic generation*.

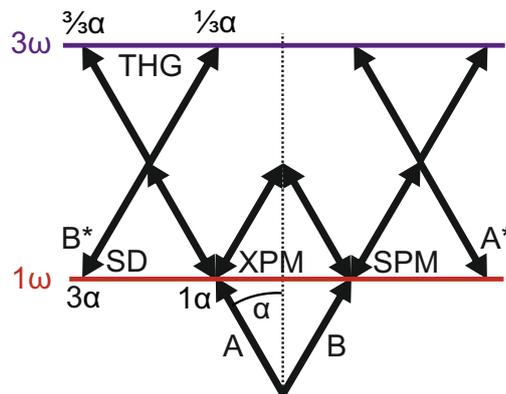


Abbildung 5: Darstellung der nichtlinearen Effekte dritter Ordnung in nicht-kollinearer Geometrie durch Vektoraddition. Die Pfeile stellen die Wellenvektoren der fundamentalen Felder A und B dar. Benachbarte Ordnungen der fundamentalen Frequenz unterscheiden sich um den Winkel 2α , benachbarte Ordnungen der THG unterscheiden sich um den Winkel $\frac{2}{3}\alpha$.

hier n_0 der lineare Brechungsindex ist. Der nichtlineare Brechungsindex ist ein Materialparameter, der im allgemeinen abhängig von der Frequenz ist. Experimentell kann n_2 z. B. mit der z-Scan Technik bestimmt werden [76]. Dabei wird die Leistung gemessen, die auf eine Photodiode mit wohl definierter Blende trifft. Das nichtlineare Medium wird entlang der z-Koordinate durch den Fokus gefahren. Aus der Intensitäts- und z-abhängigen Fokussierung durch den Kerr-Effekt kann n_2 bestimmt werden. Weitere Methoden beruhen auf der Untersuchung von Maker-Interferenzen [77], 3-Wellen-Mischung mit 2 Strahlen [78] und zeitaufgelöste Interferometrie [79].

Phasenanpassung

Zunächst wird die Problematik der Phasenanpassung am Beispiel der Erzeugung und Ausbreitung der dritten Harmonischen erklärt. Die THG wird in einem Medium mit Brechungsindex $n_0 = n(\omega)$ und $n_{THG} = n_0 + \Delta n = n(3\omega)$ erzeugt. Folglich ist die Phasengeschwindigkeit der THG geringer als die des erzeugenden Feldes und die Phasen verschieben sich zueinander. Bei einer Phasenverschiebung von π ergibt sich destruktive Interferenz zwischen bereits erzeugter und neu erzeugter THG. Das führt zu einer Rückkonversion von der THG in das erzeugende Feld. THG ist auf diese Weise nicht effizient. In vielen Fällen der nichtlinearen Optik ist es die Herausforderung $\Delta n = 0$ für möglichst viele Frequenzen zu erreichen.

Zur allgemeinen Untersuchung der Phasenanpassung werden Energie- und Impulserhaltungssatz herangezogen. Die Energieerhaltung eines beliebigen nichtlinearen Prozesses ist gegeben durch

$$\omega_\sigma = \sum_{j=1}^n \omega_j. \quad (44)$$

Dabei ist ω_σ die erzeugte Frequenz eines Prozesses n-ter Ordnung mit den beteiligten Feldern der Frequenzen ω_j . Entsprechend kann der Impulserhaltungssatz formuliert werden:

$$\vec{k}_\sigma = \sum_{j=1}^n \vec{k}_j + \Delta\vec{k} = \sum_{j=1}^n \frac{\omega_j}{c} n(\omega_j) \vec{e}_j + \Delta\vec{k} \quad (45)$$

mit dem Einheitsvektor \vec{e}_j . Der an das Medium übertragene Impuls ist $\Delta\vec{k}$. Für den Fall $\Delta\vec{k} = 0$ ist Phasenanpassung erreicht. Die Kohärenzlänge ist definiert als [61]

$$L_{koh} = \frac{\pi}{|\vec{k}_\sigma - \sum_{j=1}^n \vec{k}_j|} = \frac{\pi}{|\Delta\vec{k}|}. \quad (46)$$

Für die Erzeugung der THG ergibt sich der Spezialfall

$$L_{koh}^{THG} = \frac{\lambda^{THG}}{2|n(\lambda^{THG}) - n(3\lambda^{THG})|}. \quad (47)$$

Die Bedeutung von L_{koh} ist im Anhang in Abb. 51 graphisch dargestellt. Bei der Wellenlänge $\lambda^{THG} = 240 \text{ nm}$ beträgt die Kohärenzlänge $3.9 \mu\text{m}$ in MgF_2 . Sie ist in Tabelle 2 für verschiedene Dielektrika aufgelistet.

	MgF_2	Quarzglas	SiO_2	Al_2O_3	MgO
L_{koh}^{THG} in μm	3.9	2.0	2.0	1.3	0.9

Tabelle 2: Kohärenzlänge der THG für verschiedene Dielektrika. Die relevanten Brechungsindizes sind in der Materialübersicht in Tabelle 3 zu finden.

2.6 Ionisation und Strom

In einem Isolator kann ein Strom fließen, wenn ein intensiver Laserpuls Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband anregt. Es gibt verschiedene quantenmechanische Ansätze, wie diese Elektronendynamik behandelt werden kann. Die zeitabhängige Schrödingergleichung⁹ kann gelöst werden [80, 81]. Sie birgt den Nachteil, dass gemischte Zustände nicht beschrieben werden können. Die Behandlung gemischter Zustände bzw. der Kohärenz wird durch die Einführung der Dichtematrix in Kombination mit der Von-Neumann-Gleichung möglich [82]. Mit dem entsprechenden Hamiltonoperator entspricht sie der Optischen- oder Halbleiter-Bloch-Gleichung [30, 83, 84]. Weiterhin können *ab initio* Simulation basierend auf der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie durchgeführt werden [85, 86]. Angesichts der Experimente, die für die vorliegende Doktorarbeit durchgeführt wurden, sind diese Theorien zu rechenaufwendig, um die makroskopische Propagation in Simulationen berücksichtigen zu können.

⁹Erwin Schrödinger bekam 1933 den Nobelpreis für Physik verliehen.

Eine klassische Behandlung der Ströme ist im Rahmen des Drude-Modells möglich [68, 70]. Das hat den Vorteil, dass der Rechenaufwand für Simulationen akzeptabel ist, jedoch sind im Gegenzug verschiedene Effekte nicht enthalten [87]. Im Drude-Modell werden angeregte Elektronen im Leitungsband als freies Elektronengas behandelt. Stöße führen zu einer Dämpfung des Stromes. Das Modell hat seinen Ursprung in der Beschreibung des linearen Brechungsindex von Metallen [88]. Die Nichtlinearität entsteht durch die zeitabhängige Ladungsdichte im Leitungsband in Gegenwart eines intensiven Laserpulses. Die Ionisation wird durch eine Rate modelliert. Als solche vernachlässigt sie die Vergangenheit der Materialreaktion im zeitabhängigen Laserfeld und führt zu einer monoton wachsenden Dichte von Ladungsträgern. Dies passt nicht gut zu den jüngsten Resultaten der Attosekunden-Spektroskopie in Dielektrika, die gezeigt haben, dass die Elektronendichte oszillierend wächst und sowohl aus einer irreversiblen, als auch aus einer reversiblen Komponente besteht [32, 89, 90, 91]. Auch Effekte, die aus der Bandstruktur resultieren, wie z. B. dynamische Bloch-Oszillationen [25] sind im Drude-Modell nicht enthalten. Effekte, wie z. B. Plasma-Defokussierung [70] und Brunel-Harmonische [92] werden hingegen vom Drude-Modell abgedeckt.

Für die Stromdichte im Rahmen des Drude-Modells gilt in skalarer Formulierung [68, 70]

$$\frac{\partial}{\partial t} j(\vec{r}, t) + \frac{1}{\tau_c} j = \frac{e}{m} \rho(\vec{r}, E, t) E(\vec{r}, t) \quad (48)$$

mit der zeitabhängigen Ladungsdichte ρ und der Dämpfung bzw. Stoßzeit τ_c . Sie wird im Frequenzbereich gelöst durch

$$\tilde{j}(\vec{r}, \omega) = \frac{e\tau_c}{m} \frac{FT_{t \rightarrow \omega}[\rho(\vec{r}, E, t) E(\vec{r}, t)]}{1 + i\omega\tau_c}. \quad (49)$$

Die Fourier-Transformation wird hier mit dem Kürzel $FT_{t \rightarrow \omega}$ bezeichnet.

Die Ionisationsrate ist abhängig von Laser- und Materialparametern. Grundsätzlich lassen sich zwei Regime unterscheiden. Hierfür dient der Keldysh-Parameter [93]

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_{ip}}{2U_p}}, \quad (50)$$

der die Ionisationsenergie E_{ip} ins Verhältnis zum ponderomotiven Potential $U_p \sim I/\omega^2$ stellt. Im Fall $\gamma > 1$ erfolgt die Ionisation durch Multiphotonionisation. Dabei werden mehrere Photonen gleichzeitig absorbiert, um die Bandlücke zu überbrücken. Im Bereich $\gamma < 1$ dominiert die Tunnelionisation. In diesem Bereich kann das elektrische Feld als klassisches Feld ohne Quantisierung (Photonen) behandelt werden. In den Experimenten, die für die vorliegende Doktorarbeit durchgeführt wurden, gilt $\gamma \geq 3$.

2.7 Numerische Pulspropagation

Wie bereits im Unterkapitel 2.6 erwähnt, stoßen quantenmechanische oder *ab initio* Simulationen im Bezug auf die experimentellen Rahmenbedingungen in dieser Arbeit an ihre Grenzen. Diese Simulationen sind geeignet für mikroskopische Simulationen einzelner oder weniger Atome. Hier sind die Herausforderungen die verhältnismäßig großen räumlichen Skalen. Das betrifft zum einen die makroskopische nichtlineare Propagation durch 100 μm dicke Dielektrika und zum anderen die nahezu-kollineare Strahlgeometrie (siehe Unterkapitel 3.3) die berücksichtigt werden müssen. Kollaborationen mit Arbeitsgruppen in der Festkörpertheorie wurden angestoßen. Jedoch bedarf es weiterer theoretischer Forschungsarbeit den Rechenaufwand für diese Art von Experiment zu optimieren.

Die Simulationen, die im Rahmen dieser Doktorarbeit durchgeführt wurden, basieren auf der Gleichung 28. Die UPPE wird numerisch mit dem Split-Step-Verfahren gelöst, wobei für den nichtlinearen Propagationsschritt das Adams-Bashforth-Schema zweiter Ordnung angewandt wird [68]. Die Nichtlinearität wird im Zeitbereich berechnet. Sie kann sowohl eine nichtlineare Polarisierung, als auch einen Strom in Form der Gleichung 49 enthalten. Die lineare Propagation geschieht im Frequenzbereich. Es werden Simulationen mit unterschiedlicher Dimensionalität durchgeführt. Zum einen werden Pulspropagationen implementiert, die eine transversale räumliche Komponente enthalten. Sie werden als 2D-Simulationen bezeichnet. Die 2D-Simulationen enthalten im Anschluss an die nichtlineare Propagation eine lineare Ausbreitung ins Fernfeld. Diese wird durch das Rayleigh-Sommerfeld-Beugungsintegral berechnet [94]. Zum anderen werden (quasi-) 1D-Simulationen durchgeführt, d. h. die Pulse werden als ebene Wellen angesetzt und es gibt nur die räumliche Propagation entlang der z-Koordinate. Eine 1D-Simulation kann die nicht-kollineare Strahlgeometrie der Experimente nicht reproduzieren. Jedoch eignet sie sich innerhalb dieser Arbeit für die Erzeugung der THG mit **einem** intensiven VIS-IR-Puls und die Erklärung der Entstehung von Doppelpulsen, siehe Unterkapitel 4.2. Der wesentliche Vorteil von 1D- gegenüber 2D-Simulationen ist, dass die Rechenzeit deutlich reduziert wird.

Bei 1D-Simulationen mit **zwei** Pulsen besteht das Problem, dass Verzögerungsscans das nichtlineare Messsignal, wie z. B. die THG, von beiden Pulsen enthalten. Somit entstehen subzyklen-abhängige Modulationen im Spektrum, die nicht den experimentellen Gegebenheiten entsprechen, sondern einer kollinearen Anordnung. Das Problem kann durch die Propagation von zwei gekoppelten Feldern gelöst werden. Im Kapitel 7 werden solche quasi-1D-Simulationen gezeigt. In der transienten Absorptions- und Dispersionspektroskopie dienen intensive VIS-IR-Pulse als Anregepulse und schwache DUV-Pulse als Abfragepulse. Innerhalb der Simulationen wird angenommen, dass sich der intensive VIS-IR-Puls, bezeichnet mit R, linear ausbreitet. Das entspricht der *undepleted pump* Näherung [66]. Die DUV-Ab-

fragepulse werden an das intensive VIS-IR-Feld gekoppelt. Im Fall einer instantanen Kerr-Nichtlinearität hat die Polarisierung die Form

$$P^{(3)}(z, t) \sim E_R(z, t)^2 E_{DUV}(z, t). \quad (51)$$

2.8 Pulscharakterisierung

Dieses Unterkapitel basiert inhaltlich in weiten Teilen auf dem Buch „Laser Spectroscopy 2: Experimental Techniques“ von W. Demtröder [95].

Schnelle Photodioden erreichen Anstiegszeiten von minimal 20 ps. Es gibt keine schnelleren elektronischen Schaltungen. Die Elektronik ist auf Geschwindigkeiten im GHz-Bereich limitiert. Auch Streak-Kameras sind auf eine Zeitauflösung von 1 ps limitiert. Die Charakterisierung von Femtosekundenpulsen wird durch optische Verfahren gelöst, wobei ein Duplikat des zu vermessenden Pulses als zeitliches *gate*¹⁰ dienen kann. Aus einer linearen Feldautokorrelation (Fourierspektrometer) kann das Spektrum bzw. die bandbreiten-limitierte Pulsdauer bestimmt werden. Durch den Einsatz eines nichtlinearen Elementes, z.B. durch Erzeugung der zweiten Harmonischen in einem KDP¹¹-Kristall (bekannt als *fringe-resolved autocorrelation*), können Abschätzungen zur Pulsdauer gemacht werden. Das Messsignal ist symmetrisch. Eine Rekonstruktion der spektralen Phase ist nicht möglich, aber unter Verwendung von Modellen, z.B. der Annahme eines Gaußpulses, kann der lineare Chirp (quadratische Phase) bestimmt werden. Diese Methode ist einfach im Labor zu implementieren und kostengünstig, da nur eine Photodiode als Detektor benötigt wird. Wird die Photodiode durch ein Spektrometer ersetzt und eine nicht-kollineare Strahlgeometrie gewählt, so wird daraus ein FROG-Setup [96]. *Frequency-resolved optical gating* (FROG), zu deutsch etwa frequenz-aufgelöstes optisches Ausschneiden, ist eine sehr erfolgreiche Methode mit einer Vielzahl von Varianten [97]. Auf FROG wird nachfolgend noch genauer eingegangen. Eine weitere Klasse von Methoden beruht auf der nichtlinearen Photoionisation von Atomen (*attosecond-streaking* [15, 16], RABBITT [8]), auf die hier nicht genauer eingegangen wird. Eine sehr interessante Methode ist die lineare Kreuzkorrelation mit einem bekannten Referenzpuls, die als *Fourier transform spectral interferometry* bekannt ist [98]. Bei dieser heterodynen spektralen Interferometrie muss das Spektrum des Referenzpulses \tilde{E}_1 das Spektrum des zu vermessenden Pulses \tilde{E}_2 abdecken. Die gemessene spektrale Intensität hängt mit den elektrischen Feldern folgendermaßen zusammen:

$$I(\omega) = \left| \tilde{E}_1(\omega) + \tilde{E}_2(\omega) \right|^2 = \left| \tilde{E}_1 \right|^2 + \left| \tilde{E}_2 \right|^2 + 2 \left| \tilde{E}_1 \right| \left| \tilde{E}_2 \right| \cos[\phi_2(\omega) - \phi_1(\omega)]. \quad (52)$$

¹⁰Übersetzung: Verschluss, Blende.

¹¹KDP: Abk. für Kaliumdihydrogenphosphat.

Dabei sind ϕ_1 und ϕ_2 die spektralen Phasen der elektrischen Felder. Die spektrale Interferometrie ist für diese Doktorarbeit besonders relevant, da sich die gemessenen DUV-Spektren aus zwei Pulsen mit konstanter Verzögerung zusammensetzen. Für den Fall, dass ein Referenzpuls existiert, ist diese Methode sehr effizient, da die spektrale Phase direkt aus dem Interferogramm ausgelesen werden kann, ohne der Notwendigkeit iterativer Algorithmen. Diesen Vorteil enthält auch die SPIDER-Technik [99]. SPIDER ist das englische Akronym für *spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction*. Die Technik ist in ihrer experimentellen Umsetzung anspruchsvoll. Zwei Kopien des zu charakterisierenden Pulses werden mit der Pulsverzögerung τ mit einem dritten Puls in einem nichtlinearen $\chi^{(2)}$ -Medium überlagert. Der dritte Puls ist linear geschirpt und enthält somit ein τ -abhängiges Spektrum $I_3(\omega_0 + \Omega(\tau))$. Die spektrale Phase kann analytisch aus der Messung

$$S(\omega, \tau) = I_1(\omega + \omega_0) + I_2(\omega + \omega_0 + \Omega(\tau)) + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos[\phi_1(\omega + \omega_0) - \phi_2(\omega + \omega_0 + \Omega(\tau)) - \omega\tau] \quad (53)$$

gewonnen werden. Abschließend ist noch der Dispersionsscan (D-Scan) zu nennen [100]. Hierbei wird der Chirp eines Pulses verändert, wobei in jedem Messschritt das Spektrum der zweiten Harmonischen aufgenommen wird.

FROG

Bei der FROG-Technik wird eine zweidimensionale Messspur aufgenommen. Sie kann im Allgemeinen beschrieben werden durch [96, 97]

$$I_{FROG}(\omega, \tau) = \left| \int_{-\infty}^{\infty} dt E(t) G(t - \tau) e^{i\omega\tau} \right|^2. \quad (54)$$

Es sollte an dieser Stelle angemerkt werden, dass $E(t)$ hier das komplexe Feld $E_+(t)$ beschreibt. Das optische *gate* $G(t)$ kann auf verschiedene Art und Weise erzeugt werden. Bei einem THG-FROG [101] wird die THG typischerweise in einem nicht-kollinearen Aufbau erzeugt und das Spektrum gemessen (siehe Abb. 6a). Das *gate* ist dann gegeben durch $G(t - \tau) = E^2(t - \tau)$, bei einem SD-FROG ist $G(t - \tau) = E(t - \tau)E(t - \tau)^*$ und bei einem SHG-FROG ist $G(t - \tau) = E(t - \tau)$. Diese einfachen Zusammenhänge gelten nur bei einer instantanen, nichtlinearen Antwort. Die Annahme ist für Isolatoren mit großer Bandlücke häufig gerechtfertigt. Weiterhin müssen alle Effekte, die während der Propagation durch das nichtlineare Medium den Puls verändern, wie z. B. Selbstphasenmodulation, vernachlässigbar sein.

Es gibt keinen analytischen Weg mit dem das komplexe Feld $E(t)$ aus der FROG-Messung bestimmt werden kann. Deshalb sind verschiedene iterative Verfahren entwickelt worden.

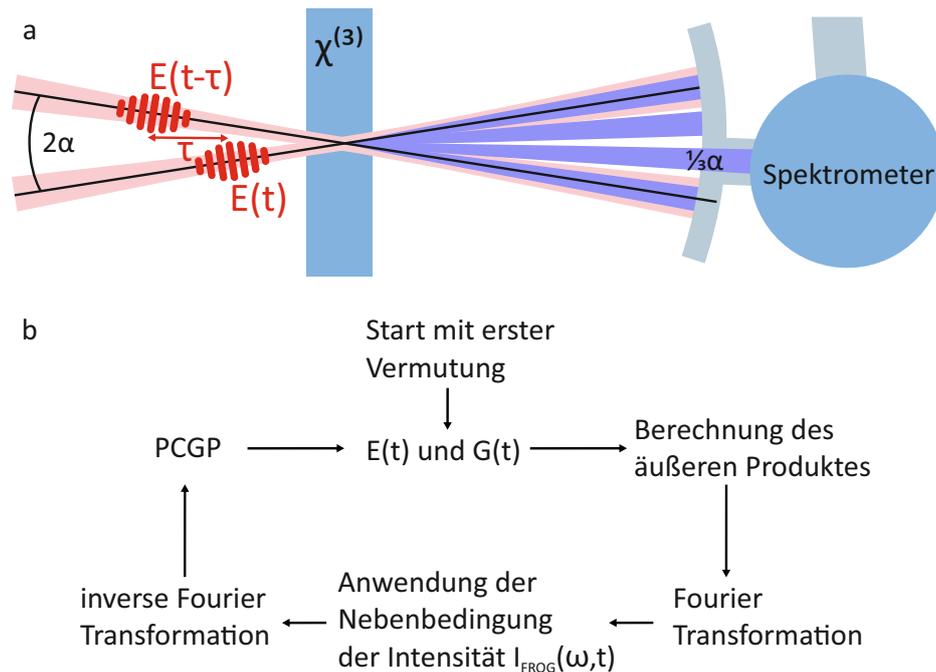


Abbildung 6: (a) Experimenteller Aufbau eines THG-FROG. (b) Schematische Darstellung des iterativen PCGP FROG-Algorithmus.

Häufig wird dabei abwechselnd die Fourier-Transformation und die inverse Fourier-Transformation angewandt. Im Frequenzbereich geht die Intensität der Messdaten als Nebenbedingung ein. Im Zeitbereich wird das Messsignal in $E(t)$ und $G(t)$ zerlegt. Das gelingt z. B. mit Hilfe des mathematischen Verfahrens *principal components generalized projections* (PCGP). Eine schematische Darstellung hierzu befindet sich in Abb. 6b.

Eine Methode den Fehler einer FROG-Rekonstruktion zu bestimmen ist das Bootstrapping-Verfahren [97]. Es ist ein statistisches Verfahren, bei dem immer nur ein Teil (z. B. die Hälfte) der gemessenen Datenpunkte für die Auswertung verwendet wird. Dabei muss es sich um eine zufällig ausgewählte Stichprobe aus der Gesamtheit der gemessenen Daten handeln. Die Rekonstruktion wird einige Male wiederholt. Aus der Fluktuation der gewonnenen elektrischen Felder lässt sich der Fehler zu jedem Zeitpunkt durch die Standardabweichung beschreiben.

3 Experimenteller Aufbau

Dieses Kapitel gibt einen detaillierten Einblick in den experimentellen Aufbau. Das Setup wurde im Verlauf der Doktorarbeit geplant und aufgebaut. Auf kleine Anpassungen des Setups wird in den jeweiligen Kapiteln noch einmal eingegangen.

3.1 Femtosekundenlaser

Im Labor steht der Arbeitsgruppe der Femtosekundenlaser „Femtopower Compact Pro“ der Firma Spectra-Physics (ehemals Femtolasers) zur Verfügung. Ein Foto des Lasers ist in Abb. 7c zu sehen. Er besteht aus einem Titan:Saphir-Oszillator, bei dem durch Kerr-Linsen-Modenkopplung breitbandige Pulse erzeugt werden. Darauf folgt ein Multipass-Verstärker, der auf dem CPA-Prinzip¹² [102] beruht. Es wird eine Ausgangsleistung von ca. 4 W bei einer Pulswiederholrate von 4 kHz erzielt und die Pulsdauer beträgt 25 fs.

Um die Pulsdauer auf ca. 5 fs zu verkürzen, werden die Pulse in einer mit Neon-Gas gefüllten Hohlleiter (Druck ~ 2 bar, Faserlänge 1 m) durch Selbstphasenmodulation spektral verbreitert [103]. Die Pulse sind hinter der Hohlleiter zunächst positiv chirpt. Zwei Paare chirpter Spiegel mit negativer Dispersion in zweiter und dritter Ordnung erzeugen nach Mehrfachreflexion negativ chirpte Pulse (siehe Abb. 7b). Das Spektrum hinter den chirpten Spiegeln ist in Abb. 7a dargestellt. Es überspannt den Spektralbereich von 500–900 nm. Die Durchschnittsleistung beträgt an dieser Stelle ~ 0.8 W, was einer Pulsenergie von etwa 200 μ J entspricht. Der gesamte Aufbau ist darauf ausgelegt, so wenig wie möglich optische Elemente mit positiver Dispersion zu verwenden. An Stelle von Linsen werden Optiken in Reflexion verwendet, wie z. B. gekrümmte Spiegel. Ausnahmen bilden die Strahlteiler, *wire-grid*-Polarisatoren und das Eingangsfenster der Vakuumkammer. Auch die Luft liefert einen merklichen Beitrag an positiver Dispersion. Die Feinjustage für minimalen Chirp im Fokus wird mit Hilfe von Keilen aus Quarzglas durchgeführt.

Die Optimierung des transversalen Strahlprofils erfolgt mit zwei Galilei-Teleskopen. Das erste enthält sphärische Spiegel mit den Brennweiten $f_1 = 50$ cm und $f_2 = -30$ cm im Abstand von ca. 20 cm. Die transversale Mode wird dadurch verkleinert. Ein zweites Teleskop enthält zwei Zylinderspiegel mit den Brennweiten $f_1 = 50$ cm und $f_2 = -20$ cm im Abstand von ca. 30 cm. Der zweite Spiegel ist zur Ausrichtung der Zylinderachsen rotierbar gelagert. Somit wird aus einem runden ein elliptischer Strahl bzw. Fokus erzeugt und es besteht die Möglichkeit Astigmatismus zu kompensieren.

¹²CPA: Abk. für *chirped pulse amplification*. Das Prinzip wurde 2018 mit dem Nobelpreis für Physik ausgezeichnet.

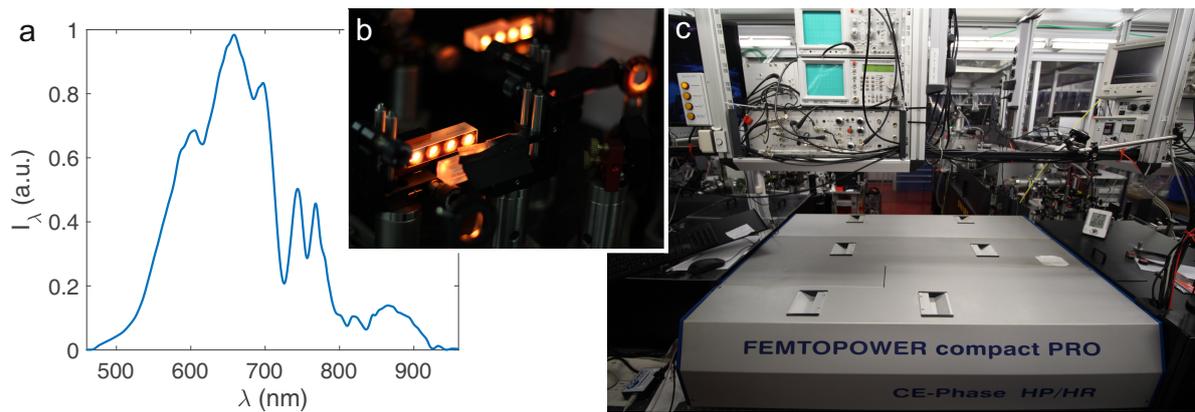


Abbildung 7: (a) Spektrum hinter den geschirpten Spiegeln (a.u. steht in dieser Arbeit für beliebige Einheiten). Das Spektrum wird mit einem fasergekoppelten Spektrometer der Firma Avantes aufgezeichnet. (b) Mehrfachreflexion an geschirpten Spiegeln. (c) Femtosekunden-Lasersystem.

3.2 Mach-Zehnder-Interferometer

Diesen Teil des Setups habe ich zusammen mit meinem Kollegen Christoph Leithold aufgebaut. Das Interferometer wird dual verwendet, zum einen für die eigenen Experimente zur Erzeugung von ultrakurzen DUV-Pulsen und zum anderen für Experimente der interferometrischen Abbildung von Selbstbeugung (vgl. Anhang C).

Das Mach-Zehnder-Interferometer dient der Erzeugung von zwei identischen Pulsen mit variabler Verzögerung. Es ist so eingestellt, dass die Pulse einen kleinen Winkel zueinander aufweisen, wodurch sie räumlich trennbar werden. Im Prinzip stehen am Ausgang des Interferometers sogar vier Pulse zur Verfügung. Die Erweiterung des experimentellen Aufbaus auf drei Strahlen mit zwei Verzögerungsstrecken wird an späterer Stelle gezeigt.

Das Interferometer befindet sich an Luft. Es ist luftdicht eingehaust und kann bei Bedarf mit Stickstoff gespült werden. Auch Zugluft wird durch die Einhausung vermieden. Nun wird auf die wichtigsten Komponenten entlang des Strahlengangs nacheinander eingegangen (vgl. hierzu Abb. 8):

1. Zwei gleiche spitzwinklige Keile aus Quarzglas dienen zur Dispersionskontrolle der Pulse im Fokus. Ein Keil kann manuell verfahren werden, 1 mm Verfahrweg entspricht einer GDD von 2.2 fs^2 .
2. Das *pointing* des Laserstrahls wird in vier Achsen stabilisiert. Hierfür wird das „Compact“-System der Firma MRC verwendet. Es besteht aus zwei Kippspiegelhaltern mit Piezostellelementen und zwei 4-Quadrantendioden. Langsame Drifts werden somit unterdrückt. Die gemessene *pointing*-Stabilität ist in Abb. 9 dargestellt.

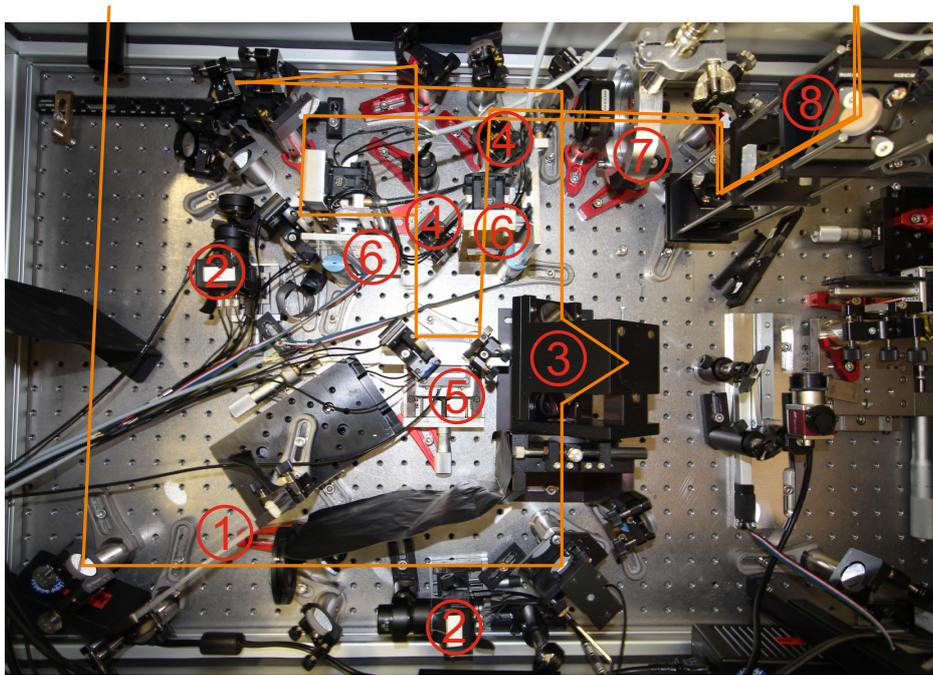


Abbildung 8: Experimenteller Aufbau rund um das Mach-Zehnder-Interferometer. Gekennzeichnet sind: (1) Keile aus Quarzglas zur Dispersionskontrolle, (2) 4-Quadranten-Diode der Strahlstabilisierung, (3) Polarisationsdreher, (4) Strahlteiler, (5) Präzisionspositionierer, (6) „Ampeln“ mit *wire-grid*-Polarisatoren, (7) schneller *shutter*, (8) Periskop lenkt die Strahlen in Richtung Vakuumkammer.

3. Die Laserpulse sind am Ausgang des Lasers parallel zur Tischoberfläche (p-) polarisiert. Experimente sollen in senkrechter (s-) Polarisation durchgeführt werden. Das hat den Vorteil, dass trotz der nicht-kollinearen Strahlgeometrie die elektrischen Felder skalar behandelt werden können. Hier wird die Polarisation nur durch Reflexion an Spiegeln gedreht. Im Polarisationsdreher sind drei Spiegel so angeordnet, dass sich bei der Drehung des ganzen Apparates um den Winkel β die Polarisation um 2β dreht, wobei sich die Strahlrichtung kaum ändert.
4. Die Erzeugung zweier identischer Pulse, bezeichnet mit A und B, geschieht mit zwei Strahlteilern, die für die hohe Bandbreite (~ 400 nm) der Pulse ausgelegt sind. Die Strahlteiler der Firma Layertec haben folgende Spezifikationen: eine Seite hat eine Antireflexbeschichtung mit einer verbleibenden Reflektivität von $< 2\%$ für den Bereich 500–980 nm. Die andere Seite reflektiert $(48 \pm 2)\%$ im Bereich 440–1040 nm, wobei die GDD ~ 0 ist. Im Interferometer werden beide Strahlen jeweils einmal am Strahlteiler reflektiert und transmittiert. Somit durchlaufen beide Strahlen die gleiche Dispersion.
5. Zur präzisen Kontrolle der Pulsverzögerung von Puls A gegenüber B wird ein piezoelektrischer Linearversteller mit hoher Genauigkeit verwendet. Der Präzisionspositionierer P-622.1 der Firma Physik Instrumente (PI) bietet einen Stellweg von $L = 250 \mu\text{m}$ bei einer Wiederholgenauigkeit von ± 1 nm und einer Auflösung von 0.7 nm. Die Po-

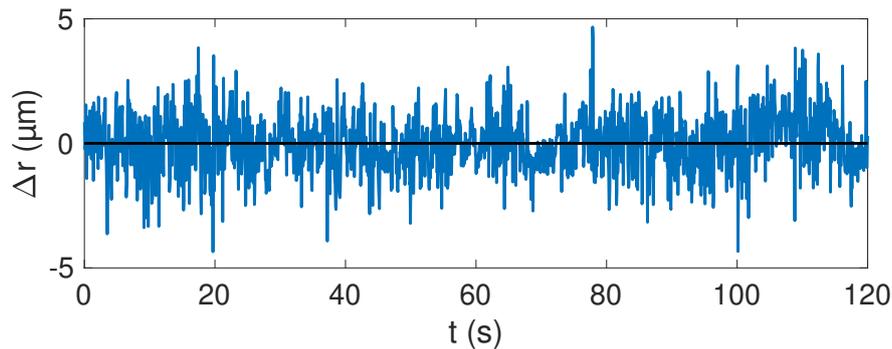


Abbildung 9: *Pointing*-Stabilität. Dargestellt ist der Abstand Δr des Fokus-Schwerpunktes vom Mittelwert. In einem Zeitraum von 2 min wurden 2000 Bilder aufgenommen. Der Mittelwert ist null und durch die schwarze Linie gekennzeichnet. Die Standardabweichung beträgt $1.1 \mu\text{m}$.

sitionierung erfolgt in einem geschlossenen Regelkreis. Ein Verstellweg von $L = 1 \text{ nm}$ entspricht einer Verzögerung von $\tau = 2L/c = 6.7 \text{ as}$.

6. Einige Optiken sind motorisiert. Somit können Messprogramme automatisiert ablaufen. Eine motorisierte Baugruppe ist die sogenannte „Ampel“. Die „Farbe“ der Ampelschaltung wird durch die Position eines Linearverstellers eingestellt. Hierzu dient der L12-Mikro-Linearversteller der Firma Actuonix, welcher in vertikaler Richtung einen Verstellweg von ca. 5 cm abfahren kann. Es lassen sich drei Zustände unterscheiden, der Laserstrahl wird blockiert (rot), zum Teil transmittiert (gelb) und durchgelassen (grün). Letzteres wird mit *wire-grid*-Polarisatoren der Firma Artifex realisiert. Diese sind dünn ($80 \mu\text{m}$), was wichtig für die Dispersion im Setup ist. Die Transmission ist größer als 80 % über einen Wellenlängenbereich von 400–1200 nm, die Zerstörschwelle ist ausreichend hoch und das Auslöschungsverhältnis beträgt 1000:1. Der Polarisator ist rotierbar gelagert, wobei die Stellung mit einem Servomotor kontrolliert wird. Bei dem Motor handelt es sich um einen Dynamixel der Firma Robotis, die sich als sehr praktikabel herausgestellt haben. An späterer Stelle steht ein Analysator im Strahlengang, der s-Polarisation im Fokus garantiert.
7. Ein schneller *shutter* mit Schaltfrequenzen bis 65 Hz und Schaltzeiten im Bereich von 10 ms blockiert die Strahlen oder lässt sie passieren.
8. Ein Periskop leitet die Strahlen in Richtung Vakuumkammer. Die Laserstrahlen gelangen durch ein 1 mm dickes Fenster aus Quarzglas in die Vakuumkammer.

Zeitliche Stabilität des Interferometers

Im Folgenden wird die zeitliche Stabilität des Interferometers charakterisiert, d. h. die Abweichung von der eingestellten Pulsverzögerung zwischen den Pulsen A und B. Hierzu wird die

Phase der Interferenzstreifen im Fokus ausgewertet (weitere Details zu diesem Teil des Versuchsaufbaus befinden sich im nächsten Unterkapitel). Mit einer schnellen und rauscharmen CMOS-Kamera (ORCA Flash 4.0 der Firma Hamamatsu) wird der Fokus mit 1000 Bilder pro Sekunde aufgenommen. In einem Bild wird somit über vier Pulse gemittelt. Die Ergebnisse sind in Abb. 10 dargestellt. Die Standardabweichung beträgt $s = 0.2$ rad. Mit Hilfe der Beziehung $\varphi = \frac{2\pi}{\lambda}ct$ ergibt sich bei $\lambda = 633$ nm eine zeitliche Stabilität von $s = 67$ as und bei Umrechnung in eine Länge beträgt die Standardabweichung $s = 20$ nm. Das Spektrum des Rauschens weist Maxima bei 50 Hz, 100 Hz und 150 Hz auf, die auf elektronisches Rauschen zurückzuführen sind. Des weiteren gibt es ein ausgeprägtes Maximum um 120 Hz, das sich möglicherweise auf die Vielzahl von Vakuumpumpen zurückführen lässt, die eine dominante Rauschquelle für mechanische Schwingungen im Labor darstellen.

In den Experimenten der folgenden Kapitel liegt die Belichtungszeit der Kamera im Bereich von 0.1–1 s. So wird über 400 bis 4000 Pulse gemittelt. Das Rauschen der Phase verringert etwas die Modulationstiefe der Interferenz. Langsame Drifts des Interferometers können während der Messung detektiert und im Nachhinein korrigiert werden. Hierfür wird ein kleiner Teil der Leistung mit einem Strahlteiler auf eine Kamera gelenkt, die den Fokus beobachtet. Das Interferometer wird nicht aktiv stabilisiert.

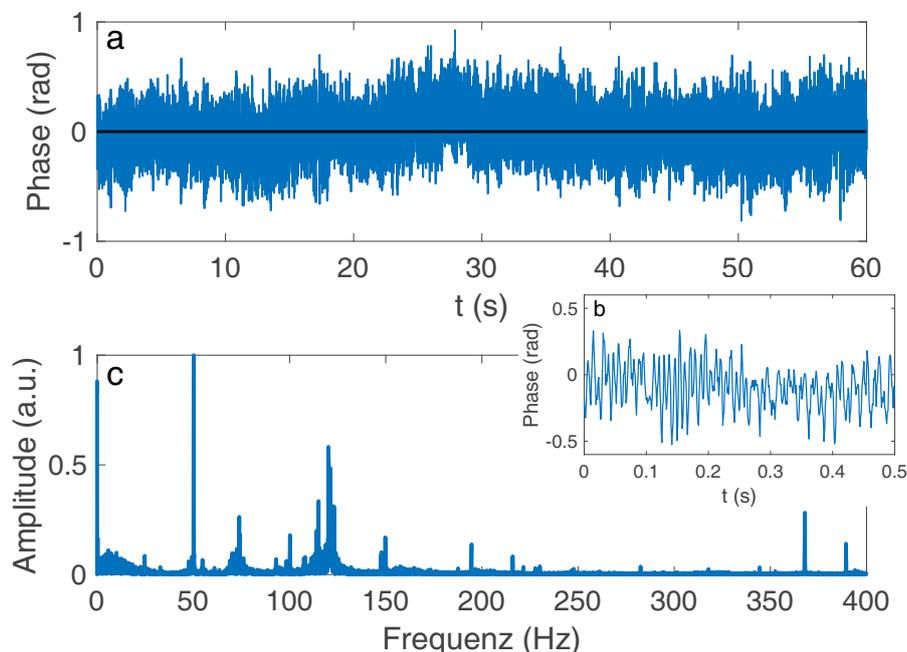


Abbildung 10: Stabilität des Interferometers. Dargestellt ist die Phase φ der Interferenzstreifen im Fokus in einem Zeitraum von 1 min (a) und ein Zoom in die ersten 500 ms (b). Innerhalb von 1 min wurden 60 000 Bilder aufgenommen. Der Mittelwert der Phase ist auf den Wert 0 gesetzt worden, er ist durch die schwarze Linie gekennzeichnet. (c) Spektrum der Zeitreihe.

3.3 Nahezu-kollineare Fokusgeometrie im Vakuum

In diesem Abschnitt wird das Kernstück des experimentellen Aufbaus vorgestellt (siehe Abb. 11), die Strahlgeometrie im Fokus und die zugehörige Diagnostik. Dieser Teil des Aufbaus befindet sich in einer Vakuumkammer (Innenmaße $40 \times 40 \times 100 \text{ cm}^3$) mit angebau-tem schwenkbarem Spektrometer, welches Auflösung im Emissionswinkel der harmonischen Strahlung ermöglicht. An einer Vorderseite der Vakuumkammer ist eine Schwenktür angebracht, die das Arbeiten und Justieren im Inneren erleichtert.

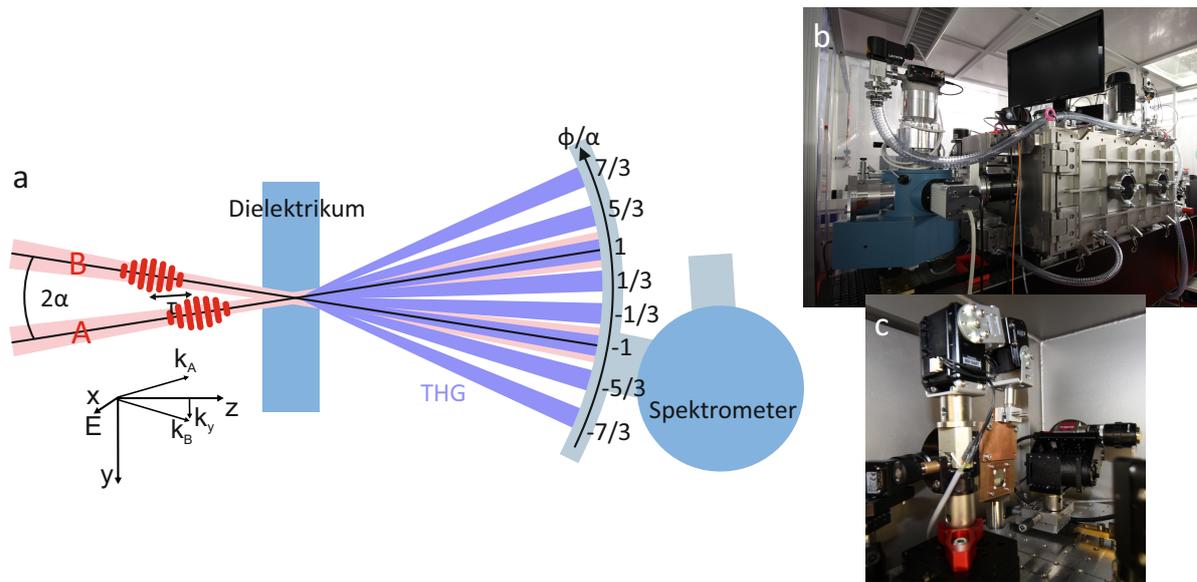


Abbildung 11: (a) Strahlgeometrie: Pulse A und B werden unter dem Winkel $\phi = 2\alpha$ in ein Dielektrikum fokussiert. Dahinter entsteht eine facettenreiche Struktur an räumlichen und zeitlichen Harmonischen, wie z. B. der THG. Es können Spektren mit Auflösung im Emissionswinkel ϕ aufgezeichnet werden. Die Richtungen x , y und z sind in dieser Arbeit so wie im dargestellten Koordinatensystem gewählt. Das elektrische Feld zeigt in x -Richtung aus der Bildebene heraus. (b) Vakuumkammer inklusive angebauem schwenkbarem Spektrometer. (c) Roboterarm zur Probenjustage und Kamera zur Fokusbeobachtung.

Die Vakuumkammer und das Spektrometer sind jeweils mit Turbomolekularpumpen ausgestattet. Damit wird ein Enddruck im Bereich von 10^{-6} mbar erreicht. Der Druck wird mit einem Penning-Vakuummeter gemessen. Belüftet wird mit Stickstoff. Das Vakuum ist einerseits notwendig um nichtlineare Effekte der Luft zu verhindern und andererseits um Strahlung im VUV-Spektralbereich detektieren zu können. Wasser (-dampf) in der Luft absorbiert Strahlung unterhalb von 200 nm [104].

Der Winkel zwischen den Strahlen A und B beträgt typischerweise $2\alpha \sim 1.5^\circ$. Die Strahlen sollen sich im Fokus schneiden, was manuell eingestellt werden muss. Zur Fokussierung dient ein sphärischer, konkaver Fokussierspiegel mit einer Brennweite von $f = 40 \text{ cm}$. Fällt ein kollimierter Strahl auf den Spiegel, so ergibt die Fokussierung unter der Annahme von Gauß-

Strahlen eine Rayleighlänge von ~ 1.5 cm. Mit einer Kamera, auf die ein Mikroskopobjektiv montiert ist, kann der Fokus beobachtet werden. Die Vergrößerung der Abbildung wird durch transversale Translation eines Linearverstellers mit Mikrometerschraube kalibriert. Die Kamera kann außerdem motorisiert in den Strahlengang hinein- und herausgefahren werden (siehe Abb. 11c). Hierfür sorgt ein Servomotor der Dynamixel Pro Serie, der eine besonders hohe Winkelauflösung von 263 000 Schritten pro Umdrehung besitzt. Die gesamte Baueinheit kann in z-Richtung translatiert werden, um den Fokus abzuscannen. Durch die Verwendung eines Mikroskopobjektivs ist die Schärfentiefe der Abbildung gering. Dadurch kann die Probe axial mit einer Genauigkeit von etwa $100 \mu\text{m}$ im Fokus bzw. im Schnittpunkt der Strahlen positioniert werden. Hierfür werden Verunreinigungen beobachtet, welche sich auf der Probenoberfläche befinden. Der Fokus kann in guter Näherung als gaußförmig angesehen werden (siehe Abb. 12). Er ist nicht kreisförmig sondern elliptisch und hat in x- und y-Richtung eine Strahltaile von $w_{0x} = 50 \mu\text{m}$ und $w_{0y} = 100 \mu\text{m}$. Wenn sich die Pulse A und B räumlich und zeitlich überlagern und interferieren entsteht ein Streifenmuster. Der Streifenabstand beträgt

$$D = \frac{\lambda}{2 \sin(\alpha)} = \frac{\pi}{k_y} \sim 30 \mu\text{m}. \quad (55)$$

Zwei Strahlen lassen sich im Fernfeld räumlich voneinander trennen, wenn der Winkel α größer ist als die Divergenz eines Strahls. Für einen Gaußstrahl mit Taille w_0 bedeutet das $D > 3w_0/2$. Bei den gegebenen Parametern besteht der Fokus aus wenigen Streifen (~ 5). Analog zur CEP im Zeitbereich wird hier das räumliche Analogon definiert. Die Phase zwischen der Einhüllenden des Fokus und den Interferenzstreifen, bezeichnet als *groove-envelope phase* (GEP) [55], ist

$$\varphi_{GE} = \omega\tau. \quad (56)$$

Die Stabilität der GEP entspricht der interferometrischen Stabilität. Die GEP wird mit der Pulsverzögerung τ eingestellt. In Abb. 12d sind Fokusse mit einer GEP von 0 und π dargestellt. Die CEP bestimmt die Interferenz von zeitlichen Harmonischen (Vielfache von ω_0), während die GEP die Interferenz von räumlichen Harmonischen (Vielfache von k_y) bestimmt. Die CEP-Abhängigkeit kann z. B. in einem f - $2f$ Interferometer beobachtet werden, bei dem der Laserpuls ein Spektrum aufweist, das eine Oktave überspannt und mit seiner SHG interferiert. Die spektrale Bandbreite muss groß genug sein, um die spektrale Überlappung benachbarter zeitlicher Harmonischer zu ermöglichen. Um die GEP-Abhängigkeit beobachten zu können, muss das Verhältnis von Kreuzungswinkel α und Strahldivergenz stimmen, um ein breites räumliches „Spektrum“ in k_y zu erzeugen. Beide Parameter müssen so angepasst werden, dass die Flanken benachbarter Strahlen bzw. räumlicher Harmonischer im Fernfeld überlappen.

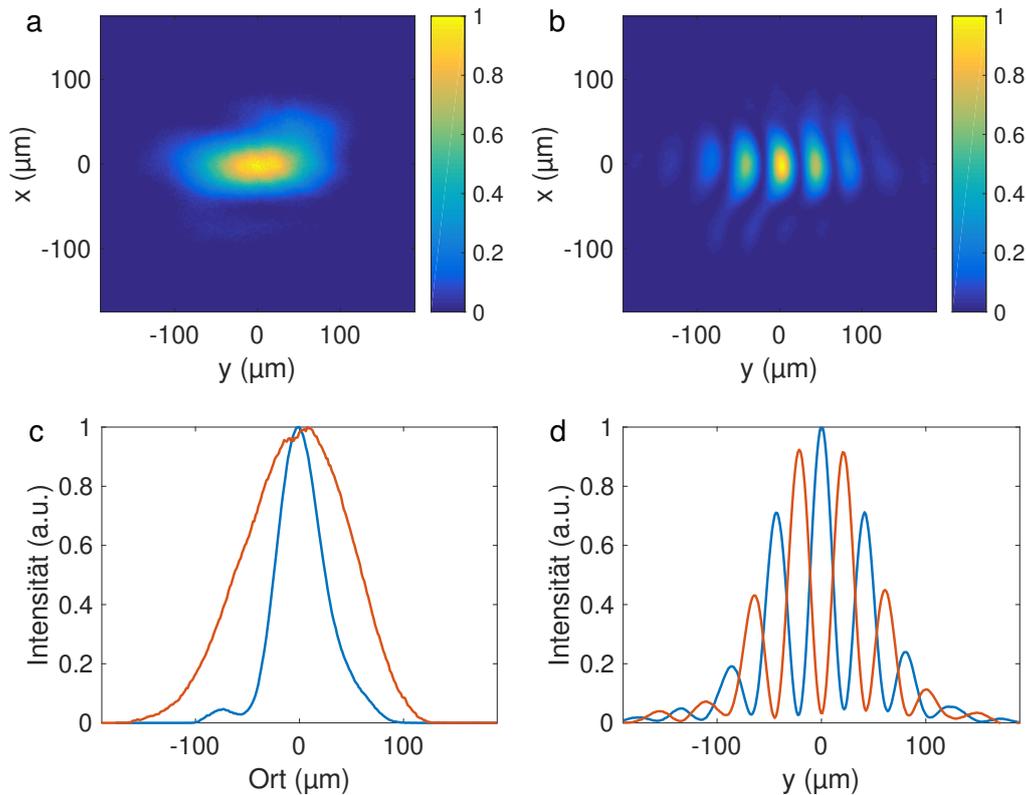


Abbildung 12: (a) Fokus eines Strahles. In (c) ist der Querschnitt entlang der x-Achse (blau) und entlang der y-Achse (rot) dargestellt. (b) Fokus bei Überlagerung von A und B. (d) Es entstehen Interferenzstreifen mit der Phase $\varphi_{GE} = 0$ (blau) und $\varphi_{GE} = \pi$ (rot).

Ein Überblick über die untersuchten Dielektrika befindet sich im Unterkapitel 3.4. Zur Fixierung werden sie auf Metallrahmen geklebt. Diese können an einem Roboterarm angeschraubt werden. Der Roboterarm besteht aus zwei Dynamixel-Gelenken (siehe Abb. 11c). Somit kann die Probe in der x-y-Ebene verfahren werden. Weiterhin steht der Roboterarm auf einem Linearversteller, wodurch manuell die z-Position eingestellt werden kann. Dies ist notwendig für die Positionierung im Fokus.

VUV-Spektrometer mit Schwenkeinheit

Das Spektrum der im Dielektrikum erzeugten UV-Strahlung wird im VUV-Spektrometer mit Auflösung im Emissionswinkel ϕ gemessen. Das Spektrometer 234/302 der Firma McPherson ist ein Seya-Namioka Monochromator mit einer Brennweite von 20 cm und einer Blendenzahl von $f/4.5$. Im Wesentlichen besteht es aus einem Eingangsschlitz, einem gekrümmten Gitter und einer Kamera. Theoretische Grundlagen zum Spektrometer sind im Anhang A zu finden. Die Öffnung des Eingangsschlitzes ist manuell einstellbar, sie beträgt in den Messungen 100–150 μm . Der Schlitz ist vertikal (in x-Richtung) orientiert, um Winkelauflösung

zu ermöglichen. Hinter dem Schlitz befindet sich ein Filterrads, in das bis zu 5 Filter eingesetzt werden können. Im Einsatz ist ein Bandpassfilter mit einer Zentralwellenlänge von 254 nm und einer Breite von 9 nm. Dieser wird zum Test eingesetzt, um einerseits sicherzustellen, dass es sich mit Sicherheit um DUV-Strahlung handelt (und nicht um eine andere Beugungsordnung des Gitters oder Streulicht der fundamentalen Pulse) und um andererseits die Kalibrierung des Spektrometers zu überprüfen.

Das Gitter wurde im holographischen Verfahren hergestellt und hat 1200 Linien/mm. Die Dispersion ist 4 nm/mm und nach Herstellerangabe ist die Auflösung 0.1 nm bei 313 nm. Bei einer Schlitzbreite von 150 μm konnte unter Verwendung der Maker-Streifen¹³ eine Auflösung von 0.5 nm bestimmt werden. Die Gittereffizienz ist nach Herstellerangabe $\sim 20\%$ im Spektralbereich der THG. Als Detektor dient die CCD-Kamera Newton 920 der Firma Andor. Der Detektor ist *back-thinned* und wird mit rückwärtiger Belichtung betrieben, um die Quanteneffizienz im DUV- und VUV-Bereich zu erhöhen. Weiterhin wird der CCD-Detektor während der Messungen auf -70°C gekühlt, um Rauschen zu reduzieren. Er besteht aus 1024×256 Pixeln der Größe $26 \times 26 \mu\text{m}^2$. Es passt eine Bandbreite von 91 nm auf den Chip. Informationen zum freien Spektralbereich sind im Anhang A und in Abb. 53 zu finden. Zur Justage an Luft steht eine weitere Kamera für den DUV-Bereich zur Verfügung, die Kamera C8000 der Firma Hamamatsu. Zwischen der Vakuumkammer und dem Spektrometer befindet sich die Schwenkeinheit, die Winkelauflösung ermöglicht. Hierbei handelt es sich um eine Spezialanfertigung der Firma ERO-Führungen. Zwei motorisierte Goniometer-Führungen bewegen das gesamte Spektrometer präzise auf einer Kreisbahn. Diese hat einen Radius von $R = 250$ mm. Der Winkel wird von einem Winkelgeber gemessen. Der vom Winkelgeber gemessene Winkel stimmt nicht mit dem Emissionswinkel der harmonischen Strahlung überein, sondern muss umgerechnet werden, da sie sich auf Kreise mit unterschiedlichen Radien und Mittelpunkten beziehen (siehe Skizze 13). Auch die Probe befindet sich nicht genau auf der Drehachse der Schwenkeinheit. Durch elementare Geometrie ergibt sich die Umrechnung zwischen dem gemessenen Winkel ϕ_d und dem wahren Emissionswinkel ϕ ,

$$\sin(\phi) = \sqrt{\frac{R^2 + d^2 - 2Rd}{R^2 + D^2 + 2RD}} \sin(\phi_d). \quad (57)$$

Die Gültigkeit der Gleichung beschränkt sich auf kleine Winkel der Schwenkeinheit. Der Abstand zwischen den Drehachsen der Schwenkeinheit und dem Winkelgeber ist $d = 152$ mm. Der Abstand zwischen der Drehachse der Schwenkeinheit und der Probe beträgt $D = 112$ mm.

Eine weitere technische Herausforderung ist das biegsame Verbindungselement zwischen Kammer und Spektrometer. Es sollte auf einer geringen Länge von 15 cm einen Winkelbereich von $\pm 10^\circ$ bei einem Durchmesser von 10 cm ermöglichen. Nur die Firma COMVAT

¹³Maker-Streifen sind spektrale Modulationen der THG. Sie werden im Unterkapitel 4.2 im Detail erläutert.

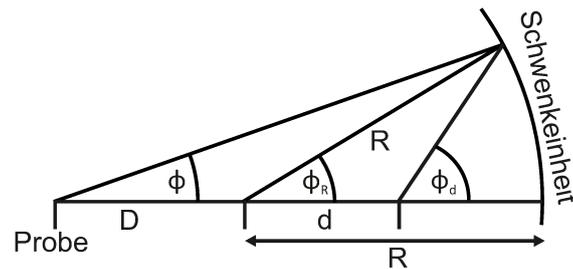


Abbildung 13: Skizze zur Übersicht der Winkel- und Abstandsbezeichnungen.

konnte diesen Ansprüchen genügen und einen entsprechenden Membranbalg liefern. Der verwendete Motor zur Automatisierung der Winkelscans muss genug Leistung aufbringen, um einerseits das Spektrometer zu verfahren und andererseits Volumenarbeit zu leisten. Letztere ist relevant, wenn sich im Balg Vakuum befindet, da sich das Volumen des Balgs bei Verbiegung etwas ändert.

Zeitliche Charakterisierung der fundamentalen Pulse

Das zeitliche Profil der VIS-IR-Pulse wird in einer THG-FROG-Messung gewonnen, so wie im Unterkapitel 2.8 beschrieben. Eine gemessene Datenspur ist in Abb. 14a zu sehen. Die Rekonstruktion der Datenspur (Abb. 14b) stimmt gut mit dem Original überein. Die Pulsdauer der fundamentalen Pulse liegt im Bereich von 5–6 fs. Fast die gesamte Energie steckt im (Haupt-) Puls und nur ein kleiner Teil der Energie ist über einen Bereich von ~ 40 fs verteilt. In Abb. 14c sind ein „Knie“ als Vorpuls und zwei kleine Nachpulse zu sehen.

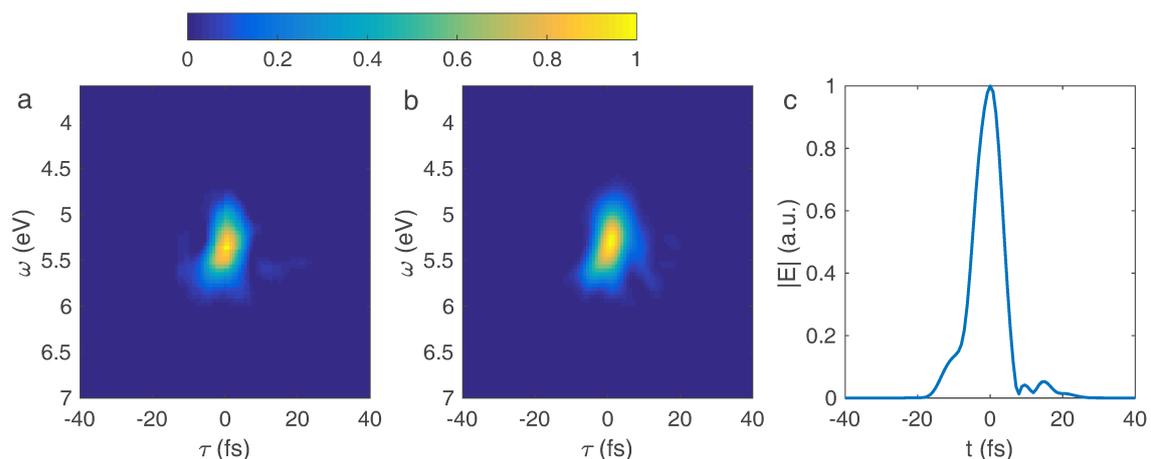


Abbildung 14: Originale (a) und rekonstruierte (b) FROG-Datenspur. (c) Für den charakterisierten Puls ist der Betrag der Einhüllenden des elektrischen Feldes dargestellt.

Es sollte an dieser Stelle erwähnt werden, dass die gemessenen Spektren zunächst moduliert sind, da im Dielektrikum THG-Doppelpulse erzeugt werden (diese werden im Unterkapitel 4.2 im Detail untersucht). Um von den Messdaten zur gezeigten FROG-Datenspur zu

gelangen, wird der Wechselanteil des Spektrums extrahiert [105]. Dies geschieht durch Ausschneiden im Fourier-Raum und anschließender Rücktransformation. Normalerweise wird bei einer THG-FROG-Messung auf Phasenanpassung geachtet (Stichwort: *phase-matching bandwidth*). Die Kohärenzlänge ist in diesem Aufbau viel kürzer als die Dicke des nichtlinearen Mediums. Trotzdem geht hier keine Bandbreite verloren, da es kaum (d. h. nur innerhalb von L_{koh}) Verstärkung gibt. Auch das steht im Zusammenhang mit der Erzeugung von THG-Doppelpulsen. Die folgende Messung soll zeigen, dass die Charakterisierung funktioniert und vertrauenswürdige Ergebnisse liefert. Der Chirp der Pulse wird mit Keilen aus Quarzglas variiert (siehe Abb. 15). Somit konnte zum einen eine optimale Stellung der Keile gefunden werden, bei der die Pulse am kürzesten sind. Zum anderen konnte der proportionale Zusammenhang zwischen der GDD (Materialdicke) und dem rekonstruierten Chirp der Pulse nachgewiesen werden, der theoretisch zu erwarten ist.

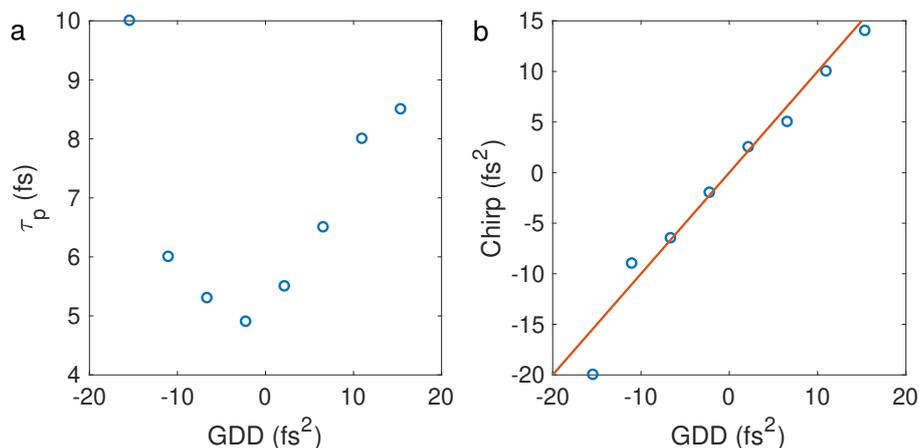


Abbildung 15: Die Laserpulse werden für verschiedene Stellungen der Keile aus Quarzglas charakterisiert. Pulsdauer (a) und Chirp (b) in Abhängigkeit der GDD. Die rote Linie in (b) ist die Einheitsgerade, die den Theoriewert anzeigt.

Bestimmung der Spitzenintensität

Die Intensität im Fokus ist abhängig von der Durchschnittsleistung P_ϕ , der Pulswiederholrate $f_{rep} = 4$ kHz, dem zeitlichen Profil und dem Fokus. Die Leistung wird mit einer kalibrierten Photodiode gemessen und beträgt abhängig von der Abschwächung des Lasers $P_\phi \leq 15$ mW pro Strahl. Auf die Messung des zeitlichen Profils und des Fokus wurde bereits ausführlich eingegangen. Die Spitzenintensität ist definiert durch folgende Gleichung:

$$I_0 = P_\phi \left(f_{rep} \iint_{-\infty}^{\infty} f_A(x, y) dx dy \int_{-\infty}^{\infty} f_t(t) dt \right)^{-1}, \quad (58)$$

wobei $f_A(x, y)$ und $f_t(t)$ die normierten räumlichen und zeitlichen Intensitätseinhüllenden sind. Für gaußförmige Einhüllende vereinfacht sich die Formel zu

$$I_0 = 1.88 \frac{P_\phi}{f_{rep} A t^{FWHM}}, \quad (59)$$

wobei die typische Konvention verwendet wird: die Fläche A wird über den $1/e^2$ -Abfall definiert und t^{FWHM} ist die FWHM-Pulsdauer, jeweils bezogen auf die Intensität und nicht die elektrischen Felder.

3.4 Dielektrika – Übersicht

Die wichtigsten Eigenschaften der verwendeten Dielektrika werden hier übersichtlich zusammengefasst. Experimentell bestimmte Brechungsindizes wurden aus verschiedenen Veröffentlichungen zusammengeführt, um eine möglichst große Bandbreite vom IR bis in den VUV oder sogar EUV Bereich abzudecken. Die Brechungsindizes der Dielektrika stammen aus folgenden Veröffentlichungen: MgF_2 [65, 106], SiO_2 [60], Al_2O_3 [73, 74, 75], MgO [107], Quarzglas [58, 59] und Diamant [108, 109].

	MgF_2	SiO_2	Al_2O_3	MgO	Quarzglas	Diamant
Dicke (μm)	100	100	100	100	100 15	0.25
Punktgruppe	D_{4h}	D_3	D_{3d}	O_h	–	O_h
Kristallschnitt	polykrist.	001	110	100	amorph	polykrist.
Inversionssym.	ja	nein	ja	ja	ja	ja
Bandlücke (eV)	10.8 [106]	9.05 [110]	8.7 [72]	7.3 [110]	9 [72]	5.5 [111]
n_2 (cm^2/PW)	0.057 [72]	0.23 [110]	0.32 [72]	0.72 [110]	0.22 [72]	1.3 [111]
$\chi^{(3)}$ (<i>atomic units</i>)	0.82	4.7	7.4	16	3.5	56
$n(720 \text{ nm})$	1.38	1.54	1.76	1.73	1.45	2.41
$n_{gr}(720 \text{ nm})$	1.38	1.56	1.79	1.76	1.47	2.45
Δn	0.03	0.06	0.09	0.14	0.06	0.25
Δn_{gr}	0.10	0.22	0.31	0.51	0.20	0.96
GVD (fs^2/mm)	23	50	69	98	43	197

Tabelle 3: Übersicht über die Eigenschaften der verwendeten Dielektrika, $\Delta n = n(240 \text{ nm}) - n(720 \text{ nm})$ und $\Delta n_{gr} = n_{gr}(240 \text{ nm}) - n_{gr}(720 \text{ nm})$. Der Gruppenindex ist in Gleichung 17 definiert. Die GVD und n_2 beziehen sich auf die Wellenlänge 720 nm.

3.5 Messprogramm

Es wurde ein Messprogramm entwickelt, das zur Ansteuerung aller am Experiment beteiligten elektrischen Bauteile sowie zur Ausführung von Messroutinen dient. Dem Benutzer steht eine grafische Benutzeroberfläche (GUI¹⁴) zur Verfügung, so wie sie im Anhang in Abb. 52 gezeigt wird. Als Programmiersprache wurde Matlab gewählt. Im Verlauf der Experimente wurden immer wieder neue Komponenten hinzugefügt, sodass inzwischen mehr als 20 unterschiedliche elektronische Bauteile angesteuert werden können. Im Wesentlichen handelt es sich dabei um verschiedene Linearversteller, Drehachsen bzw. Gelenke und Kameras. Das Programm ist nicht auf ein bestimmtes Experiment zugeschnitten, sondern kann vielfältig eingesetzt werden. Die wichtigsten Funktionen bzw. Eigenschaften des Programms sollen im Folgenden kurz erklärt werden.

Die GUI lässt sich starten, ohne dass alle Geräte angeschlossen sind. Die aktuell notwendigen Komponenten können nach Bedarf initialisiert werden. Im Bildschirmfoto (Anhang Abb. 52) ist der Zustand zu sehen, in dem mehrere Geräte nicht initialisiert sind, was an den übertrieben groß erscheinenden Knöpfen mit der Aufschrift „INIT ...“ zu erkennen ist. Wird einer dieser Knöpfe gerückt, so verschwindet dieser, entsprechende Geräte werden initialisiert und die zugehörigen Funktionen erscheinen.

Es lassen sich mehrere Kameras initialisieren. Davon sind, begrenzt durch Matlab, maximal zwei Kameras aktiv, das heißt nur diese lassen sich parallel ansteuern und auslesen. Von einer der beiden aktiven Kameras kann das Bild dargestellt werden. Es können bis zu drei verschiedene Bildbereiche (ROI¹⁵) ausgewählt werden. Dies kann hilfreich sein, wenn mehrere Signale auf einer Kamera parallel gemessen werden und Speicherplatz gespart werden muss. Darüber hinaus stehen Funktionen zur Verfügung, wie z. B. der Zoom, die Summation über einzelne Bildachsen, das Binnensuchen von Pixeln und die Darstellung der räumlichen 2D-Fourier-Transformation.

Es können einzelne Kamerabilder abgespeichert werden. Weitaus wichtiger ist allerdings eine Funktion, die es ermöglicht beliebige vordefinierte Programmabläufe zu laden, durchzuführen und zu speichern. Das soll an einem einfachen Beispiel erläutert werden. Eine typische Aufgabe besteht in der Messung der THG-Spektren in Abhängigkeit der Pulsverzögerung τ und des Emissionswinkels ϕ . Hierfür muss zunächst der genaue Ablaufplan angegeben werden, also z. B. der Bereich der abgescannt werden soll und die Schrittweite aller beteiligten Geräte sowie die Anzahl der Wiederholungen und die Reihenfolge der Messungen. Das geschieht in einem separaten Matlab-Skript. Der Ablaufplan kann abgespeichert und dann in der GUI geladen werden. Bei 300 Werten für τ und 100 Werten für ϕ ergeben sich bei Vermessung

¹⁴GUI: Abk. für *graphical user interface*.

¹⁵ROI: Abk. für *region of interest*.

aller Kombinationen 30 000 Spektren. Diese können dann per Knopfdruck aufgenommen werden. Bei einer Messrate von etwa 10 Hz ergibt sich eine Messzeit von etwa einer Stunde. Es können theoretisch alle initialisierten Komponenten an einer Messung beteiligt werden, das schafft Flexibilität. Ein Gerät oder Messparameter wird bei der Erstellung des Ablaufplans eindeutig durch einen Namen, ein Kontrollelement und einen (Zahlen-) Wert beschrieben. Bei der Programmierung wurde die Möglichkeit ausgenutzt, dass der Wert eines Kontrollelementes im Messprogramm, sowohl manuell in der GUI, als auch im Programmcode gesetzt und ausgeführt werden kann.

4 Nichtlineare Effekte in nahezu-kollinearer Strahlgeometrie

In allen Experimenten ist die Strahl- bzw. Fokus-Geometrie sehr ähnlich. Zwei Pulse, bezeichnet mit A und B, mit wenigen Zyklen und variabler Pulsverzögerung τ kreuzen sich unter einem kleinen Winkel von $2\alpha \sim 1.5^\circ$. Bei einer Zentralwellenlänge von 720 nm, einem Fokus von $w_0 \approx 100 \mu\text{m}$ und annähernd gaußförmigen Strahlen ergibt sich ein Fernfeld in dem sich räumliche Harmonische voneinander unterscheiden lassen, aber die Flanken benachbarter Beugungsordnungen überlappen und interferieren. Diese Strahlgeometrie wird als nahezu-kollinear bezeichnet.

Nichtlineare Messgrößen, die bei der Grundfrequenz untersucht werden können, sind die subzyklen-abhängige Pulsverzögerung [53, 54] und die Selbstbeugung, im Englischen bekannt als *self-diffraction* (SD) [55]. Erstere wurde bereits erforscht, bevor ich in die Arbeitsgruppe kam. Letztere wird in diesem Kapitel als Erstes betrachtet. Danach wird die Erzeugung zeitlicher Harmonischer bei vielfachen der Grundfrequenz untersucht [46]. Je nach Symmetrie des Lichtfeldes und des nichtlinearen Mediums entstehen gerade und ungerade Harmonische oder nur ungerade Harmonische. Die zeitlichen Harmonischen bestehen jeweils aus mehreren räumlichen Harmonischen. Das ergibt eine vielfältige Feldverteilung mit raumzeitlicher Kopplung, die hier genau untersucht wird.

In der vorliegenden Doktorarbeit wird die nahezu-kollineare Strahlgeometrie ausführlich untersucht. Es ist wenig bekannt über diese Geometrie, obwohl sie einige Vorteile aufweist. Im Gegensatz zur kollinearen Geometrie kann nichtlinear erzeugte harmonische Strahlung räumlich von den fundamentalen Feldern getrennt werden – ohne an die Verwendung optischer Elemente, wie z. B. Filter oder Polarisatoren, gebunden zu sein. Bei ultrakurzen Pulsen und daraus resultierenden breiten Spektren ist die Trennung von fundamentalen und harmonischen Pulsen mit Filtern oder Polarisatoren kaum möglich, da diese zum Teil nicht existieren oder neue Probleme mit sich bringen. Im DUV- oder VUV-Spektralbereich ist die Dispersion bzw. Absorption aller Medien sehr stark. Das ist die grundlegende Herausforderung bei der Erzeugung ultrakurzer Pulse in diesem Energiebereich.

Die nicht-kollineare Geometrie birgt auch Nachteile, die in der nahezu-kollinearen Geometrie abgefangen werden sollen. Mit steigendem Winkel zwischen den Fundamentalen ergibt sich eine zunehmende Fehlanpassung der Phase auf Grund der Geometrie. Das hat einen Winkelchirp der räumlichen Harmonischen zur Folge. Im Bezug auf die Erzeugung ultrakurzer Pulse ist ein Winkelchirp nachteilig, da die Bandbreite pro Emissionswinkel verringert wird. Ein weiterer Nachteil der nicht-kollinearen Geometrie ist, dass sich Phasenfronten von Anregungs- und Abfragepulsen, z. B. in der transienten Absorptionsspektroskopie, im Fokus schneiden, wodurch subzyklen-abhängige Effekte ausgewaschen werden.

Ein weiterer Vorteil der nahezu-kollinearen Geometrie ist die Interferenz benachbarter räumlicher Harmonischer. Der Überlapp benachbarter räumlicher Harmonischer ermöglicht die Erzeugung ultrakurzer Pulse im DUV.

4.1 Selbstbeugung

Zur Untersuchung der SD werden VIS-IR-Pulse, bezeichnet mit A und B, mit variabler Verzögerung in $100\ \mu\text{m}$ dicke Plättchen verschiedener Dielektrika fokussiert. Die Intensität des Pulses A beträgt $10\text{--}25\ \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$, die Intensität von Puls B beträgt nur $0.6\ \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$. Die Intensitätsverteilung mehrerer räumlicher Harmonischer wird gleichzeitig mit der CCD-Kamera #2 detektiert (vgl. Abb. 16). Die CCD-Kamera #1 beobachtet den Fokus und dient als Phasenreferenz zum Abgleich des Interferometers.

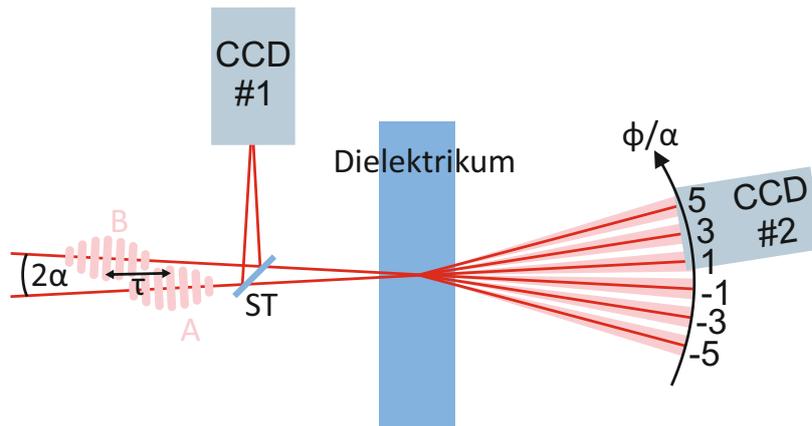


Abbildung 16: Setup zur Untersuchung der Selbstbeugung. ST: Strahlteiler.

Die SD-Ordnungen erscheinen unter den Emissionswinkeln $\phi = \pm 3, \pm 5, \dots \alpha$. Ihre Frequenz ist gleich der Frequenz der fundamentalen Pulse A und B. In einer kollinearen Geometrie (die Bezeichnung würde dann von SD zu SPM wechseln) wären ihre Phasen perfekt angepasst. Die nahezu-kollineare Geometrie verursacht eine gewisse (geometrische) Fehlanpassung der Phase. Für die Parameter $\lambda = 720\ \text{nm}$, $\alpha = 0.75^\circ$ und dem Brechungsindex von Quarzglas ergeben sich nach Gleichung 46 die Kohärenzlängen $L_{koh} = 360\ \mu\text{m}$ für die erste SD-Ordnung mit Emissionswinkel 3α und $L_{koh} = 120\ \mu\text{m}$ für die zweite SD-Ordnung mit Emissionswinkel 5α . Die Kohärenzlänge ist somit größer als die Probendicke für die erste SD-Ordnung und entspricht in etwa der Probendicke für die zweite SD-Ordnung.

Die Ergebnisse sind in [55] veröffentlicht worden. Die Experimente wurden von Aseem Pati, Christoph Leithold und mir gemeinschaftlich durchgeführt. Die theoretische Ausarbeitung und Simulation geschah in Kooperation mit meinem Betreuer Adrian Pfeiffer. Details zu den Ergebnissen des Experimentes sind im Anhang B zu finden. Hier sollen die wesentlichen Beobachtungen kurz vorgestellt werden.

Es können zwei verschiedene Arten von Interferenzen im $\phi - \tau$ -Diagramm unterschieden werden: 1.) geneigte Interferenzstreifen, die im Bereich zwischen den Beugungsordnungen dominant sind und 2.) vertikale Interferenzstreifen, die auf den Beugungsordnungen dominieren (vgl. Anhang Abb. 54). Die Interferenzstreifen 1. Art können durch die Modelle „Kaskadierte Vierwellenmischung“ und „Periodische Mehrfach-Filamentierung“ erklärt werden. Ersteres wird im nächsten Abschnitt genauer erläutert, auf Letzteres wird im Anhang B eingegangen. Ein Modell zur Beschreibung der Interferenzstreifen 2. Art ist die „Lokale Veränderung der Transmission“, das ebenfalls im Anhang B zu finden ist.

Ein weiteres Experiment, das auf SD beruht, ist die „Interferometrische Abbildung von Selbstbeugung“. Es wird von meinem Kollegen Christoph Leithold geleitet, wobei ich am Aufbau und an ersten Messungen beteiligt war. Die Idee des Experiments wird im Anhang C erläutert.

Kaskadierte Vierwellenmischung

Das prominenteste Modell zur Beschreibung der Selbstbeugung ist die „Kaskadierte Vierwellenmischung“ (CFWM: Abk. für *cascaded four-wave mixing*) [112]. Kaskadierung entsteht hier durch die Dicke der Probe. Die Dielektrika können nicht als einzelne, dünne Schicht angesehen werden. Die Beugungsordnungen addieren sich aus einer Vielzahl von Dipolen jeder Atomlage des Festkörpers auf. Die erste Schicht erzeugt durch Vierwellenmischung die erste Beugungsordnung aus den fundamentalen Pulsen A und B. In der zweiten Schicht wird durch Vierwellenmischung des neuen gesamten elektrischen Feldes die zweite Beugungsordnung erzeugt. Das kann beliebig fortgesetzt werden. So kann durch einen nichtlinearen Prozess dritter Ordnung eine hohe räumliche Beugungsordnung erzeugt werden. Gleiches gilt im Prinzip auch für zeitliche Harmonische.

Es sollte an dieser Stelle angemerkt werden, dass sich im Rahmen einer instantanen Antwort CFWM kaum von höheren nichtlinearen Ordnungen unterscheiden lässt. Zum Beispiel sind die Phasen der Beugungsordnungen, welche durch CFWM ($\sim (A + B)^3(A + B)(A + B)$) erzeugt werden, nicht zu unterscheiden von den Phasen der Beugungsordnungen, die durch eine nichtlineare Polarisation fünfter Ordnung ($P^{(5)} \sim (A + B)^5$) generiert werden. So genügt es häufig, die nichtlinearen Prozesse dritter Ordnung bzw. CFWM zu betrachten. Die Wellenmischung ist ein sehr verbreitetes, anschauliches Hilfsmittel. Sie kann sogar auf die Erzeugung hoher Harmonischer übertragen werden [113].

In den Grundlagen im Unterkapitel 2.5 wurde bereits gezeigt, dass sich die Phasen der beteiligten Felder bei der Wellenmischung addieren. Die fundamentalen elektrischen Felder seien gegeben durch $A = A_0 e^{i(\omega(t-\tau) + k_y y + \varphi_{CE})}$ und $B = B_0 e^{i(\omega t - k_y y + \varphi_{CE})}$. Die erste SD-Ordnung

bei 3α ist gegeben durch $AAB^* \sim e^{i(\omega(t-(2-0)\tau)+(2+1)k_y y+(2-1)\varphi_{CE})} = e^{i(\omega(t-2\tau)+3k_y y+\varphi_{CE})}$. Benachbarte räumliche Harmonische unterscheiden sich genau um die Phase $-\omega\tau + 2k_y y$. Für die relevanten räumlichen Ordnungen ergeben sich die Phasen:

- 5α : $AAAB^*B^* \sim e^{i(\omega(t-3\tau)+5k_y y+\varphi_{CE})}$,
- 3α : $AAB^* \sim e^{i(\omega(t-2\tau)+3k_y y+\varphi_{CE})}$,
- 1α : A und $AAA^* \sim e^{i(\omega(t-\tau)+k_y y+\varphi_{CE})}$,
- -1α : B und $BBB^* \sim e^{i(\omega t-k_y y+\varphi_{CE})}$,
- -3α : $BBA^* \sim e^{i(\omega(t+\tau)-3k_y y+\varphi_{CE})}$,
- -5α : $BBBA^*A^* \sim e^{i(\omega(t+2\tau)-5k_y y+\varphi_{CE})}$.

Die Phasendifferenz der benachbarten Beugungsordnungen führt im Bereich des räumlichen Überlapps zur Interferenz. Als Funktion von τ ergeben sich die Interferenzstreifen 1. Art.

4.2 Dritte Harmonische Erzeugung und Doppelpulse

Im Folgenden wird die Erzeugung der dritten Harmonischen (THG) inklusive der zugehörigen räumlichen Harmonischen untersucht. THG steht hier explizit für die zeitlichen Harmonischen. Das Kernstück des experimentellen Aufbaus ist in Abb. 17a schematisch dargestellt. Das Spektrum der dritten Harmonischen (siehe Abb. 17b) wird mit dem VUV-Spektrometer gemessen. Das Besondere ist hierbei die Auflösung im Emissionswinkels ϕ . Details zum experimentellen Aufbau sind im Kapitel 3 zu finden.

Die Emissionswinkel können durch Addition von Wellenvektoren bestimmt werden (vgl. Abb. 17c). Die Phasen der verschiedenen räumlichen Harmonischen der THG werden analog zu den Phasen der SD-Ordnungen hergeleitet. Am Beispiel der THG, die im Winkel $\phi = 1/3 \alpha$ emittiert wird, ergibt sich $AAB \sim e^{i(\omega(t-(2+0)\tau)+(2-1)k_y y+(2+1)\varphi_{CE})} = e^{i(\omega(t-2\tau)+k_y y+3\varphi_{CE})}$. Für die Phasen der relevanten räumlichen Ordnungen folgt:

- $7/3 \alpha$: $AAAAAB^*B^* \sim e^{i(\omega(t-5\tau)+7k_y y+3\varphi_{CE})}$,
- $5/3 \alpha$: $AAAAB^* \sim e^{i(\omega(t-4\tau)+5k_y y+3\varphi_{CE})}$,
- $3/3 \alpha$: $AAA \sim e^{i(\omega(t-3\tau)+3k_y y+3\varphi_{CE})}$,
- $1/3 \alpha$: $AAB \sim e^{i(\omega(t-2\tau)+k_y y+3\varphi_{CE})}$,
- $-1/3 \alpha$: $ABB \sim e^{i(\omega(t-\tau)-k_y y+3\varphi_{CE})}$,
- $-3/3 \alpha$: $BBB \sim e^{i(\omega t-3k_y y+3\varphi_{CE})}$,

- $-5/3 \alpha$: $BBBBA^* \sim e^{i(\omega(t+\tau)-5k_y y+3\varphi_{CE})}$,
- $-7/3 \alpha$: $BBBBBA^* A^* \sim e^{i(\omega(t+2\tau)-7k_y y+3\varphi_{CE})}$.

Die Interferenz benachbarter räumlicher Harmonischer der THG ergibt somit in Abhängigkeit von τ die gleiche Frequenz ω wie die Interferenzerscheinung 1. Art der SD.

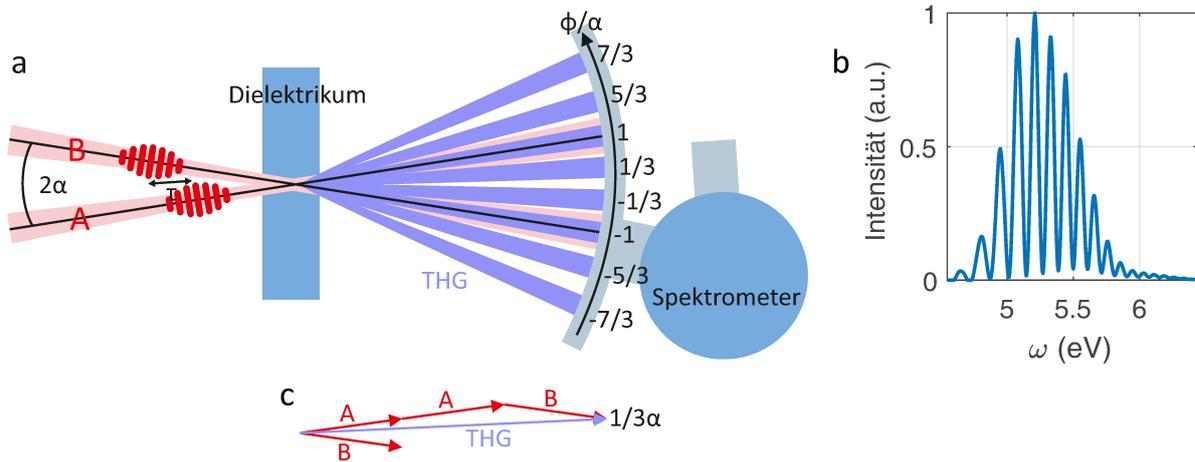


Abbildung 17: (a) Experimenteller Aufbau zur Untersuchung räumlicher und zeitlicher Harmonischer Strahlung. Eingezeichnet sind die räumlichen Harmonischen der THG. (b) Gemessenes Spektrum der THG mit Emissionswinkel $\phi = \alpha$. (c) Die Addition von Wellenvektoren beschreibt die Emissionswinkel der räumlichen THG-Ordnungen. Die Addition von A, A und B ergibt den Emissionswinkel $\phi = 1/3 \alpha$.

Die Phasenanpassung hat bei den bisherigen Betrachtungen zur SD eine geringe Rolle gespielt, da die Frequenzen von SD und den Fundamentalen degeneriert sind, was in einer relativ großen Kohärenzlänge resultiert. Das ist bei der THG nicht der Fall. Die Phasenanpassung bzw. Fehlanpassung wird in diesem Unterkapitel sehr wichtig. Für die Parameter $\lambda = 720 \text{ nm}$, $\alpha = 0.75^\circ$ und dem Brechungsindex von Quarzglas ergibt sich die Kohärenzlänge $L_{koh} = 2.0 \mu\text{m}$ für die beiden räumlichen THG-Ordnungen mit den Emissionswinkeln $1/3 \alpha$ und $3/3 \alpha$. Das ist deutlich geringer als die Dicke der verwendeten Dielektrika ($\sim 100 \mu\text{m}$).

Entstehung von Doppelpulsen

Die Fehlanpassung der Phasen zwischen der Fundamentalen und der THG führt zur Erzeugung von Doppelpulsen, was im Folgenden anhand der analytischen Integration der UPPE gezeigt werden soll. Es wird eine eindimensionale Lösung gesucht, das heißt die nicht-kollineare Geometrie wird nicht behandelt. Auch Beugung wird zunächst vernachlässigt. Die

Nichtlinearität geht von der Polarisation \tilde{P}^{NL} eines intensiven VIS-IR-Pulses aus. Unter diesen Annahmen folgt aus Gleichung 27

$$\frac{\partial}{\partial z} \tilde{E}(z, \omega) = -ik(\omega) \tilde{E} - \beta \tilde{P}^{NL}(z, \omega) \quad (60)$$

mit der Definition $\beta = \frac{i\omega c \mu_0}{2n(\omega)}$. Das elektrische Feld \tilde{E} beschreibt die Propagation der THG mit der Frequenz ω . Die nichtlineare Polarisation ist die Quelle dieses Feldes. Diese inhomogene gewöhnliche Differentialgleichung erster Ordnung wird durch Variation der Konstanten gelöst. Die Lösung der homogenen Gleichung beschreibt die lineare Propagation,

$$\tilde{E}_h(z, \omega) = \tilde{A}(0, \omega) e^{-ik(\omega)z}. \quad (61)$$

Die partielle Lösung wird durch Variation der Konstanten – $\tilde{A}(z, \omega)$ – erhalten,

$$\tilde{E}_p(z, \omega) = -\beta \int_0^z \tilde{P}^{NL}(z', \omega) e^{ik(\omega)z'} dz' e^{-ik(\omega)z}. \quad (62)$$

Das nichtlineare Medium befindet sich im Bereich 0 bis z . Die Gesamtlösung ist die Summe aus homogener und partieller Lösung,

$$\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{E}_h + \tilde{E}_p = e^{-ik(\omega)z} \left[\tilde{E}(0, \omega) - \beta \int_0^z \tilde{P}^{NL}(z', \omega) e^{ik(\omega)z'} dz' \right]. \quad (63)$$

Das elektrische Feld der THG bei $z = 0$ ist $\tilde{E}(0, \omega) = 0$. Für die nichtlineare Polarisation folgt bei einer instantanen Antwortfunktion

$$\tilde{P}^{NL}(z, \omega) = \chi^{(3)} \iiint d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 \tilde{B}(\omega_1) \tilde{B}(\omega_2) \tilde{B}(\omega_3) e^{-i[k(\omega_1) + k(\omega_2) + k(\omega_3)]z} \delta(\omega - \omega_\sigma) \quad (64)$$

mit der Definition $\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$ und dem Feld der Fundamentalen $\tilde{B}(\omega)$. Es wird angenommen, dass das Feld B linear propagiert. Somit wird SPM vernachlässigt und es wird die *undepleted-pump*-Näherung angewandt. Diese Näherungen sind für kleine Intensitäten gerechtfertigt. Weiterhin kann der Brechungsindex n_{IR} über das gesamte Spektrum von Puls B als konstant angesehen werden. Damit vereinfacht sich die nichtlineare Polarisation zu

$$\tilde{P}^{NL}(z, \omega) = \tilde{P}^{NL}(0, \omega) e^{-i\frac{\omega}{c} n_{IR} z}. \quad (65)$$

Die nichtlineare Polarisation wird in die Gleichung 63 eingesetzt, somit folgt

$$\tilde{E}(z, \omega) = -e^{-ik(\omega)z} \beta \tilde{P}^{NL}(0, \omega) \int_0^z e^{-i\frac{\omega}{c} n_{IR} z'} e^{ik(\omega)z'} dz'. \quad (66)$$

Das Integral kann in dieser Form analytisch gelöst werden,

$$\tilde{E}(z, \omega) = -\frac{\tilde{P}^{NL}(0, \omega)}{2\epsilon_0 n(\omega) \Delta n} \left(e^{-i\frac{\omega}{c} n_{IR} z} - e^{-ik(\omega)z} \right). \quad (67)$$

Die Differenz der Brechungsindizes ist $\Delta n = n(\omega) - n_{IR}$. Der erste Summand der Gleichung 67 entspricht dem führenden THG-Puls, der mit U bezeichnet wird. Dieser breitet sich mit der Gruppengeschwindigkeit des fundamentalen Pulses B aus und erfährt innerhalb der Näherungen keine Dispersion, das heißt er bleibt während der Propagation kurz. Der zweite Summand ist ein zweiter nachlaufender THG-Puls, der mit V bezeichnet wird. Dieser propagiert mit der normalen Dispersion des DUV-Spektralbereiches und wird somit gechirpt.

Die Aufspaltung in zwei Pulse kann anschaulich mit Hilfe der in den Grundlagen eingeführten Vibrationsdiagrammen dargestellt werden, siehe Abb. 18. Auf der linken Seite der „Gleichung“ ist das insgesamt erzeugte THG-Feld während der Propagation dargestellt. Das Feld durchläuft im Diagramm eine Kreisbahn gegen den Uhrzeigersinn, deren Mittelpunkt gerade um den Radius nach links verschoben ist. Die instantane nichtlineare Polarisation, inklusive der Phase, die in der Propagationsgleichung enthalten ist, trägt eine Phase von $-\pi/2$. Die lineare Propagation ist ein Phasenfaktor, also eine Drehung im Uhrzeigersinn. Auf der rechten Seite der „Gleichung“ ist eine Zerlegung der Propagation in die beiden Pulsen U und V zu sehen. Im ersten Summanden ist die dispersionsfreie Propagation von Puls U dargestellt. Die nichtlineare Polarisation und die lineare Phase kompensieren sich. Der gelbe Vektor entspricht der Summe aus U und $-iP^{NL}$. Die lineare Phase dreht bei Betrachtung infinitesimaler Propagationsschritte den gelben Zeiger wieder zurück auf die Achse. Der zweite Summand beschreibt die Propagation von V – einmal erzeugt, propagiert dieser linear, was einer Drehung um den Koordinatenursprung entspricht.

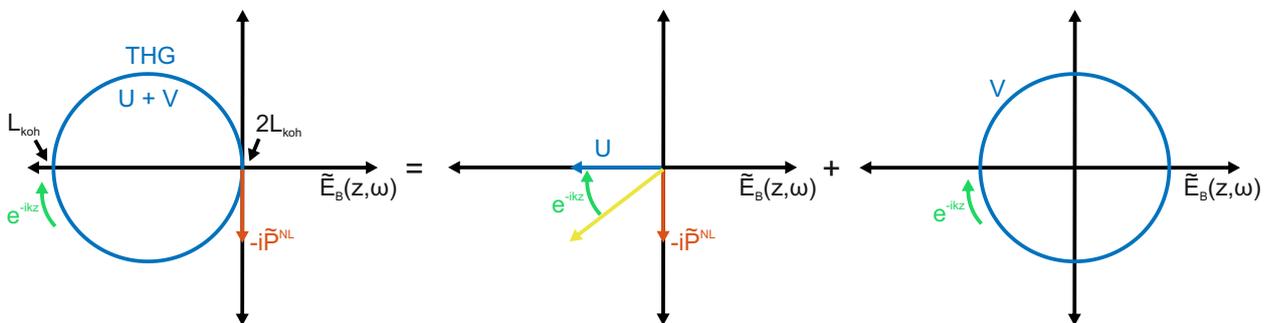


Abbildung 18: Vibrationsdiagramm zur Veranschaulichung der THG-Doppelpuls-Entstehung. E_B ist das fundamentale Feld, welches hier die Phase 0 hat. Es erfolgt eine Zerlegung des THG-Feldes (blau) in die Pulse U und V.

Die Erzeugung von THG-Doppelpulsen erscheint paradox. Intuitiv würde man einen gechirpten langen Puls erwarten. Das ist aber nicht der Fall. Es sollte an dieser Stelle angemerkt

werden, dass die Erzeugung von THG-Doppelpulsen das erste Mal theoretisch von Stoker et al. [114] beschrieben wurde. Außerdem ist der Effekt verwandt mit der Beobachtung von Maker-Streifen [115]. Hier wird anstelle von breitbandigen kurzen Pulsen ein starker Dauerstrichlaser einer Wellenlänge verwendet. Die Fehlanpassung der Phase führt dabei zu Maxima und Minima in der Erzeugung und der Effizienz der THG in Abhängigkeit der Probendicke, die durch Drehung des nichtlinearen Mediums verändert wird. Maker-Streifen wurden auch in HHG-Spektren von Gasen beobachtet [116].

Der zeitliche Abstand der Pulse U und V ist gegeben durch

$$T_p = \frac{z}{c} \Delta n_{gr} \quad (68)$$

mit der Definition für die Differenz des Gruppenindex $\Delta n_{gr} = n_{gr}(\omega_{THG}) - n_{gr}(\omega_{IR})$. Für ein $100 \mu\text{m}$ dickes MgF_2 -Plättchen ist $T_p^{\text{MgF}_2} = 33 \text{ fs}$. Eine Aufspaltung in zwei getrennte Pulse erfolgt somit nur, wenn der fundamentale Puls B ultrakurz ist (Pulsdauer im Bereich von wenigen fs). Die Erzeugung der Doppelpulse ist in Abb. 19 für verschiedene Propagationslängen z zu sehen. Hierfür wurde eine 1D-Simulation durchgeführt, so wie es im Unterkapitel 2.7 beschrieben wird. Die Aufspaltung in Doppelpulse führt zu einer charakteristischen Modulation des Spektrums. Diese Modulation wird im Folgenden auch als Maker-Streifen bezeichnet. Es ist deutlich zu sehen, dass sowohl der fundamentale Puls B als auch Puls U über die gesamte Propagationslänge von $100 \mu\text{m}$ gleich bleiben. Nur die CEP von U ändert sich dreimal so schnell wie die von Puls B. Der Puls V wird hingegen gechirpt und besitzt eine geringere Gruppengeschwindigkeit $v_{gr}(\omega_{THG})$.

	Exp	Sim	Ana
MgF₂	35 ± 5	31 ± 5	33
SiO₂	81 ± 8	69 ± 7	73
Al₂O₃	116 ± 12	97 ± 10	107
MgO	186 ± 20	169 ± 17	170

Tabelle 4: Zeitlicher Abstand T_p der Pulse U und V in fs. Die Dicke der Dielektrika ist jeweils $100 \mu\text{m}$. Die Auswertung der experimentell (**Exp**) erhaltenen Spektren werden den Simulationen (**Sim**) basierend auf der UPPE und der Gleichung 68 (Ana), die aus dem analytischen Modell folgt, gegenübergestellt. Für die Werte von **Exp** und **Sim** wird die Fourier-Transformation des Spektrums ausgewertet. Das angegebene Fehlerintervall entspricht der FWHM-Breite des AC-Anteils im Zeitbereich.

Aus den experimentellen Daten kann auch auf den zeitlichen Abstand T_p der Pulse U und V zurückgeschlossen werden, T_p ist in der Modulation des Spektrums kodiert. In Tabelle 4 ist

T_p aus experimentellen Daten, Simulationen und der analytischen Rechnung für verschiedene $100\ \mu\text{m}$ dicke Dielektrika zusammengestellt worden. Der Vergleich von Experiment und Theorie zeigt eine gute Übereinstimmung innerhalb der Fehlergrenzen und validiert somit die Modelle. Der Pulsabstand ist in MgF_2 mit $T_p^{\text{MgF}_2} = 33\ \text{fs}$ am geringsten und bei MgO mit $T_p^{\text{MgO}} = 170\ \text{fs}$ am größten. Es wird eine Skalierung mit der Bandlücke festgestellt. Eine große Bandlücke bedeutet eine geringere Dispersion der Gruppengeschwindigkeit und somit einen kleineren Pulsabstand T_p . Die geringere Dispersion von MgF_2 ist von elementarer Bedeutung für die Erzeugung ultrakurzer Pulse im DUV (siehe Kapitel 6).

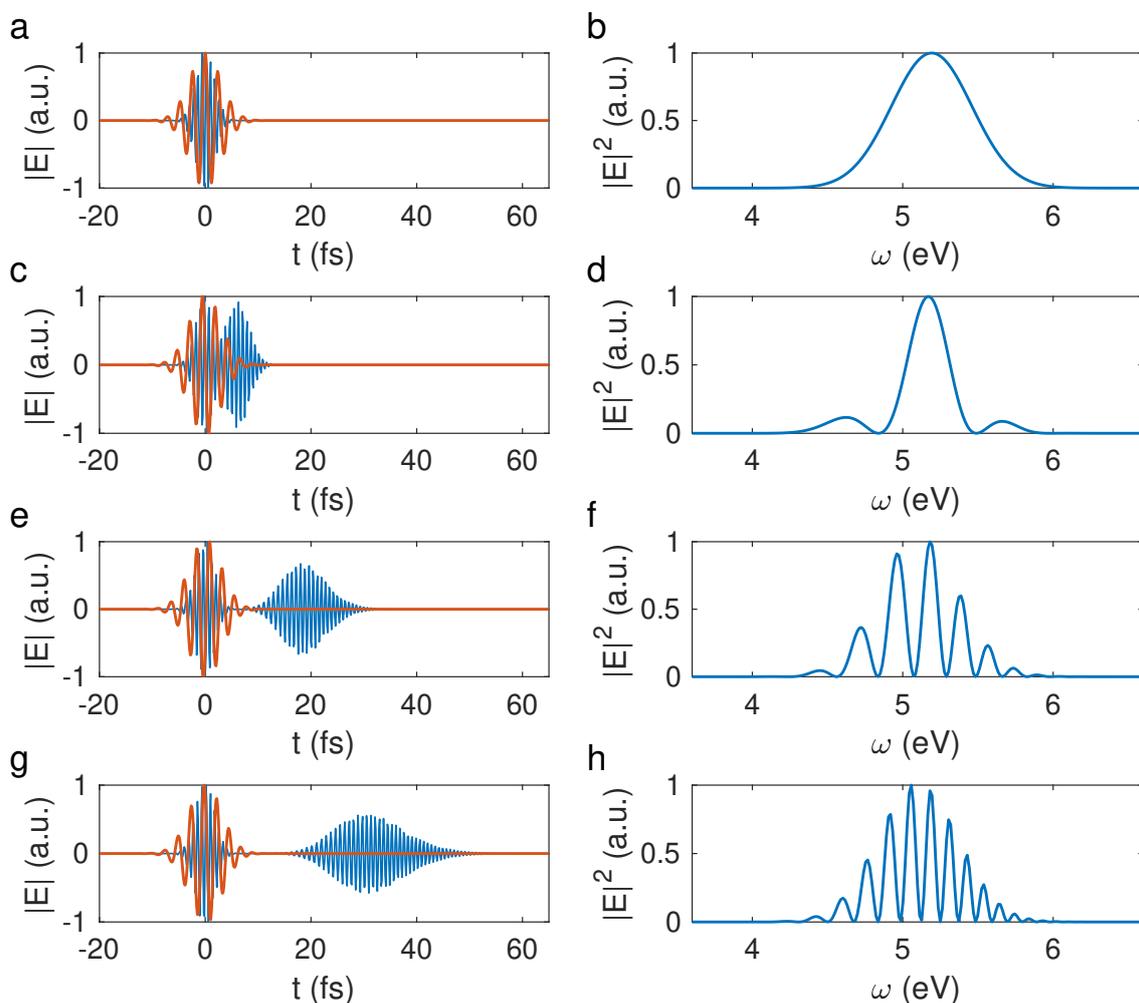


Abbildung 19: Fundamentaler Puls B (rot) und THG (blau) für verschiedene Propagationslängen $z = 0.1\ \mu\text{m}$ (a und b), $z = 20\ \mu\text{m}$ (c und d), $z = 60\ \mu\text{m}$ (e und f) und $z = 100\ \mu\text{m}$ (g und h) im Zeitbereich (linke Spalte) und im Frequenzbereich (rechte Spalte). Die UPPE wird numerisch in 1D integriert. Es wird der lineare Brechungsindex von MgF_2 verwendet und als Nichtlinearität wird eine instantane Polarisation dritter Ordnung angesetzt. Die Betrachtung erfolgt aus einem mit dem fundamentalen Puls mitbewegten Bezugssystem.

Bestimmung des linearen Brechungsindex

Eine erste Idee war den linearen Brechungsindex aus der Modulation des Spektrums zu erhalten. Dabei hat sich herausgestellt, dass dies nur begrenzt möglich ist. Trotzdem soll das Vorgehen hier vorgestellt werden, da weitere Analysen der Spektren in ähnlicher Art und Weise durchgeführt werden.

Basierend auf Gleichung 67 hat die Intensität des DUV-Spektrums die Form

$$\begin{aligned} I(z, \omega) &= I(0, \omega) \left| e^{-i\frac{\omega}{c}n_{IR}z} - e^{-i\frac{\omega}{c}n(\omega)z} \right|^2 \\ &= I(0, \omega) \left(1 + e^{-2\frac{\omega}{c}\text{Im}\{\Delta n\}z} - e^{i\frac{\omega}{c}\Delta n z} - e^{-i\frac{\omega}{c}\Delta n z} \right). \end{aligned} \quad (69)$$

Nun werden die einzelnen Summanden durch Methoden der spektralen Interferometrie voneinander getrennt [98, 117]. Hierfür wird die inverse Fourier-Transformation des Spektrums in den Zeitbereich t_ω berechnet. Drei Bereiche können im Zeitbereich unterschieden werden, der DC-Anteil (DC: Abk. für *direct current*, Übersetzung: Gleichstrom) bei $t_\omega = 0$ und die beiden AC-Anteile (AC: Abk. für *alternating current*, Übersetzung: Wechselstrom) bei $t_\omega = \pm T_p$. Diese werden jeweils ausgeschnitten und zurück in den Frequenzbereich transformiert (vgl. hierzu auch Abb. 28 im Unterkapitel 5.2). Sie haben die Form

$$\begin{aligned} \mathbf{I}_-(z, \omega) &= I(0, \omega) e^{-i\frac{\omega}{c}\Delta n z} \\ \mathbf{I}_{DC}(z, \omega) &= I(0, \omega) \left(1 + e^{-2\frac{\omega}{c}\text{Im}\{\Delta n\}z} \right) \\ \mathbf{I}_+(z, \omega) &= I(0, \omega) e^{i\frac{\omega}{c}\Delta n z}. \end{aligned} \quad (70)$$

Die Größen \mathbf{I}_- und \mathbf{I}_+ sind zueinander komplex konjugiert und enthalten Informationen über das Verhältnis von U und V, sowohl in Amplituden- als auch in Phasenrelation. Die Größe \mathbf{I}_{DC} gibt Auskunft über den spektral aufgelösten Energieinhalt der Summe beider Pulse. Der Imaginärteil der Brechungsindex-Differenz $\text{Im}\{\Delta n\}$ folgt aus der Kombination

$$\frac{\mathbf{I}_{DC}}{\sqrt{\mathbf{I}_-\mathbf{I}_+}} = 2 \cosh \left(\text{Im}\{\Delta n\} \frac{\omega}{c} z \right) \quad (71)$$

und resultiert in

$$\text{Im}\{\Delta n\} = \frac{c}{\omega z} \text{acosh} \left(\frac{\mathbf{I}_{DC}}{2\sqrt{\mathbf{I}_-\mathbf{I}_+}} \right). \quad (72)$$

Das Symbol acosh steht für die Funktion Areakosinus hyperbolicus. Der Realteil der Brechungsindex-Differenz $\text{Re}\{\Delta n\}$ kann durch

$$\frac{\mathbf{I}_-}{\mathbf{I}_+} = e^{-i\frac{\omega}{c}2\text{Re}\{\Delta n\}z} \quad (73)$$

isoliert werden. Allerdings tritt hier folgendes Problem auf: Δn kann durch $\Delta n + 2\pi m \frac{c}{\omega z} = \Delta n + m \frac{\lambda}{z}$ mit $m \in \mathbb{Z}$ ersetzt werden, ohne dass sich das Spektrum ändert. Diese Uneindeutigkeit in der Phase verhindert die Bestimmung des Realteils der Brechungsindex-Differenz.

Zusammenfassend wird festgehalten, dass nur die Differenz des Imaginärteils des Brechungsindex aus der Messung bestimmt werden kann. Allerdings ist die Absorption bei den untersuchten Dielektrika in diesem Spektralbereich ~ 0 . Der Realteil der Brechungsindex-Differenz ist nicht eindeutig rekonstruierbar.

THG-Spektren mit Winkelauflösung

Mit Hilfe des schwenkbaren Spektrometers wird die THG mit Auflösung im Emissionswinkel und in Abhängigkeit der Pulsverzögerung gemessen. Querschnitte durch dieses 3D-Datenmaterial sind in Abb. 20 dargestellt.

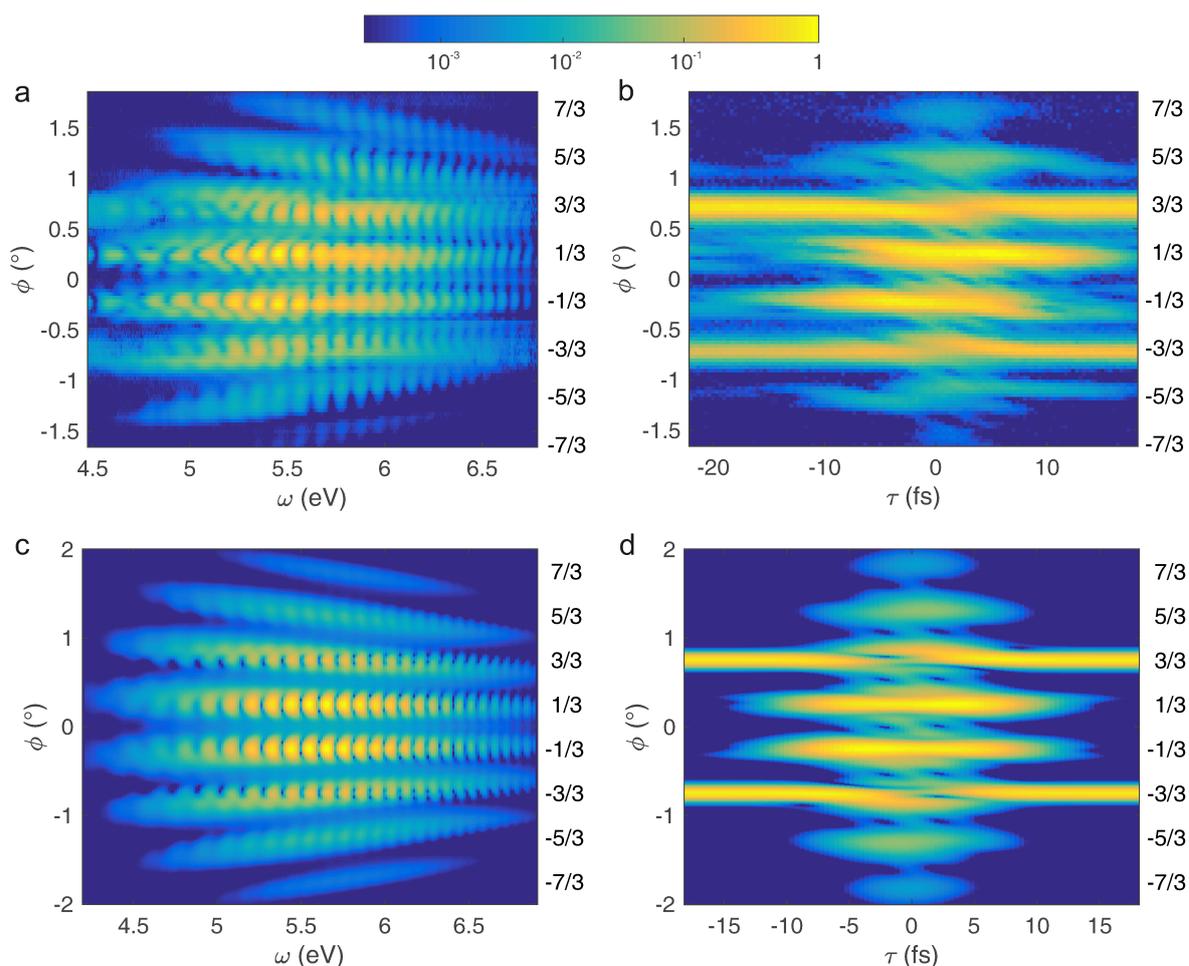


Abbildung 20: Experimentelle Daten (a und b) und Simulation (c und d) der normierten Intensität der THG in Abhängigkeit des Emissionswinkels und der Frequenz ω bei $\tau = 0$ (a und c) und der Pulsverzögerung τ bei $\omega = 5.67$ eV (b und d) erzeugt in MgF_2 . Adaptiert aus [46].

Die Intensität eines Pulses beträgt im Fokus $I_{A,B} = 4 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$. Bei Pulsüberlapp ist die Spitzenintensität $16 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$. Der Winkel zwischen Strahl A und B ist $2\alpha = 1.5^\circ$. Verschiedene Dielektrika werden vermessen, für die Messdaten in Abb. 20 wurde MgF_2 verwendet. Die Messergebnisse sind für alle Dielektrika ähnlich. Es sind alle räumlichen Harmonischen von $\phi = -7/3\alpha$ bis $7/3\alpha$ zu sehen. Die Beugungsordnungen mit $\phi = \pm 1/3\alpha$ sind die Intensivsten. Sie sind sogar intensiver als die Beugungsordnungen in Richtung der Fundamentalen mit Winkel $\pm 3/3\alpha$. Die Spektren aller räumlichen Harmonischen sind moduliert. Die Beugungsordnungen $\pm 5/3\alpha$ und $\pm 7/3\alpha$ weisen einen deutlichen Winkelchirp auf und sind weniger intensiv. Die Spektren mit Emissionswinkel $\phi = \pm 3/3\alpha$, erscheinen auf der roten Seite des Spektrums bei 4.5 eV etwas breiter zu sein, als Spektren anderer Emissionswinkel. Hierbei handelt es sich um Streulicht, welches die fundamentalen Pulse im Spektrometer erzeugen. Das ist ein typisches Problem der kollinearen Messgeometrie, das hier noch einmal deutlich wird. Ein Vorteil des THG-Doppelpulsspektrums ist, dass der AC-Anteil des Spektrums vom Streulicht unbeeinflusst bleibt.

In Abhängigkeit der Pulsverzögerung ergibt sich eine Interferenz mit geneigten Streifen zwischen den räumlichen Harmonischen der THG, die analog zur SD erklärt werden kann (vgl. Unterkapitel 4.1). Die Abhängigkeit der Phase der Beugungsordnungen der THG wurde bereits zu Beginn dieses Unterkapitels diskutiert. Sie hängt von $\varphi_{GE} = \omega\tau$ ab. Die in Richtung der fundamentalen Pulse propagierende THG im Winkel $\pm 3/3\alpha$ entsteht unabhängig von τ . Alle anderen räumlichen Harmonischen sind begrenzt auf Pulsüberlapp. Die Entstehung der Ordnungen in $\pm 7/3\alpha$ ist auf den engsten τ -Bereich von wenigen fs eingeschränkt.

Entsprechend den experimentellen Parameter werden 2D-Simulationen auf Basis der UPPE erstellt (vgl. Abb. 20 c und d), so wie es im Unterkapitel 2.7 beschrieben wird. Als Nichtlinearität wird die instantane Polarisation dritter Ordnung verwendet. Experiment und Simulation stimmen gut überein. Die Merkmale, wie z. B. die Maker-Streifen, der Winkelchirp und die Interferenz benachbarter räumlicher Harmonischer, werden reproduziert.

Propagation höherer räumlicher Harmonischer

In diesem Abschnitt wird die Propagation der THG in den höheren räumlichen Harmonischen mit den Emissionswinkeln $\pm 5/3\alpha$, $\pm 7/3\alpha$ genauer behandelt. Die Untersuchung erfolgt an MgF_2 . Um die Bezeichnung der verschiedenen Ordnungen zu vereinfachen, werden in diesem Abschnitt folgende Abkürzungen verwendet: „5THG“ steht für die THG mit dem Emissionswinkel $5/3\alpha$, „3SD“ steht für die erste Ordnung der Selbstbeugung im Winkel 3α . Analog folgen die Bezeichnungen für alle anderen zeitlichen und räumlichen Harmonischen.

Die Erzeugung der THG bei höheren räumlichen Harmonischen unterscheidet sich von der Erzeugung der 1THG und 3THG. Letztere können direkt durch Vierwellenmischung erklärt

werden. Innerhalb der nichtlinearen Prozesse dritter Ordnung ist die Erzeugung der höheren Ordnungen nur durch Kaskadierung möglich. Die 5THG kann über zwei verschiedene Pfade erzeugt werden, siehe Abb. 21a. Ein Pfad führt über die 3THG (grüne Vektoraddition), die Kaskadierung wird beschrieben durch $(3THG)AB^*$. Der andere Pfad führt über die 3SD (blaue Vektoraddition), die Kaskadierung erfolgt hier durch $(3SD)AA$.

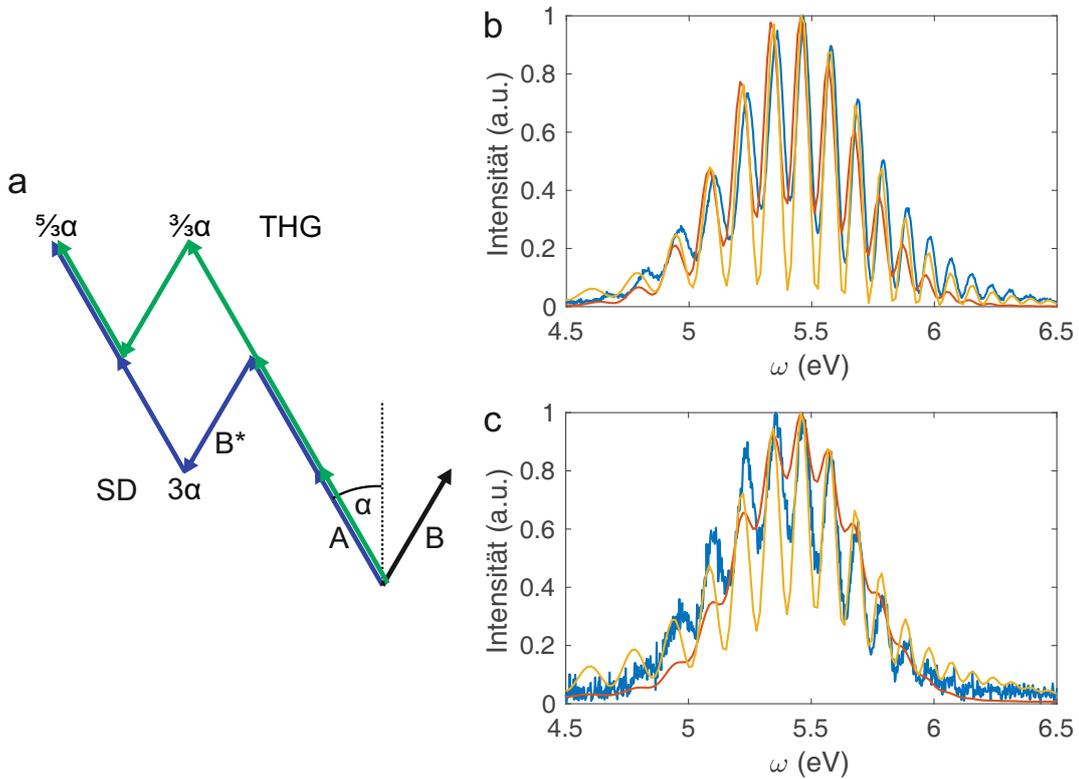


Abbildung 21: (a) Die Erzeugung der THG mit Emissionswinkel $\frac{5}{3}\alpha$ kann durch Addition von Wellenvektoren auf zwei verschiedenen Pfaden (grün und blau) erklärt werden. Das Spektrum der THG ist für $\phi = \frac{5}{3}\alpha$ (b) und $\phi = \frac{7}{3}\alpha$ (c) abgebildet. Als nichtlineares Medium wird MgF_2 verwendet. Die experimentellen Daten sind blau und die Simulationen sind rot (unter Verwendung von $P^{(3)}$) und gelb (unter Verwendung von $P^{(5)}$) dargestellt.

Die gemessenen Spektren zeigen, dass die Modulationstiefe der Maker-Streifen in den höheren räumlichen Beugungsordnungen abnehmen, siehe Abb. 21 b und c. Simulationen unter Verwendung einer nichtlinearen Polarisation dritter Ordnung $P^{(3)}$ zeigen, dass der blaue Pfad der Dominante ist. Das lässt sich dadurch erklären, dass die 3THG nicht phasenangepasst ist ($L_{koh} \sim 4 \mu m$). Die 3SD ist hingegen deutlich besser phasenangepasst ($L_{koh} \sim 380 \mu m$). Somit steigt die Intensität der 3SD kontinuierlich während der Propagation bis zur Rückseite der Probe an. Das führt zu der interessanten Beobachtung, dass der führende Puls U intensiver wird als der nachlaufende Puls V. Im Spektrum entspricht das einer Abnahme der Modulationstiefe. Die Propagation der 7THG kann auf analoge Art und Weise erklärt werden. Die Modulationstiefe ist hier im Verhältnis zur 5THG noch geringer, siehe Abb. 21 b und

c. Ein Vergleich zwischen Experiment und Simulation zeigt, dass die gemessenen Spektren stärker moduliert sind als die Simulation mit $P^{(3)}$.

Wird in der Simulation eine nichtlineare Polarisation fünfter Ordnung der Form $P^{(5)} \sim \chi^{(5)}E(t)^5$ verwendet, so sind die Spektren im Vergleich zur Simulation mit $P^{(3)}$ deutlich stärker moduliert. Der Unterschied liegt darin, dass keine Kaskadierung notwendig ist, um die 5THG zu erzeugen. Die gemessenen Modulationstiefen der 5THG und 7THG liegen zwischen den beiden Simulationen mit $P^{(3)}$ und $P^{(5)}$. Daraus lässt sich schließen, dass die nichtlineare Polarisation hier nicht nur Effekte dritter Ordnung, sondern auch höhere Nichtlinearitäten enthält, z.B. die Summe aus $P^{(3)}$ und $P^{(5)}$. Die genauere quantitative Untersuchung der höheren nichtlinearen Polarisationsterme erfolgt nicht, da die Anzahl der freien Parameter für die Simulationen zu hoch ist.

Pulsenergie und Effizienz

In der nahezu-kollinearen Geometrie ist die Frage nach der Pulsenergie und der Effizienz der THG nicht trivial zu beantworten. Der Grund hierfür ist, dass die Strahlung mit einer gewissen Verteilung über dem Emissionswinkel abgestrahlt wird und sich benachbarte räumliche Harmonische überlappen und interferieren. Einzelne Pulse können auch im Fernfeld nicht eindeutig isoliert werden. Was hingegen definiert werden kann, ist die abgestrahlte Pulsenergie pro Winkel E_p . Sie bezieht sich auf die Summe der Pulse U und V. Die Pulsenergie wird aus den Spektren berechnet.

Die experimentellen Parameter sind die Folgenden: Die Öffnung des Eingangsschlitzes des Spektrometers beträgt $150 \mu\text{m}$. Der Schlitz befindet sich in einem Abstand von 36 cm hinter der Probe. Somit ist der Winkelbereich den das Spektrometer einfängt 0.024° . Die Divergenz eines fundamentalen Strahles ist im Vergleich 0.12° . Aus den von der CCD-Kamera registrierten Zählereignissen Z_i jedes Pixels lässt sich E_p bestimmen. Aus den gemessenen Spektren wird zunächst die Anzahl der Photonen pro Winkel N'_{ph} berechnet, die den Schlitz passieren,

$$N'_{ph} = \frac{\sum_i Z_i}{t_{exp} f_{rep}} \frac{N_e}{2^{N_{bit}}} \frac{1}{\eta_K \eta_G}. \quad (74)$$

Dabei ist t_{exp} die Belichtungszeit, f_{rep} ist die Laserpuls-Wiederholrate, N_e ist die Größe des Elektronentopfes eines Pixels, N_{bit} ist die Anzahl an Bit des A/D-Wandlers, η_K ist die Quanteneffizienz der Kamera und η_G ist die Gittereffizienz. Für die in Abb. 20 gezeigten Daten ist $t_{exp} = 0.3 \text{ s}$ und $f_{rep} = 4 \text{ kHz}$. Die Kamera hat laut Herstellerangabe folgende Spezifikationen: $N_e = 10^6$, $N_{bit} = 16$, $\eta_K = 0.25$ im Spektralbereich der THG. Für das Gitter gilt laut Datenblatt $\eta_G = 0.2$. Die geometrische Umrechnung in die Einheit $1/\text{mrad}$

entspricht $N_{ph} = 2.4 N'_{ph}$. Die Umrechnung zur Energie erfolgt durch Multiplikation mit der mittleren Photonenenergie $\hbar\omega_0$,

$$E_p = N_{ph} \hbar\omega_0. \quad (75)$$

In Tabelle 5 sind N_{ph} und E_p für verschiedene Emissionswinkel aufgelistet. Die Energie von 1 pJ entspricht $1.2 \cdot 10^6$ Photonen mit einer Photonenenergie von 5.2 eV. Typischerweise ist das Spektrum nahezu komplett moduliert, was bedeutet, dass die Hälfte der Energie in Puls U und die andere Hälfte in Puls V steckt. Im Emissionswinkel $\phi = 4/3 \alpha$ zwischen den räumlichen Harmonischen steht somit ein Fluss von $1.4 \cdot 10^{10}$ Photonen/s zur Detektion zur Verfügung (bezogen auf den Öffnungswinkel des Schlitzes). Dieser Winkel ist relevant für die Erzeugung ultrakurzer Pulse, die in Kapitel 6 erforscht wird.

Winkel	E_p (pJ/mrad)	N_{ph} (10^7 Photonen/mrad)
$1/3 \alpha = 0.25^\circ$	190	23
$3/3 \alpha = 0.75^\circ$	83	10
$4/3 \alpha = 1.00^\circ$	6.8	0.81
$5/3 \alpha = 1.25^\circ$	8.8	1.1

Tabelle 5: Gemessene Pulsenergie und Photonenzahl pro Winkel der THG für verschiedene Emissionswinkel bezogen auf die Erzeugung in MgF_2 mit $\alpha = 0.75^\circ$.

Die Effizienz η_{THG} ist das Verhältnis aus der Energie der THG zur Energie der fundamentalen Pulse. Es ist nicht zielführend sie für verschiedene räumliche Harmonische anzugeben, da sie explizit vom ausgewählten Winkelbereich abhängen würde. Deshalb wird die Gesamtenergie der THG berechnet, d. h. es wird über alle Emissionswinkel summiert. Somit ergibt sich die Effizienz $\eta_{THG} = 1.2 \cdot 10^{-4}$ in MgF_2 . Die Effizienz ist auf Grund der Fehlanpassung der Phase relativ gering. Innerhalb einer 2D-Simulation ergibt sich unter Verwendung der bekannten experimentellen Parameter die Effizienz $\eta_{THG}^{Sim} = 5 \cdot 10^{-5}$. Experiment und Simulation unterscheiden sich hier um einen Faktor zwei. Die Ursache könnte darin liegen, dass die Simulation die dritte Raumdimension vernachlässigt.

Interessant ist auch die Abhängigkeit der Effizienz in Abhängigkeit der Dicke der Probe. Sie ist in Abb. 22 dargestellt und basiert auf einer 1D-Integration der UPPE. Das Maximum der Effizienz wird nach der Kohärenzlänge L_{koh} erreicht. Die Effizienz oszilliert bis ca. $z = 25 \mu\text{m}$ mit der Periode $2L_{koh}$. Für $z > 25 \mu\text{m}$ ist die Effizienz konstant. Das kann folgendermaßen erklärt werden: Für jede einzelne Frequenz ergibt sich eine periodische Abhängigkeit, so wie sie im Anhang in Abb. 51 gezeigt wird. Auf Grund der Dispersion ist die Periode $2L_{koh}$ für jede Frequenz leicht unterschiedlich. Die Modulationstiefe nimmt deshalb über z ab. Übertragen in den Zeitbereich entspricht hier eine konstante Effizienz der Aufspaltung in zwei getrennte Pulse.

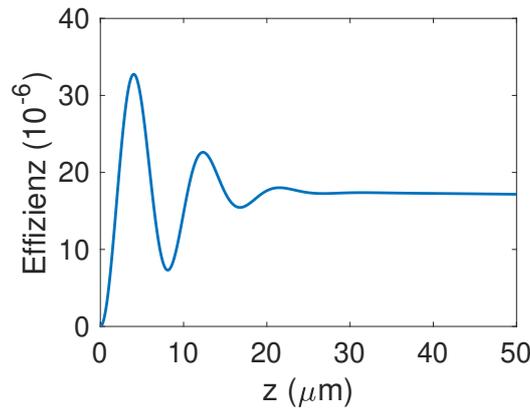


Abbildung 22: Simulation der Effizienz der THG in Abhängigkeit der Propagationsdistanz z innerhalb einer 1D-Simulation mit einem VIS-IR-Puls. In MgF_2 beträgt die Kohärenzlänge $L_{koh} = 3.9 \mu\text{m}$.

4.3 Graphen als Probe

Die Herstellung von Graphen wurde 2004 von Konstantin Novoselov und Andre Geim veröffentlicht. Sie haben viele der einzigartigen Eigenschaften von Graphen untersucht [118] und wurden im Jahr 2010 dafür mit dem Nobelpreis für Physik ausgezeichnet. Die Besonderheit von Graphen liegt vor allem in der Bandstruktur, die einen Dirac-Kegel im Γ -Punkt der Brillouin-Zone aufweist.

Hier werden zwei Experimente mit Graphen durchgeführt: zum einem wird die Transmission von Graphen im DUV gemessen und zum anderen wird die THG in Graphen erzeugt. Die beiden Experimente dienen der Vorbereitung für die zeitaufgelöste Spektroskopie. In beiden Experimenten wird einlagiges Graphen verwendet, welches auf der Rückseite¹⁶ eines $200 \mu\text{m}$ dicken Quarzglas-Substrates aufgebracht ist. Das Substrat ist transparent für die THG. Die Proben sind kommerziell erhältlich und wurden bei der Firma Graphenea gekauft.

Bei der Messung der statischen Transmission von Graphen T^{gra} wird die THG zunächst in Borosilikatglas erzeugt. Dieses Glas hat sich hierfür gut geeignet, da es für die THG absorbierend wirkt. Somit wird der nachlaufende Puls V absorbiert und das Spektrum ist nicht moduliert (vgl. Abb. 23a). Die Graphen-Probe befindet sich zwischen der DUV-Erzeugung und dem Spektrometer, welches auf den Emissionswinkel $\phi = 1/3 \alpha$ ausgerichtet ist. Für die Berechnung von T^{gra} wird das transmittierte Spektrum vom reinem Substrat mit dem von Substrat und Graphen ins Verhältnis gesetzt. Die in Abb. 23b gezeigte Transmission stellt die Mittelung von 100 Einzelmessungen dar. Die Transmission hat ein Minimum von 93% bei $4.7 \text{ eV} \hat{=} 264 \text{ nm}$. Das ist in guter Übereinstimmung mit der Literatur [119]. Der Grund für die erhöhte Absorption (und Reflexion) ist die Resonanz mit der Van-Hove-Singularität im M-Punkt der Brillouin-Zone bei 4.6 eV [120].

¹⁶Als Rückseite wird die vom Laser abgewandte Seite bezeichnet.

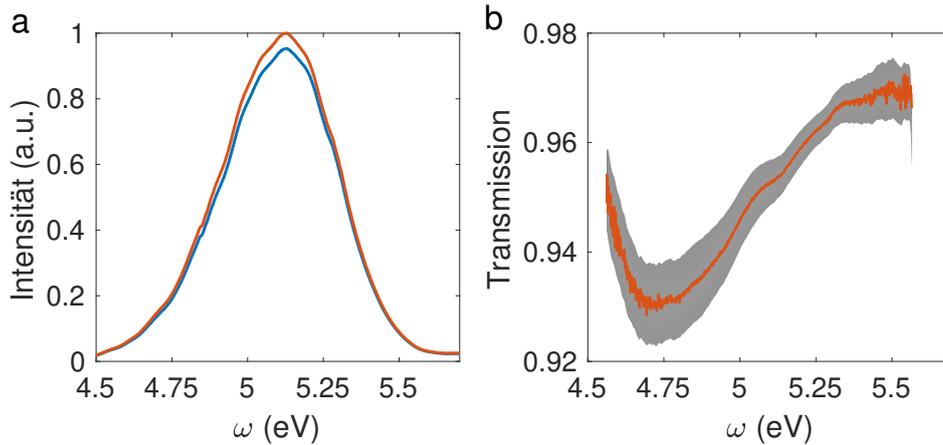


Abbildung 23: (a) Spektrale Intensität der THG mit reinem Quarzglas-Substrat (rot) und dem mit einer Lage Graphen auf der Probenrückseite (blau). Daraus resultiert die Transmission von Graphen T^{gra} im DUV-Spektralbereich (b). Dargestellt ist in (b) nur der Bereich mit mehr als 4% der maximalen spektralen Intensität. Das Fehlerintervall (grau gefärbter Bereich) ist gegeben durch den statistischen Fehler des Mittelwertes.

In einem zweiten Experiment wird die 3. Harmonische in Graphen erzeugt (siehe Abb. 24). Die Graphen-Probe wird dafür im Fokus der Pulse A und B platziert. Die Spitzenintensität beträgt $6.2 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ bei Überlagerung der Pulse A und B mit einer GEP von 0. Die Intensität liegt knapp unter der Zerstörschwelle von Graphen. Bei höheren Intensitäten konnte keine THG-Emission von Graphen mehr festgestellt werden. Die THG wird im Emissionswinkel $\phi = 1/3 \alpha$ gemessen. Die Probe wird während der Messung mit dem Roboterarm auf einer Zickzack-Bahn bewegt, um Schaden in Graphen durch thermisches Heizen oder andere kumulative Prozesse zu verringern. Die Mittelung über viele Probenpositionen verringert die Tiefe der Modulation der Spektren. Die Ursache hierfür liegt in der Oberflächenqualität des Substrates. Eine kleine Änderung der Dicke des Substrates führt zu einer Änderung der Periode und der Phase der Maker-Streifen. Die Phase der Maker-Streifen ändert sich mit

$$\Delta\varphi_{CE} = \frac{2\pi z}{\lambda} (\Delta n(3\lambda) - \Delta n(\lambda)), \quad (76)$$

wobei $\Delta n(\lambda) = n(\lambda) - n_{gr}(\lambda)$ proportional zur Änderung der CEP des Pulses U bzw. V ist (vgl. Gleichung 18). Schon bei einer Propagation der THG um $1 \mu\text{m}$ und dem Brechungsindex von Quarzglas ergibt sich eine Verschiebung der Maker-Streifen um $\Delta\varphi_{CE} \approx \pi$.

Erstaunlich ist, dass das Substrat ca. $10^{5\cdots 6}$ -mal dicker ist als Graphen und dennoch ihre Beiträge zur THG in der gleichen Größenordnung liegen. Das hat zwei Gründe: zum einen liegt die effektive Dicke (die Kohärenzlänge) des Substrates bei $2 \mu\text{m}$ und zum anderen ist die Nichtlinearität in Graphen um drei Größenordnungen größer als die von Quarzglas [120]. Aus der Messung kann streng genommen die THG-Emission von Graphen nicht bestimmt werden, da sich die elektrischen Felder – und nicht die Intensitäten – der im Substrat und in

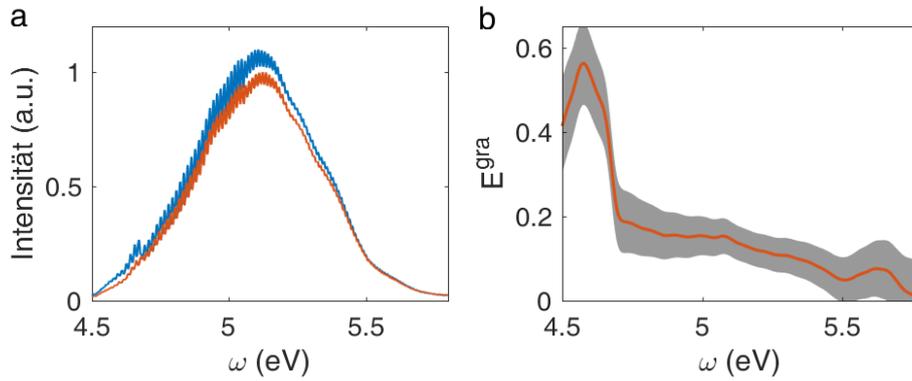


Abbildung 24: (a) Spektrum der THG erzeugt im Substrat I^{sub} (rot) und im Substrat mit einer Lage Graphen auf der Rückseite $I^{sub+gra}$ (blau). Es wurden jeweils 20 Spektren gemittelt. (b) Emission E^{gra} der THG in Graphen im Verhältnis zum Substrat. Das Fehlerintervall (grau gefärbter Bereich) entspricht dem statistischen Fehler des Mittelwertes.

Graphen erzeugten THG phasenrichtig addieren. Um auf die THG-Emission in Graphen zurückzuschließen zu können, ist es notwendig die komplexe Transmissionsfunktion von Graphen zu kennen. Aus der in Abb. 23 gezeigten Messung ist jedoch nur der Betrag der Transmission bekannt.

Im Folgenden wird zur Abschätzung der THG-Emission von Graphen E^{gra} trotzdem angenommen, dass sich die Intensitäten addieren lassen. Innerhalb dieser Annahme lässt sich E^{gra} , definiert durch das spektrale Intensitätsverhältnis von Graphen zu Substrat, bestimmen durch

$$E^{gra} := \frac{\mathbf{I}_{DC}^{gra}(\omega)}{\mathbf{I}_{DC}^{sub}(\omega)} = \frac{\mathbf{I}_{DC}^{sub+gra}(\omega)}{\mathbf{I}_{DC}^{sub}(\omega)} - T(\omega) \quad (77)$$

mit der gemessenen Transmission T^{gra} und den Gleichanteilen der Spektren \mathbf{I}_{DC} , die in Abb. 24a gezeigt werden. Nur die DC-Anteile der Spektren werden verwendet, um die Modulation zu entfernen. Das Ergebnis ist in Abb. 24b dargestellt. Auffällig ist die erhöhte Emission im Bereich der Van-Hove-Singularität bei 4.6 eV. Die Emission steigt unterhalb von $\omega = 4.7$ eV von 0.2 auf 0.6 an. Nicht nur die Absorption, sondern auch die Nichtlinearität von Graphen ist somit im Bereich der Van-Hove-Singularität größer.

Wird die Phase der Maker-Streifen von Spektren mit reinem Substrat und von Substrat mit Graphen voneinander abgezogen, so resultiert eine linear abfallende Phasendifferenz als Funktion von ω . Das bedeutet eine Zunahme der Dispersion zwischen U und V. Ursprünglich war die Idee, aus dieser Phasendifferenz etwas über die Phase der Nichtlinearität und die optische Dicke von Graphen zu lernen. Jedoch führen zwei leicht unterschiedliche Substratdicken zum gleichen Ergebnis. Die beiden Messungen, die verglichen werden, beziehen sich auf unterschiedliche Positionen auf dem Substrat. Die Dicke müsste auf wenige Nanometer

übereinstimmen, was nicht garantiert werden kann. Eine eindeutige Zuordnung der Phase zum Substrat bzw. zum Graphen ist somit nicht möglich.

Es gibt in der Literatur bereits verschiedene Experimente zur Erzeugung von Harmonischen in Graphen. Dabei werden mehrere Möglichkeiten aufgezeigt die Effizienz der harmonischen Erzeugung zu erhöhen, durch elliptische Polarisierung [121], Anpassung der Fermi-Energie [122] und Resonanz mit der Van-Hove-Singularität [120]. Es wird sogar von der Erzeugung hoher Harmonischer bis in den EUV-Bereich berichtet [123]. Es gibt jedoch Unterschiede zu den hier berichteten Experimenten. Im Vergleich zur Literatur kann hier durch die Verwendung ultrakurzer Pulse ($t^{FWHM} = 6 \text{ fs}$) und des bewegten Roboterarmes die sehr hohe Spitzenintensität von $6.2 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ erreicht werden, ohne dass irreversible Schäden entstehen. Die höchste Intensität, von der bisher berichtet wurde, beträgt dagegen nur $3 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ [123].

4.4 Seifenlamelle als Probe

Auch Flüssigkeiten rücken mit der Entwicklung entsprechender Zubehöre, wie z. B. Düsen für die Erzeugung dünner Wasserfilme im Vakuum [124], in den Fokus der Starkfeldphysik [125, 126]. Hier soll eine Seifenlamelle als nichtlineares Medium verwendet werden. Sie kann eine sehr dünne Schicht von wenigen Nanometern ausbilden. Da in flüssiger, wässriger Phase viele organische Stoffe löslich sind, könnte die Seifenlamelle zu einer breiten Palette von Anwendungen im Hinblick auf die Methoden der Starkfeldphysik, wie z. B. der transienten Absorptionsspektroskopie, führen. Hier soll gezeigt werden, wie sich die Seifenlamelle in starken Feldern verhält.

Mit einem Kupferrahmen wird eine Seifenlamelle mit einem Durchmesser von 1 cm erzeugt. Die Lösung besteht aus destilliertem Wasser, 0.4% Natriumlaurylsulfat (SDS) und 24% Glycerin [127]. SDS ist das Tensid und Glycerin dient als Verdunstungsschutz. Die Vakuumkammer wird mit Stickstoff gespült, um die Transmission der Luft im DUV zu erhöhen. Vakuumkonditionen sind nicht möglich, da die Seifenlamelle dann verdampfen würde. In der Literatur wird berichtet, dass die dünnste Schicht der Seifenlamelle¹⁷ mehrere Tage überstehen kann [127]. Hier konnten im Experiment Haltezeiten von einigen Minuten erreicht werden. Nach dem Verschwinden der Seifenlamelle wird sie mit Hilfe des Roboterarms erneuert, der hierfür in den Vorrat an Seifenlösung greift. Dieser befindet sich unterhalb des Strahlengangs.

Die Seifenlamelle wird mit den ultrakurzen VIS-IR-Pulsen A und B in der nahezu-kollinearen Geometrie bestrahlt. Die dritte Harmonische wird in der Seifenlamelle erzeugt. Die Spektren werden im Emissionswinkel $\phi = 1/3 \alpha$ während der Lebenszeit der Lamelle gemessen (siehe Abb. 25). Sie werden mit einer Rate von 10 Hz aufgezeichnet. Folgendes kann beobachtet

¹⁷Diese wird auch als *Newton black film* bezeichnet.

werden: bei Spitzenintensitäten oberhalb von $12 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ ist die Lamelle sofort geplatzt, sobald der Laserstrahl nicht mehr blockiert wird. Eine mögliche Ursache ist das Verdampfen von Wasser im Fokus durch thermisches Heizen. Unterhalb dieser Intensität nimmt die Lebenszeit der Lamelle deutlich zu. Bei $8 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ beträgt die mittlere Lebensdauer schon mehrere Minuten. Lebenszeiten im Bereich von mehreren Stunden, wie sie in [127] beschrieben werden, werden hingegen nicht erreicht. Die Ursache kann im kontinuierlichen Gasfluss durch die Spülung mit Stickstoff liegen.

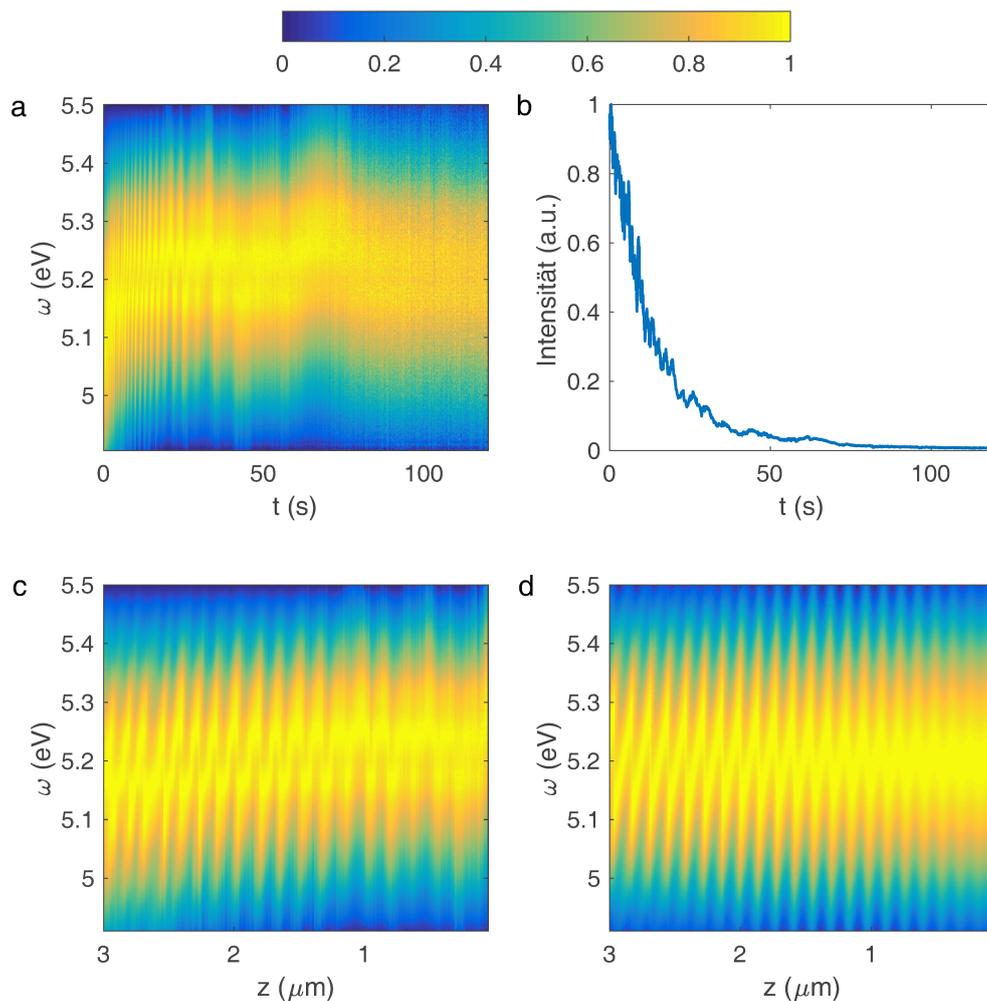


Abbildung 25: (a) Spektren der THG, die in einer Seifenlamelle erzeugt wird, als Funktion der Zeit. Jedes einzelne Spektrum ist normiert worden, um die Sichtbarkeit zu verbessern, da die Intensität über der Zeit stark abnimmt. (b) Spektrale Intensität einer beliebigen Frequenz (hier 5.1 eV) als Funktion der Zeit. (c) Die Daten aus (a) sind reskaliert als Funktion der Dicke z der Seifenlamelle dargestellt. (d) Normierte Transmission einer dielektrischen Schicht nach Gleichung 78 mit Brechungsindex $n_1 = 1$ und $n_2 = 1.3$. Die Transmission wurde mit einer Gauß-Funktion multipliziert, die dem Spektrum der THG ähnelt, um die Vergleichbarkeit zwischen (c) und (d) zu verbessern.

Die Spektren zeigen eine periodische Blau- bzw. Rotverschiebung als Funktion der Zeit (siehe Abb. 25a). Die Seifenlamelle kann als dielektrische Schicht der Dicke z angesehen werden.

Durch Reflexion und Interferenz im Fabry-Perot-Etalon ergibt sich eine frequenz- und dickenabhängige Transmission der Form [128]

$$T = \left| \frac{4n_1n_2 \exp(-in_2\frac{\omega}{c}z)}{(n_1 + n_2)^2 - (n_1 - n_2)^2 \exp(-i2n_2\frac{\omega}{c}z)} \right|^2. \quad (78)$$

Der Brechungsindex der Luft ist n_1 und der Brechungsindex der Seifenlamelle ist n_2 . Die Zeitachse kann somit in die Schichtdicke umgerechnet werden. Dies geschieht hier, wie in [127] beschrieben, anhand der Auswertung der Transmissionsmaxima bei einer Frequenz. Die experimentelle Beobachtung stimmt sehr gut mit Gleichung 78 überein (vgl. Abb. 25 c und d).

Im Hinblick auf die Anwendbarkeit für die zeitaufgelöste Spektroskopie ist festzuhalten, dass innerhalb der ersten 100 s (Schichtdicke ≥ 100 nm $\sim \lambda/2$) die Spektren von Propagationseffekten dominiert werden. Dieses Zeitintervall ist für die Spektroskopie daher ungeeignet. Erst wenn die Schichtdicke kleiner als $\lambda/2$ ist, bleibt das Spektrum zeitlich konstant, bis die Seifenlamelle platzt. Dieses Zeitfenster könnte für die Spektroskopie verwendet werden. Dabei ist die Spitzenintensität auf etwa $8 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ limitiert, um eine Lebensdauer von mehreren Minuten zu gewährleisten.

4.5 Dritte, fünfte und siebte Harmonische im Vergleich

In diesem Unterkapitel werden die zeitliche 3., 5. und 7. Harmonische untersucht, die in einer $15 \mu\text{m}$ dicken Quarzglas-Probe erzeugt werden. Die THG wird im Emissionswinkel $\phi = 1/3 \alpha$, die fünfte Harmonische bei $\phi = 1/5 \alpha$ und die siebte Harmonische bei $\phi = 1/7 \alpha$ gemessen. Die in Abb. 26 dargestellten Spektren enthalten mehrere Besonderheiten.

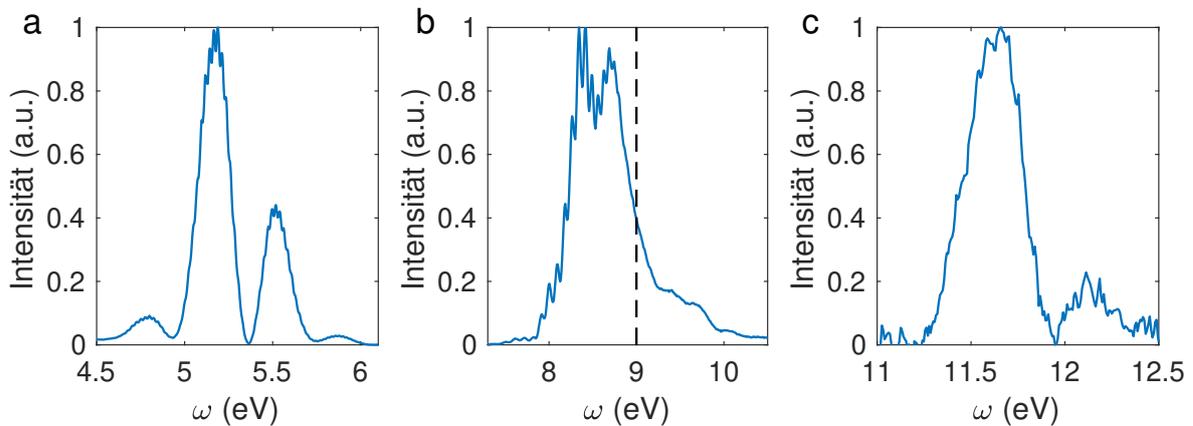


Abbildung 26: Gemessene Spektren der THG (a), der 5. Harmonischen (b) und der 7. Harmonischen (c) erzeugt in einem $15 \mu\text{m}$ dicken Quarzglas-Substrat. Die Bandlücke beträgt $E_g = 9$ eV (gestrichelte schwarze Linie).

Auffällig sind die Modulationen mit zwei unterschiedlichen Perioden und unterschiedlichen Modulationstiefen, die bei der THG besonders ausgeprägt sind. Beide Modulationen neh-

men auf der 5. Harmonischen deutlich ab und sind oberhalb von 9 eV nicht mehr zu sehen. Diese Beobachtungen lassen sich folgendermaßen erklären: Die langperiodige Modulation der THG (mit vier Maxima) entspricht der schon ausführlich diskutierten Erzeugung von Doppelpulsen durch Fehlanpassung der Phase (Maker-Streifen). Die große Periode ergibt sich auf Grund der geringen Probendicke von $L = 15 \mu\text{m}$, die in einem Pulsabstand von nur $T_p = 11 \text{ fs}$ resultiert. Die zweite Modulation des THG-Spektrums weist eine deutlich geringere Periode und eine Modulationstiefe von wenigen Prozent auf. Diese ist, ähnlich zu den zuvor beschriebenen Beobachtung in einer Seifenlamelle, durch Mehrfachreflexion der THG-Pulse an der Vorder- und Rückseite der Probe zu erklären (Fabry-Perot-Etalon). Ein Teil der THG-Doppelpulse wird an der Rückseite reflektiert. Aus den Fresnel-Gleichungen ergibt sich ein Reflexionskoeffizient bei senkrechtem Einfall von 4%. Die zurückpropagierenden Pulse werden noch einmal an der Vorderseite reflektiert. In Summe ergibt sich mit Hilfe der Gleichung 9 eine Modulationstiefe von $\eta_M = 15\%$. Sie ist im Experiment mit $\eta_M = 9\%$ etwas geringer. Eine Ursache hierfür kann in der endlichen Stabilität des Interferometers liegen. Die Belichtungszeit der Kamera von 0.1 s führt zu einer Verringerung der Modulation durch die Summation über viele Laserpulse. Der zeitliche Abstand zwischen den direkt transmittierten und den reflektierten Doppelpulsen beträgt $T_r = 2Ln_{gr}(\omega_{THG})/c = 167 \text{ fs}$, was in Übereinstimmung mit der gemessenen Modulationsperiode ist.

Die 5. Harmonische überspannt den Energiebereich von 8–10 eV. In diesem Bereich befindet sich die Bandlücke von Quarzglas mit $E_g = 9 \text{ eV}$. Oberhalb der Bandlücke ist keine Modulation mehr zu sehen. Die Ursache hierfür ist die Absorption. Die erzeugte Strahlung wird noch während der Propagation wieder absorbiert. Die detektierte Intensität wird auf der Rückseite der Probe erzeugt. Es kann sehr gut unterschieden werden zwischen dem Bereich unterhalb der Bandlücke, in dem die Propagationseffekte in der Probe die Spektren beeinflussen und der Erzeugung von Strahlung oberhalb von E_g , die der Emission aus einer dünnen Schicht entspricht.

Die 7. Harmonische hat eine Energie von 12 eV im VUV-Spektralbereich. Die Fluktuationen auf dem Spektrum sind im Gegensatz zur 3. und 5. Harmonischen auf Rauschen des Detektors zurückzuführen. Der Photonenfluss ist in diesem Spektralbereich Nahe der Detektionsgrenze, wobei erwähnt werden muss, dass die Gittereffizienz unterhalb von 10 eV laut Herstellerangabe stark abfällt und in diesem Bereich unter 10% liegt. Die Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Pulse im VUV sind nicht Teil dieser Doktorarbeit, dennoch sind sie topaktuelle Forschungsthemen. In einer Veröffentlichung aus dem Jahr 2019 wird z. B. von der Erzeugung intensiver 1.8 fs Pulse im VUV durch *dispersive-wave* Emission berichtet [50].

5 Zeitliche Charakterisierung der dritten Harmonischen

Dieses Kapitel basiert auf der eigenen Veröffentlichung [129] und enthält übersetzte Passagen.

Im vorherigen Kapitel wurde die Erzeugung von DUV-Doppelpulsen berichtet. Anhand von Modellen wurde der zeitliche Verlauf bzw. die Pulsdauer diskutiert. Eine experimentelle Methode zur zeitlichen Charakterisierung fehlt jedoch noch. In diesem Kapitel wird hierfür eine geeignete Methode entwickelt.

Ultrakurze Pulse im DUV werden für verschiedene Techniken der ultraschnellen Spektroskopie verwendet [39, 130, 131, 132]. Eine zeitliche Charakterisierung der Pulse ist oft erforderlich, aber die experimentellen Bedingungen schränken die Methoden für die Charakterisierung ein. Wenn ein bekannter Referenzpuls verfügbar ist, können lineare Techniken der spektralen Interferometrie verwendet werden [98]. Ohne bekannten Referenzpuls können nichtlineare Methoden wie FROG [96] oder SPIDER [99] verwendet werden. Während diese Verfahren im VIS-IR sehr erfolgreich sind, ist ihre Anwendung im DUV aufgrund niedriger Pulsenergien und des Fehlens geeigneter nichtlinearer Kristalle oft unmöglich. Intensive Pulse mit Pulsenergien im μJ -Bereich können durch Frequenz-entartete Verfahren wie SD-FROG [42] oder *transient grating* (TG-) FROG [43, 133] charakterisiert werden. Auch Multiphotonenprozesse in gasförmigen Medien werden zur Pulscharakterisierung genutzt, z. B. in der *fringe-resolved autocorrelation* (FRAC) dritter Ordnung [48] oder in der Kreuzkorrelation [134]. Dies erfordert jedoch intensive Pulse und der zugrunde liegende nichtlineare Prozess ist resonant, was die Pulsrekonstruktion erschwert. Für niedrigere Pulsenergien werden oft intensive VIS-IR-Pulse verwendet, um den nichtlinearen Prozess zu unterstützen, wie z. B. bei den Methoden *zero-additional-phase* (ZAP-) SPIDER [44] oder *cross-correlation* FROG (XFROG) [135, 136]. Diese wurden mit Pulsenergien im 100 pJ-Bereich getestet.

In diesem Kapitel wird ein Verfahren zur gleichzeitigen Charakterisierung von zwei unbekanntem und unabhängigen Laserpulsen vorgestellt und im DUV-Spektralbereich demonstriert. Spektren der beiden DUV-Pulse mit einer festen Pulsverzögerung werden aufgezeichnet, während ein unbekannter VIS-IR-Puls mit einem der DUV-Pulse mit einer variablen Verzögerung überlagert wird. Dadurch wird die Phase eines DUV-Pulses durch XPM verschoben. Zwei Varianten der Implementierung des XPM-Scans werden vorgestellt, genannt *edge* und *center*. Die aufgezeichneten Daten enthalten sowohl Amplituden- als auch Phaseninformationen, was eine analytische Pulsrekonstruktion ermöglicht. Gleichzeitig kann die Güte der Rekonstruktion überprüft werden, indem die komplexwertige Datenspur mit dem rekonstruierten Datensatz verglichen wird. Dies kombiniert den für SPIDER-Methoden typischen Vorteil der Stringenz und Schnelligkeit der analytischen Rekonstruktion mit der Überprüfbarkeit durch den Vergleich mit der rekonstruierten Datenspur, wie sie für FROG-Methoden

typisch ist. Diese Vorteile enthält auch die kürzlich eingeführte Methode zur Charakterisierung von VIS-IR-Pulsen „Interferometrische Abbildung von Selbstbeugung“ [137, 138]. Ein weiterer und sehr wichtiger Vorteil der Charakterisierung mit XPM-Scans ist, dass Pulsenergien von wenigen Picojoule ausreichen.

5.1 Experimenteller Aufbau

Experimentell werden zwei ultrakurze VIS-IR-Pulse, hier bezeichnet mit A und R, nahezu kollinear in ein Dielektrikum mit variabler Verzögerung τ fokussiert, siehe Abb. 27a. Dabei ist die Strahltaile $\sim 100 \mu\text{m}$, der halbe Öffnungswinkel ist $\alpha = 0.55^\circ$ und die Polarisation der elektrischen Felder ist senkrecht zur Einfallsebene. Als Probe wird ein $100 \mu\text{m}$ dickes polykristallines MgF_2 -Plättchen verwendet. Für die Methode wäre jedes isotrope Dielektrikum mit großer Bandlücke geeignet. Die Pulse A und R sind ähnlich, da sie durch Strahlteilung eines Laserpulses entstehen (Zentralwellenlänge $\lambda_{A,R} = 720 \text{ nm}$, Pulsdauer $t_{A,R}^{FWHM} = 6 \text{ fs}$ und Spitzenintensität $I_{A,R} = 4 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$). Diese Ähnlichkeit ist aber keine Voraussetzung. Es wird das Spektrum der THG gemessen, das kollinear zu A abgestrahlt wird.

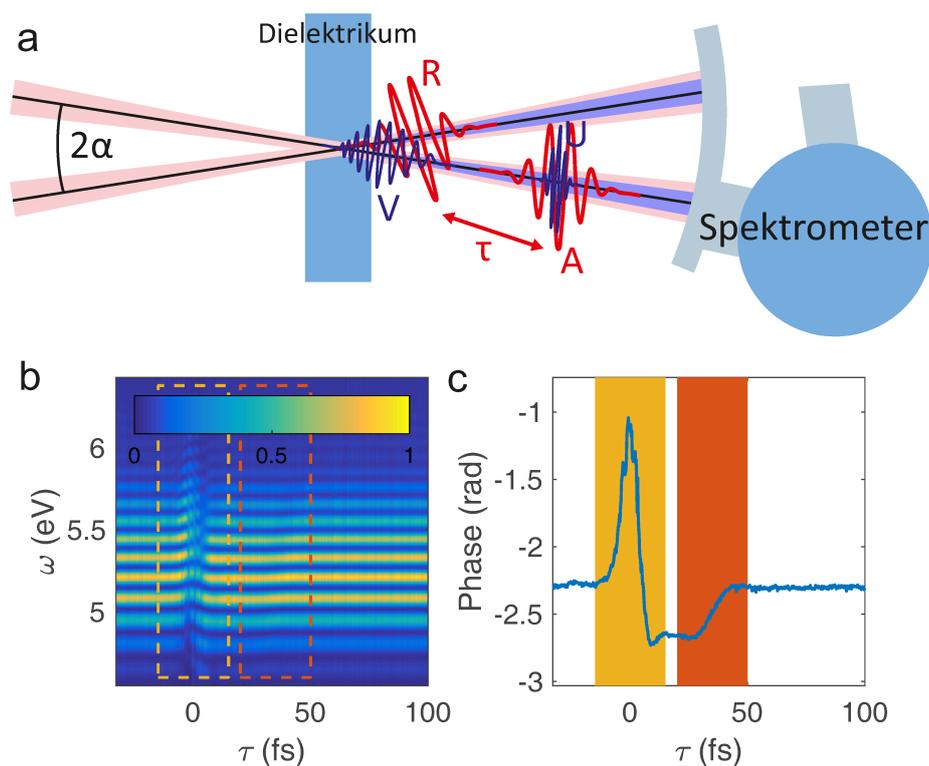


Abbildung 27: Der Puls A erzeugt die DUV-Pulse U und V während Puls R XPM mit variabler Verzögerung τ induziert (a). Der Verzögerungsscan $\mathbf{I}(\omega, \tau)$ ist in (b) dargestellt. Die Phase von $\mathbf{I}_+(\omega = 5.2 \text{ eV}, \tau)$ ist in (c) abgebildet. Der in den Varianten *edge* und *center* verwendete Verzögerungsbereich ist jeweils rot und gelb markiert. Adaptiert aus [129].

5.2 Analytische Pulsrekonstruktion in zwei Varianten

Die 1D-Pulspropagation in z -Richtung ist gegeben durch (vgl. Gleichung 63)

$$\tilde{E}(z, \omega) = \phi(\omega) \left(\tilde{E}_0(\omega) - i \frac{\omega c \mu_0}{2n(\omega)} \int_0^z dz' \tilde{P}^{NL}(z', \omega) e^{ik(\omega)z'} \right) \quad (79)$$

mit der Winkelfrequenz ω , dem Brechungsindex $n(\omega)$ und $k(\omega) = n(\omega) \frac{\omega}{c}$. \tilde{P}^{NL} ist die nichtlineare Polarisation, $\tilde{E}_0(\omega) = \tilde{E}(z=0, \omega)$ und $\phi(\omega) = e^{i(n_{IR} \frac{\omega}{c} - k(\omega))z}$ beschreibt die lineare Ausbreitung im Bezugssystem der Geschwindigkeit c/n_{IR} . Mit der Einschränkung auf die lineare Propagation der fundamentalen Pulse und der Annahme $n(\omega_{IR}) = n_{IR}$, kann die Gleichung 79 für DUV-Frequenzen gelöst werden: $\tilde{E}_{UV}(z, \omega) \propto (1 - \phi(\omega))$. Die Erzeugung von Doppelpulsen ist bereits bekannt. Für die THG von Puls A wird der führende Puls mit U und der nachlaufende Puls mit V bezeichnet, genau wie schon im vorherigen Kapitel. Am Ende der MgF₂-Platte sind U und V ~ 35 fs voneinander getrennt. Sie besitzen jeweils eine Pulsenergie von ~ 15 pJ bezogen auf die Apertur des Spektrometer-Schlitzes. DUV-Pulse werden ebenfalls kollinear in Richtung von R und bei Pulsüberlapp auch in den Bereich zwischen R und A emittiert, aber diese DUV-Strahlung wird nicht detektiert.

Ein Scan der Pulsverzögerung τ ergibt eine Datenspur der Form (siehe Abb. 27b)

$$\mathbf{I}(\omega, \tau) = |U(\omega, \tau) + V(\omega, \tau)|^2. \quad (80)$$

Als Vorbereitung für die Pulsrekonstruktion wird die inverse Fourier-Transformation der modulierten Spektren bezüglich ω berechnet. Danach wird die Wechselkomponente bei positiven Zeiten ausgeschnitten. Anschließend erfolgt die Fourier-Transformation zurück in den Frequenzbereich, damit ergibt sich

$$\mathbf{I}_+(\omega, \tau) = U^*(\omega, \tau)V(\omega, \tau). \quad (81)$$

Diese Art der Spektralanalyse ist analog zum Unterkapitel 4.2. Zur Übersicht sind in Abb. 28 die einzelnen Schritte für ein τ dargestellt.

Für $\tau > 50$ fs interagiert Puls R weder mit U noch mit V, siehe Abb. 27c. Da sich R schneller als V ausbreitet, überholt R den Puls V irgendwo innerhalb des MgF₂-Plättchens für $0 < \tau < 50$ fs, siehe Abb. 29. Für 20 fs $< \tau < 50$ fs interagiert R mit V nahe der Rückseite des MgF₂-Plättchens. Der „Überholvorgang“ ist partiell, weshalb die XPM von Puls V τ -abhängig ist.

In der ersten Variante *edge* der Pulscharakterisierung ist der Pulsverzögerungsscan auf den Bereich beschränkt, in dem R ausschließlich den Puls V abtastet. Das nichtlineare Medium muss so dick sein, dass diese Einschränkung möglich ist. Hier wird der Bereich 20 fs $<$

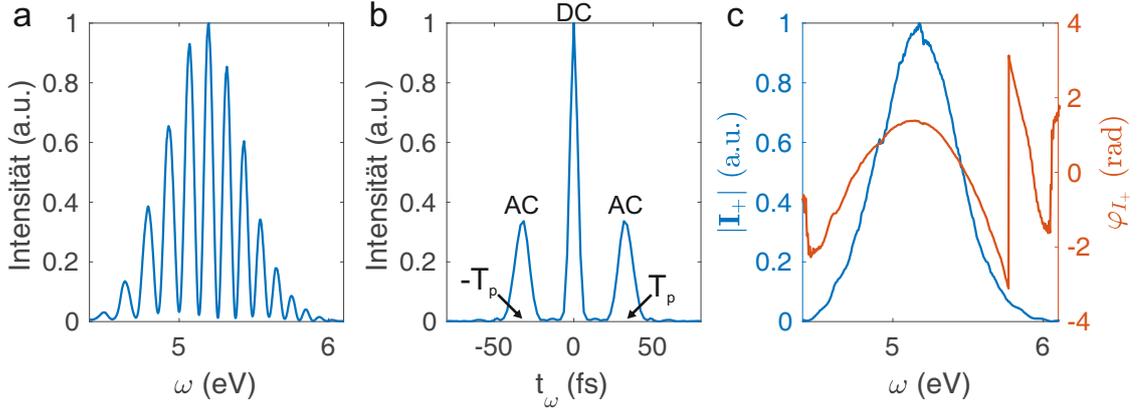


Abbildung 28: (a) Spektrum der THG erzeugt in einem $100 \mu\text{m}$ dicken MgF_2 -Plättchen für eine beliebige Verzögerung τ . (b) Betrag der Fourier-Transformation des THG-Spektrums im Zeitbereich t_ω . Es können die Wechselanteile $\mathbf{I}_-(t_\omega)$ und $\mathbf{I}_+(t_\omega)$ bei den Zeiten $t_\omega = \pm T_p$ und der Gleichanteil $\mathbf{I}_{DC}(t_\omega)$ bei der Zeit $t_\omega = 0$ voneinander getrennt werden. (c) Amplitude und Phase von $\mathbf{I}_+(\omega)$.

$\tau < 50$ fs ausgewählt, vgl. Abb. 27c. In Vorbereitung auf die Pulsrekonstruktion wird die Datenspur $\mathbf{Y}_e(\omega, \omega_\tau)$ durch Differenzierung von \mathbf{I}_+ bezüglich τ und einer nachfolgenden Fourier-Transformation von τ zu ω_τ berechnet. Da Puls U im ausgewählten Bereich nicht von τ abhängt, folgt

$$\mathbf{Y}_e(\omega, \omega_\tau) = U^*(\omega)V'(\omega, \omega_\tau) \quad (82)$$

mit der Ableitung $V'(\omega, \tau) = \frac{\partial V(\omega, \tau)}{\partial \tau}$. Bei rauschbehafteten Daten kann es vorteilhaft sein, die Messdaten über der τ -Achse zu glätten, bevor die numerische Differenzierung durchgeführt wird.

Um eine Methode zur Pulsrekonstruktion zu entwickeln, wird ein analytischer Ausdruck für $\mathbf{Y}_e(\omega, \omega_\tau)$ hergeleitet. Das elektrische Feld von R ist durch $R(\omega, \tau, z) = R(\omega)e^{-i(\omega\tau + k(\omega)z)}$ gegeben. Dies beinhaltet die Annahme, dass sich R linear ausbreitet, insbesondere wird die SPM von R vernachlässigt. Die Propagation von Puls V wird hingegen von R durch XPM beeinflusst. Im Fall einer instantanen Polarisationsantwort ergibt sich

$$\begin{aligned} \tilde{P}^{NL}(z, \omega, \tau) = & 3\chi^{(3)} \iiint d\omega_1 d\omega_2 d\omega_3 V_0(\omega_1) R(\omega_2) R(\omega_3) \\ & \times e^{-i(\omega_2 + \omega_3)\tau} e^{-i(k(\omega_1) + k(\omega_2) + k(\omega_3))z} \delta(\omega - \omega_\sigma) \end{aligned} \quad (83)$$

mit der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(3)}$, der Delta-Distribution $\delta(\omega)$ und $\omega_\sigma = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3$. Die Annahme einer instantanen Nichtlinearität ist mit Hinblick auf die neuesten zeitaufgelösten Polarisationsmessungen gerechtfertigt [32]. Die Pulspropagation (Gleichung 79) wird für $\tilde{E} = V$ und der hier gegebenen nichtlinearen Polarisation \tilde{P}^{NL} unter der Annahme

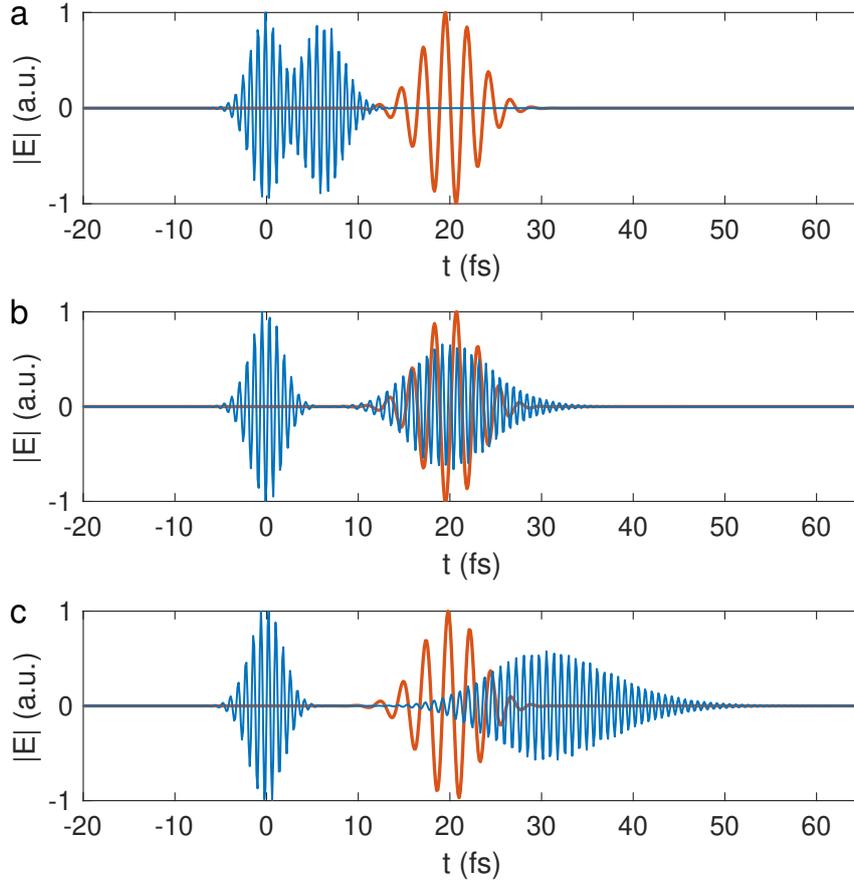


Abbildung 29: Im Rahmen einer 1D-Simulation berechnete und normierte elektrische Felder des fundamentalen Pulses R (rot) und der THG (blau) während der Propagation für $\tau = 20$ fs und $z = 20 \mu\text{m}$ (a), $z = 65 \mu\text{m}$ (b) und $z = 100 \mu\text{m}$ (c).

$n(\omega_2) = n(\omega_3) = n_{IR}$ gelöst. Nach der Differenzierung bezüglich τ und der Fourier-Transformation von τ zu ω_τ ist V' wie folgt gegeben

$$V'(\omega, \omega_\tau) = \frac{-i\omega^3 \chi^{(3)}}{2\epsilon_0 n(\omega) \Delta n(\omega)} \phi(\omega) e^{i(n(\omega) - n(\omega - \omega_\tau)) \frac{\omega - \omega_\tau}{c} z} \times \left(e^{-i \left(\frac{n(\omega + \omega_\tau) - n_{IR}}{c} \right) \omega_\tau z} - 1 \right) V_0(\omega + \omega_\tau) \mathcal{X}(-\omega_\tau) \quad (84)$$

mit $\mathcal{X}(\omega_\tau) = \int d\omega_2 R(\omega_2) R(\omega_\tau - \omega_2)$, der Faltung von R mit sich selbst. Im Folgenden wird der Summand -1 in Gleichung 84 vernachlässigt, da er der Interaktion von R und V nahe $\tau = 0$ entspricht und daher für den Verzögerungsbereich von *edge* ausgeschlossen werden muss. Die Datenspur \mathbf{Y}_e wird durch Multiplikation mit $U^*(\omega)$ gegeben durch

$$\mathbf{Y}_e(\omega, \omega_\tau) = \frac{-i\omega^3 \chi^{(3)}}{2\epsilon_0 n(\omega) \Delta n(\omega)} U^*(\omega) V(\omega + \omega_\tau) \mathcal{X}(-\omega_\tau). \quad (85)$$

Die zweite Variante *edge* ist breit anwendbar und nicht auf die aktuelle Situation beschränkt, in der die DUV-Pulse U und V durch den gleichen VIS-IR-Puls erzeugt werden. Die Pulse U und V können unabhängig voneinander mit einer beliebigen Methode erzeugt und anschließend in einem nichtlinearen Medium durch XPM-Scan charakterisiert werden. Die einzige Einschränkung besteht darin, dass U und V den gleichen Spektralbereich abdecken müssen und dass ihre Verzögerung ausreicht, um den Wechselanteil im Spektrum zu isolieren. Diese von der Erzeugung unabhängige Charakterisierung wird im Unterkapitel 7.6 durchgeführt.

In der Variante *center* ist der Pulsverzögerungsscan auf einen Bereich beschränkt, in dem R über den Puls U gescannt wird. Für die vorliegende Messung ist das im Bereich $-15 \text{ fs} < \tau < 15 \text{ fs}$ der Fall, siehe Abb. 27c. In der Variante *center* wird davon ausgegangen, dass R und U mit der gleichen Geschwindigkeit durch das nichtlineare Medium propagieren. Hinsichtlich des Szenarios, dass U und V DUV-Pulse sind und Puls R im VIS-IR liegt, ist die Anwendbarkeit damit spezifisch für die vorliegende THG-Erzeugung. Wenn jedoch alle drei Pulse Frequenz-entartet sind, dann bewegen sich R und U mit der gleichen Geschwindigkeit durch das nichtlineare Medium und die Variante *center* ist weitgehend auf alle unabhängig erzeugten Pulse U, V und R anwendbar. Es wird davon ausgegangen, dass XPM von Puls R nur auf U und nicht auf V übertragen wird. Das ist für den vorliegenden Fall gerechtfertigt, weil U und R sich zeitlich im nichtlinearen Medium überlappen, während der Puls R den Puls V innerhalb einer Ausbreitungsdistanz von $< 10 \mu\text{m}$ für die gegebenen Pulse überholt. In Vorbereitung auf die Pulsrekonstruktion wird die Datenspur $\mathbf{Y}_c(\omega, \omega_\tau)$ durch Subtraktion des nicht- τ -abhängigen Hintergrunds von \mathbf{I}_+ berechnet, z. B. durch Subtraktion von $\mathbf{I}_+(\omega, \tau = \infty)$ oder $\mathbf{I}_+(\omega, \tau = -\infty)$ von \mathbf{I}_+ bei jedem τ , gefolgt von der Fourier-Transformation von τ zu ω_τ . Da der Puls V in der ausgewählten Region nicht von τ abhängig ist, ist die Datenspur für die Rekonstruktion die Folgende:

$$\mathbf{Y}_c(\omega, \omega_\tau) = (U^*(\omega, \omega_\tau) - U^*(\omega, \tau = \infty)) V(\omega). \quad (86)$$

Im Gegensatz zur Variante *edge* ist keine Differenzierung notwendig, was für verrauschte Daten von Vorteil ist. Um eine Methode zur analytischen Pulsrekonstruktion zu entwickeln, wird die Pulspropagation (Gleichung 79) für $\tilde{E} = U$ mit der Näherung $n(\omega) = n(\omega_1) = n(\omega_2) = n(\omega_3) = n_{IR}$ zur Vereinfachung des z-Integrals gelöst. Nach der Subtraktion des Hintergrundes und der Fourier-Transformation von τ zu ω_τ ist das Ergebnis gegeben durch

$$\mathbf{Y}_c^*(\omega, \omega_\tau) = \frac{-i\omega c \mu_0 3\chi^{(3)} z}{2n(\omega)} \phi(\omega) U(\omega + \omega_\tau) V^*(\omega) \mathcal{X}(-\omega_\tau). \quad (87)$$

In beiden Varianten *edge* und *center* haben die Datenspuren die vorteilhafte Form, dass sie in drei Funktionen faktorisieren, die nur von ω , ω_τ und $\omega + \omega_\tau$ abhängen. In den Veröffentlichungen [137] und [138] wurde für diese Art von Datenspuren eine analytische sowie eine

iterative Pulsrekonstruktion eingeführt. Hier kommt die analytische Methode zur Anwendung. Für die numerische Rekonstruktion von U und V ist es vorteilhaft, die Substitution $\omega_\tau \rightarrow \omega - \omega_\tau$ durchzuführen, die von der Dispersion abhängigen Vorfaktoren zu eliminieren und die schnellen Phasenoszillationen von \mathbf{Y}_e durch Multiplikation mit $e^{-i\omega_\tau T_p}$ zu entfernen. Die Verschiebung um T_p zur null entspricht der Verzögerung zwischen U und V hinter der Probe. Dies führt zu den normierten Datenspuren

$$\bar{\mathbf{Y}}_e(\omega, \omega_\tau) = U^*(\omega)V(-\omega_\tau)\mathcal{X}(\omega_\tau + \omega) \quad (88)$$

und

$$\bar{\mathbf{Y}}_c^*(\omega, \omega_\tau) = U(-\omega_\tau)V^*(\omega)\mathcal{X}(\omega_\tau + \omega). \quad (89)$$

In den Veröffentlichungen [137] und [138] wird die analytische Rekonstruktion aus solchen Datenspuren ausführlich beschrieben. Die vorläufigen Lösungen $\hat{U}(\omega)$ und $\hat{V}(\omega)$ werden durch „logarithmische Differenzierung“ bezüglich ω bzw. ω_τ und nachfolgende „exponentielle Integration“ auf der Diagonalen der Datenspuren erhalten. Diese sind mit den wahren Lösungen verbunden durch $U(\omega) = \hat{U}(\omega)e^{i\alpha+iT\omega+s\omega}$ und $V(\omega) = \hat{V}(\omega)e^{i\beta+iT\omega+s\omega}$ mit den reellen Integrationskonstanten α, β, T und s . Die absolute Ankunftszeit T kann nicht aus den Datenspuren bestimmt werden. Auch die Bestimmung der beiden CEP α und β ist unmöglich. Diese Parameter werden manchmal als triviale Mehrdeutigkeiten bezeichnet. Die Bestimmung von s , die sich auf die Spektren $|U(\omega)|^2$ und $|V(\omega)|^2$ auswirkt, ist für die Pulsrekonstruktion notwendig. Es ist einfach s zu bestimmen, wenn das Spektrum von U oder V bekannt ist. Hier ist dies nicht der Fall und das Spektrum muss aus dem Doppelpulsspektrum $|U(\omega) + V(\omega)|^2$ extrahiert werden. Für identische Spektren von U und V kann das Spektrum aus den vorläufigen Lösungen unter Verwendung der Identität $|U(\omega)|^2 = |V(\omega)|^2 = |\hat{U}(\omega)\hat{V}(-\omega)|$ abgeleitet werden.

5.3 Pulscharakterisierung experimenteller Daten

Die Pulsrekonstruktion beider Varianten *edge* und *center* wird auf die experimentellen Daten angewandt. In Abb. 30 und 31 sind die Amplitude und die Phase der ursprünglichen und der rekonstruierten Datenspuren für die Varianten *edge* und *center* dargestellt. Zur Unterdrückung von Rauschen der Phase werden alle Werte unterhalb des Schwellenwertes von 1% des Maximalwertes auf null gesetzt. Die rekonstruierten Funktionen $U(\omega)$ und $V(\omega)$ sind in Abb. 32 dargestellt. Die Ergebnisse von *edge* und *center* sind kaum zu unterscheiden. Die Phase von U ist so wie erwartet nahezu konstant. Der Puls V ist hingegen positiv gechirpt ($\text{GDD} = 12 \text{ fs}^2$), was auf die Ausbreitung innerhalb der Probe zurückzuführen ist und mit der Dispersion in MgF_2 übereinstimmt ($\text{GDD} = 11.3 \text{ fs}^2$). Die rekonstruierten Pulse werden verwendet, um die rekonstruierte Datenspur mit Gleichung 89 zu berechnen. Dies liefert eine

Überprüfung der Genauigkeit der Rekonstruktion, ähnlich wie es für FROG-Methoden üblich ist, mit dem Vorteil, dass sowohl Amplitude als auch Phase verglichen werden können. Die ursprüngliche Datenspur stimmt mit der rekonstruierten Datenspur sehr gut überein. Das gilt sowohl für die Variante *edge* (Abb. 30), als auch für die Variante *center* (Abb. 31).

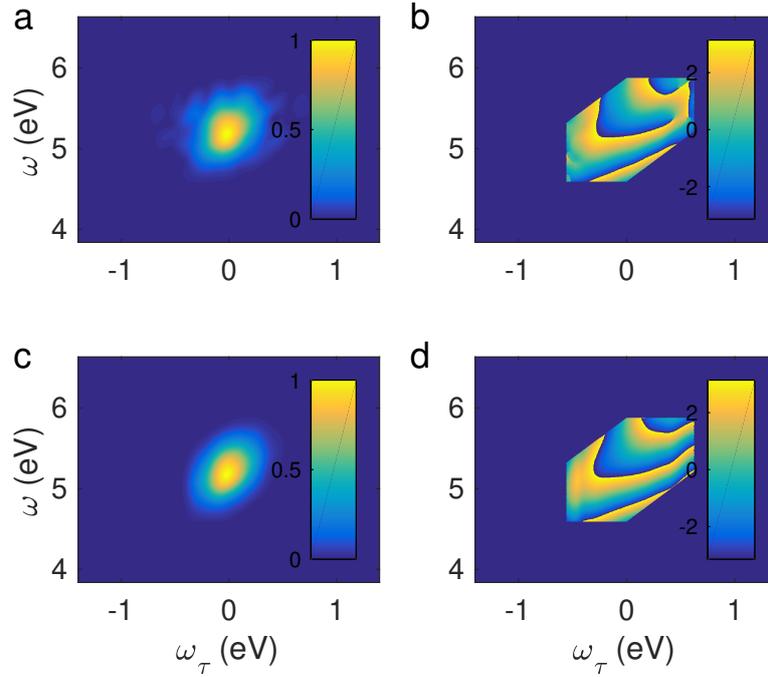


Abbildung 30: Variante *edge*: Amplitude (a und c) und Phase (b und d) von $\bar{\mathbf{Y}}_e^*(\omega, \omega_\tau)$. Die gemessenen Daten sind in (a) und (b) dargestellt, die rekonstruierten Daten in (c) und (d). Die Daten in (b)–(d) sind nur in dem Bereich dargestellt, in dem die Amplitude der gemessenen Daten 1% des Maximums übersteigt.

Für die Darstellung der Pulse im Zeitbereich werden die Einhüllenden $f_U(t) = \mathcal{F}^{-1}\{U(\omega - \omega_0)\}$ und $f_V(t) = \mathcal{F}^{-1}\{V(\omega - \omega_0)\}$ mit der Zentralfrequenz $\omega_0 = 5.2$ eV berechnet, siehe Abb. 33. Für Puls U wird die Pulsdauer $t_U^{FWHM} = 3.7 \pm 0.05$ fs erhalten, was gut zur Abschätzung von THG in einer dünnen Probe passt ($t_U^{FWHM} = t_A^{FWHM}/\sqrt{3} = 3.5$ fs). Die Pulsdauer von V ist $t_V^{FWHM} = 9.1 \pm 0.2$ fs, was die Dispersion während der linearen Propagation im Dielektrikum widerspiegelt. Die Fehlerangabe der Pulsdauer bezieht sich auf die Standardabweichung bei Anwendung des Bootstrapping-Verfahrens auf den Datensatz. Der geringe Fehler ist ein weiterer Indikator für die Robustheit des Algorithmus. Die kleinen Oszillationen unterhalb der Einhüllenden sind numerische Artefakte, die durch die Fourier-Transformation kleiner Unstetigkeiten verursacht werden. Diese entstehen am Rand des Vertrauensbereiches, an dem die Daten auf null gesetzt werden. Sie könnten durch die Verwendung von geeigneten Fensterfunktionen unterdrückt werden.

Auch die Größe $\mathcal{X}(\omega)$ wird in der analytischen Rekonstruktion bestimmt, was Informationen über den VIS-IR-Puls R liefert. Die Darstellung im Zeitbereich $\mathcal{X}(t) = \mathcal{F}^{-1}\{\mathcal{X}(\omega)\}$ gibt eine

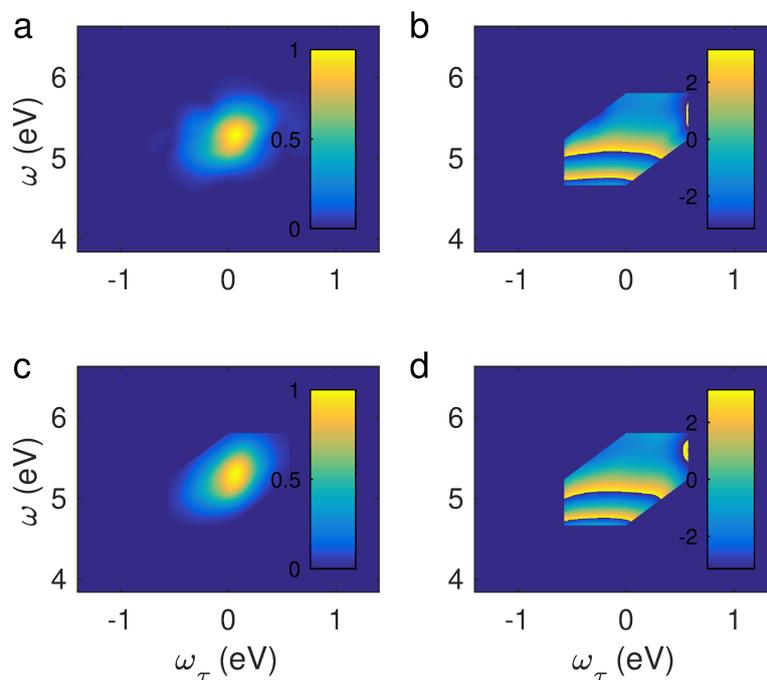


Abbildung 31: Variante *center*: Amplitude (a und c) und Phase (b und d) von $\bar{Y}_c^*(\omega, \omega_\tau)$. Die gemessenen Daten sind in (a) und (b) dargestellt, die rekonstruierten Daten in (c) und (d). Die Daten in (b)–(d) sind nur in dem Bereich dargestellt, in dem die Amplitude der gemessenen Daten 1% des Maximums übersteigt. Übernommen aus [129].

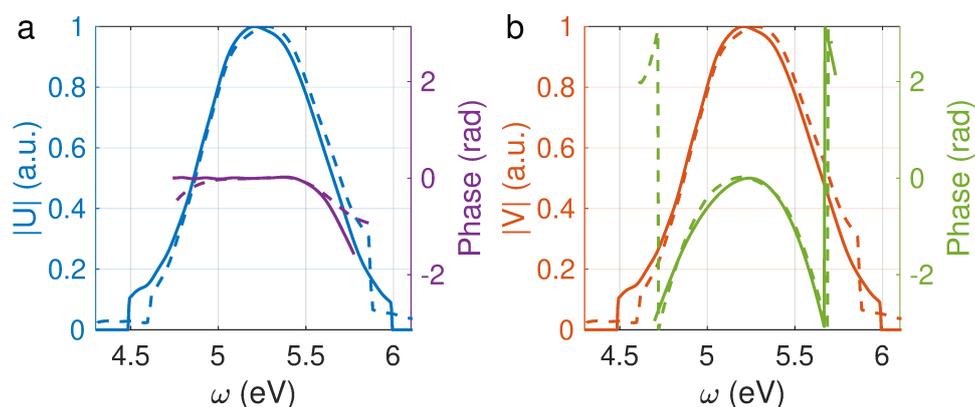


Abbildung 32: Rekonstruierte komplexe Funktionen $U(\omega)$ (a) und $V(\omega)$ (b) unter Verwendung der Methoden *edge* (durchgezogene Linie) und *center* (gestrichelt). Zur besseren Sichtbarkeit ist die lineare Phase subtrahiert worden. Das entspricht einer Verschiebung auf den Zeitpunkt null. Weiterhin ist die Phase nur in dem Bereich angezeigt, in dem die Amplitude 20% des Spitzenwertes überschreitet. Übernommen aus [129].

Vorstellung von der zeitlichen Pulsform von R, siehe Abb. 33c. Die Größe \mathcal{X} enthält den Puls R in zweiter Ordnung, ist aber nicht an der zweiten Harmonischen, sondern nur nahe der Frequenz null bestimmt. Dieser Prozess ist bekannt als *optical rectification* oder zu Deutsch „optische Gleichrichtung“. Der Puls R kann nicht rekonstruiert werden.

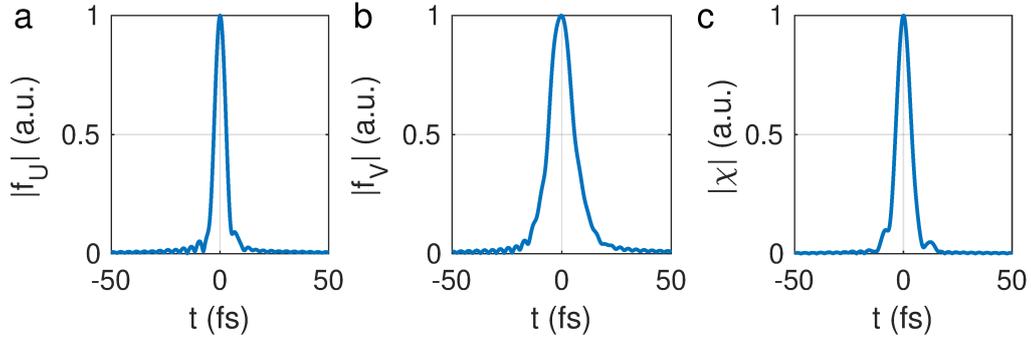


Abbildung 33: Einhüllende der rekonstruierten elektrischen Felder $f_U(t)$ (a), $f_V(t)$ (b) und $\mathcal{X}(t)$ (c) der Variante *center*. Alle Pulse sind auf den Zeitpunkt null verschoben. Adaptiert aus [129].

5.4 Pulscharakterisierung mit simulierten Daten

Um die Qualität der Pulscharakterisierung zu untersuchen, werden 2D-Simulationen mit einer zufällig generierten Wellenform für die Pulse A und R durchgeführt (siehe Abb. 34a). Die nichtlineare Polarisierung wird unter der Annahme einer instantanen Antwort mit $\chi^{(3)} = 0.82$ *atomic units* berechnet, was dem nichtlinearen Brechungsindex $n_2 = 0.057 \text{ cm}^2/\text{PW}$ von MgF_2 entspricht [72]. Die generierten Pulse haben eine nicht-triviale Form mit Vor- und Nachpulsen, die sich über 40 fs erstrecken. Um die Bereiche des XPM-Scans für die Varianten *edge* und *center* zu isolieren, wird die Dicke von MgF_2 auf $150 \mu\text{m}$ erhöht. Im Anschluss an die nichtlineare Propagation in der Probe werden die lineare Ausbreitung in das Fernfeld berechnet und die DUV-Pulse in Richtung von Puls A extrahiert. Zuerst wird ein stufenartiger Brechungsindex mit $n_{IR} = 1.39$ bei den Frequenzen von A und R und $n_{UV} = 1.50$ bei den Frequenzen von U und V angenommen. Mit dieser Annahme ist die Lösung des z -Integrals in Gleichung 79 genau und die Pulsrekonstruktion mit der Variante *edge* ist für eine niedrige Intensität von R ($I_R = 0.1 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$) nahezu perfekt, vgl. Abb. 34a. Die Pulsdauer von U beträgt $t_U^{\text{FWHM}} = 4.2 \pm 0.4 \text{ fs}$. Bei höherer Intensität ($I_R = 30 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$) verursacht die Vernachlässigung der SPM, die der Gleichung 83 zugrunde liegt, leichte Aberrationen und die rekonstruierte Pulsdauer ist 0.2 fs länger als der ursprüngliche Puls. Wenn numerische Brechungsindexdaten von MgF_2 verwendet werden, sind die Abweichungen immer noch gering, siehe Abb. 34b. Für die Variante *center* ergeben sich zusätzliche Aberrationen, da die Annahme, dass XPM von R nur auf U und nicht auf V übertragen wird, eine Näherung ist. Dennoch ist die Pulsrekonstruktion sehr gut. Je nach den experimentellen Bedingungen ist es

besser, die Variante *center* zu verwenden, um die numerische Differenzierung zu vermeiden. Alle hier gefundenen Abweichungen führen dazu, dass die rekonstruierten Pulse etwas länger erscheinen als die ursprünglichen Pulse.

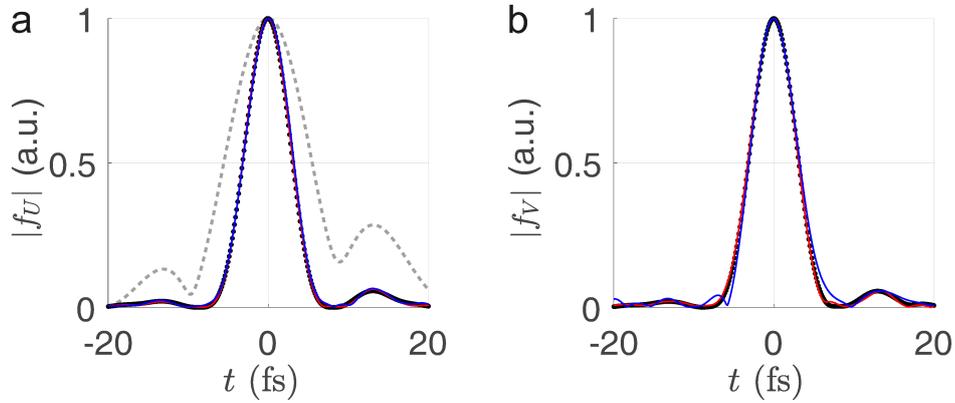


Abbildung 34: Aus Simulationen gewonnene Einhüllende $f_U(t)$. Die rekonstruierten Einhüllenden für die Berechnung mit einem stufenartigen Brechungsindex sind in (a) dargestellt, mit numerischen Brechungsindexdaten von MgF_2 in (b). In (a) wird die Variante *edge* mit $I_R = 0.1 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ (rot) und $I_R = 30 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ (blau) verwendet, in (b) werden die Varianten *edge* (rot) und *center* (blau) mit $I_R = 0.1 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ verglichen. Die Einhüllenden, des aus den Berechnungen extrahierten Originalpulses U , sind in beiden Diagrammen dargestellt (schwarz-gepunktet). Die Einhüllende von $f_A(t)$ und $f_R(t)$ ist als Referenz in (a) dargestellt (grau-gestrichelt). Übernommen aus [129].

Zusammenfassend wurde eine Methode zur Pulscharakterisierung mittels XPM-Scans vorgestellt. Zwei unabhängige Pulse U und V werden durch den Scan eines dritten unbekanntem Pulses R über entweder U oder V charakterisiert. Die Varianten *edge* und *center* bieten eine breite Anwendbarkeit, einschließlich der Fälle, in denen alle drei Pulse in ihrer Frequenz degeneriert sind. Es reichen sehr geringe Energien von wenigen Pikojoule für die Pulse U und V aus, was für andere Pulscharakterisierungsverfahren bisher nicht gezeigt wurde. Die Pulsrekonstruktion erfolgt analytisch, wodurch Stringenz und Geschwindigkeit gewährleistet sind. Gleichzeitig kann die Genauigkeit durch den Vergleich mit der rekonstruierten Datenspur eingeschätzt werden.

6 Erzeugung Ultrakurzer Pulse im DUV

Dieses Kapitel basiert auf der eigenen Veröffentlichung [46] und enthält übersetzte Passagen.

Hier wird ein Modell für die kohärente Synthese von DUV-Wellenformen vorgestellt. Das Prinzip ist die Verknüpfung von räumlichen und zeitlichen Harmonischen, die durch zwei nahezu-kollineare VIS-IR-Pulse erzeugt werden. Kaskadierte Prozesse der Vierwellenmischung (CFWM), insbesondere THG und SD, in einem dünnen MgF_2 -Plättchen ergeben eine facettenreiche Emissionsstruktur von zeitlichen und räumlichen Harmonischen. Der Emissionswinkel der Beugungsordnungen ist abhängig von der Frequenz. Diese raumzeitliche Kopplung wird genutzt, um zwei benachbarte räumliche Harmonische zu verknüpfen, indem der Kreuzungswinkel der VIS-IR-Pulse angepasst wird. Es entstehen breitbandige Wellenformen, von denen die niederfrequenten Spektralanteile zu einer räumlichen Harmonischen und die höherfrequenten Spektralanteile zu einer benachbarten räumlichen Harmonischen gehören. Um ultrakurze Wellenformen aus diesen Spektralanteilen zu synthetisieren, müssen deren Phasen angepasst werden. Dies wird durch die Anpassung der GEP der fundamentalen Pulse erreicht, die durch ihre Verzögerung auf der Subzyklen-Zeitskala bestimmt wird. Unter Verwendung von zeitlichen Harmonischen dritter Ordnung werden durch Verkettung von zwei räumlichen Harmonischen DUV-Pulse von 1.5 fs synthetisiert. Ein wichtiges Merkmal ist, dass diese Wellenformen räumlich von den VIS-IR-Pulsen getrennt sind und somit für den sofortigen spektroskopischen Einsatz ohne nachfolgende optische Elemente zur Verfügung stehen.

6.1 Experimenteller Aufbau

Experimentell werden zwei ultrakurze VIS-IR-Pulse, bezeichnet mit A und B (Zentralwellenlänge $\lambda_{A,B} = 720 \text{ nm}$, Pulsdauer $t_{A,B}^{FWHM} = 5 \text{ fs}$, Wiederholrate $f_{rep} = 4 \text{ kHz}$), nahezu-kollinear mit Polarisation senkrecht zur Einfallsebene in ein $100 \mu\text{m}$ dickes, polykristallines MgF_2 -Plättchen (halber Kreuzungswinkel $\alpha = 0.75^\circ$, Brennweite $f = 50 \text{ cm}$, Divergenzwinkel $\theta_{div} = 0.12^\circ$, Strahltaile $\sim 40 \mu\text{m}$ in x-Richtung und $\sim 100 \mu\text{m}$ in y-Richtung, Spitzenintensität $I_{A,B} = 4 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$) mit variabler Verzögerung τ fokussiert, siehe Abb. 35. Das Dielektrikum MgF_2 wird wegen seiner großen Bandlücke (10.8 eV) und der schwachen Gruppengeschwindigkeitsdispersion im DUV gewählt. Das Experiment wird im Vakuum durchgeführt, wodurch nichtlineare Wechselwirkungen mit der Luft ausgeschlossen werden. Es werden Spektren mit Auflösung im Emissionswinkel ϕ aufgenommen. Der grundlegende experimentelle Aufbau zur DUV-Erzeugung entspricht dem aus Kapitel 3. Zur zeitlichen Charakterisierung der DUV-Pulse mittels XPM-Scan kann ein weiterer intensiver VIS-IR-Puls mit der Bezeichnung R und variabler Verzögerung τ_R überlagert werden.

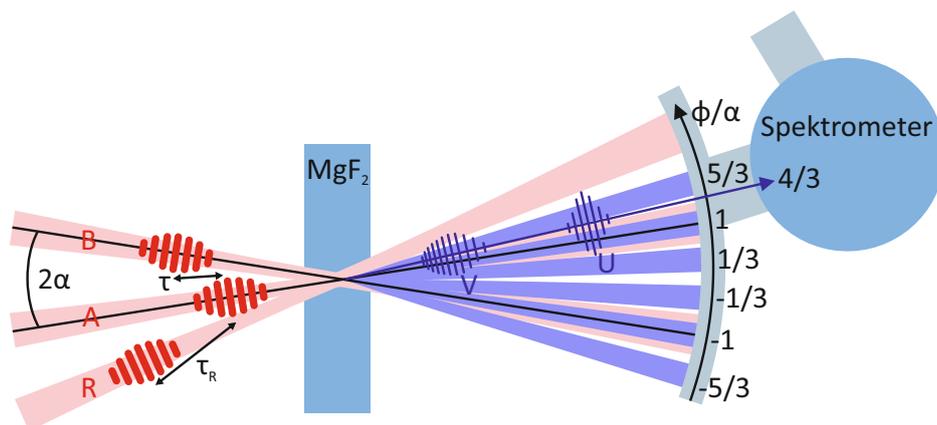


Abbildung 35: Experimenteller Aufbau. Pulse A und B erzeugen der DUV-Doppelpulse U und V. Puls R dient nur zur Pulscharakterisierung.

6.2 Verknüpfung räumlicher Harmonischer (VERAH)

Die Methode „Verknüpfung räumlicher Harmonischer“ (VERAH) nutzt aus, dass die harmonischen Beugungsordnungen raumzeitliche Kopplungen aufweisen: Der Abstrahlwinkel ist abhängig von der Frequenz. Für DUV-Licht zwischen zwei räumlichen Ordnungen, z. B. bei $\phi = 4/3 \alpha$, gehören die niederfrequenten Frequenzanteile zur Harmonischen $\phi = 3/3 \alpha$, während die höherfrequenten Frequenzanteile zur Harmonischen $\phi = 5/3 \alpha$ gehören, vgl. Abb. 20a. Die spektrale Bandbreite bei $\phi = 4/3 \alpha$ ist viel größer als auf den räumlichen Harmonischen. Während die Spektren auf den Beugungsordnungen nur sehr schwach vom GEP abhängen, ist die GEP-Abhängigkeit zwischen den Ordnungen sehr ausgeprägt, vgl. Abb. 20b. Bei $\phi = 4/3 \alpha$ kann die spektrale Intensität bei der Zentralfrequenz von konstruktiver Interferenz bei $\varphi_{GE} = 0$ bis zu destruktiver Interferenz bei $\varphi_{GE} = \pi$ eingestellt werden, siehe Abb. 36a. Um die große Bandbreite für die Synthese einer kurzen Wellenform nutzen zu können, müssen die beiden Frequenzbänder der räumlichen Harmonischen durch Anpassung des Kreuzungswinkels und der GEP verknüpft werden. Einen ersten Einblick in die erreichbaren Pulsdauern gibt die Bandbreite-begrenzte Pulsdauer nach Entfernung der spektralen Modulation, siehe Abb. 36b. Zwischen den räumlichen Harmonischen liegen die größten Bandbreiten und die potenziell kürzesten Pulse.

6.3 Simulation der VERAH

Um die VERAH zu untersuchen, werden 2D-Simulationen basierend auf der UPPE durchgeführt. Zur Initialisierung der Pulse A und B an der Vorderseite des MgF_2 -Plättchens wird die Rekonstruktion der Messdaten verwendet: Für die fundamentalen Felder wird die dritte Wurzel der komplexen Einhüllenden von U mit Emissionswinkel $\phi = 3/3 \alpha$ verwendet. Die

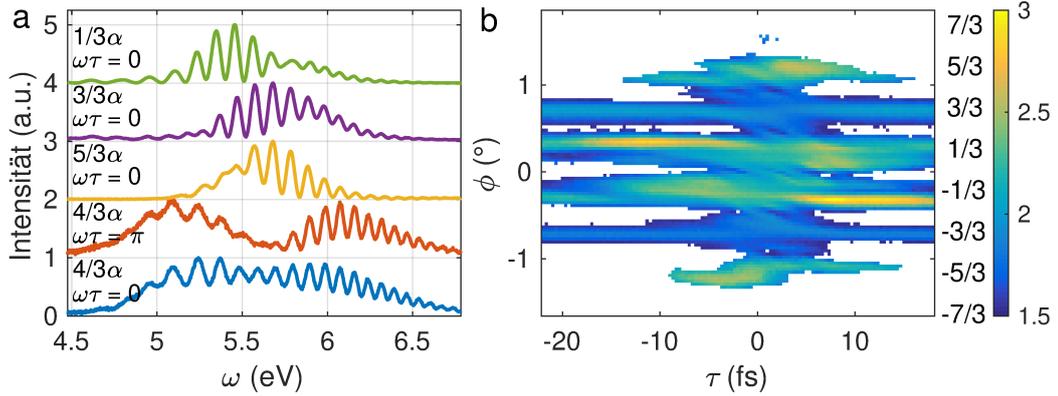


Abbildung 36: (a) Spektren für gemessene DUV-Intensitäten bei $\phi = 1/3 \alpha, 3/3 \alpha, 5/3 \alpha$ werden für $\varphi_{GE} = 0$ und bei $\phi = 4/3 \alpha$ für $\varphi_{GE} = 0$ und π angezeigt. Die Bandbreitebegrenzte Pulsdauer in der Einheit fs wird in (b) in den Bereichen angezeigt, in denen die normierte Intensität größer als 2% ist. Adaptiert aus [46].

Pulsdauer von A und B beträgt in diesem Fall 4.8 fs, was zusätzlich durch THG-FROG bestätigt wurde. Die Simulationen reproduzieren die experimentellen Daten sehr gut, vgl. Abb. 20. Zusätzlich zu den spektralen Intensitäten können aus der Simulation die elektrischen Felder in der Zeitdomäne extrahiert werden. Alle Emissionswinkel weisen gut getrennte Doppelpulse auf. Bei den räumlichen Harmonischen $\phi = 1/3 \alpha, 3/3 \alpha, 5/3 \alpha$ sind die Pulse unabhängig von der GEP und die führenden Pulse U haben eine Pulsdauer von ~ 3 fs. Zwischen den Beugungsordnungen befinden sich kürzere Pulse, deren Form jedoch von der GEP abhängt. Bei $\phi = 4/3 \alpha$ führt der Fall destruktiver Interferenz ($\varphi_{GE} = \pi$, bzw. $\tau = 1.3$ fs) zur Aufspaltung von Puls U. Er teilt sich in zwei nahe bei einander liegende Pulse auf. Der Grund dafür ist, dass die Frequenzanteile der beteiligten Beugungsordnungen nicht mit einer GEP verknüpft sind, die ideal für die Synthese einer ultrakurzen Wellenform ist. Besser geeignet für die zeitaufgelöste Spektroskopie ist der Puls, der bei konstruktiver Interferenz erzeugt wird ($\varphi_{GE} = 0$ bzw. $\tau = 0$). Hier ist der Puls U kaum geschirpt, ist gut vom nachlaufenden Puls V getrennt und hat eine Pulsdauer von nur $t_U^{FWHM} = 1.5 \pm 0.1$ fs.

6.4 Zeitliche Charakterisierung der VERAH

Für die weitere Validierung der Simulationsergebnisse werden die DUV-Wellenformen mit dem im Kapitel 5 eingeführten Verfahren XPM-Scan charakterisiert. Hierfür werden DUV-Spektren aufgezeichnet, während der VIS-IR-Puls R mit variabler Verzögerung τ_R überlagert wird, siehe Abb. 35. Die Pulscharakterisierung erfolgt sowohl experimentell als auch anhand synthetischer Daten, die innerhalb der Simulation erzeugt werden, bei der alle drei Pulse A, B und R initialisiert werden. Die Variante *center* wird verwendet, bei der die Phase des führenden DUV-Pulses U durch Kreuzphasenmodulation verschoben wird. Die ursprüngliche und rekonstruierte Datenspur ist in Abb. 37 zu sehen, sie sind in guter Übereinstimmung.

Die rekonstruierten Pulse sind in Abb. 38c, sowohl für die experimentellen als auch für die synthetischen Daten dargestellt. Die von der Simulation vorhergesagten Pulsformen (siehe Abb. 38b) werden von den rekonstruierten Pulsen gut reproduziert.

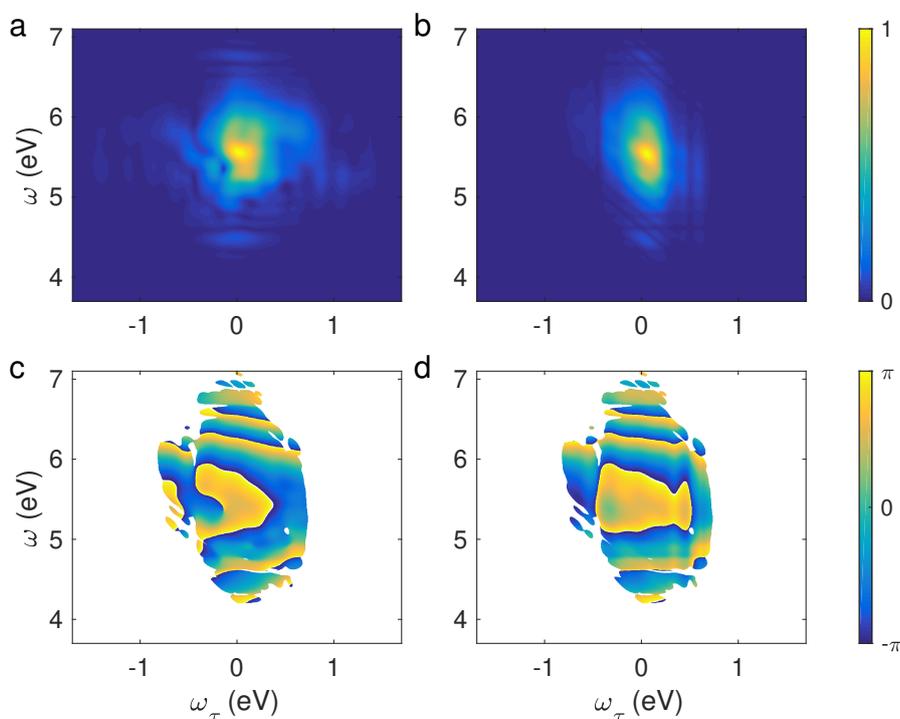


Abbildung 37: Amplituden (a und b) und Phasen (c und d) von experimentell gemessenen (a und c) und rekonstruierten (b und d) Datenspuren für die Pulscharakterisierung $\mathbf{Y}_c(\omega, \omega_R)$ bei $\phi = 4/3\alpha$ und $\tau = 0$. Die Phasenwerte sind nur in dem Bereich dargestellt, in dem die normierten Amplituden größer als 1% der gemessenen und der rekonstruierten Datenspuren sind. Übernommen aus [46].

6.5 Diskussion der Methode

Ein wesentlicher Vorteil der harmonischen Verknüpfung besteht darin, dass die erzeugten Wellenformen räumlich von den Fundamentalen A und B getrennt sind. Beim Emissionswinkel $\phi = 4/3\alpha$ werden die VIS-IR-Pulse um einen Faktor $3 \cdot 10^{-4}$ im Vergleich zu $\phi = \alpha$ abgeschwächt. Für ein noch höheres Auslöschungsverhältnis könnte VERAH bei $\phi = 6/3\alpha$ angewandt werden, wobei die DUV-Pulsdauer ähnlich ist (~ 1.5 fs). Die erzeugten Wellenformen eignen sich nicht gut als Anregepuls, da sie sehr schwach sind (6.8 pJ/mrad) und die raumzeitliche Kopplung eine Refokussierung verhindert. VERAH ist jedoch hervorragend für die Erzeugung von Abfragepulsen geeignet. In Kapitel 7 wird für die Anwendung der DUV-Pulse ein kompaktes Setup der transienten Absorptionsspektroskopie vorgestellt. In diesem Schema stehen die durch VERAH erzeugten Abfragepulse für den sofortigen spektroskopischen Einsatz ohne nachfolgende optische Elemente zur Verfügung, die bisher das Haupthin-

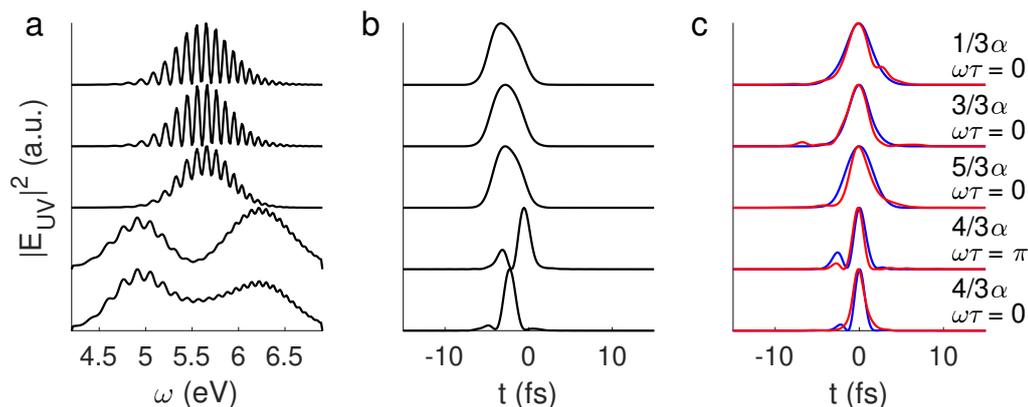


Abbildung 38: Für die in (a) dargestellten simulierten Spektren der verschiedenen räumlichen Harmonischen sind die Einhüllenden des führenden Pulses U in (b) dargestellt. Das Ergebnis der Pulscharakterisierung ist in (c) für die Messdaten (rot) und die Simulation (blau) dargestellt. Die Werte für ϕ und τ in a-c sind rechts in (c) angegeben. Adaptiert aus [46].

dernis für die DUV-Spektroskopie im Sub-10-fs-Bereich waren [39]. Der DUV-Photonenfluss, der im vorliegenden Fall auf die Kamera trifft (0.024° Integrationswinkel des Spektrometerschlitzes), beträgt $1.4 \cdot 10^{10}$ Photonen/s im Emissionswinkel $\phi = 4/3\alpha$. Der Photonfluss kann durch Vergrößerung des Integrationswinkels des Spektrometers oder durch Verwendung eines größeren Fokus der Fundamentalen erhöht werden. Die letztere Idee geht einher mit einem neuen Lasersystem, das eine höhere Pulsenergie liefert.

Der nachlaufende Puls V besitzt einen zeitlichen Abstand zum Puls U der spektral gut auflösbar ist. Dies ermöglicht die simultane transiente Absorptions- und Dispersionsmessung, die im nächsten Kapitel eingeführt wird. Soll der Puls V unterdrückt werden, z. B. wenn ein Prozess mit einer Abklingzeit größer als der Pulsabstand untersucht wird, könnte dies durch Ablenkung mit Hilfe eines räumlich passend geformten intensiven Pulses erfolgen. In der vorliegenden Anordnung könnte der Puls R so angepasst werden, dass er einen Intensitätsgradienten aufweist, der sich über die Strahlprofile von A und B erstreckt und zeitlich mit dem nachlaufenden Puls V überlagert wird. Die XPM würde einen räumlichen Gradienten in der Phase von V verursachen und ihn so ablenken.

Zusammenfassend ist die VERAH eine Methode zur Synthese von ultrakurzen Wellenformen im DUV. Sie erfordert zwei nahezu-kollineare VIS-IR-Pulse, die CFWM in einem dünnen Dielektrikum mit großer Bandlücke auslösen. Die raumzeitliche Kopplung der zeitlichen und räumlichen Harmonischen wird genutzt, um zwei benachbarte räumliche Harmonische zu verknüpfen. Dazu ist es erforderlich, den Kreuzungswinkel der fundamentalen Pulse und deren GEP einzustellen. Unter Verwendung von THG, die in einem $100 \mu\text{m}$ dicken MgF_2 -Plättchen durch 5 fs-Pulse erzeugt werden, synthetisiert VERAH DUV-Pulse von 1.5 fs.

7 Transiente Absorptions- und Dispersionsspektroskopie (TADS)

Die Spektroskopie nutzt Strahlung zur Erforschung physikalischer Systeme. Stationäre Zustände können durch konventionelle, lineare Spektroskopie beobachtet werden. Hierzu können sowohl elektromagnetische Strahlung als auch Teilchen, wie z. B. Elektronen [139] oder Ionen [140], eingesetzt werden. Weiterhin ist es von grundlegender Bedeutung auch dynamische, nicht-stationäre Prozesse zu untersuchen. Diese führen zur Bildung, Umordnung oder zum Aufbrechen von Bindungen, zur korrelierten Quantendynamik in Festkörpern und zur kollektiven Elektronenbewegung in Nanopartikeln [141]. Sie laufen auf der Zeitskala von Atto- bis Femtosekunden ab. Um diese Prozesse beobachten zu können sind kohärente breitbandige Quellen, d. h. ultrakurze Pulse notwendig. Die transiente Absorptionsspektroskopie (TAS) ist eine etablierte optische Methode, die unter Verwendung von intensiven VIS-IR-Pulsen als Anregepulse und EUV-Attosekundenpulsen (ASP) als Abfragepulse die Dynamik von Elektronen in Gasen [14, 49, 142] und Festkörpern [36, 37] sichtbar werden lässt. Diese Experimente werden hier als herkömmliche TAS bezeichnet. Es ist wichtig zu bemerken, dass die TAS mit ASP in der Lage ist, spezifische elektronische Übergänge von gebundenen zu gebundenen Zuständen in Quantensystemen zu untersuchen. Dies ist mit anderen Attosekunden-spektroskopischen Ansätzen, die auf der Detektion von Photoelektronen oder Photofragment-Ionen basieren, kaum möglich [141].

In diesem Kapitel wird eine erweiterte Methode der TAS vorgestellt, die sogenannte „Transiente Absorptions- und Dispersionsspektroskopie“ (TADS), die als theoretisches Konzept bereits 2008 von Pfeifer et al. [141] vorgeschlagen wurde. Die Besonderheit entsteht durch die Verwendung von DUV-Doppelpulsen an Stelle eines Abfragepulses. Sie ermöglichen zusätzlich zur Absorptions- eine Dispersionsmessung, indem die Phasenbeziehung zwischen den Abfragepulsen durch spektrale Interferometrie ausgewertet wird. Die erzeugten ultrakurzen DUV-Doppelpulse (siehe Kapitel 4–6) sind hierfür besonders geeignet, da ihre Phasenbeziehung extrem stabil ist. Somit bilden die Ergebnisse der vorangegangenen Kapitel die Grundlage für diese hochentwickelte Methode der Spektroskopie.

7.1 Realisierung einer kompakten Strahlführung

Besondere Herausforderungen beim Design eines Experimentes für die transiente Absorptionsspektroskopie sind die Trennung der harmonischen Strahlung von den erzeugenden Pulsen sowie die Refokussierung der harmonischen Strahlung in die Probe. Geeignete optische Elemente, wie z. B. spektrale Filter und Fokussierspiegel, sind kaum auf dem Markt zu finden, preisintensiv und verbunden mit experimentellen Abstrichen. Die Isolation der harmonischen Strahlung wird hier ohne Filter durch räumliche Trennung erreicht. Eine Refokussierung ist

nicht notwendig. Das bedeutet, dass sich kein optisches Element zwischen der Pulserzeugung und der Detektion bis auf die Probe befindet. Der Abstand zwischen der Erzeugung der DUV-Pulse und der TADS-Probe beträgt nur ~ 10 cm und der Abstand bis zum Detektor ist ~ 0.5 m. Der experimentelle Aufbau (Abb. 39a) ist somit im Vergleich zu herkömmlichen EUV-TAS-Experimenten [143] sehr kompakt. Dort sind Strahlführungen über mehrere Meter üblich.

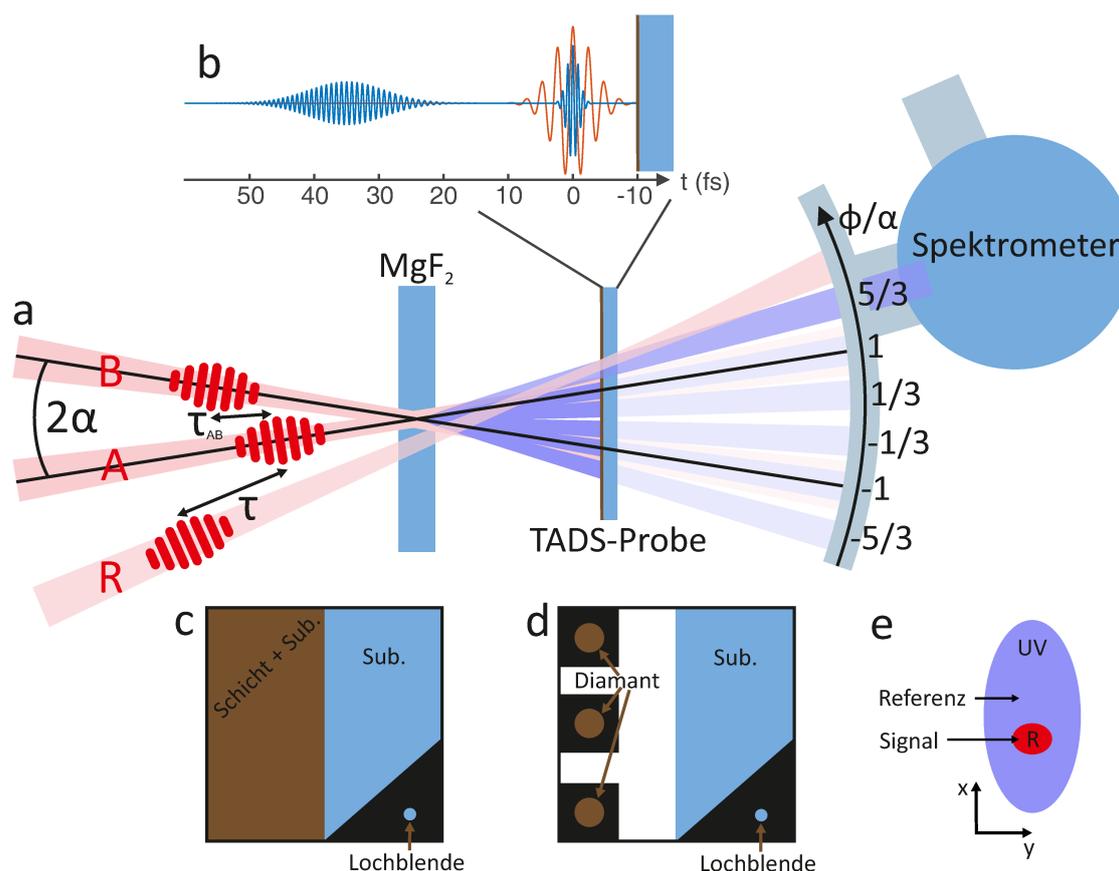


Abbildung 39: (a) Kompakter experimenteller Aufbau für TADS-Messungen. Die DUV-Pulse U und V werden in MgF_2 erzeugt und im spektroskopisch zu untersuchenden Medium (TADS-Probe) mit dem intensiven VIS-IR-Puls R überlagert. Das von der Pulsverzögerung abhängige Spektrum der DUV-Pulse wird im Emissionswinkel ϕ gemessen. (b) Normierte elektrische Felder von Puls R (rot) und der Pulse U und V (blau) in Abhängigkeit der Zeit mit $t_R^{FWHM} = 5$ fs, $t_U^{FWHM} = 1.5$ fs und $T_p = 35$ fs. Übersicht über die verwendeten TADS-Proben: (c) Skizze einer Probe von der Vorderseite. Ein $100 \mu\text{m}$ dickes Quarzglas-Substrat (Sub.) ist zur Hälfte auf der Vorderseite mit einer 2D-Probe beschichtet, z. B. mit Graphen oder Iridium. Eine Ecke ist mit einer nicht transparenten Aluminiumfolie abgedeckt in der sich eine Lochblende befindet. (d) Ähnlich zu (c) mit dem Unterschied, dass freistehende 250 nm dicke Diamantmembranen mit einer freien Apertur von 3 mm als TADS-Probe zur Verfügung stehen. (e) transversale Strahlprofile am Ort der TADS-Probe.

Die DUV-Doppelpulse mit der im Unterkapitel 4.2 eingeführten Bezeichnung U und V, werden in einem $100 \mu\text{m}$ dicken MgF_2 -Plättchen erzeugt. Sie dienen als Abfragepulse mit ge-

ringer Intensität. Die Verzögerung τ_{AB} zwischen den Pulsen A und B wird auf einen festen Wert eingestellt, so dass kurze DUV-Pulse entstehen ($\tau_{AB} = 0$). Die Anregung erfolgt durch einen intensiven VIS-IR-Puls bezeichnet mit R. Dieser wird räumlich und zeitlich mit der DUV-Strahlung in einem ausgewählten Emissionswinkel überlagert. Der zeitliche Verlauf der elektrischen Felder ist in Abb. 39b dargestellt. Die Verzögerung τ wird mit einem sehr präzisen piezogetriebenen Linearverstärker der Firma Smaract eingestellt. Die kürzesten Pulse entstehen im Winkel $\phi = 4/3\alpha$. Um TADS zu demonstrieren wird für die in dieser Arbeit gezeigten Experimente zunächst der Emissionswinkel $\phi = 1/3\alpha$ verwendet, da diese DUV-Pulse verglichen mit dem Emissionswinkel $\phi = 4/3\alpha$ intensiver und experimentell leichter zugänglich sind. Das Intensitätsprofil der beiden Strahlen ist in der TADS-Probenenebene unterschiedlich, die DUV-Pulse haben Halbachsen von $w_{x,y} = (650, 470) \mu\text{m}$ und Puls R hat $w_{x,y} = (80, 140) \mu\text{m}$.

7.2 Auswertung mit Referenzmessung

Die Strahlgeometrie ermöglicht eine inhärente Referenzmessung. Sie dient der Unterdrückung von Rauschen, welches zum großen Teil durch Leistungsschwankungen des Lasers erzeugt wird, auf ein geringeres Level. Es wird ausgenutzt, dass der DUV-Strahlradius in x-Richtung deutlich größer ist als der VIS-IR-Strahl. Die Justage erfolgt so, dass nur ein Teil des DUV-Strahls durch Puls R angeregt wird (Signal), ein anderer Teil wird nicht angeregt (Referenz), vgl. Abb 39e. Diese räumliche Abhängigkeit überträgt sich von der Probenebene auf die Kamera im Spektrometer. Dort können die Bereiche für das Signal und die Referenz getrennt werden (siehe Abb. 40a). Zur Optimierung der Referenzmessung werden die Spektren eines Verzögerungsscans in x-Richtung auf einen gemeinsamen Schwerpunkt gebracht. Die Korrektur geschieht im k_x -Raum mit Hilfe des *Shift*-Theorems der Fourier-Transformation, wodurch *pointing*-Schwankungen ausgeglichen werden.

Zur Auswertung der Spektren wird die im Unterkapitel 4.2 eingeführte komplexe Größe $\mathbf{I}_+(\omega, \tau) = U^*(\omega, \tau)V(\omega, \tau)$ verwendet, d. h. der AC-Teil des Doppelpulsspektrums. Dieser wird sowohl für das Signal als auch für die Referenz bestimmt. Als korrigierte Datenspur wird

$$\hat{\mathbf{I}}_+(\omega, \tau) = \frac{\mathbf{I}_+^{sig}(\omega, \tau)}{\mathbf{I}_+^{ref}(\omega, \tau)} \langle \mathbf{I}_+^{ref}(\omega, \tau) \rangle_\tau \quad (90)$$

definiert, wobei $\langle \dots \rangle_\tau$ die Mittelung über τ bedeutet. Die korrigierte Datenspur enthält das Messsignal, wobei Rauschen der Amplitude und der Phase durch die Verwendung der Referenz deutlich reduziert wird. Wird als TADS-Probe z. B. ein Quarz-Substrat verwendet, so kann diese Datenspur direkt zur Pulscharakterisierung verwendet werden, so wie es im

Kapitel 5 (Variante *edge*) beschrieben wird. Zur Auswertung von TADS-Messungen wird die Änderung der Transmission, d. h. die transiente Transmission ΔT berechnet,

$$\Delta T(\omega, \tau) = \frac{\mathbf{I}_+^{sig}(\omega, \tau) \mathbf{I}_+^{ref}(\omega, \infty)}{\mathbf{I}_+^{ref}(\omega, \tau) \mathbf{I}_+^{sig}(\omega, \infty)}. \quad (91)$$

Die Bezugsgröße ist die Datenspur bei $\tau = \infty$, welche der unangeregten Probe entspricht. Der Anregepuls R erreicht in diesem Fall die TADS-Probe erst nach den Abfragepulsen U und V. Die hier eingeführte Änderung der Transmission ist eine komplexe Größe: der Betrag $|\Delta T|$ entspricht der Messgröße konventioneller TAS-Experimente, aus der die transiente Absorption berechnet werden kann. Hinzu kommt bei TADS die Phase $\varphi_{\Delta T}$, die als transiente Dispersion bezeichnet wird.

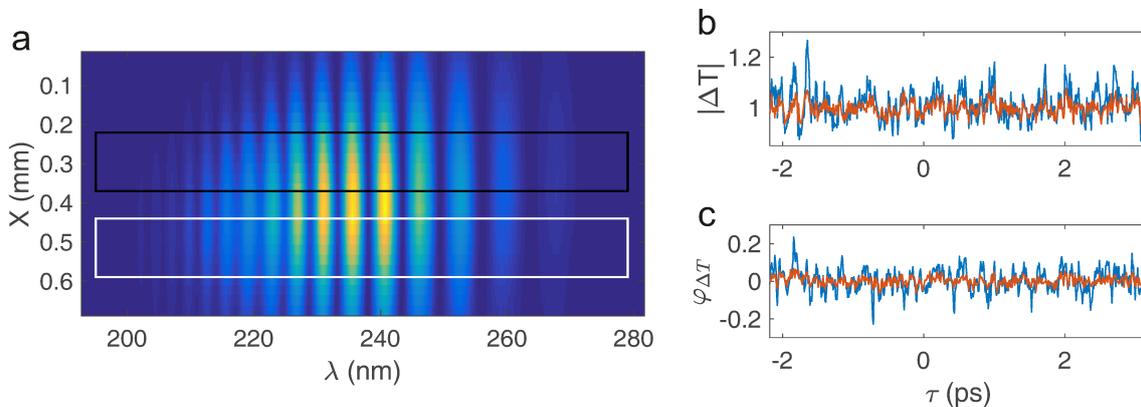


Abbildung 40: (a) Kamerabild eines gemessenen Spektrums. Die Rahmen deuten die Bereiche für das Signal (weiß) und die Referenz (schwarz) an. Amplitude (b) und Phase (c) der transienten Transmission ΔT ohne (blau) und mit (rot) Berücksichtigung der Referenz als Funktion von τ summiert über ω im Bereich von 5.5–5.7 eV für einen einzelnen Verzögerungsscan.

Der Einfluss der Referenzmessung ist in Abb. 40 b und c dargestellt. Die Integrationszeit der Kamera beträgt 0.1 s je Spektrum. Die gezeigte Messung diente zur Suche des zeitlichen Überlapps der Anrege- und Abfragepulse. Es wird über einen großen Bereich von mehreren Pikosekunden gescannt. Erst die Mittelung von mehreren Verzögerungsscans gibt Aufschluss über den Überlapp, der nachträglich auf $\tau = 0$ gesetzt wird. Nur durch die Referenzmessung und die Mittelung über mehrere Scans wird ein angemessenes Signal-Rausch-Verhältnis erreicht. Für die durchgeführten TADS-Messungen verbessert sich das Rauschen¹⁸ für den Betrag $|\Delta T|$ von 3.5 % (ohne Referenz) auf 0.5 % (mit Referenz) und für die Phase $\varphi_{\Delta T}$ von 14 mrad auf 5 mrad. Vor allem das Rauschen der Phase ist extrem gering. Der Jitter der Pulse A und B, für die ein Phasenrauschen von 200 mrad ermittelt wurde, kann zum Vergleich herangezogen werden (vgl. Unterkapitel 3.2). Die ausgezeichnete Stabilität hat zwei Gründe,

¹⁸Als Maß für das Rauschen wird die Standardabweichung von $\Delta T(\omega, \tau)$ verwendet.

zum einen die Erzeugung der Doppelpulse in einem Schritt und zum anderen die kompakte Bauweise der TADS-Strahlführung.

Diese Art der Auswertung lässt sich auf den Gleichanteil $\hat{\mathbf{I}}_{DC}$ übertragen. Die so erhaltene transiente Transmission ΔT_{DC} ist reell, enthält keine Information über die transiente Dispersion und hat eine geringe spektrale Auflösung. In den durchgeführten Experimenten und Simulationen zeigt der Betrag $|\Delta T|$ für den Wechsel- und Gleichanteil gleiche Abhängigkeiten. Deshalb wird die Auswertung in dieser Doktorarbeit auf den Wechselanteil beschränkt.

Die Bedeutung der Transmission in der nichtlinearen Optik bzw. ΔT in TAS-Experimenten entspricht nicht der intuitiven Vorstellung, die aus einer Transmissionsmessung in der linearen Optik bekannt ist. In der linearen Optik beeinflusst der Realteil des Brechungsindex n' (Dispersion) die spektrale Phase eines Lichtfeldes. Der Imaginärteil des Brechungsindex n'' (Absorption) ändert die Amplitude des elektrischen Feldes. Für die lineare Propagation gilt $\tilde{E}(z, \omega) = \tilde{E}_0 \exp(-\frac{\omega}{c}n''(\omega)z - i\frac{\omega}{c}n'(\omega)z)$. Mit einem Spektrometer wird nur die Intensität $I \sim |\tilde{E}(z, \omega)|^2 = \tilde{E}_0^2 \exp(-2\frac{\omega}{c}n''(\omega)z)$ gemessen. Somit kann aus der Messung der Transmission einer Probe eindeutig n'' bestimmt werden. Über n' lässt sich hingegen keine Aussage treffen.

In der nichtlinearen Optik ist diese Zuordnung nicht möglich. Der Kerr-Effekt, also SPM, dient als einfaches Beispiel, um dies zu verdeutlichen. Relevant ist dabei der nichtlineare Brechungsindex n_2 , der proportional zum Realteil der nichtlinearen Suszeptibilität ist („nichtlineare Dispersion“). Wird die Transmission nach der nichtlinearen Propagation durch eine Probe untersucht, so verändert nicht nur die lineare und nichtlineare Absorption das Spektrum, sondern auch SPM. Der Kerr-Effekt führt zu einer zeitlichen Änderung des Brechungsindex die proportional zur Intensität des Pulses ist. So erfährt die Vorderseite des Pulses eine Rotverschiebung und die Rückseite eine Blauverschiebung. Es entstehen neue Frequenzen und das Spektrum verbreitert sich. Die „nichtlineare Dispersion“ führt somit in TAS-Experimenten zu einer Änderung der Transmission, die als Absorption oder Emission interpretiert werden könnte. Die nichtlineare Absorption, wie z. B. die Zwei-Photonen-Absorption (Imaginärteil von $\chi^{(3)}$), überlagert sich in Experimenten mit diesem Effekt. Zusammenfassend ist die direkte Zuordnung der gemessenen transienten Absorption und Dispersion zu den nichtlinearen Materialparametern (Real- und Imaginärteil von $\chi^{(3)}$) nicht möglich, was die Bestimmung von Materialparametern erschwert.

7.3 Zeitauflösung

Die Zeitauflösung Δt des transienten Messsignals ist limitiert durch die Pulsdauer von Puls U, im Idealfall gilt $\Delta t = \Delta t_U = t_U$. Es gibt jedoch weitere Faktoren, die Δt verringern

können. Es ist das Ziel experimentell möglichst nah am Grenzwert Δt_U zu arbeiten. Die folgenden Einflussfaktoren wurden in die Planung des Experimentes einbezogen.

Der Jitter Δt_j zwischen Anrege- und Abfragepuls begrenzt die Zeitauflösung. Dieser liegt im Experiment bei $\Delta t_j = 67$ as und ist somit vernachlässigbar klein gegenüber Δt_U .

Außerdem wird die Zeitauflösung durch den Winkel β zwischen den Pulsen U und R verringert. Die Ursache liegt darin, dass der Überlapp der Wellenfronten der Anrege- und Abfragepulse zur Verringerung eines subzyklen-abhängigen Signals führt. Der Winkel β sollte so klein wie möglich eingestellt werden. Jedoch muss gewährleistet sein, dass sich die Anrege- und Abfragepulse in der Ebene des Spektrometerschlitzes räumlich trennen. Es kann eine einfache Abschätzung unter der Annahme ebener Wellenfronten und geometrischer Strahl- ausbreitung durchgeführt werden. Es folgt

$$\Delta t_\beta = \frac{w_{eff}}{c} \tan(\beta) \quad (92)$$

mit dem effektiven Strahlradius in x-Richtung w_{eff} und der Lichtgeschwindigkeit c . Der effektive Strahlradius ergibt sich geometrisch unter Verwendung des Strahlensatzes. Der Abstand vom Fokus der DUV-Strahlung zur TADS-Probe beträgt 12.5 cm und bis zum Eingangsschlitz ist die Distanz 50 cm. Somit ergibt sich für $w_{eff} = \frac{12.5b}{50} = 25 \mu\text{m}$ mit der Schlitzbreite des Spektrometers $b = 100 \mu\text{m}$. Experimentell konnte $\beta = 1.2^\circ$ realisiert werden, was einer Zeitauflösung von $\Delta t_\beta = 1.7$ fs entspricht.

Weiterhin reduziert der Unterschied der Gruppengeschwindigkeit zwischen dem Puls R und den DUV-Pulsen die Zeitauflösung. Es gilt

$$\Delta t_v = \frac{z}{c} \Delta n_{gr}. \quad (93)$$

Dieser Effekt resultiert aus der linearen Dispersion der Probe und ist proportional zu ihrer Dicke. Für eine 250 nm dicke Diamantmembran mit $\Delta n_{gr} = 0.96$ [108] ergibt sich $\Delta t_v = 0.8$ fs. Aus diesem Grund eignen sich nur sehr dünne Proben.

Schlussendlich sollte die Schrittweite des Linearverstellers die Zeitauflösung nicht verschlechtern. Die Verwendung eines Piezoverstellers mit einer Auflösung von < 1 nm stellt keine relevante, zusätzliche Begrenzung dar. Eine Schrittweite von $\Delta z = 10$ nm entspricht einer Verzögerung von $\Delta t_P = \frac{2\Delta z}{c} = 67$ as.

Die einzelnen Einflussfaktoren auf die Zeitauflösung addieren sich nicht auf, sondern sind über eine Faltung verknüpft. Den größten Einfluss auf Δt_U hat hier Δt_β . Die Faltung einer Rechteckfunktion der Breite $\Delta t_\beta = 1.7$ fs mit einem Gaußpuls der Breite $\Delta t_U = 3.4$ fs ergibt nur eine geringe Reduktion der effektiven Zeitauflösung auf $\Delta t = 3.5$ fs.

7.4 Proben

Die zu untersuchende Probe muss gewisse Eigenschaften erfüllen, um für TADS geeignet zu sein. Grundsätzlich sollte sie zu einem gewissen Grad transparent für DUV-Pulse sein, damit diese im Spektrometer detektiert werden können. Die Proben sollten mindestens eine freie Apertur von $1\text{ mm} \times 2\text{ mm}$ besitzen. Eine weitere Einschränkung entsteht durch die unterschiedliche Gruppengeschwindigkeit der VIS-IR- und DUV-Pulse. Die Pulscharakterisierung durch XPM-Scans basiert genau auf diesem Effekt und benötigt deshalb ausgedehnte Proben. Die Zeitauflösung Δt_v der TADS verringert sich jedoch proportional zur Probendicke z . Um die bestmögliche Zeitauflösung nutzen zu können, müssen sehr dünne Proben verwendet werden. Für transparente Materialien mit normaler Dispersion im relevanten Spektralbereich lässt sich abschätzen, dass die Dicke kleiner als $1\text{ }\mu\text{m}$ sein sollte. Als freistehende TADS-Proben werden 250 nm dicke Diamantmembranen mit einer kreisförmigen freien Apertur von 3 mm verwendet. Diese sind kommerziell bei der Firma Diamond Materials erhältlich. Laut Herstellerangabe werden die Membranen durch mikrokristallines Wachstum in einem CVD¹⁹-Verfahren gewachsen. Diamant eignet sich besonders für die Demonstration der TADS, da es einerseits mechanisch sehr robust ist (freistehende Membran) und andererseits die Bandlücke im Bereich des DUV-Spektrums liegt ($E_g = 5.5\text{ eV}$ [111]). Des Weiteren wurden einlagiges Graphen und wenige Nanometer dicke Metall-Proben aus Iridium untersucht, die auf der Vorderseite von $100\text{ }\mu\text{m}$ dickem Quarzglas aufgebracht sind (im Folgenden 2D-Proben genannt). Graphen ist spektroskopisch interessant, da eine Van-Hove-Singularität im Bereich des DUV-Spektrums liegt [120]. Die statische Transmission von Graphen wurde bereits im Unterkapitel 4.3 in Abb. 23b gezeigt. Die Iridium-Proben wurden am Fraunhofer IOF in der Arbeitsgruppe von Dr. Ariana Szeghalmi durch Atomlagenabscheidung hergestellt. Für die verwendete Probe besteht der Herstellungsprozess aus 90 Beschichtungszyklen. Iridium ist ein sehr beständiges Metall mit hohem Schmelzpunkt (2719 K) [144]. Das Iridium liegt mit hoher Wahrscheinlichkeit in Form von Metall-Nano-Clustern auf dem Substrat vor und nicht als Schicht, jedoch wurden die verwendeten Proben nicht charakterisiert. Die Zielstellung ist es Plasmon-Effekte und eine erhöhte Nichtlinearität durch den Quantum-Size-Effekt [145] zu beobachten.

7.5 Justage

Die Justage ist aus mehreren Gründen eine Herausforderung. Der räumliche Überlapp der DUV-Pulse mit dem VIS-IR-Puls kann nicht mit herkömmlichen CCD-Kameras beobachtet werden, da diese im DUV nicht sensitiv sind. Der zeitliche Überlapp liefert kein statisches Interferenzmuster, wie es bei der Justage der VIS-IR-Pulse für die DUV-Erzeugung der

¹⁹CVD: Abk. für *chemical vapor deposition*, zu Deutsch chemische Gasphasenabscheidung.

Fall ist, da die Spektren von U bzw. V und R nicht überlappen. Somit kann der zeitliche Überlapp nicht durch lineare Methoden, sondern nur durch ein nichtlineares Messsignal gefunden werden.

Die Justage erfolgt deshalb folgendermaßen: zunächst wird mit dem schwenkbaren VUV-Spektrometer ein Winkel ϕ und somit die Beugungsordnung der THG ausgewählt. Das Spektrum wird mit der am Spektrometer installierten UV-Kamera beobachtet. Als nächstes wird eine Blende (Durchmesser: $200\ \mu\text{m}$), die an der Probenhalterung angebracht ist (siehe Abb. 39 c und d), in den Strahlengang gefahren. Sie wird derart platziert, dass ein Teil des räumlich in x-Richtung aufgelösten Spektrums die Blende passieren kann. So wird die laterale Position der DUV-Strahlung markiert, die im Experiment zur Probenanregung genutzt wird. Danach wird die Blende mit Hilfe eines 10-fach telezentrischen Objektivs (Schärfentiefe: $6\ \mu\text{m}$ und Arbeitsabstand: $50\ \text{mm}$) auf eine herkömmliche CCD-Kamera abgebildet. Nun wird der Anregepuls R mit dieser Kamera beobachtet und durch die Blende justiert. Mit diesem Verfahren wird räumlicher Überlapp garantiert und gleichzeitig wird eindeutig festgelegt, wo das Messsignal und wo die Referenz aus dem Spektrum entnommen werden kann. Dann muss noch der zeitliche Überlapp gefunden werden. Dies wird durch automatisierte Verzögerungsscans mit großem Verstellweg von bis zu $40\ \text{mm}$ möglich. Im einfachsten Fall wird als Probe ein Dielektrikum mit großer Bandlücke verwendet, wie z. B. $100\ \mu\text{m}$ Quarzglas. Somit ist zeitlicher Überlapp in der Datenspur als Phasenschub zu erkennen, genau wie in den durchgeführten XPM-Scans aus Kapitel 5.

7.6 Pulscharakterisierung mit TADS

Für den ersten Test des TADS-Aufbaus wird ein $100\ \mu\text{m}$ dickes Quarzglas-Plättchen als Probe verwendet. Aus dieser Messung lassen sich die DUV-Pulse durch XPM-Scans in der Variante *edge* charakterisieren. Im Experiment wird das Spektrum der THG im Emissionswinkel $\phi = 1/3\ \alpha$ in Abhängigkeit der Pulsverzögerung τ gemessen. Die gemessene Datenspur für ΔT ist in Abb. 41 dargestellt. Sie basiert auf der Mittelung von 10 Verzögerungsscans. Die Spitzenintensität von Puls R im Medium (vgl. Gleichung 8) ist mit $I_R = 0.2\ \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ geringer als in vorherigen Experimenten zur Pulscharakterisierung. Deshalb ist der durch XPM verursachte Phasenschub im Vergleich zur Messung in Kapitel 5 deutlich geringer. Durch die Referenzmessung ist es möglich die kleinen „Stufen“ der Phase, d. h. den Phasenschub von $30\ \text{mrad}$, aufzulösen. Es können folgende Bereiche unterschieden werden: bei $\tau = 0\ \text{fs}$ überlappen R und U und bei $\tau = 40\ \text{fs}$ überlappen R und V jeweils an der Probenvorderseite²⁰. Im Bereich von $\tau = 40\ \text{fs}$ bis $\tau = 70\ \text{fs}$ überholt Puls R beide DUV-Pulse im Dielektrikum, sodass der resultierende Phasenschub gleich 0 ist. Bei $\tau = 70\ \text{fs}$ überlappen wieder R und U und bei $\tau = 100\ \text{fs}$ überlappen R und V jeweils an der Probenrückseite.

²⁰Als Vorderseite wird die dem Laser zugewandte Seite bezeichnet.

Ein gechirpter DUV-Puls (quadratische spektrale Phase) zeigt in der Datenspur Charakteristiken, die im $\omega - \tau$ -Diagramm geneigt sind. Eine spektrale Phase dritter Ordnung zeigt in der Datenspur Charakteristiken, die im $\omega - \tau$ -Diagramm gekrümmt sind. In den Datenspuren sind beide Phasenabhängigkeiten zu erkennen. In Abb. 41b ist deutlich zu sehen, dass die DUV-Pulse an der Probenrückseite ($\tau > 50$ fs) deutlich stärker gechirpt sind als an der Vorderseite ($\tau < 50$ fs). Schon an der Datenspur kann abgeschätzt werden, dass Puls U an der Probenvorderseite Bandbreite-begrenzt ist, da der Phasenschub bei $\tau = 0$ in Abhängigkeit des Spektrums vertikal verläuft. Der Chirp von Puls V an der Vorderseite ist an der Neigung des Phasenschubs bei $\tau = 40$ fs zu erkennen.

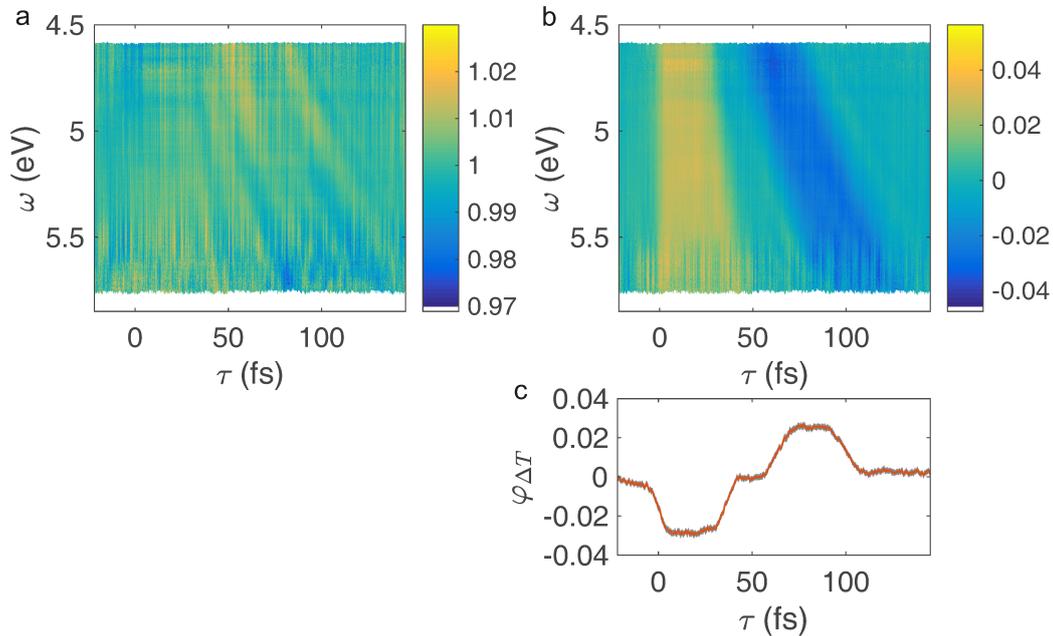


Abbildung 41: Messergebnisse einer TADS-Messung unter Verwendung eines $100 \mu\text{m}$ dicken Quarzglas-Plättchens als TADS-Probe. Dargestellt ist der Betrag $|\Delta T|$ (a) und die Phase $\varphi_{\Delta T}$ (b) in Abhängigkeit von ω und τ . Die Phase wird in der Einheit rad angegeben. Die Messpunkte sind nur in dem Bereich dargestellt, in dem der Betrag der Datenspur größer als 5% der Amplitude ist. (c) Phase $\varphi_{\Delta T}$ in Abhängigkeit von τ (summiert über ω im Bereich von 5.0–5.2 eV). Das Fehlerintervall (grau gefärbter Bereich) entspricht dem statistischen Fehler des Mittelwertes.

Zur Pulscharakterisierung wurde der Überlapp von U und R an der Probenvorderseite bei $\tau = 0$ verwendet. Die einzige Änderung, die hier gegenüber der Variante *edge* in Kapitel 5 vorgenommen werden muss, ist, dass die Ergebnisse für die Pulse U und V vertauscht werden müssen. Die Pulsdauern betragen $t_U^{FWHM} = 3.4$ fs und $t_V^{FWHM} = 10.0$ fs, was in sehr guter Übereinstimmung mit vorangegangenen Messungen und Simulationen ist (vgl. hierzu Kapitel 5). Die rekonstruierten komplexen Felder $U(\omega)$ und $V(\omega)$ sind in Abb. 42 dargestellt. Aus der spektralen Phase ergibt sich für Puls U eine GVD von 1 fs^2 und für V 12 fs^2 . Außerdem konnte für Puls V eine spektrale Phase dritter Ordnung festgestellt werden, $\text{TOD} = 9 \text{ fs}^3$.

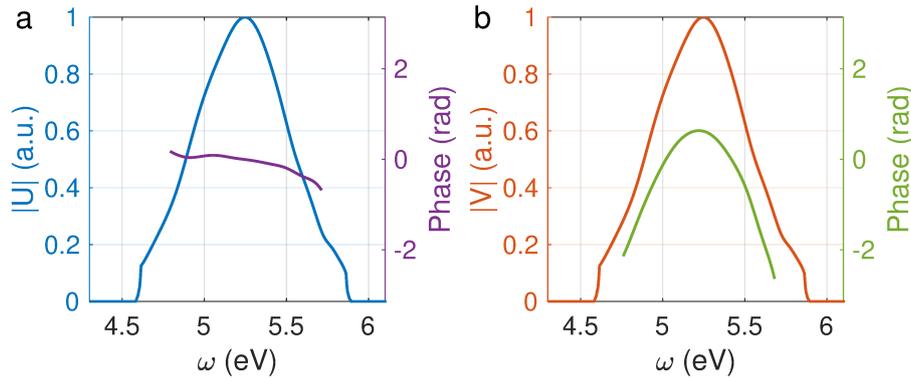


Abbildung 42: Rekonstruierte komplexe Felder $U(\omega)$ (a) und $V(\omega)$ (b) unter Verwendung der Methode *edge*. Zur besseren Sichtbarkeit ist die lineare Phase subtrahiert worden, was einer Verschiebung auf den Zeitpunkt null entspricht. Weiterhin ist die Phase nur in dem Bereich angezeigt, in dem die Amplitude 20% des Spitzenwertes überschreitet.

Um die experimentellen Ergebnisse der TADS mit Dielektrika großer Bandlücke als Probe besser verstehen zu können, werden quasi-1D-Simulationen durchgeführt, so wie es im Unterkapitel 2.7 erläutert wird. Das bedeutet, dass nicht die gesamte UPPE gelöst wird, sondern sie wird auf die notwendigen Bestandteile reduziert: die Beugung wird vernachlässigt, der intensive VIS-IR-Puls R breitet sich linear aus und die Nichtlinearität für die Ausbreitung der Pulse U und V besteht in der Kopplung an Puls R durch XPM. Es wird der Brechungsindex von MgF_2 gewählt. Unter den verwendeten Materialien ist es das Dielektrikum mit der größten Bandlücke. In MgF_2 ist die Verwendung einer instantanen nichtlinearen Polarisation am ehesten gerechtfertigt, vor allem mit Blick auf die DUV-Frequenzen. Es wird ein VIS-IR-Puls mit einer Pulsdauer von 5 fs initialisiert, der den Puls R repräsentiert sowie zwei DUV-Pulse im Abstand von 35 fs, wobei die Pulsdauer des führenden Pulses $t_U^{FWHM} = 3$ fs beträgt. Der nachlaufende Puls V besitzt das gleiche Spektrum wie U, er trägt jedoch in Anlehnung an das Experiment einen Chirp von 10 fs^2 . Die simulierte transiente Transmission ist in Abb. 43 dargestellt.

Die simulierten Phasenschübe werden analog zum Experiment wiedergegeben (vgl. Abb. 41b und Abb. 43b). Der charakteristische Verlauf der Phase $\varphi_{\Delta T}$ wurde bereits ausführlich diskutiert. Der Betrag $|\Delta T|$ zeigt in Abhängigkeit der Pulsverzögerung wechselnde Rot- bzw. Blauverschiebungen (siehe Abb. 43a), die auch in der gemessenen Datenspur zu sehen sind. Diese treten genau bei den Pulsverzögerungen auf, bei denen sich die Phasenschübe befinden. Bei der Betrachtung von $\tau = 0$ zeigt die rote Seite des Spektrums eine verringerte Transmission (Absorption) während die blaue Seite eine erhöhte Transmission (Emission) aufweist. Das erscheint zunächst nicht intuitiv, da die Nichtlinearität keinen Imaginärteil besitzt. Allerdings ist dieser Effekt in der nichtlinearen Optik zu erwarten, wie bereits im Unterkapitel 7.2 diskutiert wurde. Genau wie SPM erzeugt auch XPM neue Frequenzen. Im

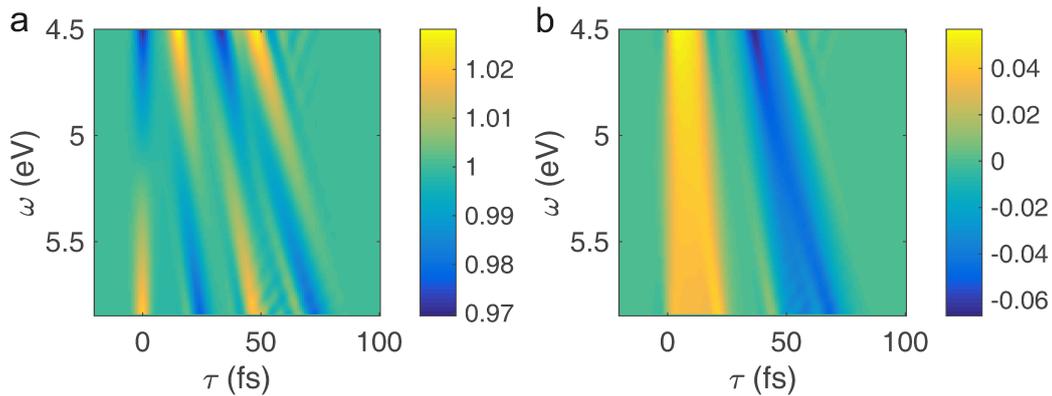


Abbildung 43: Simulation der TADS unter Verwendung der Materialparameter einer $60 \mu\text{m}$ dicken MgF_2 -Probe. Dargestellt ist der Betrag $|\Delta T|$ (a) und die Phase $\varphi_{\Delta T}$ (b) in Abhängigkeit von ω und τ . Die Phase wird in der Einheit rad angegeben.

Beispiel bei $\tau = 0$ ist die Blauverschiebung folgendermaßen zu erklären: der Puls R breitet sich mit einer größeren Gruppengeschwindigkeit aus als Puls U. Somit überlagern sich beide Pulse noch in den ersten μm der Probe, dann überholt R den Puls U. Der Puls R erzeugt eine zeitabhängige Erhöhung des Brechungsindex proportional zur Intensität. Der Puls U befindet sich im zeitlichen Mittel in der abfallenden Intensitätsflanke von Puls R, d. h. hinter R und breitet sich deshalb effektiv in einem über der Zeit abnehmenden Brechungsindex aus. Der vordere Teil des Pulses wird dadurch im Vergleich zum hinteren Teil etwas abgebremst. Das führt direkt zu der beobachteten Blauverschiebung.

Zusammenfassend ist die Simulation in guter Übereinstimmung mit dem Experiment und XPM kann als Ursache für die Beobachtungen in der TADS mit Dielektrika großer Bandlücke als Probe identifiziert werden.

7.7 Starke Felder in Diamant

Als freistehende Probe für die zeitaufgelöste Spektroskopie von Dielektrika in starken elektromagnetischen Feldern wird Diamant verwendet. Die Spitzenintensität des Anregepulses R im Medium beträgt $I_R = 1.7 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ bei Verwendung der Gleichung 8. Die weiteren experimentellen Parameter wurden in diesem Kapitel bereits angegeben.

Zunächst wird die lineare (statische) Transmission der Diamantmembran T^{dia} in Abhängigkeit der Frequenz ω bestimmt. Sie ist in Abb. 44 dargestellt. T^{dia} nimmt von ca. 40% bei 4.55 eV auf ca. 20% bei 5.75 eV ab, wobei die Kurve mit zunehmender Frequenz steiler wird. Die Messunsicherheit liegt im Bereich von 3%. Somit liegen die kleinen Extrema der Messkurve im Rauschen. Anhand der Dispersion von Diamant ist ein streng monoton abfallender Verlauf der Transmission zu erwarten. Die Bandlücke von Diamant beträgt 5.5 eV [111]. Sie liegt somit noch im Bereich des Spektrums der DUV-Doppelpulse. Die lineare Absorption

beträgt bei 5.2 eV (nur) 40 % unter Verwendung des komplexen Brechungsindex von Diamant [108, 109]. Durch den hohen Brechungsindex ($n' = 2.67$ bei 5.2 eV) werden je $\sim 20\%$ (bei Verwendung der Gleichung 9) an den beiden Grenzflächen Vakuum-Diamant reflektiert. Somit ergibt sich eine Transmission von $T^{dia}(5.2 \text{ eV}) = 0.8^2 \cdot 0.6 = 0.38$, was der Messung sehr nahe kommt.

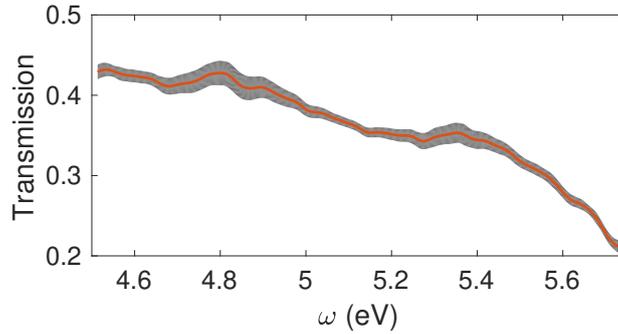


Abbildung 44: Gemessene statische Transmission T^{dia} einer 250 nm dicken CVD-Diamantmembran. Es ist nur der Bereich mit mehr als 4 % der maximalen spektralen Intensität dargestellt. Das Fehlerintervall (grau gefärbter Bereich) ist gegeben durch den statistischen Fehler des Mittelwertes.

Die experimentellen Ergebnisse der TADS-Messung sind in Abb. 45 a–d dargestellt. Es wurde über 40 Pulsverzögerungsscans gemittelt. Dies führt zu einem statistischen Fehler (Fehler des Mittelwertes) von $0.5\%/\sqrt{40} = 0.08\%$ für den Betrag $|\Delta T|$ und 0.8 mrad für die Phase $\varphi_{\Delta T}$. Die Datenspur zeigt ein deutliches Messsignal im Bereich des Pulsüberlapps von R mit U und V. Während das transiente Messsignal unterhalb der Bandlücke bei 4.5 eV für alle τ nahezu verschwindet, nimmt der maximale Ausschlag oberhalb der Bandlücke bei 5.7 eV von $|\Delta T|$ auf 2 % und das Maximum von $\varphi_{\Delta T}$ auf 30 mrad zu. In Abb. 45c ist der Betrag und die Phase von ΔT in Abhängigkeit von τ für den Spektralbereich mit maximalem Messsignal dargestellt. Auffällig ist, dass das Signal-Rausch-Verhältnis für die Phase deutlich besser ist als für die Amplitude. Dieser Vorteil von TADS gegenüber herkömmlichen TAS-Experimenten liegt in der hier zu Grunde liegenden Erzeugung der Doppelpulse. Bei Betrachtung des zeitlichen Überlapps von R und U (bei $\tau = 0$) ist eine Verzögerung der Amplitude von $|\Delta T|$ gegenüber $\varphi_{\Delta T}$ um 2.5 fs zu erkennen. Das erscheint zunächst paradox. Ist die Absorption gegenüber der Dispersion verzögert? Nein, auch hier lässt sich $|\Delta T|$ nicht direkt der nichtlinearen Absorption und $\varphi_{\Delta T}$ nicht der nichtlinearen Dispersion zuordnen. Die nichtlineare Änderung der Absorption und Dispersion steckt jeweils in beiden Größen $|\Delta T|$ und $\varphi_{\Delta T}$. Die Halbwertsbreite des Messsignals bei $\tau = 0$ fs beträgt 6 fs, was der Faltung eines 5 fs-Pulses mit einem 3 fs-Puls entspricht. Diese Tatsache und die gute Übereinstimmung mit der Simulation (Abb. 45c) zeigen, dass die Zeitauflösung nahe dem theoretischen Grenzwert $\Delta t = t_U \sim 3$ fs liegt.

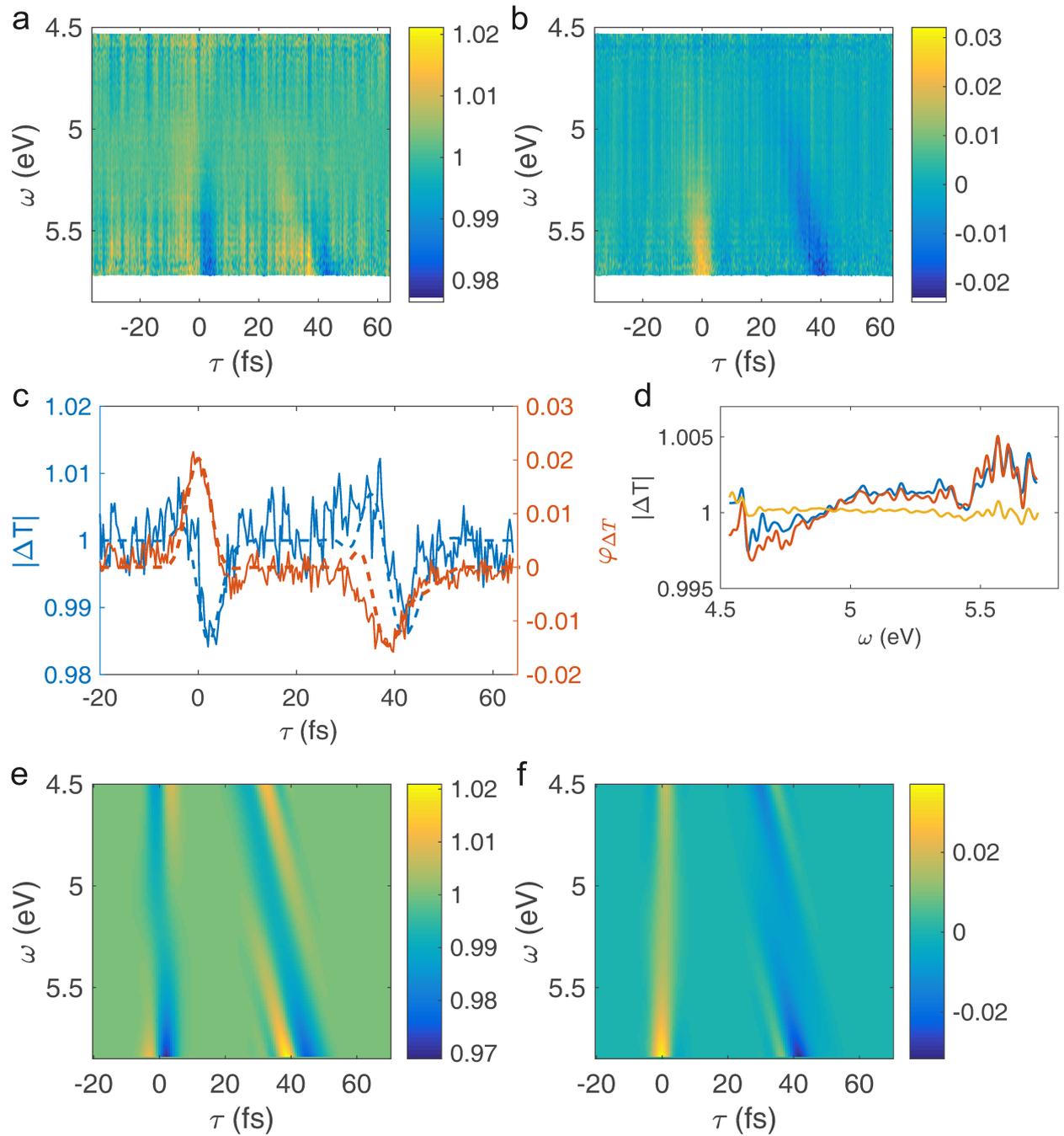


Abbildung 45: TADS mit einer 250 nm dicken Diamantmembran als Probe. Die transiente Transmission ist für die experimentellen Daten in (a) und (b) und für die simulierten Daten in (e) und (f) dargestellt. Der Betrag $|\Delta T|$ befindet sich in (a) und (e) und die Phase $\varphi_{\Delta T}$ ist in (b) und (f) zu sehen. Für die simulierten Daten wird die nicht-instantane Polarisation aus Gleichung 94 mit den Parametern $\omega_r = 7.1$ eV und $t_l = 5.4$ fs verwendet. Die Phase ist in der Einheit rad angegeben. Die experimentellen Daten sind nur in dem Bereich dargestellt, in dem der Betrag der Datenspur größer als 5% der Amplitude ist. (c) Vergleich von ΔT für experimentelle und simulierte Daten in Abhängigkeit von τ summiert über ω im Bereich von 5.5–5.7 eV. (d) Betrag $|\Delta T|$ der experimentellen Daten in Abhängigkeit von ω bei $\tau = -25$ fs (blau), $\tau = 15$ fs (rot) und $\tau = 60$ fs (gelb) summiert über ein Intervall von ± 4 fs.

Bei negativen Verzögerungen (Anregung erfolgt vor Abfrage) und Verzögerungen bei denen die Anregung zwischen den beiden Abfragepulsen erfolgt, ist $|\Delta T|$ für Frequenzen oberhalb der Bandlücke deutlich erhöht. Dies wird besonders in Abb. 45d deutlich, in der $|\Delta T|$ für die Anregung vor, zwischen und nach den Abfragepulsen dargestellt ist. Auch unterhalb der Bandlücke ist $|\Delta T|$ nicht exakt 1. Für letztere Beobachtung gibt es bisher keine abschließende Erklärung. Eine mögliche Interpretation ist, dass gebundene Exzitonen durch die Ionisation und der daraus resultierenden Plasmaabschirmung verschwinden [66]. Die erhöhte transiente Transmission oberhalb der Bandlücke kann durch *Pauli state-blocking* erklärt werden [37, 146]. Der Abfragepuls regt durch Multiphotonenionisation Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband an. Die (lineare) Absorption des Abfragepulses erfolgt ebenfalls durch Anregung von Elektronen vom Valenz- ins Leitungsband. Erfolgt die Anregung vor der Abfrage, so sind einige Zustände im Leitungsband besetzt und die Absorption wird reduziert. Der exponentielle Zerfall der Anregung konnte nicht beobachtet werden, da die Lebensdauer viel größer ist als die hier gemessene Verzögerung. Zielstellung ist die Beobachtung der extrem schnell ablaufenden Dynamik in der Nähe von $\tau = 0$. Allerdings liefert die Kreuzphasenmodulation bei Pulsüberlapp ein dominantes Messsignal, was die Auswertung erschwert. Durch die Verwendung der kürzesten DUV-Pulse mit einer Pulsdauer von 1.5 fs ist in diesem Bereich eine Subzyklen-Abhängigkeit des Messsignals zu erwarten. Diese entsteht durch den oszillierenden, reversiblen Anteil der Ionisation des Anregepulses [32, 90, 91].

Um die Messspur interpretieren zu können, werden quasi-1D-Simulationen durchgeführt, so wie sie im Unterkapitel 2.7 erläutert werden. Diese sollen das Messsignal bei Pulsüberlapp erklären. Die Ionisation wird innerhalb der Simulation nicht behandelt, perspektivisch könnte sie jedoch hinzugefügt werden. Es wird eine nichtlineare Polarisation dritter Ordnung angesetzt. Durch eine instantane, nichtlineare Antwortfunktion kann die Messung nicht besonders gut reproduziert werden (siehe Abb. 46). Das ist zu erwarten, da Diamant im DUV absorbiert. Zum einen ist die Amplitude von ΔT auf der roten Seite des Spektrums bei 4.5 eV zu groß. Zum anderen zeigt der Betrag $|\Delta T|$ auf der blauen Seite des Spektrums bei 5.6 eV in Abhängigkeit von τ ein anderes Verhalten. Während die Messung in der Nähe von $\tau = 0$ einen stärkeren Ausschlag hin zur Absorption (Werte kleiner als 1) aufweist (siehe Abb. 45c), ist die Simulation dort symmetrisch (siehe Abb. 46c). Diese Simulation entspricht vielmehr einem TADS-Experiment mit einem ultradünnen Dielektrikum mit großer Bandlücke als Probe, wie z. B. MgF_2 .

Jedoch konnte eine nicht-instantane, nichtlineare Polarisation gefunden werden, sodass die Simulation deutlich besser mit dem Experiment übereinstimmt. Sie hat die Form

$$\tilde{P}^{NL}(t) = \epsilon_0 \chi^{(3)} E_R(t)^2 \int d\tau \mathbf{R}(\tau) E_{DUV}(t - \tau) \quad (94)$$

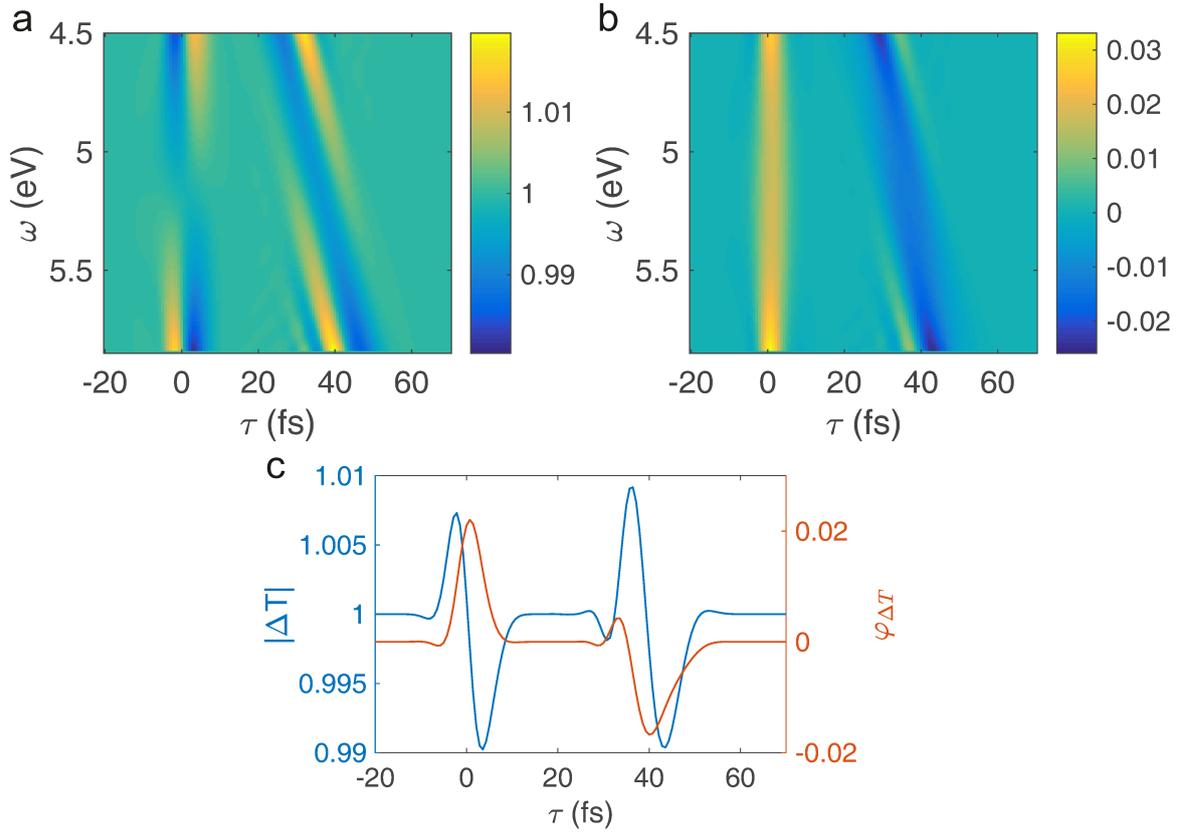


Abbildung 46: Simulation der TADS mit einer 250 nm dicken Probe unter Verwendung des linearen Brechungsindex von Diamant und einer instantanen, nichtlinearen Antwortfunktion. Dargestellt ist der Betrag $|\Delta T|$ (a) und die Phase $\varphi_{\Delta T}$ (b) in Abhängigkeit von ω und τ . Die Phase wird in der Einheit rad angegeben. (c) ΔT als Funktion von τ summiert über ω im Bereich von 5.5–5.7 eV.

mit der Antwortfunktion für die DUV-Strahlung

$$\mathbf{R}(\tau) = \begin{cases} 0, & \tau < 0 \\ Ae^{-\tau/t_l} \sin(\omega_r \tau) & \tau \geq 0, \end{cases} \quad (95)$$

wobei A ein geeigneter Normierungsfaktor, t_l die Abklingzeit und ω_r die Resonanzfrequenz sind. Diese nichtlineare Antwort ist angelehnt an die lineare Antwortfunktion eines Lorentz-Oszillators im Bereich der Resonanz (vgl. Gleichung 42). Für die Resonanzfrequenz wird $\omega_r = 7.1$ eV in Einklang mit der linearen Dispersion von Diamant angesetzt. Für $E_R(t)^2$ wird weiterhin die instantane Antwort verwendet, da das VIS-IR-Feld weit von der Resonanz entfernt ist. Sehr gute Übereinstimmung mit den Messdaten ergibt sich für Abklingzeiten $t_l \geq 2.0$ fs. Größere Werte für t_l beeinflussen die Messspur kaum, kleinere t_l zeigen hingegen deutliche Abweichungen. Das Resultat einer Simulation mit dieser nicht-instantanen, nichtlinearen Polarisation ist in Abb. 45 c, e und f dargestellt. Die Simulation stimmt auf der blauen Seite des Spektrums sehr gut mit den Messdaten überein (vgl. Abb. 45c). Die simulierte Datenspur weist, im Gegensatz zur Simulation mit einer instantanen Antwort-

funktion, eine gewisse Abnahme des Messsignals hin zu kleinen Frequenzen auf. Allerdings ist die Abnahme immer noch nicht so stark ausgeprägt wie in den experimentellen Daten. Ein Grund könnte die Vernachlässigung der Ionisation in den Simulationen sein. Zusammenfassend kann der Großteil der Datenspur bei Pulsüberlapp durch Kreuzphasenmodulation mit einer nicht-instantanen Antwortfunktion erklärt werden. Es konnte dabei eine untere Grenze der Abkling- oder Dephasierungszeit t_l festgestellt werden, die in der Größenordnung der Stoßzeit liegt, so wie sie in der Literatur für Quarzglas und Saphir zu finden sind [147].

Um einen tieferen Einblick in die Elektronendynamik von Diamant zu bekommen wurde eine Kollaboration mit Kollegen aus der theoretischen Festkörperphysik angestoßen. So sollen Simulationen auf Basis der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie folgen.

Abschließend soll am Beispiel der in diesem Unterkapitel durchgeführten Simulationen der Vorteil von TADS gegenüber TAS noch einmal hervorgehoben werden. Um den Informationsgewinn von TADS im Vergleich zu TAS aufzuzeigen, werden zwei Simulationen mit unterschiedlichen Parametern für die nichtlineare Polarisation (Gleichung 94) verglichen. Sie sind in Abb. 47 dargestellt. Die Parameter sind so gewählt, dass die transiente Absorption, d. h. $|\Delta T|$ beider Simulationen möglichst genau übereinstimmt. Die transiente Dispersion $\varphi_{\Delta T}$ zeigt hingegen unterschiedliche Verläufe. Mit TAS könnte dieser Unterschied nicht wahrgenommen werden. Somit weist TADS eindeutig einen höheren Informationsgehalt auf.

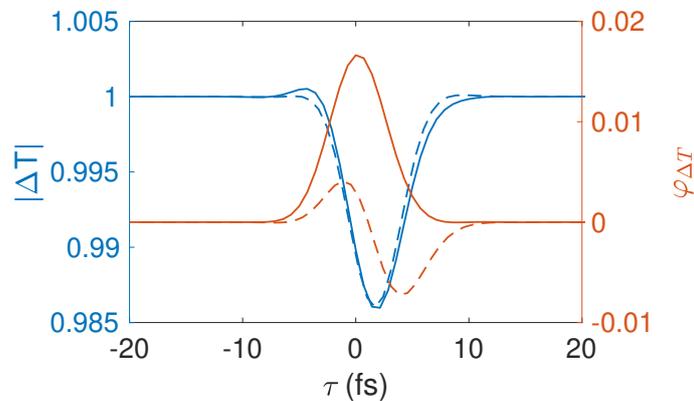


Abbildung 47: Simulierte transiente Transmission ΔT in Abhängigkeit von τ summiert über ω im Bereich von 5.5–5.7 eV für zwei verschiedene nichtlineare Antwortfunktionen. Die Einheit der Phase ist rad. Die Parameter sind: $t_l = 5$ fs, $\omega_r = 6.3$ eV (durchgezogene Linien) und $t_l = 0.3$ fs, $\omega_r = 5.9$ eV (gestrichelte Linien).

7.8 TADS mit 2D-Proben

Eine besondere Herausforderung der 2D-Proben stellt die Unterscheidung zwischen dem Substrat und der 2D-Schicht dar. TADS-Experimente mit 2D-Proben sind Teil der aktuellen bzw. zukünftigen Forschung. Aktuell gibt es noch keine Ergebnisse. Bei einem ersten

Experiment befand sich die 2D-Probe auf der Targetvorderseite. Der Vorteil dieser Konfiguration ist, dass der Abfragepuls U kurz ist. Allerdings ändert die lineare Absorption der 2D-Probe die anschließende Propagation durch das Substrat, was die Auswertung verkompliziert. Insbesondere ist dann eine einfache Subtraktion der Messspuren von reinem Substrat und von Substrat inklusive 2D-Probe nicht zielführend. Würde sich die 2D-Schicht auf der Probenrückseite befinden, so wäre dieses Problem gelöst. Allerdings wird der Abfragepuls U in diesem Fall auf dem Weg durch das Substrat geschirpt, was die Zeitauflösung deutlich verringert. Weiterhin reicht für Graphen die aktuelle Spitzenintensität von Puls R am Ort der Probe mit $I_R = 2 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ nicht aus, um nahe an die Zerstörschwelle zu gelangen. Dies ist jedoch notwendig um Starkfeldeffekte beobachten zu können. Für Messungen mit der Iridium-Probe muss die Intensität hingegen deutlich abgeschwächt werden, da Iridium als Metall stark absorbiert. Erste Messungen mit Iridium auf der Vorderseite der Probe wurde bereits durchgeführt. Die statische Transmission der Iridium-Probe T^{Ir} ist in Abb. 48 dargestellt. T^{Ir} weist ein Minimum bei 4.7 eV auf und steigt bis 5.6 eV von 40 % auf 70 % an.

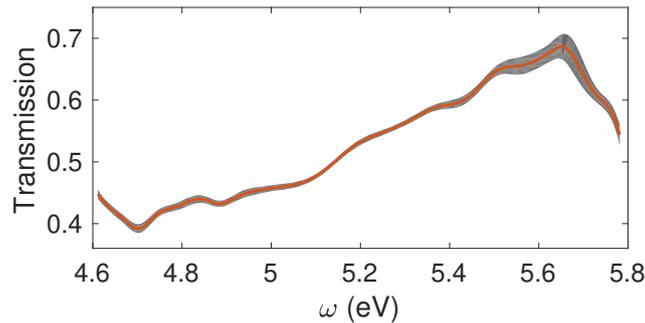


Abbildung 48: Experimentell bestimmte statische Transmission T^{Ir} der Iridium-Probe, bei Mittelung über 200 Spektren. Nur der Bereich mit mehr als 5 % der maximalen spektralen Intensität ist dargestellt. Das Fehlerintervall (grau gefärbter Bereich) ist gegeben durch den statistischen Fehler des Mittelwerts.

Bei 2D-Proben läuft die Messprozedur derart ab, dass Verzögerungsscans abwechselnd an Positionen mit reinem Substrat und an Positionen mit Substrat und 2D-Probe durchgeführt werden. Zur Auswertung wurde zunächst die transiente Transmission ΔT beider Messungen separat bestimmt und danach das Verhältnis

$$\Delta D(\omega, \tau) = \frac{\Delta T^{sub+2D}(\omega, \tau)}{\Delta T^{sub}(\omega, \tau)} \quad (96)$$

gebildet. Bisher konnte mit diesem Ansatz zur Unterscheidung von Probe und Substrat noch kein Starkfeldeffekt festgestellt werden. Sowohl die Messung als auch die Auswertung müssen dahingehend in Zukunft noch weiter optimiert werden.

8 Ausblick

Die zwei wesentlichen Errungenschaften dieser Doktorarbeit, VERAH und TADS, werden Forschungsbestandteil innerhalb der Arbeitsgruppe bleiben. Hier werden die weiteren Pläne kurz erläutert.

Die Verknüpfung räumlicher Harmonischer soll um die Verknüpfung zeitlicher Harmonischer erweitert werden. Bisher wurden vor allem Dielektrika mit Inversionssymmetrie zur Erzeugung harmonischer Strahlung verwendet. Durch die Verwendung von Kristallen ohne Inversionssymmetrie, wie z. B. SiO_2 werden zusätzlich zu den ungeraden Harmonischen gerade Harmonische erzeugt. Auf Grund der großen Bandbreite überlappen und interferieren somit zeitliche Harmonische. Um die lineare Laserpolarisation zu erhalten, muss bei der Auswahl des Kristalls darauf geachtet werden, dass die Kombination aus Kristallorientierung und Polarisation keine neuen Polarisationszustände erzeugt. Kristallsymmetrien, die diesen Fall ermöglichen sind die Punktgruppen D_2 , D_3 , C_2 , C_{2v} , C_3 , C_{3v} , C_4 , C_{4v} , C_6 und C_{6v} (vgl. [66]: Tabellen zu χ^2 - und χ^3 -Symmetrien). Es könnte somit SiO_2 im z-Schnitt in Kombination mit linearer Polarisation in x-Richtung verwendet werden. Das Ziel ist die Synthese von Wellenformen mit sub-fs Pulsdauer. Hierzu muss ein Superkontinuum aus mehreren zeitlichen und räumlichen Harmonischen mit der richtigen GEP und CEP verknüpft werden. Der Kreuzungswinkel α muss so gewählt werden, dass ein Emissionswinkel existiert, in dem die zweite, dritte, vierte und fünfte Harmonische ähnliche spektrale Intensität aufweisen. Ein Superkontinuum, das den Bereich von 3–9 eV abdeckt, ermöglicht theoretisch Pulse von 300 as. Um konstruktive Interferenz der zeitlichen Harmonischen zu gewährleisten, muss die CEP stabilisiert werden.

Im Bezug auf die TADS ist geplant, dass die bereits verwendeten und neue Proben mit den ultrakurzen 1.5 fs-Abfragepulsen untersucht werden. Außerdem sollen die Graphen- und Diamant-Proben mit einer höheren Intensität des Anregepulses nahe der Zerstörschwelle vermessen werden. Die bisher zur Verfügung stehende Spitzenintensität des Anregepulses am Ort der Probe ist hierfür nicht ausreichend. Eine stärkere Fokussierung soll nicht verwendet werden, da der Fokus im aktuellen Setup im Vergleich zum DUV-Strahlprofil schon klein ist. Ein neues Lasersystem befindet sich in der Aufbauphase, sodass in Zukunft etwa dreimal höhere Pulsenergien zur Verfügung stehen werden. Das neue Lasersystem der Firma Coherent hat noch einen weiteren entscheidenden Vorteil. Die Puls-zu-Puls Fluktuation der Laserleistung ist laut Herstellerangabe deutlich geringer. Eine Quelle für Rauschen in bisherigen Messungen ist die Leistungsschwankung des Lasersystems. Sie resultiert in einer THG-Leistungsschwankung von 2.1 %²¹ bei einer Belichtungszeit von 0.1 s. Die zugehörige Messreihe ist in Abb. 49 zu finden. Zukünftige Experimente der TADS werden von dem neuen Lasersystem profitieren.

²¹Das Maß für die Leistungsschwankung ist die Standardabweichung.

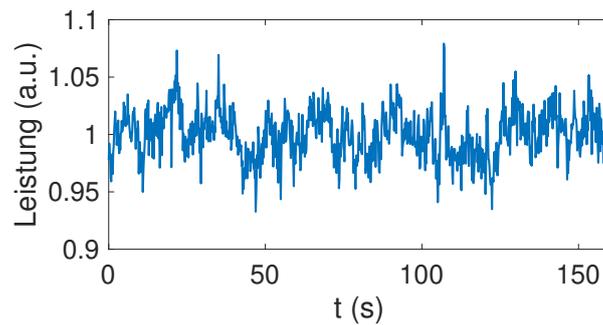


Abbildung 49: Leistungsschwankung der THG. Die Spektren werden mit einer Belichtungszeit von 0.1 s aufgenommen und entlang der spektralen Achse aufsummiert. Der zeitliche Mittelwert ist auf eins normiert. Die Standardabweichung beträgt 2.1 %.

Weiterhin ist geplant, wässrige Lösungen durch TADS zu untersuchen. Eine Herausforderung hierbei stellt die Probendicke dar. Es muss ein dünner Wasserfilm mit einer Dicke von $\sim 1\mu\text{m}$ erzeugt werden, der sich innerhalb der Messzeit nicht verändert. Die in dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen an einer Seifenlamelle stellen einen möglichen Ansatz dar. Die Messzeit ist hier bisher auf wenige Minuten beschränkt und die Messung kann nicht im Vakuum stattfinden. Ein anderer Ansatz ist die Verwendung einer für das Vakuum geeigneten Düse zur Erzeugung eines Wasserfilms [124]. Im Wasser können z. B. Nanopartikel, Farbstoffe und Nukleinbasen in starken Feldern mit fs-Zeitauflösung untersucht werden.

9 Zusammenfassung

In der vorliegenden Doktorarbeit werden nichtlineare Effekte in Dielektrika mit großer Bandlücke in der nahezu-kollinearen Strahlgeometrie untersucht. Durch die Überlagerung von zwei VIS-IR-Pulsen entsteht eine facettenreiche Struktur zeitlicher und räumlicher Harmonischer. Die nahezu-kollineare Strahlgeometrie zeichnet sich dadurch aus, dass die Flanken benachbarter räumlicher Harmonischer sich überlappen und interferieren. Sie vereint die Vorteile der kollinearen und nichtkollinearen Strahlgeometrie, indem sich einerseits harmonische Strahlung räumlich von den fundamentalen Pulsen trennen lässt, ohne auf Optiken, wie z. B. spektrale Filter oder Polarisatoren angewiesen zu sein und andererseits die geometrische Fehlanpassung der Phase und der Winkelchirp der harmonischen Strahlung gering sind. Durch den kleinen Kreuzungswinkel entsteht ein Fokus mit wenigen Interferenzstreifen. Analog zur CEP in der Zeitdomäne wird die *groove-envelope phase* (GEP) in der Raumdomäne definiert. Zum einen ist die Spitzenintensität von der GEP abhängig, was zu einer subzyklenabhängigen Erzeugung von Selbstbeugung führt. Zum anderen ist die GEP entscheidend für die Interferenz benachbarter räumlicher Harmonischer.

Ultrakurze Pulse im DUV-Spektralbereich werden durch die Erzeugung der zeitlichen dritten Harmonischen von VIS-IR-Pulsen in 100 μm dicken Dielektrika mit großer Bandlücke generiert. Auf Grund der fehlenden Phasen Anpassung entstehen Doppelpulse, wobei der führende Puls mit der Gruppengeschwindigkeit der VIS-IR-Pulse propagiert und kurz bleibt, während sich der nachlaufende Puls mit der normalen Dispersion im DUV ausbreitet und gechirpt wird. Der zeitliche Abstand der DUV-Pulse wird in erster Näherung nur durch das Material und dessen Dicke bestimmt, was eine sehr genaue Phasenmessung im mrad-Bereich ermöglicht. Die DUV-Pulse sind schwach und eignen sich als Abfragepulse für die zeitaufgelöste Spektroskopie. Sie werden zeitlich charakterisiert. Hierfür wird die neue Methode XPM-Scan eingeführt, die es erlaubt, extrem schwache Pulse mit Energien von wenigen Pikojoule zu vermessen. Sie basiert auf Verzögerungsscans mit einem intensiven VIS-IR-Puls. Die modulierten Spektren der Doppelpulse ermöglichen eine präzise Messung und Auswertung der Kreuzphasenmodulation, auf der diese Methode beruht.

Die kürzesten Pulse werden durch das neuartige Konzept „Verknüpfung räumlicher Harmonischer“ (VERAH) erzeugt. Dabei führt die Überlappung zweier benachbarter räumlicher Harmonischer der THG zur Erzeugung extrem breiter Spektren. Auf Grund der großen Bandlücke und der daraus folgenden geringen Dispersion ist MgF_2 das Dielektrikum, das sich am besten für die Erzeugung ultrakurzer Pulse eignet. Unter Verwendung der optimalen GEP der VIS-IR-Pulse werden DUV-Pulse mit einer Pulsdauer von 1.5 fs synthetisiert, die den Spektralbereich von 4.7–6.7 eV abdecken.

Die so erzeugten DUV-Doppelpulse werden für die transiente Absorptionsspektroskopie verwendet. Da die modulierten Spektren nicht nur Betrags- sondern auch Phaseninformation enthalten, kann nun zusätzlich zur transienten Absorption auch die transiente Dispersion gemessen werden. Diese neue Methode wird transiente Absorptions- und Dispersionsspektroskopie (TADS) genannt. Um Dispersion im Strahlengang der DUV-Pulse zu vermeiden, wurde eine sehr kompakte Strahlgeometrie geschaffen. Der Abstand von der DUV-Pulserzeugung bis zur TADS-Probe beträgt nur etwa 10 cm. Die Methode ermöglicht die Detektion sehr kleiner Änderungen im Promillebereich für den Betrag und im mrad-Bereich für die Phase der transienten Transmission. Diese hohe Sensitivität wird durch eine inhärente Referenzmessung möglich, auf die der experimentelle Aufbau getrimmt wurde. In einem ersten Test des Aufbaus werden die DUV-Pulse erstmalig nicht im erzeugenden Medium durch XPM-Scan charakterisiert, sondern in einem Quarzglas-Plättchen, das als TADS-Probe fungiert. TADS ist auf Grund der Dispersion der Gruppengeschwindigkeit besonders für dünne Proben geeignet. So konnte TADS erfolgreich in einer 250 nm dicken freistehenden Diamantmembran eingesetzt werden. Einerseits wird dabei eine nicht-instantane, nichtlineare Antwortfunktion im Bereich der Bandlücke bestimmt. Andererseits wird beobachtet, wie sich die Transmission oberhalb der Bandlücke durch Pauli *state-blocking* erhöht, d. h. durch Anregung von Elektronen ins Leitungsband.

Anhang

Ergänzende Abbildungen

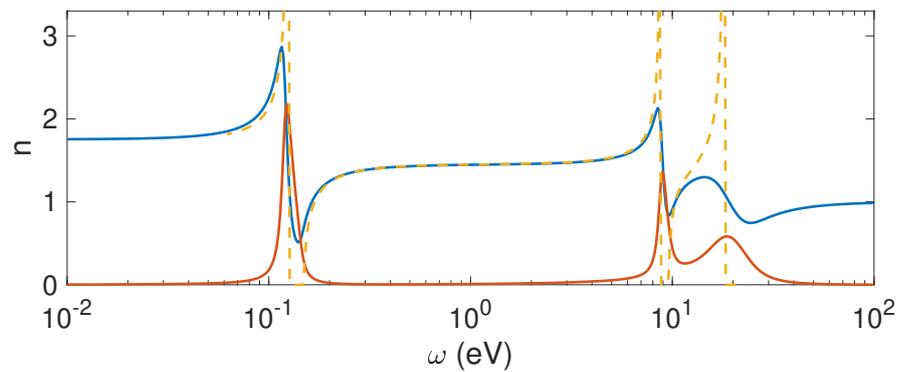


Abbildung 50: Modelle zur Beschreibung des Brechungsindex im Vergleich: Sellmeier-Gleichung für Quarzglas [58] (gelb-gestrichelt) und Lorentz-Oszillator (Realteil (blau) und Imaginärteil (rot)). Die Parameter des Lorentz-Modells sind in Anlehnung an die Dispersion von Quarzglas gewählt.

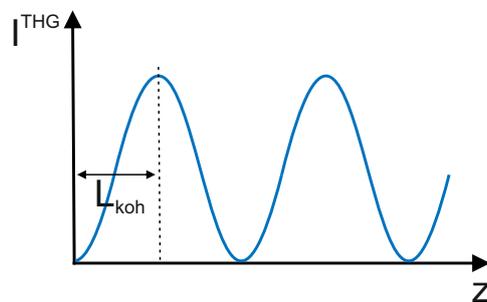


Abbildung 51: Intensität der THG bei Propagation durch ein Medium der Dicke z im monochromatischen Fall mit Kohärenzlänge L_{koh} . Überschreitet die Dicke des Mediums die Kohärenzlänge, so wird die THG durch destruktive Interferenz wieder in das erzeugende Feld zurücktransformiert. Die Periode ist $2L_{koh}$.

The screenshot displays a complex graphical user interface (GUI) for a measurement program, organized into several functional panels:

- align (camera):** Includes controls for 'RUN' (newton), 'SHOW' (newton), 'frames per Trigger' (1), 'Exposure Time / s' (0.1), 'stop/start' (trigger), 'plot' (checked), 'write data: 0', 'freerun ON/OFF', 'guess!' (checked), 'com1', 'FL', 'ABS', '8888', and 'test stability' (checked).
- retro (INIT RETRO):** Features a 'SUB-ROI' section with radio buttons for 'Master', 'Signal', 'ref_Femo', and 'ref_Helle', and 'BINSIZE' settings for 'fullframe' (1) and 'integrate X1' (1).
- manual dynamixel movement:** A large central panel with multiple sub-sections:
 - power:** Includes 'go BACKGRND', 'go FOREGRND', 'open shutter', 'close shutter', 'range / mV' (5.431), 'sampling rate / Hz' (1000), and 'power pre on/off'.
 - manual dynamixel movement:** Contains 'GOT1', 'GOT2', 'GOT3' buttons and a table for X, Y, string, set, actual, state, speed, and BZ8.
 - peak of cam-preview:** Includes 'peak count I/O' and a graph.
 - Andor Newton Camera:** Features 'Cooler: on', '°C', 'Set T', and 'McPherson grating' (250).
 - piezo pump probe delay stage:** Includes 'test FPS', 'init session', 'Fast PPD scan', 'adjust PPD automatically', and 'infos'.
 - manual figelli movement:** Includes 'Piket', 'Z SCAN', 'waittime', and 'move all safe'.
 - iris (INIT IRIS):** Includes 'SmaAct piezo' and 'manual saving'.
 - INIT OWIS, INIT USM, INIT STEINMEYER:** Large buttons for different measurement stages.
 - INIT PRO:** A button for 'dynamixel pro'.
 - NOTAUS frames:** Includes 'frames' (5) and 'ON/OFF'.
 - EXIT:** A button to exit the program.
- erowin:** Includes 'Initializel', 'Go!', 'Angle: ???', and 'Go!' buttons.
- meas.scripts & saving:** Includes 'Start a measurement script (auto saving)', 'split data', 'Ausnahme', 'fast scan', 'filename', and 'refresh filename'.
- piezo step size:** Includes 'start', 'end', '# reps', 'piezo step size: ... nm', and 'waittime [0.05]'.
- meas.scripts & saving (bottom):** Includes 'Start PPD scan (auto saving)', 'double', 'single', 'use trigger', 'use number', 'unt16', and 'manual saving'.

Data Visualization: A large plot at the bottom right shows a 2D heatmap with axes ranging from 100 to 250 on the y-axis and 350 to 1000 on the x-axis. The plot displays a blue square region, indicating a specific area of interest or measurement.

Abbildung 52: Grafische Benutzeroberfläche des Messprogramms.

A: Spektrometer

Dieser Abschnitt basiert inhaltlich auf dem Buch „Laser Spectroscopy, Basic Principles“ von W. Demtröder [148].

Mit Spektrometern wird der Betrag des Spektrums $|\tilde{E}^+(\omega)|$ gemessen. Die Auflösung eines Spektrometers kann von dem Eingangsschlitz, dem dispersiven Element oder der Pixelgröße der Kamera limitiert werden. Im Idealfall ist das Spektrometer so bemessen, dass nur das dispersive Element (hier das Gitter) das spektrale Auflösungsvermögen $R = |\lambda/\Delta\lambda| = \omega/\Delta\omega = mN$ limitiert. Hierbei ist $\Delta\lambda$ der minimale Abstand von zwei Spektrallinien, die gerade noch voneinander unterschieden werden können. Ein quantitatives Kriterium hierfür ist das Rayleigh-Kriterium. Hohe Auflösung wird erreicht durch Beleuchtung vieler Gitterlinien N und Verwendung einer hohen Beugungsordnung m . Der räumliche Abstand Δx zweier benachbarter Wellenlängen auf dem Detektor ist $\Delta x = \frac{dx}{d\lambda}\Delta\lambda$. Die lineare Dispersion $dx/d\lambda$ wird meist in mm/nm angegeben.

Die Gittergleichung liefert den Zusammenhang zwischen Ein- α und Ausfallswinkel β_m für konstruktive Interferenz einer Wellenlänge λ bei gegebener Gitterkonstante g (vgl. Abb. 53a),

$$g(\sin(\alpha) + \sin(\beta_m)) = m\lambda. \quad (97)$$

Bedingt durch den Herstellungsprozess kann es passieren, dass die Gitterkonstante räumlich nicht exakt gleich ist. Dann entstehen sogenannte *ghosts*. Das heißt, dass es effektiv mehrere Gittergleichungen und mehrere Lösungen $x(\lambda)$ gibt. Gitter, die im holografischen Verfahren produziert werden (holografische Gitter), sind frei von *ghosts*. Auf Grund des Herstellungsprozesses ist die Oberfläche sinusförmig. Das hat den Nachteil, dass der Blaze-Winkel sich innerhalb einer Periode ändert, was die Reflektivität bzw. Effizienz reduziert. Eindeutigkeit der Wellenlängenzuordnung $x(\lambda)$ ist weiterhin nur innerhalb des sogenannten freien Spektralbereiches $\delta\lambda$ gegeben. Dieser folgt aus der Gittergleichung: $\delta\lambda = 2m\lambda/(m^2 - 1)$. In Abb. 53b wird die Bedeutung des freien Spektralbereichs am Beispiel des in dieser Arbeit verwendeten Spektrometers verdeutlicht. Bei den verwendeten Parametern passt das Spektrum der 3. Harmonischen ($\sim 200 - 300$ nm) auf den Kamerachip. Um Eindeutigkeit des Spektrometers zu gewähren dürfen Wellenlängen kleiner als 150 nm keinen Einfluss haben.

Spektrometer mit einem dispersiven Element (Prisma oder Gitter) liefern einen linearen Zusammenhang zwischen x und λ . Im Gegensatz dazu liefert ein Fourierspektrometer das Spektrum natürlicherweise auf der Frequenz- bzw. Energieachse. Eine Umrechnung des Spektrums vom Wellenlängen- in den Frequenzbereich ist möglich mittels folgender Beziehungen: $E = \hbar\omega = hc/\lambda$ und $f(E)dE = f(\lambda)d\lambda$ [149]. Damit ergibt sich die für die Praxis relevante Beziehung $f(\omega) \sim f(\lambda)/\omega^2$.

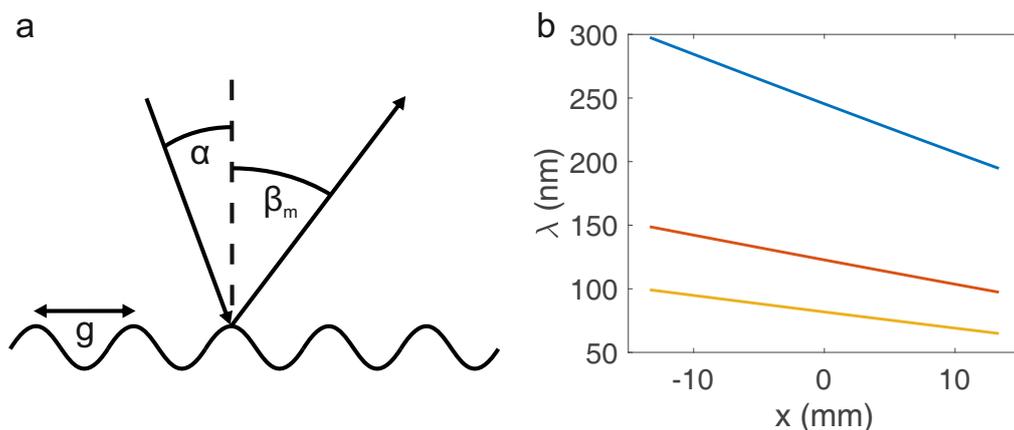


Abbildung 53: (a) Bezeichnung der wichtigsten Größen eines (holographischen) Gitters: Gitterkonstante g , Einfallswinkel α , Ausfallswinkel β_m , und Gitternormale (gestrichelte Linie). (b) Dargestellt ist der Zusammenhang $\lambda(x)$ für die ersten drei Beugungsordnungen, $m = 1$ (blau), $m = 2$ (rot), $m = 3$ (gelb). x ist der Ort auf der Kamera. Die verwendeten Parameter entsprechen dem McPherson VUV-Spektrometer Model 234/302 mit einem Gitter von 1200 Linien/mm und $\alpha = 42^\circ$.

Detektor

Die verwendeten Kameras haben einen sogenannten CCD-Sensor²² eingebaut. Dieser basiert auf einer Metall-Oxid-Halbleiter Struktur. Die Absorption eines Photons erzeugt ein Elektron-Loch-Paar durch den inneren Photoeffekt. Die Quanteneffizienz kann Werte nahe 1 erreichen. Gewöhnliche CCDs können im Bereich von 350–900 nm verwendet werden. Durch rückseitige Beleuchtung (engl. *backward-illuminated*), ohne Eingangsfenster und Kühlung (dadurch wird Rauschen reduziert) kann die spektrale Empfindlichkeit moderner Kameras auf bis zu 0.1–1000 nm erweitert werden.

²²CCD: Abk. für *charge-coupled device*. Die Erfindung wurde 2009 mit dem Nobelpreis für Physik ausgezeichnet.

B: Ausführliche Ergebnisse zur Untersuchung der Selbstbeugung

Die Ergebnisse dieses Unterkapitels sind bereits in [55] veröffentlicht worden und werden hier in ähnlicher Form dargestellt. Es handelt sich zum Teil um Übersetzungen. Der experimentelle Aufbau war zu Beginn meiner Doktorarbeit schon aufgebaut. Die Experimente wurden von Aseem P. Pati, Christoph G. Leithold und mir durchgeführt. Die theoretische Ausarbeitung und Simulation geschah in Kooperation mit Adrian Pfeiffer.

Im Experiment werden charakteristische Interferenzmuster mit Subzyklen-Abhängigkeit von der Pulsverzögerung τ beobachtet. Sie sind in Abb. 54 a und c dargestellt. Die erste Art von Interferenzmuster ist im Bereich zwischen den Beugungsordnungen dominant und zeigt im $\phi - \tau$ -Diagramm geneigte Interferenzstreifen. Diese werden sowohl bei niedriger ($I_A = 10 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$) als auch bei hoher ($I_A = 25 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$) Intensität beobachtet und sind am deutlichsten im Bereich zwischen dem Strahl A und der ersten Beugungsordnung sichtbar. Eine Intensitätsmodulation existiert auch zwischen der ersten und zweiten Beugungsordnung, aber dort ist die Modulation auf nur einen Zyklus beschränkt. Es gibt eine zweite Art von Interferenzmuster, die nur bei hoher Intensität beobachtet wird. Sie dominiert auf den Beugungsordnungen und zeigt vertikale Interferenzstreifen im $\phi - \tau$ -Diagramm.

Um die Mechanismen für die Subzyklen-Abhängigkeit der Selbstbeugung zu identifizieren, werden die Experimente mit 2D-Simulationen verglichen. Für die Ausbreitung innerhalb der Probe wird der Brechungsindex von Quarzglas verwendet. Die nichtlineare Polarisation wird als instantane Nichtlinearität dritter Ordnung und die Stromdichte wird mit dem Drude-Modell berechnet. Als Stoßzeit werden $\tau_c = 10$ fs angenommen. Basierend auf der 6-Photonen-Ionisation wird die Ionisationsrate durch $\frac{\partial}{\partial t}\rho(\vec{r}, t) = \sigma I^6$ mit $\sigma = 7.5 \cdot 10^{-65} \frac{\text{m}^9}{\text{sW}^6}$ berechnet [147]. Für die Ausbreitung von der Probe zur Kamera erfolgt eine lineare Propagation. Beide Arten der Interferenz werden von der Simulation reproduziert (vgl. Abb. 54 b und d).

Im Folgenden werden anschauliche vereinfachte Modelle herangezogen, um beide Arten der Interferenz besser zu verstehen. Ein wesentlicher Faktor wird durch die Geometrie gegeben. Der kleine Winkel zwischen den fundamentalen Pulsen A und B resultiert in einem Fokus mit wenigen Streifen (vgl. Abb. 12). Hierdurch wird die GEP wichtig. Die Phase dieser Interferenzstreifen wird mit der Pulsverzögerung kontrolliert.

Kaskadierte Vierwellenmischung

Das prominenteste Modell zur Beschreibung der Selbstbeugung ist die kaskadierte Vierwellenmischung (CFWM) [112]. Es wird bereits im Unterkapitel 4.1 vorgestellt. Mit CFWM lässt

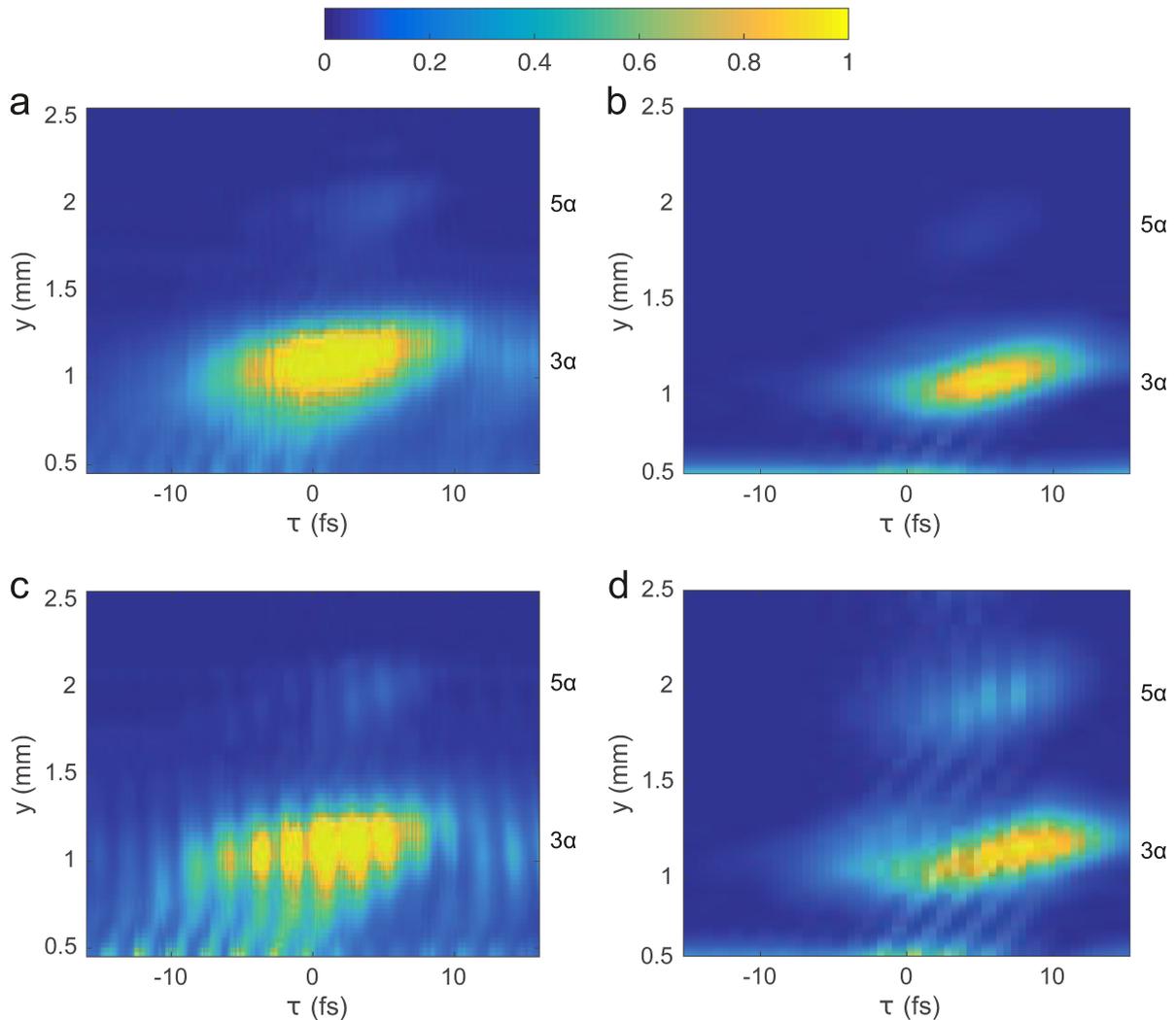


Abbildung 54: Intensität der Selbstbeugung als Funktion der Pulsverzögerung τ und des Emissionswinkels bzw. der transversalen Ortskoordinate y auf der Kamera. Experimentelle (a und c) und simulierte (b und d) Daten sind für $I_A = 10 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ (a und b) und $I_A = 25 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ (c und d) dargestellt. Adaptiert aus [55].

sich die Interferenz erster Art erklären, die zwischen benachbarten Ordnungen auftritt und als Funktion von τ in einer Modulation mit der Frequenz ω resultiert.

In einer detaillierten analytischen Rechnung (vgl. Zusatzmaterial der Veröffentlichung [55]), die Vierwellenmischung im Limes einer einzelnen (dünnen) Schicht sowie die anschließende Propagation in die Ebene der Kamera beinhaltet, ist das Interferenzmuster erster Art deutlich zu sehen (vgl. Abb. 55a). Nun ist noch die Frage zu klären, warum die Interferenzstreifen geneigt sind. Für ein Fernfeld im Rahmen der Fraunhofer-Beugung (Fourier-Optik) ergeben sich vertikale Streifen. Die Voraussetzungen für Fraunhofer-Beugung werden im Experiment nicht erfüllt. Die lineare Propagation in nahezu-kollinear-er Geometrie verursacht die Neigung der Streifen.

Periodische Mehrfach-Filamentierung

Die Interferenzmuster erster Art lassen sich auch mit „Periodischer Mehrfach-Filamentierung“ (PMF) erklären. Die Maxima des Intensitätsgitters sind auf der Rückseite der Probe viel steiler als auf der Vorderseite. Dies kann als Ergebnis der Selbstfokussierung jedes einzelnen Maximums verstanden werden. Die Selbstfokussierung wird durch das Gitter auf der Vorderseite der Probe eingeleitet. Dieser Mechanismus wurde von Liu et al. [150] beschrieben, wo der anschauliche Vergleich durchgeführt wird, dass die anfängliche Intensitätsverteilung des Gitters wie eine Mikrolinsen-Anordnung wirkt. Die Periodische Anordnung von Filamenten erzeugt SD-Ordnungen. Der Grund dafür ist, dass die Filamentierung einer Verbreiterung der Ortsfrequenzen entspricht. Aufgrund des gleichmäßigen Abstands der Filamente und folglich der Modulation im k -Raum entstehen räumliche Harmonische im Fernfeld.

Die beiden Modelle CFWM und PMF sind sehr ähnlich, aber nicht identisch. CFWM kann auch ohne Beugung SD erzeugen. PFM kann durch CFWM in Kombination mit Beugung beschrieben werden. Allerdings ist für PFM die Nichtlinearität in Form von CFWM nicht notwendig, auch eine Mikrolinsen-Anordnung würde zu SD-Ordnungen führen.

Die Filamentierung kann mathematisch als eine Reihe der Form

$$I(y) = I_0 \sum_{q=0}^{\infty} a_q \cos(2qk_y y - q\varphi_{GE}) \quad (98)$$

aufgefasst werden mit der Einhüllenden des Fokus I_0 und den Amplituden a_q der jeweiligen räumlichen Harmonischen q . Überraschenderweise führt dieser Ansatz zu exakt den gleichen Phasenbeziehungen für die räumlichen Harmonischen, wie im Unterkapitel 4.1.

Lokale Veränderung der Transmission

Die zweite Art der Interferenz, die bei hoher Intensität direkt auf den Beugungsordnungen beobachtet wird und vertikale Interferenzstreifen im $\phi - \tau$ -Diagramm aufweist, lässt sich nicht durch CFWM oder PFM erklären. Eine Erklärung auf Basis der Simulation stellt sich als schwierig heraus. Der Grund hierfür ist, dass z. B. eine Vernachlässigung des Drude-Stromes zum Kollaps, also numerischer Instabilität, führt. Dieser Plasmabeitrag balanciert durch Defokussierung die Kerr-Fokussierung während der Propagation.

Daher wird hier ein phänomenologisches Modell vorgeschlagen. Es erhält den Namen „Lokale Veränderung der Transmission“ (LVT). Es ist in der Lage die zweite Art von Interferenzmuster zu reproduzieren. LVT basiert auf der Annahme, dass die optischen Eigenschaften (der lineare Brechungsindex oder die nichtlinearen Eigenschaften) in einem engen Bereich in der Probe verändert werden. Diese Annahme wird durch die Filamentierung motiviert, die

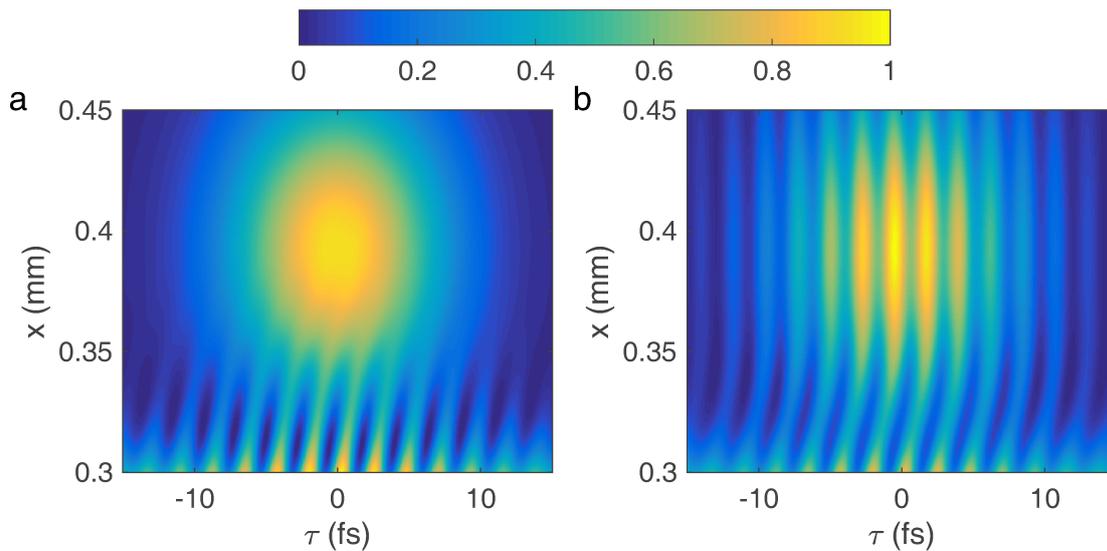


Abbildung 55: Intensität der ersten Selbstbeugungsordnung als Funktion der Pulsverzögerung τ und der transversalen Ortskoordinate y auf der Kamera. Das Ergebnis der Vierwellenmischung (a) wird dem Modell der lokalen Veränderung der Transmission (b) gegenübergestellt. Das Interferenzmuster zweiter Art ist sowohl in (a) als auch in (b) bei $x = 0.32$ mm zu sehen. Das Interferenzmuster zweiter Art ist nur in (b) auf der ersten SD-Ordnung bei $x = 0.4$ mm zu sehen. Adaptiert aus [55].

die Energie in enge Bereiche lokalisiert und zu stark nichtlinearer Absorption oder dauerhaftem Schaden führen kann. Auch wird von einer Art Gedächtnis bzw. Hysterese in den nichtlinearen Eigenschaften von transparenten Festkörpern berichtet [151]. Nichtlineare laserinduzierte Veränderungen können sich von Schuss zu Schuss aufaddieren. Das modifizierte Material bildet einen nichtlinearen Speicher im System [151]. Eine weitere Quelle für die Verstärkung der Nichtlinearität ist die Plasmaerzeugung um nanometergroße Inhomogenitäten, die in Gläsern vorhanden sind [152]. Diese Mechanismen sind bei einer GEP von 0 in einem engen räumlichen Bereich im mittleren Intensitätsmaximum am stärksten ausgeprägt. Bei einer anderen Pulsverzögerung, wenn das Maximum aus der Mitte verschoben wird, ist die Energie jedes Interferenzstreifens kleiner als bei der GEP von 0. Die Gesamtenergie, die für die spätere Selbstfokussierung zur Verfügung steht, wird in die Interferenzstreifen des Fokus unterteilt. Somit hängt die maximale Energie eines Streifens von der GEP ab. Folglich hängen die stark nichtlinearen Mechanismen, die von der maximalen Intensität abhängen, von der GEP ab.

Die mathematische Beschreibung von LVT basiert, wie der Name schon sagt, auf einer lokalen Veränderung der Transmission. Zunächst wird durch Vierwellenmischung SD erzeugt.

Danach wird in einem engen Bereich aus den genannten Gründen die Transmission verändert. Für das elektrische Feld auf der Rückseite der Probe ergibt sich:

$$E^{LVT}(y, t) = E^{CFWM}(y, t) \left(1 - t^{LVT} e^{-\frac{y^2}{2\zeta}} \right). \quad (99)$$

Dabei gibt ζ die Breite und t^{LVT} die Stärke der als gaußförmig angenommenen Transmissionsänderung an. Das Interferenzmuster entsteht durch die lineare Propagation von der Probe zur Position der Kamera. Die Vorstellung ist die Folgende: die lokalisierte Änderung der Transmission hat einen großen Divergenzwinkel zur Folge, der mehrere Beugungsordnungen überspannt. Somit wird z. B. ein Teil des intensiven Pulses A inklusive seiner Phasenabhängigkeit in die erste Beugungsordnung gestreut, was die charakteristische Interferenz zweiter Art auf der Ordnung zur Folge hat. Das Ergebnis des analytischen Modells für LVT befindet sich in Abb. 55b.

Noch ausführlichere analytische Berechnungen zu den drei beschriebenen Modellen, die für die Interferenzmuster verantwortlich sind, befinden sich im Zusatzmaterial der Veröffentlichung [55].

C: Interferometrische Abbildung von Selbstbeugung

Eine Erweiterung des SD-Setups stellt der in der Arbeitsgruppe entwickelte Aufbau zur interferometrischen Abbildung von Selbstbeugung dar (siehe Abb. 56). Dabei wird der Fokus in einem 4f-Aufbau im Abbildungsmaßstab 1:1 auf eine Kamera abgebildet. Der Winkel zwischen den fundamentalen Strahlen A und B ist hierbei groß genug, um die verschiedenen SD-Ordnungen gut voneinander trennen zu können. So kann das Fernfeld mit Hilfe von motorisierten Polarisatoren und Strahlfallen manipuliert werden. Die am sphärischen Spiegel reflektierten Pulse werden etwas unterhalb der einfallenden Strahlen von einem Planspiegel auf die CCD-Kamera gelenkt.

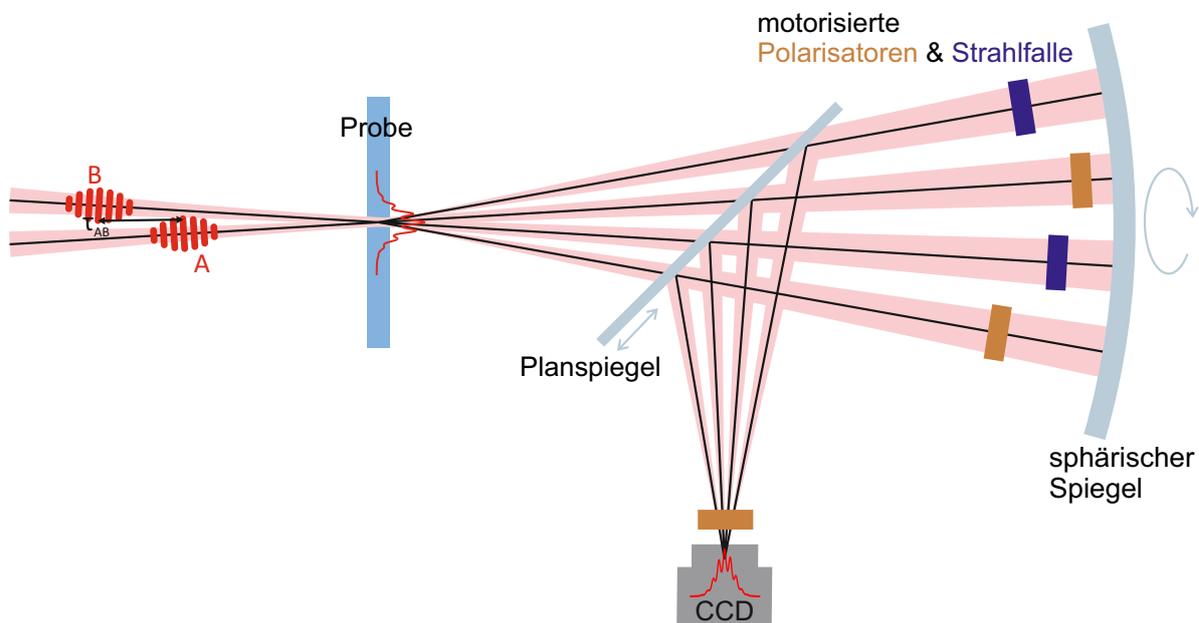


Abbildung 56: Aufbau der interferometrischen Abbildung von Selbstbeugung.

Die Idee dieses Aufbaus ist, dass aus der Phase der räumlichen Interferenz zwischen einem fundamentalen Puls und der 1. SD-Ordnung die Verzögerung der $\chi^{(3)}$ -Polarisation abgelesen werden kann. Die Messung würde direkt im Zeitbereich stattfinden. Dabei soll extrem hohe Genauigkeit von wenigen Attosekunden (as) erreicht werden. Diese ist notwendig, da die Verzögerung der nichtlinearen Polarisation in Dielektrika mit großer Bandbreite deutlich unter 1 fs liegt [153].

Eine Bedingung ist die perfekte Abbildung des Fokus auf die Kamera. Damit ist gemeint, dass garantiert sein muss, dass jeder Strahl den gleichen optischen Weg zurücklegt. Zum Vergleich, ein interferometrischer Wegunterschied von 1 nm entspricht einer Verzögerung von 3 as. Jedes optische Element zwischen Fokus und Kamera erzeugt jedoch gewisse Bildfehler. Diese können durch Mittelung über viele Positionen verringert werden. Hierfür wird jedes optische Element bewegt. Neben dieser Art der absoluten Messung der Phase der $\chi^{(3)}$ -Polarisation einer Probe ist es mit geringerem Aufwand möglich zwei Medien zu vergleichen

und deren relative nichtlineare Verzögerung zu bestimmen. Für diese Experimente ist mein Kollege Christoph Leithold zuständig. Deshalb wird auf die Ergebnisse in dieser Arbeit nicht eingegangen.

Es hat sich jedoch schon früh gezeigt, dass es für die Auswertung notwendig ist, das elektrische Feld der Pulse A und B möglichst genau zu kennen. Hierfür wurde eine neue Methode zur Charakterisierung der Pulse entwickelt, die auf der interferometrischen Abbildung von Selbstbeugung basiert [137, 138]. Eine Besonderheit dieser Methode ist, dass beide Pulse inklusive einer räumlichen Dimension charakterisiert werden. Weiterhin erfolgt die Rekonstruktion analytisch. Und es können sogar Pulse rekonstruiert werden, deren Spektren mehr als eine Oktave überspannen.

Literatur

- [1] F. Krausz und M. Ivanov, “Attosecond physics,” *Reviews of Modern Physics* **81**, 163–234 (2009). 1
- [2] F. Calegari, G. Sansone, S. Stagira, C. Vozzi, und M. Nisoli, “Advances in attosecond science,” *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics* **49**, 062001 (2016). 1
- [3] T. Tajima und J. M. Dawson, “Laser electron-accelerator,” *Physical Review Letters* **43**, 267–270 (1979). 1
- [4] D. N. Fittinghoff, P. R. Bolton, B. Chang, und K. C. Kulander, “Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling,” *Physical Review Letters* **69**, 2642–2645 (1992). 1
- [5] P. B. Corkum, “Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization,” *Physical Review Letters* **71**, 1994–1997 (1993). 1
- [6] G. G. Paulus, W. Nicklich, H. Xu, P. Lambropoulos, und H. Walther, “Plateau in above threshold ionization spectra,” *Physical Review Letters* **72**, 2851–2854 (1994). 1
- [7] A. Mcpherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. S. Luk, I. A. McIntyre, K. Boyer, und C. K. Rhodes, “Studies of multiphoton production of vacuum ultraviolet-radiation in the rare-gases,” *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics* **4**, 595–601 (1987). 1
- [8] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Audebert, P. Balcou, H. G. Muller, und P. Agostini, “Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation,” *Science* **292**, 1689–1692 (2001). 1, 2.8
- [9] S. Backus, C. G. Durfee, M. M. Murnane, und H. C. Kapteyn, “High power ultrafast lasers,” *Review of Scientific Instruments* **69**, 1207–1223 (1998). 1
- [10] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri, und M. Nisoli, “Isolated single-cycle attosecond pulses,” *Science* **314**, 443–446 (2006). 1
- [11] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’huillier, und P. B. Corkum, “Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields,” *Physical Review A* **49**, 2117–2132 (1994). 1
- [12] I. L. Markov, “Limits on fundamental limits to computation,” *Nature* **512**, 147–154 (2014). 1

-
- [13] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, und F. Krausz, “Attosecond metrology,” *Nature* **414**, 509–513 (2001). 1
- [14] E. Goulielmakis, Z. H. Loh, A. Wirth, R. Santra, N. Rohringer, V. S. Yakovlev, S. Zhebrebtsov, T. Pfeifer, A. M. Azzeer, M. F. Kling, S. R. Leone, und F. Krausz, “Real-time observation of valence electron motion,” *Nature* **466**, 739–743 (2010). 1, 7
- [15] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, C. Spielmann, G. A. Reider, P. B. Corkum, und F. Krausz, “X-ray pulses approaching the attosecond frontier,” *Science* **291**, 1923–1927 (2001). 1, 2.8
- [16] J. Itatani, F. Quéré, G. L. Yudin, M. Y. Ivanov, F. Krausz, und P. B. Corkum, “Attosecond streak camera,” *Physical Review Letters* **88**, 173903 (2002). 1, 2.8
- [17] V. Mergel, R. Dörner, J. Ullrich, O. Jagutzki, S. Lencinas, S. Nuttgens, L. Spielberger, M. Unverzagt, C. L. Cocke, R. E. Olson, M. Schulz, U. Buck, E. Zanger, W. Theisinger, M. Isser, S. Geis, und H. Schmidtbocking, “State-selective scattering angle-dependent capture cross-sections measured by cold target recoil ion momentum spectroscopy,” *Physical Review Letters* **74**, 2200–2203 (1995). 1
- [18] T. Wittmann, B. Horvath, W. Helml, M. G. Schätzel, X. Gu, A. L. Cavalieri, G. G. Paulus, und R. Kienberger, “Single-shot carrier-envelope phase measurement of few-cycle laser pulses,” *Nature Physics* **5**, 357–362 (2009). 1
- [19] A. T. J. B. Eppink und D. H. Parker, “Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen,” *Review of Scientific Instruments* **68**, 3477–3484 (1997). 1
- [20] S. Ghimire, G. Ndabashimiye, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, M. I. Stockman, P. Agostini, L. F. DiMauro, und D. A. Reis, “Strong-field and attosecond physics in solids,” *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics* **47**, 204030 (2014). 1
- [21] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, und D. A. Reis, “Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal,” *Nature Physics* **7**, 138–141 (2011). 1
- [22] Y. S. You, Y. C. Yin, Y. Wu, A. Chew, X. M. Ren, F. J. Zhuang, S. Gholam-Mirzaei, M. Chini, Z. H. Chang, und S. Ghimire, “High-harmonic generation in amorphous solids,” *Nature Communications* **8**, 724 (2017). 1
- [23] H. Kim, S. Han, Y. W. Kim, S. Kim, und S. W. Kim, “Generation of coherent extreme-ultraviolet radiation from bulk sapphire crystal,” *ACS Photonics* **4**, 1627–1632 (2017). 1

-
- [24] G. Ndabashimiye, S. Ghimire, M. X. Wu, D. A. Browne, K. J. Schafer, M. B. Gaarde, und D. A. Reis, “Solid-state harmonics beyond the atomic limit,” *Nature* **534**, 520–523 (2016). 1
- [25] P. Földi, M. G. Benedict, und V. S. Yakovlev, “The effect of dynamical bloch oscillations on optical-field-induced current in a wide-gap dielectric,” *New Journal of Physics* **15**, 063019 (2013). 1, 2.6
- [26] T. T. Luu, M. Garg, S. Y. Kruchinin, A. Moulet, M. T. Hassan, und E. Goulielmas, “Extreme ultraviolet high-harmonic spectroscopy of solids,” *Nature* **521**, 498–502 (2015). 1
- [27] G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thiré, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, D. D. Klug, und P. B. Corkum, “All-optical reconstruction of crystal band structure,” *Physical Review Letters* **115**, 193603 (2015). 1
- [28] S. Ghimire und D. A. Reis, “High-harmonic generation from solids,” *Nature Physics* **15**, 10–16 (2019). 1
- [29] G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thire, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, und P. B. Corkum, “Linking high harmonics from gases and solids,” *Nature* **522**, 462–464 (2015). 1
- [30] M. Hohenleutner, F. Langer, O. Schubert, M. Knorr, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, und R. Huber, “Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation,” *Nature* **523**, 572–575 (2015). 1, 2.6
- [31] A. Schiffrin, T. Paasch-Colberg, N. Karpowicz, V. Apalkov, D. Gerster, S. Mühlbrandt, M. Korbman, J. Reichert, M. Schultze, S. Holzner, J. V. Barth, R. Kienberger, R. Ernstorfer, V. S. Yakovlev, M. I. Stockman, und F. Krausz, “Optical-field-induced current in dielectrics,” *Nature* **493**, 70–74 (2013). 1
- [32] A. Sommer, E. M. Bothschafter, S. A. Sato, C. Jakubeit, T. Latka, O. Razskazovskaya, H. Fattahi, M. Jobst, W. Schweinberger, V. Shirvanyan, V. S. Yakovlev, R. Kienberger, K. Yabana, N. Karpowicz, M. Schultze, und F. Krausz, “Attosecond nonlinear polarization and light-matter energy transfer in solids,” *Nature* **534**, 86–90 (2016). 1, 2.6, 5.2, 7.7
- [33] F. Langer, C. P. Schmid, S. Schlauderer, M. Gmitra, J. Fabian, P. Nagler, C. Schüller, T. Korn, P. G. Hawkins, J. T. Steiner, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, und R. Huber, “Lightwave valleytronics in a monolayer of tungsten diselenide,” *Nature* **557**, 76–80 (2018). 1

-
- [34] J. Reimann, S. Schlauderer, C. P. Schmid, F. Langer, S. Baierl, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, C. Lange, J. Gudde, U. Hofer, and R. Huber, “Subcycle observation of lightwave-driven dirac currents in a topological surface band,” *Nature* **562**, 396–400 (2018). 1
- [35] T. Winkler, L. Haahr-Lillevang, C. Sarpe, B. Zielinski, N. Gotte, A. Senftleben, P. Balling, and T. Baumert, “Laser amplification in excited dielectrics,” *Nature Physics* **14**, 74–79 (2018). 1
- [36] M. Schultze, K. Ramasesha, C. D. Pemmaraju, S. A. Sato, D. Whitmore, A. Gandman, J. S. Prell, L. J. Borja, D. Prendergast, K. Yabana, D. M. Neumark, and S. R. Leone, “Attosecond band-gap dynamics in silicon,” *Science* **346**, 1348–1352 (2014). 1, 7
- [37] M. Zürch, H. T. Chang, L. J. Borja, P. M. Kraus, S. K. Cushing, A. Gandman, C. J. Kaplan, M. H. Oh, J. S. Prell, D. Prendergast, C. D. Pemmaraju, D. M. Neumark, and S. R. Leone, “Direct and simultaneous observation of ultrafast electron and hole dynamics in germanium,” *Nature Communications* **8**, 15734 (2017). 1, 7, 7.7
- [38] C. Manzoni, O. D. Mücke, G. Cirimi, S. B. Fang, J. Moses, S. W. Huang, K. H. Hong, G. Cerullo, and F. X. Kärtner, “Coherent pulse synthesis: towards sub-cycle optical waveforms,” *Laser & Photonics Reviews* **9**, 129–171 (2015). 1, 1
- [39] T. Kobayashi und Y. Kida, “Ultrafast spectroscopy with sub-10 fs deep-ultraviolet pulses,” *Physical Chemistry Chemical Physics* **14**, 6200–6210 (2012). 1, 1, 5, 6.5
- [40] T. Kobayashi, A. Yabushita, und Y. Kida, “Development of sub 10 fs visible-NIR, UV, and DUV pulses and their applications to ultrafast spectroscopy,” *Photonics* **3**, 64 (2016). 1
- [41] R. Weigand und H. M. Crespo, “Generation of high-energy broadband femtosecond deep-ultraviolet pulses by highly nondegenerate noncollinear four-wave mixing in a thin transparent solid,” *Applied Physics B-Lasers and Optics* **111**, 559–565 (2013). 1
- [42] C. G. Durfee, S. Backus, H. C. Kapteyn, und M. M. Murnane, “Intense 8-fs pulse generation in the deep ultraviolet,” *Optics Letters* **24**, 697–699 (1999). 1, 5
- [43] T. Fuji, T. Horio, und T. Suzuki, “Generation of 12 fs deep-ultraviolet pulses by four-wave mixing through filamentation in neon gas,” *Optics Letters* **32**, 2481–2483 (2007). 1, 5
- [44] P. Baum, S. Lochbrunner, und E. Riedle, “Tunable sub-10-fs ultraviolet pulses generated by achromatic frequency doubling,” *Optics Letters* **29**, 1686–1688 (2004). 1, 5

-
- [45] S. Adachi und T. Suzuki, “Self-compression of femtosecond deep-ultraviolet pulses by filamentation in krypton,” *Optics Letters* **42**, 1883–1886 (2017). 1
- [46] J. Reislöhner, C. Leithold, und A. N. Pfeiffer, “Harmonic concatenation of 1.5 fs pulses in the deep ultraviolet,” *ACS Photonics* **6**, 1351–1355 (2019). 1, 1, 4, 20, 6, 36, 37, 38
- [47] M. Galli, V. Wanie, D. P. Lopes, E. P. Mansson, A. Trabattoni, L. Colaizzi, K. Saraswathula, A. Cartella, F. Frassetto, L. Poletto, F. Legare, S. Stagira, M. Nisoli, R. M. Vazquez, R. Osellame, und F. Calegari, “Generation of deep ultraviolet sub-2-fs pulses,” *Optics Letters* **44**, 1308–1311 (2019). 1, 1
- [48] F. Reiter, U. Graf, M. Schultze, W. Schweinberger, H. Schröder, N. Karpowicz, A. M. Azzeer, R. Kienberger, F. Krausz, und E. Goulielmakis, “Generation of sub-3 fs pulses in the deep ultraviolet,” *Optics Letters* **35**, 2248–2250 (2010). 1, 5
- [49] S. H. Chen, M. J. Bell, A. R. Beck, H. Mashiko, M. X. Wu, A. N. Pfeiffer, M. B. Gaarde, D. M. Neumark, S. R. Leone, und K. J. Schafer, “Light-induced states in attosecond transient absorption spectra of laser-dressed helium,” *Physical Review A* **86**, 063408 (2012). 1, 7
- [50] J. C. Travers, T. F. Grigороva, C. Brahms, und F. Belli, “High-energy pulse self-compression and ultraviolet generation through soliton dynamics in hollow capillary fibres,” *Nature Photonics* **13**, 547–554 (2019). 1, 4.5
- [51] Y. Kida, J. Liu, T. Teramoto, und T. Kobayashi, “Sub-10 fs deep-ultraviolet pulses generated by chirped-pulse four-wave mixing,” *Optics Letters* **35**, 1807–1809 (2010). 1
- [52] B. Xue, A. Yabushita, und T. Kobayashi, “Ultrafast dynamics of uracil and thymine studied using a sub-10 fs deep ultraviolet laser,” *Physical Chemistry Chemical Physics* **18**, 17044–17053 (2016). 1
- [53] A. P. Pati, I. S. Wahyutama, und A. N. Pfeiffer, “Subcycle-resolved probe retardation in strong-field pumped dielectrics,” *Nature Communications* **6**, 7746 (2015). 1, 4
- [54] J. Reislöhner und A. N. Pfeiffer, “The role of delay times in subcycle-resolved probe retardation measurements,” *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **76**, 223–230 (2016). 1, 4
- [55] A. P. Pati, J. Reislöhner, C. G. Leithold, und A. N. Pfeiffer, “Effects of the groove-envelope phase in self-diffraction,” *Journal of Modern Optics* **64**, 1108–1114 (2017). 1, 3.3, 4, 4.1, 9, 54, 9, 55, 9
- [56] H. Ibach und H. Lüth, *Solid-State Physics: An Introduction to Principles of Materials Science* (Springer-Verlag, Berlin, 2009), 4th ed. 2.1

-
- [57] B. Brixner, “Refractive-index interpolation for fused silica,” *Journal of the Optical Society of America* **57**, 674–676 (1967). 2.1
- [58] I. H. Malitson, “Interspecimen comparison of refractive index of fused silica,” *Journal of the Optical Society of America* **55**, 1205–1209 (1965). 2.1, 3.4, 50
- [59] H. R. Philipp, *Silicon Dioxide (SiO₂) (Glass)* (Academic Press, Burlington, 1997), pp. 749–763. 2.1, 3.4
- [60] H. R. Philipp, *Silicon Dioxide (SiO₂), Type α (Crystalline)* (Academic Press, Burlington, 1997), pp. 719–747. 2.1, 3.4
- [61] P. Butcher und D. Cotter, *The Elements of Nonlinear Optics*, Cambridge Studies in Modern Optics (Cambridge University Press, Cambridge, 1990). 2.1, 2.5, 2.5
- [62] J. C. Diels und W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena: Fundamentals, Techniques, and Applications on a Femtosecond Time Scale* (Academic Press, Amsterdam, 2006), 2nd ed. 2.2
- [63] W. Demtröder, *Experimentalphysik 2. Elektrizität und Optik*. (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 1995), 1st ed. 2.2
- [64] Z. Chang, *Fundamentals of Attosecond Optics* (CRC Press, Boca Raton, 2011). 2.3
- [65] M. J. Dodge, “Refractive properties of magnesium fluoride,” *Applied Optics* **23**, 1980–1985 (1984). 2.3, 3.4
- [66] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics*, vol. 1 (Academic Press, London, 2008), 3rd ed. 2.4, 2.5, 2.7, 7.7, 8
- [67] A. Weiner, *Ultrafast Optics* (Wiley, Hoboken, New Jersey, 2009). 2.4
- [68] A. Couairon, E. Brambilla, T. Corti, D. Majus, O. D. Ramirez-Gongora, und M. Kolesik, “Practitioner’s guide to laser pulse propagation models and simulation,” *European Physical Journal-Special Topics* **199**, 5–76 (2011). 2.4, 2.4, 2.5, 2.6, 2.7
- [69] M. Geissler, G. Tempea, A. Scrinzi, M. Schnurer, F. Krausz, und T. Brabec, “Light propagation in field-ionizing media: Extreme nonlinear optics,” *Physical Review Letters* **83**, 2930–2933 (1999). 2.4
- [70] M. Kolesik und J. V. Moloney, “Nonlinear optical pulse propagation simulation: From maxwell’s to unidirectional equations,” *Physical Review E* **70**, 036604 (2004). 2.4, 2.4, 2.6
- [71] J. F. Ward und G. H. C. New, “Optical third harmonic generation in gases by a focused laser beam,” *Physical Review* **185**, 57–72 (1969). 2.4

-
- [72] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. Van Stryland, und M. Sheik-Bahae, “Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and n_2 in wide bandgap solids,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **32**, 1324–1333 (1996). 2.5, 3.4, 5.4
- [73] H. J. Hagemann, W. Gudat, und C. Kunz, “Optical-constants from far infrared to X-ray region - Mg, Al, Cu, Ag, Au, Bi, C, and Al_2O_3 ,” *Journal of the Optical Society of America* **65**, 742–744 (1975). 4, 3.4
- [74] I. H. Malitson, “Refraction and dispersion of synthetic sapphire,” *Journal of the Optical Society of America* **52**, 1377–1379 (1962). 4, 3.4
- [75] B. L. Henke, E. M. Gullikson, und J. C. Davis, “X-ray interactions - photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $E=50\text{--}30,000$ eV, $Z=1\text{--}92$,” *Atomic Data and Nuclear Data Tables* **54**, 181–342 (1993). 4, 3.4
- [76] M. Sheik-Bahae, A. A. Said, T. H. Wei, D. J. Hagan, und E. W. Vanstryland, “Sensitive measurement of optical nonlinearities using a single beam,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **26**, 760–769 (1990). 2.5
- [77] I. Biaggio und M. S. Fleischman, “Noncollinear third-harmonic maker fringes for the determination of third-order nonlinear optical susceptibilities,” *Optics Letters* **38**, 4461–4464 (2013). 2.5
- [78] R. Adair, L. L. Chase, und S. A. Payne, “Nonlinear refractive-index measurements of glasses using 3-wave frequency mixing,” *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics* **4**, 875–881 (1987). 2.5
- [79] D. Milam, M. J. Weber, und A. J. Glass, “Nonlinear refractive-index of fluoride-crystals,” *Applied Physics Letters* **31**, 822–825 (1977). 2.5
- [80] M. X. Wu, S. Ghimire, D. A. Reis, K. J. Schafer, und M. B. Gaarde, “High-harmonic generation from bloch electrons in solids,” *Physical Review A* **91**, 043839 (2015). 2.6
- [81] T. Higuchi, M. I. Stockman, und P. Hommelhoff, “Strong-field perspective on high-harmonic radiation from bulk solids,” *Physical Review Letters* **113**, 213901 (2014). 2.6
- [82] S. Y. Kruchinin, M. Korbman, und V. S. Yakovlev, “Theory of strong-field injection and control of photocurrent in dielectrics and wide band gap semiconductors,” *Physical Review B* **87**, 115201 (2013). 2.6
- [83] T. T. Luu und H. J. Wörner, “High-order harmonic generation in solids: A unifying approach,” *Physical Review B* **94**, 115164 (2016). 2.6

-
- [84] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, K. S. W., und R. Huber, “Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical bloch oscillations,” *Nature Photonics* **8**, 119–123 (2014). 2.6
- [85] G. Wachter, C. Lemell, J. Burgdörfer, S. A. Sato, X.-M. Tong, und K. Yabana, “Ab initio simulation of electrical currents induced by ultrafast laser excitation of dielectric materials,” *Physical Review Letters* **113**, 087401 (2014). 2.6
- [86] N. Tancogne-Dejean, O. D. Mücke, F. X. Kärtner, und A. Rubio, “Impact of the electronic band structure in high-harmonic generation spectra of solids,” *Physical Review Letters* **118**, 087403 (2017). 2.6
- [87] A. N. Pfeiffer, “Iteration of semiconductor bloch equations for ultrashort laser pulse propagation,” *Journal of Physics B-Atomic Molecular and Optical Physics* (submitted). 2.6
- [88] P. Drude, “Zur elektronentheorie der metalle,” *Annalen der Physik* **306**, 566–613 (1900). 2.6
- [89] M. Schultze, E. M. Bothschafter, A. Sommer, S. Holzner, W. Schweinberger, M. Fiess, M. Hofstetter, R. Kienberger, V. Apalkov, V. S. Yakovlev, M. I. Stockman, und F. Krausz, “Controlling dielectrics with the electric field of light,” *Nature* **493**, 75–78 (2013). 2.6
- [90] P. A. Zhokhov und A. M. Zheltikov, “Field-cycle-resolved photoionization in solids,” *Physical Review Letters* **113**, 133903 (2014). 2.6, 7.7
- [91] C. R. McDonald, A. Ben Taher, und T. Brabec, “Strong optical field ionisation of solids,” *Journal of Optics* **19**, 114005 (2017). 2.6, 7.7
- [92] I. Babushkin, C. Brée, C. M. Dietrich, A. Demircan, U. Morgner, und A. Husakou, “Terahertz and higher order brunel harmonics: from tunnel to multiphoton ionization regime in tailored fields,” *Journal of Modern Optics* **64**, 1078–1087 (2017). 2.6
- [93] A. H. Chin, J. M. Bakker, und J. Kono, “Ultrafast electroabsorption at the transition between classical and quantum response,” *Physical Review Letters* **85**, 3293–3296 (2000). 2.6
- [94] E. Wolf und M. Born, *Principles of Optics: Electromagnetic Theory of Propagation, Interference and Diffraction of Light* (Cambridge University Press, Cambridge, 1999), 7th ed. 2.7
- [95] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy 2: Experimental Techniques*, vol. 1 (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2015), 5th ed. 2.8

-
- [96] D. J. Kane und R. Trebino, “Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating,” *IEEE Journal of Quantum Electronics* **29**, 571–579 (1993). 2.8, 2.8, 5
- [97] R. Trebino, *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses* (Springer-Verlag, Boston, 2000). 2.8, 2.8, 2.8
- [98] L. Lepetit, G. Cheriaux, und M. Joffre, “Linear techniques of phase measurement by femtosecond spectral interferometry for applications in spectroscopy,” *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics* **12**, 2467–2474 (1995). 2.8, 4.2, 5
- [99] C. Iaconis und I. A. Walmsley, “Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses,” *Optics Letters* **23**, 792–794 (1998). 2.8, 5
- [100] M. Miranda, C. L. Arnold, T. Fordell, F. Silva, B. Alonso, R. Weigand, A. L’Huillier, und H. Crespo, “Characterization of broadband few-cycle laser pulses with the d-scan technique,” *Optics Express* **20**, 18732–18743 (2012). 2.8
- [101] T. Tsang, M. A. Krumbugel, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, und R. Trebino, “Frequency-resolved optical-gating measurements of ultrashort pulses using surface third-harmonic generation,” *Optics Letters* **21**, 1381–1383 (1996). 2.8
- [102] D. Strickland und G. Mourou, “Compression of amplified chirped optical pulses,” *Optics Communications* **56**, 219–221 (1985). 3.1
- [103] M. Nisoli, S. DeSilvestri, O. Svelto, R. Szipocs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania, und F. Krausz, “Compression of high-energy laser pulses below 5 fs,” *Optics Letters* **22**, 522–524 (1997). 3.1
- [104] T. I. Quickenden und J. A. Irvin, “The ultraviolet-absorption spectrum of liquid water,” *Journal of Chemical Physics* **72**, 4416–4428 (1980). 3.3
- [105] M. Hofmann, J. Hyyti, S. Birkholz, M. Bock, S. K. Das, R. Grunwald, M. Hoffmann, T. Nagy, A. Demircan, M. Jupe, D. Ristau, U. Morgner, C. Brée, M. Woerner, T. Elsaesser, und G. Steinmeyer, “Noninstantaneous polarization dynamics in dielectric media,” *Optica* **2**, 151–157 (2015). 3.3
- [106] P. Laporte, J. L. Subtil, M. Courbon, M. Bon, und L. Vincent, “Vacuum ultraviolet refractive-index of LiF and MgF_2 in the temperature-range 80-300-K,” *Journal of the Optical Society of America* **73**, 1062–1069 (1983). 3.4
- [107] D. M. Roessler und D. R. Huffman, *Magnesium Oxide (MgO)* (Academic Press, Burlington, 1997), pp. 919–955. 3.4
- [108] H. R. Phillip und E. A. Taft, “Kramers-kronig analysis of reflectance data for diamond,” *Physical Review* **136**, 1445 (1964). 3.4, 7.3, 7.7

-
- [109] F. Peter, “Über Brechungsindizes und Absorptionskonstanten des Diamanten zwischen 644 und 226 $m\mu$,” *Zeitschrift für Physik* **15**, 358–368 (1923). 3.4, 7.7
- [110] V. Dimitrov und S. Sakka, “Linear and nonlinear optical properties of simple oxides. 2,” *Journal of Applied Physics* **79**, 1741–1745 (1996). 3.4
- [111] B. J. M. Hausmann, I. Bulu, V. Venkataraman, P. Deotare, und M. Loncar, “Diamond nonlinear photonics,” *Nature Photonics* **8**, 369–374 (2014). 3.4, 7.4, 7.7
- [112] H. Crespo, J. T. Mendonca, und A. Dos Santos, “Cascaded highly nondegenerate four-wave-mixing phenomenon in transparent isotropic condensed media,” *Optics Letters* **25**, 829–831 (2000). 4.1, 9
- [113] J. B. Bertrand, H. J. Wörner, H. C. Bandulet, É. Bisson, M. Spanner, J. C. Kieffer, D. M. Villeneuve, und P. B. Corkum, “Ultrahigh-order wave mixing in noncollinear high harmonic generation,” *Physical Review Letters* **106**, 023001 (2011). 4.1
- [114] D. Stoker, M. F. Becker, und J. W. Keto, “Optical third-harmonic generation using ultrashort laser pulses,” *Physical Review A* **71**, 061802 (2005). 4.2
- [115] P. D. Maker, C. M. Savage, R. W. Terhune, und M. Nisenoff, “Effects of dispersion and focusing on production of optical harmonics,” *Physical Review Letters* **8**, 21–23 (1962). 4.2
- [116] C. M. Heyl, J. Gudde, U. Hofer, und A. L’Huillier, “Spectrally resolved maker fringes in high-order harmonic generation,” *Physical Review Letters* **107**, 033903 (2011). 4.2
- [117] J. P. Geindre, P. Audebert, A. Rousse, F. Fallières, J. C. Gauthier, A. Mysyrowicz, A. Dossantos, und G. Hamoniaux, “Frequency-domain interferometer for measuring the phase and amplitude of a femtosecond pulse probing a laser-produced plasma,” *Optics Letters* **19**, 1997–1999 (1994). 4.2
- [118] M. J. Allen, V. C. Tung, und R. B. Kaner, “Honeycomb carbon: A review of graphene,” *Chemical Reviews* **110**, 132–145 (2010). 4.3
- [119] J. F. Zhu, S. Yan, N. X. Feng, L. F. Ye, J. Y. Ou, und Q. H. Liu, “Near unity ultraviolet absorption in graphene without patterning,” *Applied Physics Letters* **112**, 153106 (2018). 4.3
- [120] S. Y. Hong, J. I. Dadap, N. Petrone, P. C. Yeh, J. Hone, und R. M. Osgood, “Optical third-harmonic generation in graphene,” *Physical Review X* **3**, 021014 (2013). 4.3, 4.3, 4.3, 7.4
- [121] N. Yoshikawa, T. Tamaya, und K. Tanaka, “High-harmonic generation in graphene enhanced by elliptically polarized light excitation,” *Science* **356**, 736 (2017). 4.3

-
- [122] G. Soavi, G. Wang, H. Rostami, D. G. Purdie, D. De Fazio, T. Ma, B. R. Luo, J. J. Wang, A. K. Ott, D. Yoon, S. A. Bouelle, J. E. Muench, I. Goykhman, S. Dal Conte, M. Celebrano, A. Tomadin, M. Polini, G. Cerullo, and A. C. Ferrari, “Broadband, electrically tunable third-harmonic generation in graphene,” *Nature Nanotechnology* **13**, 583–588 (2018). 4.3
- [123] Z. Y. Chen und R. Qin, “Circularly polarized extreme ultraviolet high harmonic generation in graphene,” *Optics Express* **27**, 3761–3770 (2019). 4.3
- [124] G. Galinis, J. Strucka, J. C. T. Barnard, A. Braun, R. A. Smith, and J. P. Marangos, “Micrometer-thickness liquid sheet jets flowing in vacuum,” *Review of Scientific Instruments* **88**, 083117 (2017). 4.4, 8
- [125] A. D. DiChiara, E. Sistrunk, T. A. Miller, P. Agostini, und L. F. DiMauro, “An investigation of harmonic generation in liquid media with a mid-infrared laser,” *Optics Express* **17**, 20959–20965 (2009). 4.4
- [126] T. T. Luu, Z. Yin, A. Jain, T. Gaumnitz, Y. Pertot, J. Ma, und H. J. Wörner, “Extreme-ultraviolet high-harmonic generation in liquids,” *Nature Communications* **9**, 3723 (2018). 4.4
- [127] S. Berg, E. A. Adelizzi, und S. M. Troian, “Experimental study of entrainment and drainage flows in microscale soap films,” *Langmuir* **21**, 3867–3876 (2005). 4.4, 4.4
- [128] B. E. A. Saleh und M. C. Teich, *Fundamentals of Photonics* (Wiley, New York, 1991), 2nd ed. 4.4
- [129] J. Reislöhner, C. Leithold, und A. N. Pfeiffer, “Characterization of weak deep ultraviolet pulses using cross-phase modulation scans,” *Optics Letters* **44**, 1809–1812 (2019). 5, 27, 31, 32, 33, 34
- [130] R. Borrego-Varillas, L. Ganzer, G. Cerullo, und C. Manzoni, “Ultraviolet transient absorption spectrometer with sub-20-fs time resolution,” *Applied Sciences* **8**, 989 (2018). 5
- [131] A. Stolow, A. E. Bragg, und D. M. Neumark, “Femtosecond time-resolved photoelectron spectroscopy,” *Chemical Reviews* **104**, 1719–1757 (2004). 5
- [132] V. I. Prokhorenko, A. Picchiotti, S. Maneshi, und R. J. D. Miller, “Broadband electronic two-dimensional spectroscopy in the deep UV,” *Ultrafast Phenomena XIX* **162**, 432–435 (2015). 5
- [133] T. Nagy und P. Simon, “Generation of 200- μ J, sub-25-fs deep-UV pulses using a noble-gas-filled hollow fiber,” *Optics Letters* **34**, 2300–2302 (2009). 5

-
- [134] S. A. Trushin, K. Kosma, W. Fuss, und W. E. Schmid, “Sub-10-fs supercontinuum radiation generated by filamentation of few-cycle 800 nm pulses in argon,” *Optics Letters* **32**, 2432–2434 (2007). 5
- [135] S. Linden, J. Kuhl, und H. Giessen, “Amplitude and phase characterization of weak blue ultrashort pulses by downconversion,” *Optics Letters* **24**, 569–571 (1999). 5
- [136] A. Ermolov, H. Valtna-Lukner, J. Travers, und P. S. Russell, “Characterization of few-fs deep-UV dispersive waves by ultra-broadband transient-grating XFROG,” *Optics Letters* **41**, 5535–5538 (2016). 5
- [137] C. Leithold, J. Reislöhner, H. Gies, und A. N. Pfeiffer, “Characterization of two ultrashort laser pulses using interferometric imaging of self-diffraction,” *Optics Letters* **42**, 5246–5249 (2017). 5, 5.2, 5.2, 9
- [138] C. Leithold, J. Reislöhner, J. D. Aguilon, und A. N. Pfeiffer, “Characterization of over-octave-spanning laser pulses using interferometric imaging of self-diffraction,” *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics* **35**, 1928–1938 (2018). 5, 5.2, 5.2, 9
- [139] A. Polman, M. Kociak, und F. J. G. de Abajo, “Electron-beam spectroscopy for nanophotonics,” *Nature Materials* **18**, 1158–1171 (2019). 7
- [140] B. J. Garrison und N. Winograd, “Ion-beam spectroscopy of solids and surfaces,” *Science* **216**, 805–812 (1982). 7
- [141] T. Pfeifer, M. J. Abel, P. M. Nagel, A. Jullien, Z. H. Loh, M. J. Bell, D. M. Neumark, und S. R. Leone, “Time-resolved spectroscopy of attosecond quantum dynamics,” *Chemical Physics Letters* **463**, 11–24 (2008). 7
- [142] Z. H. Loh, M. Khalil, R. E. Correa, R. Santra, C. Buth, und S. R. Leone, “Quantum state-resolved probing of strong-field-ionized xenon atoms using femtosecond high-order harmonic transient absorption spectroscopy,” *Physical Review Letters* **98**, 143601 (2007). 7
- [143] A. R. Beck, D. M. Neumark, und S. R. Leone, “Probing ultrafast dynamics with attosecond transient absorption,” *Chemical Physics Letters* **624**, 119–130 (2015). 7.1
- [144] L. Burakovsky, M. J. Cawkwell, D. L. Preston, D. Errandonea, und S. I. Simak, “Recent ab initio phase diagram studies: Iridium,” *J. Phys.: Conf. Ser.* **950**, 042021 (2017). 7.4
- [145] H. L. Qian, Y. Z. Xiao, und Z. W. Liu, “Giant kerr response of ultrathin gold films from quantum size effect,” *Nature Communications* **7**, 13153 (2016). 7.4
- [146] M. Breusing, C. Ropers, und T. Elsaesser, “Ultrafast carrier dynamics in graphite,” *Physical Review Letters* **102**, 086809 (2009). 7.7

-
- [147] V. V. Temnov, K. Sokolowski-Tinten, P. Zhou, A. El-Khamhawy, und D. von der Linde, “Multiphoton ionization in dielectrics: Comparison of circular and linear polarization,” *Physical Review Letters* **97**, 237403 (2006). 7.7, 9
- [148] W. Demtröder, *Laser Spectroscopy. Basic Principles*, vol. 1 (Springer-Verlag, Berlin Heidelberg, 2008), 4th ed. 9
- [149] J. Mooney und P. Kambhampati, “Get the basics right: Jacobian conversion of wavelength and energy scales for quantitative analysis of emission spectra,” *Journal of Physical Chemistry Letters* **4**, 3316–3318 (2013). 9
- [150] J. S. Liu, H. Schroeder, S. L. Chin, R. X. Li, und Z. Z. Xu, “Ultrafast control of multiple filamentation by ultrafast laser pulses,” *Applied Physics Letters* **87**, 161105 (2005). 9
- [151] P. P. Rajeev, M. Gertsvolf, E. Simova, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner, und P. B. Corkum, “Memory in nonlinear ionization of transparent solids,” *Physical Review Letters* **97**, 253001 (2006). 9
- [152] R. Buschlinger, S. Nolte, und U. Peschel, “Self-organized pattern formation in laser-induced multiphoton ionization,” *Physical Review B* **89**, 184306 (2014). 9
- [153] S. Smolorz und F. Wise, “Femtosecond two-beam coupling energy transfer from raman and electronic nonlinearities,” *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics* **17**, 1636–1644 (2000). 9

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die durch ihre Unterstützung zum Gelingen dieser Doktorarbeit beigetragen haben.

Besonders danke ich Adrian Pfeiffer, der mir die Anfertigung dieser Arbeit am Institut für Optik und Quantenelektronik in Jena ermöglicht hat. Ich danke Ihm für die Unterstützung meiner Promotion durch zahlreiche Ideen und Ratschläge.

Ich danke Christoph Leithold für die vielen wissenschaftlichen Diskussionen und die gemeinsame Zeit im Büro, als Kollege sowie als Freund.

Außerdem danke ich Thomas Weber für die Konstruktion von Bauteilen, die Wartung des Lasersystems und die guten Ratschläge bei technischen Herausforderungen.

An dieser Stelle möchte ich auch den Mitarbeitern der elektronischen- und mechanischen Werkstätten für die zuverlässige Anfertigung von Spezialkomponenten und dem Sekretariat für die freundliche Zusammenarbeit rund um die Verwaltungsaufgaben danken.

Danke an alle Kollegen am Institut für die großartige Zusammenarbeit.

Abschließend gilt meine große Dankbarkeit meiner Familie und meinen Freunden, die mir stets Rückhalt gegeben haben.

Veröffentlichungen

J. Reislöhner, C. Leithold, und A. N. Pfeiffer, „Harmonic concatenation of 1.5 fs pulses in the deep ultraviolet,“ *ACS Photonics* **6**, 1351-1355 (2019).

J. Reislöhner, C. Leithold, und A. N. Pfeiffer, „Characterization of weak deep ultraviolet pulses using cross-phase modulation scans,“ *Optics Letters* **44**, 1809-1812 (2019).

C. Leithold, **J. Reislöhner**, J. D. Aguilon, und A. N. Pfeiffer, „Characterization of over-octave-spanning laser pulses using interferometric imaging of self-diffraction,“ *Journal of the Optical Society of America B-Optical Physics* **35**, 1928-1938 (2018).

G. A. Becker, S. Tietze, S. Keppler, **J. Reislöhner**, J. H. Bin, L. Bock, F. E. Brack, J. Hein, M. Hellwing, P. Hiltz, M. Hornung, A. Kessler, S. D. Kraft, S. Kuschel, H. Liebetrau, W. Ma, J. Polz, H. P. Schlenvoigt, F. Schorcht, M. B. Schwab, A. Seidel, K. Zeil, U. Schramm, M. Zepf, J. Schreiber, S. Rykovanov, und M. C. Kaluza, „Ring-like spatial distribution of laser accelerated protons in the ultra-high-contrast TNSA-regime,“ *Plasma Physics and Controlled Fusion* **60**, 055010 (2018).

C. Leithold, **J. Reislöhner**, H. Gies, und A. N. Pfeiffer, „Characterization of two ultrashort laser pulses using interferometric imaging of self-diffraction,“ *Optics Letters* **42**, 5246-5249 (2017).

A. P. Pati, **J. Reislöhner**, C. G. Leithold, und A. N. Pfeiffer, „Effects of the groove- envelope phase in self-diffraction,“ *Journal of Modern Optics* **64**, 1108-1114 (2017).

J. Reislöhner, und A. N. Pfeiffer, „The role of delay times in subcycle-resolved probe retardation measurements,“ *Physica E: Low-dimensional Systems and Nanostructures* **76**, 223-230 (2016).

M. Hornung, G. A. Becker, A. Seidel, **J. Reislöhner**, H. Liebetrau, L. Bock, S. Keppler, A. Kessler, M. Zepf, J. Hein, und M. C. Kaluza, „Generation of 25-TW femtosecond laser pulses at 515 nm with extremely high temporal contrast,“ *Applied Sciences* **5**, 1970-1979 (2015).

Konferenzbeiträge

NOA²³ Spring School, Jena 2020

Transient Absorption and Dispersion Spectroscopy using Ultrashort Deep-UV Pulses
(Poster)

CLEO/Europe - EQEC, München 2019

Harmonic concatenation of 1.5fs Pulses in the deep ultraviolet (Vortrag)

QUTIF²⁴ Annual Meeting, Oldenburg 2019

Characterization of weak ultrashort deep UV pulses using cross-phase modulation scans
(Vortrag)

XXI International Conference on Ultrafast Phenomena, Hamburg 2018

Generation of short deep UV pulses in transparent solids with noncollinear beam geometry
(Poster)

QUTIF Annual Meeting, Hamburg 2018

Noncollinear UV pulse generation (Poster)

DoKDoK, Suhl 2017

High-harmonic generation in solids using optical bloch equations (Vortrag)

DPG-Frühjahrstagung, Mainz 2017

Attosecond imaging spectroscopy for nonlinear delay measurements (Vortrag)

DoKDoK, Oppurg 2016

Effects of the groove-envelope phase in self-diffraction (Poster)

QUTIF Annual Meeting, Jena 2016

Spatio-temporal tailoring of light fields for sub-cycle resolved measurements of strong-field effects (Poster)

DPG-Frühjahrstagung, Hannover 2016

Subcycle-dependent self-diffraction in transparent solids (Vortrag)

²³NOA ist die Bezeichnung des von der DFG geförderten Sonderforschungsbereiches 1375.

²⁴QUTIF ist die Projektbezeichnung des DFG-Schwerpunkts 1840.

Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Die Auswahl der Schwerpunkte und die in dieser Arbeit beschriebene Forschungsarbeit fand in enger Zusammenarbeit mit meinem Betreuer Dr. Adrian N. Pfeiffer statt.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen und Gewissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Ort, Datum

Unterschrift des Verfassers