

**Effiziente Erzeugung von Harmonischen mit einem
KrF-Kurzpulslasersystem und Untersuchungen zur parametrischen
Verstärkung im VUV und XUV**

Von der Fakultät Mathematik und Physik der Universität Hannover
zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften
– Dr. rer. nat. –

genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys. Carsten Reinhardt
geboren am 08.03.1972 in Gronau/Leine

2005

Referent : Prof. Dr. B. Wellegehausen
Korreferent: Prof. Dr. Boris Chichkov
Tag der Promotion: 09.05.2005

Abstract

Carsten Reinhardt

Effiziente Erzeugung von Harmonischen mit einem KrF- Kurzpulslasersystem und Untersuchungen zur parametrischen Verstärkung im VUV und XUV

In dieser Arbeit werden die nahresonante Erzeugung von Harmonischen im XUV und die parametrische Differenzfrequenzmischung im VUV mit einem KrF-Kurzpulslaser untersucht. Es werden Experimente zur effizienten Erzeugung leistungsstarker Strahlung bei 82.8 nm durch Frequenzverdreifung vorgestellt. Als nichtlineares Medium wurde Argon wegen seiner resonant überhöhten Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ gewählt. Die hohe Nichtlinearität und die Phasen Anpassungseigenschaften konnten durch den Einfluss des AC-Stark-shift erklärt werden. Es konnte eine phasenangepasste Erzeugung der dritten Harmonischen demonstriert werden. Für eine Pumpenergie von 6 mJ ergab sich eine Ausgangsenergie von $150 \text{ }\mu\text{J}$. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 2.5% , welches die bislang höchste im XUV-Bereich ist.

Die Erzeugung der fünften Harmonischen bei 49.7 nm wurde in einfach ionisiertem Argon untersucht. Die Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität $\chi^{(5)}$ erfolgte störungstheoretisch über Feynman-Diagramme. In den Experimenten konnte eine dispersive Phasen Anpassung beobachtet und eine Ausgangsenergie von $15 \text{ }\mu\text{J}$ gemessen werden. Dies entspricht einer Effizienz von 0.25% , und ist die zur Zeit höchste für die Konversion der Strahlung eines kommerziellen Lasersystems in den Spektralbereich um 50 nm .

Um Beschränkungen der Effizienz durch eine Reabsorption der erzeugten Strahlung zu überwinden, werden weiterhin Möglichkeiten der parametrischen Verstärkung im VUV und XUV betrachtet. Experimentell wurde dazu die nahresonante Zweiphotonenanregung von Xenon als Modellsystem untersucht. Vierwellendifferenzfrequenzmischung führt zu selbststartenden Emissionen von Idler- (ω_i) und Signal- (ω_s) Feldern bei 760 nm und 149 nm . Erstmals konnte parametrische Verstärkung für das Signalfeld im VUV demonstriert werden. Verstärkungskoeffizienten bis zu 5.4 cm^{-1} und makroskopische Verstärkungen bis 320 wurden gemessen. Die Verstärkungseigenschaften im Wellenlängenbereich zwischen 150 nm und 165 nm wurden untersucht, indem zusätzlich verschiedene Idlerfelder eingestrahlt wurden. Durch ein einfaches Generator-Verstärker-Modell konnten Möglichkeiten für die parametrische Verstärkung von externen Quellen gezeigt

werden.

Zusätzlich zu dem selbststartenden Prozess konnte ein weiteres Signalfeld bei 106 *nm* beobachtet werden, das aus dem Summenfrequenzmischprozess $\omega_s^{sum} = 2\omega_p + \omega_i$ stammt. Dies zeigt die starke Prozesskopplung und einen Verstärkungstransfer zwischen beiden Prozessen.

Basierend auf den Ergebnissen dieser Arbeit wurden weitere Schemata zur effizienten Erzeugung von Harmonischen und parametrische Verstärkung im XUV mit der Möglichkeit des Verstärkungstransfers vorgeschlagen.

Schlagworte zum Inhalt

nichtlineare Optik, Erzeugung von Harmonischen, parametrische Verstärkung, KrF Laser

Abstract

Carsten Reinhardt

Efficient generation of harmonics from a short-pulse KrF laser and investigations on parametric amplification in the VUV and XUV

In this thesis investigations on near resonant harmonic generation in the XUV and difference frequency mixing in the VUV have been performed using a short-pulse KrF laser system. Experiments on efficient generation of powerful radiation at 82.8 nm by frequency tripling are presented. Argon has been selected as the nonlinear medium due to a resonantly enhanced third-order susceptibility $\chi^{(3)}$. The ac-stark-shift has been taken into account to explain the large nonlinear response and the phase matching properties. Phase matched generation of the third harmonic has been demonstrated. A highest output energy of 150 μJ has been obtained for a pump energy of 6 mJ. This corresponds to a conversion efficiency of 2.5%, which is up to now the highest in the XUV range.

The generation of the fifth harmonic at 49.7 nm has been investigated in singly ionized argon. Calculation of the nonlinear susceptibility $\chi^{(5)}$ have been performed by perturbation theory using a pictorial method by means of Feynman-graphs. Phase matched generation has been observed and an output energy of 15 μJ has been measured. The corresponding efficiency of 0.25% is the highest measured for the conversion of the radiation of a commercial laser system into the spectral range around 50 nm at this time.

To overcome limitations of the efficiency by reabsorption of generated radiation the possibility of parametric amplification in the VUV and XUV is considered. Experimentally, a near two-photon resonant model system in xenon is investigated. Four-wave difference frequency mixing leads to self starting emission of idler ω_i and signal ω_s fields at 760 nm and 149 nm. Parametric amplification for the signal field in the VUV is demonstrated for the first time. Amplification coefficients up to 5.4 cm^{-1} and macroscopic amplifications of up to 320 have been measured. The amplification properties in the wavelength range between 150 nm and 165 nm have been investigated, by seeding the process with different idler fields. A simple generator-amplifier setup has been set up, demonstrating the possibilities for parametric amplification of external VUV sources with this process.

In addition, a sum frequency mixing signal at 106 nm has been observed together with the self starting process, according to the process $\omega_s^{sum} = 2\omega_p + \omega_i$. This observation

indicates a strong coupling between these two processes and a gain transfer by the common idler field.

Founded on the results obtained in this work, further schemes for efficient harmonic generation and parametric amplification in the XUV involving the concept of gain transfer have been proposed.

Keywords of the contents:

nonlinear optics, harmonic generation, parametric amplification, KrF laser

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	9
1.1	Rückblick	9
1.2	Neuere Entwicklungen und aktueller Stand	10
1.3	Einordnung dieser Arbeit	13
2	Propagationsgleichungen der nichtlinearen Frequenzkonversion in Gasen und Plasmen	15
2.1	Die nichtlineare Wellengleichung zur Beschreibung von Frequenzkonversionsprozessen	15
2.2	Differenzfrequenzmischung und parametrische Verstärkung	20
2.2.1	Seed mit schwacher Idlerstrahlung - parametrische Verstärkung	22
2.2.2	Seed mit starker Idlerstrahlung - Frequenzmischung	24
2.2.3	Keine Seedstrahlung - selbststartende Prozesse	24
2.3	Summenfrequenzmischung und Verstärkungstransfer	25
2.4	Phasenanpassung	29
2.4.1	Geometrische Phasenfehlpassung	30
2.4.1.1	Schwache Fokussierung	32
2.4.1.2	Starke Fokussierung	33
2.4.1.3	Symmetrische Fokussierung	34
2.4.1.4	Nicht-symmetrische Fokussierung	36
2.4.2	Dispersive Phasenfehlpassung	38
2.4.2.1	Atomarer und ionischer Beitrag	38
2.4.2.2	Elektronischer Beitrag	39
2.4.3	Nichtkollineare Phasenanpassung	40
2.5	Zusammenfassung	41

3	Das Excimer-Farbstoff-Hybridlasersystem und der experimentelle Aufbau	43
3.1	Das KrF-Excimer-Kurzpulslasersystem	44
3.1.1	Durchstimmeigenschaften	45
3.2	Experimenteller Aufbau	51
3.3	Fokussierung der KrF-Strahlung	53
3.3.1	Detektoren und Energiemessung	60
3.3.2	Gasdüsen	64
3.3.3	Bestimmung der Teilchendichte	69
4	Effektive Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen von 248.5 nm in Argon	73
4.1	Grundlagen der Frequenzverdreifung in Argon	77
4.1.1	Frequenzverfünffachung in Argon und Argonionen	81
4.2	Ionisation von Argon durch KrF-Kurzpulsstrahlung	84
4.3	Leistungsstarke Erzeugung der dritten Harmonischen bei 82.8 nm	91
4.3.1	Frequenzverdreifung im Gasstrahl	92
4.3.2	Frequenzverdreifung mit variabler Wechselwirkungslänge	97
4.3.3	Niveaushiftung und theoretische Simulation	101
4.4	Effektive Erzeugung der fünften Harmonischen bei 49.7 nm	108
4.4.1	Frequenzverfünffachung mit variabler Wechselwirkungslänge	109
4.4.2	Theoretische Simulation der Wellenlängenabhängigkeit	114
4.5	Zusammenfassung	115
5	Parametrische Verstärkung im VUV	117
5.1	Vierwellen-Differenzfrequenzmischung im Xenon	118
5.2	Selbststartende parametrische Superfluoreszenz und Verstärkung bei 149 nm	121
5.2.1	Gaszelle - Nichtkollineare Emission und Spektrum	122
5.2.1.1	Druckabhängige Spektren- und Energiemessung	123
5.2.1.2	Theoretisches Modell für die Idlerspektren	125
5.2.2	Exponentielle Verstärkung	129
5.2.3	Druck- und Längenvariation bei fester Pumpwellenlänge	132
5.2.4	Längenvariationen bei variabler Pumpwellenlänge	137
5.2.4.1	Wellenlängenabhängigkeit	137

5.2.4.2	Längenvariation	142
5.3	Durchstimmbare parametrische Verstärkung mit geseedetem Idlerfeld . .	144
5.3.1	Injektion von Idlerstrahlung um 700 nm	145
5.3.2	Injektion von Idlerstrahlung bei 497 nm	149
5.3.2.1	Korrelationsmessungen zur Pulsdauerbestimmung	150
5.3.2.2	Längenvariation	153
5.3.2.3	Zirkulare Polarisation der Idlerstrahlung	154
5.4	OPG/OPA-Anordnungen zur Demonstration parametrischer Verstärker im VUV	155
5.4.1	OPG/OPA-Modell mit selbststartendem Prozess	155
5.4.2	Getrennte OPG/OPA-Anordnung bei geseedetem Idlerfeld	157
5.5	Verstärkungstransfer auf Summenfrequenzmischung bei 106 nm	160
5.6	Zusammenfassung	164
6	Perspektiven	167
6.1	Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen von 248.5 nm in Kapillaren	167
6.2	Erzeugung der fünften Harmonische von 248 nm in Helium und Krypton - Channel closing	168
6.3	Nahresonante Erzeugung der siebten Harmonischen von 248.5 nm in Neon	170
6.4	Verwendung von Titan-Saphir-Lasersystemen	171
6.5	Möglichkeiten parametrischer Verstärkung im XUV	172
7	Zusammenfassung	175
A	Selbstinduzierte Verstärkung von Harmonischen	179
B	Pulsdauer- und Bandbreite-Relationen	187
C	Berechnung nichtlinearer Suszeptibilitäten	189
C.1	Frequenzverdreifung	196
C.2	Frequenzverfünffachung	197
C.3	Differenz- und Summenfrequenzmischung	198
	Literaturverzeichnis	201

Symbolverzeichnis

U_p	ponderomotives Potential
e	Elektronenladung
m_e	Elektronenmasse [g]
$E(t)$	elektrische Feldstärke, Gleichung 1.1
$I(t)$	Intensität [W/cm^2], Gleichung 1.1
λ	Wellenlänge [μm], Gleichung 1.1
$P(z, t)$	Polarisation, Gleichung 2.1
$P_L(z, t)$	lineare Polarisation, Gleichung 2.1
$P_{NL}(z, t)$	nichtlineare Polarisation, Gleichung 2.1
$A_i(z, t)$	Amplitude des Laserfeldes
k_i	Wellenvektor [cm^{-1}]
ω_i	Kreisfrequenz des Laserfeldes [s^{-1}]
ω_p, λ_p	Frequenz bzw. Wellenlänge des Pumplasers
ω_q, λ_q	Frequenz bzw. Wellenlänge der Q-ten Harmonischen
ω_s, λ_s	Frequenz bzw. Wellenlänge der Signalwelle
ω_i, λ_i	Frequenz bzw. Wellenlänge der Idlerwelle
d^{NL}	nichtlineares Dipolmoment
c	Lichtgeschwindigkeit
n_q	Brechungsindex der q-ten Harmonischen
N	Teilchendichte [cm^{-3}]
Δk	Phasenfehlanpassung
H	Hamiltonoperator
ρ	Dichtematrix
ψ	elektronische Wellenfunktion
$V(t)$	zeitabhängiges Störpotential
\vec{r}, r	Ortsvariable, Ortsoperator

μ	Dipoloperator
h, \hbar	Plancksches Wirkungsquantum, $\hbar = \frac{h}{2\pi}$
$\chi^{(q)}$	Suszeptibilität q-ter Ordnung
a_q	Absorptionskoeffizient der q-ten Harmonischen
N_e	Elektronendichte
N_{cr}	kritische Elektronendichte
r_e	klassischer Elektronenradius, $r_e = e^2/m_e c^2 = 2.818 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$
η	Konversionseffizienz, $\eta^{max} = \frac{I_q^{max}}{qI_p}$
g_q	Kopplungskoeffizient für die Erzeugung der q-ten Harmonischen
γ_s, γ_i	Kopplungskoeffizienten für die Erzeugung von Signal- und Idlerwellen, Differenzfrequenzmischung
G	Verstärkungskoeffizient, Differenzfrequenzmischung
F	Phasenanpassungsfunktion
l, L	Medienlänge, Wechselwirkungslänge, im Vergleich: kurze bzw lange Wechselwirkungslänge
δ	Druckverstärkungskoeffizient
$\rho_{s,i}$	Kopplungskoeffizienten für die Erzeugung von Signal- und Idlerwellen, Summenfrequenzmischung
P	Propagationskoeffizient
L_{koh}	Kohärenzlänge
$I_{s,i}$	Intensitäten von Signal- und Idlerfeldern
$I_{s0,i0}$	Eingangintensitäten von Signal- und Idlerfeldern
$k_{in,out}$	Wellenvektoren der in einen Prozess einlaufenden bzw. auslaufenden Felder
Δk_{geom}	geometrische Phasenfehlanpassung
Δk_{disp}	dispersive Phasenfehlanpassung
Δk_{atom}	dispersive Phasenfehlanpassung, atomarer Anteil
Δk_{el}	dispersive Phasenfehlanpassung, elektronischer Anteil
Δk_{ion}	dispersive Phasenfehlanpassung, ionischer Anteil
$w(z)$	Strahlradius eines gaußschen Strahls
$R(z)$	Krümmungsradius der Wellenfronten eines gaußschen Strahls

$\Phi(z)$	Phasenfunktion eines gaußschen Strahls
w_0	Waist
ζ	Normierte Ausbreitungscoordinate, $\zeta = \frac{2z}{b}$
b	konfokaler Parameter
ω_{ij}	Uebergangsfrequenz zwischen den Zuständen $ i\rangle$ und $ j\rangle$
f_{ij}	Oszillatorstärke des Übergangs zwischen den Zuständen $ i\rangle$ und $ j\rangle$
$n_{atom,ion}$	Brechungsindex pro Atom bzw. Ion
ω_{pl}	Plasmafrequenz
N_e	Elektronendichte
Λ	Abstand der Interferenzmaxima, DFDL
λ_{SCDL}	Wellenlänge des "short-cavity dey lasers"
θ^{DFDL}	Überlagerungswinkel der Pumpstrahlen im DFDL
n_{DFB}	mittlerer Brechungsindex der gepumpten DFDL-Farbstofflösung
D	Strahldurchmesser auf fokussierender Linse
θ	Divergenzwinkel eines fokussierten gaußschen Strahls
M^2	Strahlqualität, $M^2 = 1$ entspricht einem gaußschen Strahl
$w_{0,M}$	Waist eines realen Strahls
$b_{\omega,M}$	konfokaler Parameter eines realen Strahls
τ	Pulsdauer
f	Brennweite
E_p	Pulsenergie
N_γ	Photonenanzahl
U_0	Detektorspannung
Q	Quanteneffizienz des Detektors
R	Meßwiderstand
$1/r$	Reduktionsfaktor bei geometrischer Abschirmung der Detektorfläche
C	Kapazität der AXUV100-Diode
S	spektrale Empfindlichkeit der AXUV100-Diode
T	Transmission der Aluminiumschicht der AXUV100-Diode
α	Drehwinkel der Schlitzdüse
γ_{kel}	Keldysh-Parameter

E_{ion}	Ionisationsenergie
w_{MPI}	Multiphotonenionisationsrate
w_{ADK}	Tunnelionisationsrate nach Ammosov, Delone und Krainov, ADK-Rate
A_{au}	elektrische Feldstärke in atomaren Einheiten
Z	Ladungszahl
n^*	effektive Grundzustandsquantenzahl
ω_a	atomare Umlauffrequenz, $\omega_a = 4.1 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$
P_{ADK}	polarisationsabhängiger Faktor in der ADK-Rate
I_{app}	Appearance-Intensität
$\eta_{ion}(T)$	zeitabhängiger Ionisationsgrad
p	Gasdruck
K_j	Modellierungsfunktionen
D	theoretische Energiedurchstimmkurve
λ_z	Zentralwellenlänge des Emissionsspektrums der KrF-Pulse
$A_{3\omega,5\omega}$	nichtlineares Antwortspektrum der dritten bzw. fünften Harmonischen
S_q	Strahlquerschnittsflächen der q-ten Harmonischen
$\theta_{s,i}$	Öffnungswinkel der Signal- und Idleremissionen aus dem Vierwellendifferenzfrequenzmischprozess
l_{eff}	effektive Wechselwirkungslänge bei walk-off
S_i	theoretisch berechnete Idlerspektren
$G_{exp,theo}$	experimentell ermittelter und theoretisch berechneter Verstärkungskoeffizient
V	makroskopische Verstärkung
$S(l), S(L)$	Signalstärke bei kurzer bzw. langer Wechselwirkungslänge
u_q	Modenkonstanten für die propagation der q-ten Harmonischen in Kapillaren
a	Kapillarradius

1 Einleitung

Die Erzeugung intensiver kohärenter Strahlung in den kurzwelligen Spektralbereichen der Vakuumultraviolettstrahlung (VUV, 200 nm bis 100 nm) und der extremen Ultraviolettstrahlung (XUV oder EUV, $< 100 nm$), bis in den Bereich der Röntgenstrahlung ($< 1 nm$) durch nichtlineare optische Prozesse ist seit langem ein Gebiet intensiver Forschung. Die Motivation zur Entwicklung entsprechender Quellen ergibt sich aus deren Anwendungspotential. So ermöglichen derartige Strahlungsquellen Untersuchungen zur Ionisation äußerer und auch innerer Schalen von Atomen, zur Fragmentation von Molekülen, zur Spektroskopie (Photoelektronenspektroskopie) an Festkörperoberflächen und an dichten Plasmen. Kohärente kurzwellige Strahlung erlaubt bei Fokussierung und bei Interferenzexperimenten eine hohe Ortsauflösung und bietet damit besondere Möglichkeiten für die Mikroskopie (Röntgenmikroskopie), die Holographie, die Lithographie und schließlich auch die Mikro- und Nanostrukturierung. Für fast alle Anwendungen sind hohe Energien (Intensitäten) der Quellen günstig oder sogar erforderlich. Da es in den genannten Spektralbereichen praktisch kaum primäre Lasersysteme gibt, können derartige Quellen mit nichtlinearen optischen Verfahren realisiert werden.

Im Rahmen dieser Arbeit werden hierzu geeignete Verfahren und Konzepte vorgestellt und diskutiert. Es werden spezifische Prozesse in Hinblick auf hohe Effizienzen und Ausgangsenergien untersucht und optimiert.

1.1 Rückblick

Die Entdeckung der Frequenzverdopplung 1961 durch Franken [P. A. Franken 1961] markiert den Anfang der modernen nichtlinearen Optik. Kurz darauf wurde 1962 von Maker [P. D. Maker 1962] und Giordmaine [Giordmaine 1962] die Notwendigkeit der Phasenanpassung, also der Ausbreitung von Grundwelle und Oberwelle (Harmonischer) mit der gleichen Phasengeschwindigkeit, für eine effektive Frequenzverdopplung gezeigt. Erste theoretische Ausarbeitungen dazu stammen ebenfalls aus dem Jahr 1962 [J. A. Arm-

strong 1962]. 1965 wurden zuerst parametrische Frequenzmischprozesse von zwei Laserfeldern beobachtet [Wang 1965]. Die Geometrie gaußscher Strahlen fand 1967 Berücksichtigung [D. A. Kleinman 1966]. Zufriedenstellende theoretische Modelle wurden basierend auf der Störungstheorie entwickelt ([Kleinman 1968] und [Tang 1968]). Danach kann das nichtlineare Dipolmoment, was zur Abstrahlung der neuen Frequenzen führt, durch eine Reihenentwicklung der nichtlinearen Suszeptibilität ausgedrückt werden.

Die Beobachtung von Prozessen dritter Ordnung, nämlich der Frequenzverdreifung, gelang Maker 1963 [P. D. Maker 1963] in Kristallen und einige Jahre später 1967 New und Ward in Edelgasen [G. H. C. New 1967].

Mit stärkeren Pumpasersystemen gelang schließlich 1976 und 1977 der Vorstoß in den XUV-Bereich mit der Erzeugung der 5. Harmonischen bei 53.2 nm [J. Reintjes 1976] und der 7. Harmonischen bei 38 nm [J. Reintjes 1977] unter Verwendung eines modengekoppelten und frequenzvervierfachen Nd:YAG-Laser (Wellenlänge 266 nm). Im XUV kommen als nichtlineare Medien wegen der Transparenz nur noch Gase oder Plasmen in Frage. Aus Symmetriegründen treten in isotropen Medien nur ungerade Harmonische auf.

1.2 Neuere Entwicklungen und aktueller Stand

Mit der Entwicklung von Kurzpulslasern hoher Intensität in den 80er Jahren haben sich für die nichtlineare optische Erzeugung von kurzweiliger Strahlung besondere Möglichkeiten ergeben.

So konnten z. B. mit einem KrF-Kurzpulslaser bei 248 nm erstmals Harmonische bis zur 17. Ordnung beobachtet werden McPherson u. a. [1987]. 1988 gelang die Erzeugung von diesen hohen Harmonischen auch mit einem langwelligen Laser (Wellenlänge 1064 nm) [Ferray u. a. 1988]. Abbildung 1.1 zeigt prinzipiell die Emissionsspektren von Harmonischen bei der Anregung des nichtlinearen gasförmigen Mediums mit zwei verschiedenen Wellenlängen.

Die Intensitäten der ersten Ordnungen zeigen einen exponentiellen Abfall, der noch sehr gut mit einer störungstheoretischen Beschreibung durch die nichtlinearen Suszeptibilitäten in Einklang zu bringen ist. Daran schließt sich der sogenannte Plateaubereich an. Im sehr kurzwelligen Bereich fallen die Intensitäten im "Cutoff" noch einmal stark ab. Der Cutoff ist bestimmt durch das ponderomotive Potential

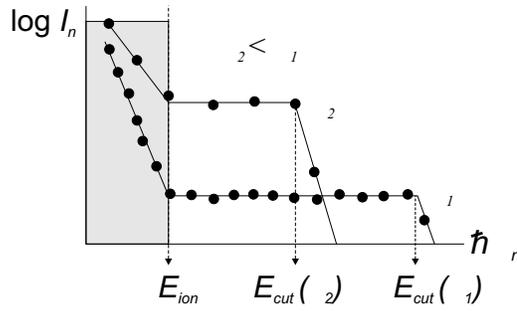


Abbildung 1.1: Schematisches Harmonischenspektrum bei zwei verschiedenen Pumplaserwellenlänge

$$U_p = \frac{e^2 \langle E^2(t) \rangle}{4m_e \omega^2} = 9.33 \times 10^{-14} I(t) \lambda^2 \quad [\text{eV}], \quad (1.1)$$

wobei e und m_e die Elektronenladung und -masse und ω , λ , $E(t)$ und $I(t)$ die Frequenz, Wellenlänge (in μm), Feldstärke und Intensität (in $[\text{W}/\text{cm}^2]$) des Lasers sind. Eine ausführliche Darstellung der Harmonischenerzeugung und verschiedener theoretischer Modelle ist in [Eichmann Dissertation] gegeben.

Der Abbildung 1.1 kann unmittelbar entnommen werden, dass bei gleicher Intensität kurzwellige Laser eher niedrige Ordnungen erzeugen, hierbei aber höhere Intensitäten erreichbar sind. Die höchsten Intensitäten, und damit Konversionseffizienzen ergeben sich im störungstheoretischen Bereich, solange die Photonenenergie unterhalb der Ionisierungsenergie des Mediums bleibt. Die hohen Harmonischen besitzen Energien oberhalb der Ionisierungsschwelle und erfahren deshalb prinzipiell eine Absorption im Medium. Die Absorption limitiert die Konversionseffizienzen auch bei perfekter Phasenanpassung [Meyer 2000]. So wurde von [Constant u. a. 1999] die bis dahin höchste Konversionseffizienz von 4×10^{-5} für die 15. Harmonische eines Titan-Saphir-Lasers in Xenon zu messen. Diese Effizienz konnte weiter gesteigert werden auf 7.6×10^{-5} [J. F. Hergott 2002]. Hierbei wurde eine Energie von $1.2 \mu\text{J}$ bei einer Wellenlänge von 53 nm erreicht. Für die 13. Harmonische bei 62 nm konnte sogar über eine Effizienz von 4.7×10^{-4} bei einer Ausgangsenergie von $4.7 \mu\text{J}$ berichtet werden [V. Tosa 2003].

Im Hinblick auf weitere Effizienzsteigerungen für die Erzeugung von Strahlung im XUV bieten also bereits kurzwellige Pumplaser den Vorteil, dass mit ihnen Prozesse niedriger Ordnung genutzt werden können. So wurde schon 1984 für die 5. Harmonische eines fre-

quenzvervierfachen Nd:YAG-Lasers eine Effizienz von 10^{-5} angegeben werden, bei einer XUV-Energie von $0.09 \mu J$. Unter zusätzlicher Ausnutzung nahresonanter Anregung gelang 1997 eine effiziente Erzeugung der dritten Harmonischen eines Argonfluorid-Lasers mit 20 ns Pulsdauer mit einer Ausgangsenergie von $1 \mu J$ bei 64 nm [Y. Hirakawa 1997]. Bei einer Pumpenergie von 350 mJ entspricht das aber nur einer Konversionseffizienz von 3×10^{-6} . Allerdings zeichnet sich hier das Potential von nahresonanten Prozessen ab.

Die Möglichkeit, die Effizienz nichtlinearer Prozesse durch eine nahresonante Anregung zu steigern, wurde erstmalig 1973 von Miles untersucht [R. B. Miles 1973], und ist seitdem eine verbreitete Methode bei der Erzeugung von Strahlung im VUV-Bereich ([Reintjes 1984] und [Boyd 1992]). Resonante Prozesse wurden bei der Harmonischenerzeugung [Smith 1985] und Summenfrequenzmischung ([G. Hilber 1987] und [A. V. Smith 1988]) ausgenutzt.

Die nahresonante Zweiphotonenanregung von Xenon mit der Strahlung eines KrF-Kurzpulsasers führt zu selbststartenden Emissionen bei 760 nm (Idlerfeld) und bei 149 nm (Signalfeld) durch Differenzfrequenzmischung ([Tünnermann u. a. 1992], [Glownia u. a. 1994] und [S. P. Le Blanc 1995]). Für dieses System konnte von [Glownia u. a. 1994] parametrische Verstärkung für sichtbare Strahlung (616 nm) nachgewiesen werden. Dabei konnte eine Gesamtverstärkung von 150 zwischen eingestrahlttem und verstärktem Feld beobachtet werden. Nach [Meyer u. a. 1999] wurde parametrische Verstärkung auch im VUV bei 111 nm für die 7. Harmonische in Xenon beobachtet. Allerdings wurde dabei nicht auf einen Einfluss von Resonanzen oder die Effizienz des Prozesses eingegangen.

Neuere Untersuchungen zur Effizienzsteigerung bei hohen Harmonischen durch nahresonante Anregung stammen von [M. B. Gaarde 2001], [C. Figuera de Morisson Faria 2002] und [R. Taieb 2003]. Hier wurde nicht nur die Wellenlängeabhängigkeit, sondern auch eine Verschiebung der atomaren Niveaus durch den AC-Stark-Shift berücksichtigt ([B. Wellegehausen 1996b] und [N. B. Delone 1999]). Dass diese Verschiebung bei der Erzeugung von Harmonischen bei hohen Pumpintensitäten eine wichtige Rolle spielt, wurde in [H. Xu 1992] und [E. S. Toma 1999] gezeigt, und von [E. S. Toma 2000] zur Messung von Pulsdauern im XUV-Bereich angewendet.

Theoretische Berechnungen von [M. Plummer 2002] zeigen, dass gerade dieser Effekt bei der Erzeugung von Harmonischen der KrF-Wellenlänge in Argon von Bedeutung sein sollte.

1.3 Einordnung dieser Arbeit

Zur Realisierung hoher Konversionseffizienzen im XUV sind aufgrund der Abbildung 1.1 nichtlineare Prozesse möglichst niedriger Ordnung erforderlich, d. h. in isotropen Medien Prozesse 3., 5., und 7. Ordnung. Um in niedriger Ordnung kurzwellige Strahlung zu erzeugen, muss daher von einem schon kurzwelligen Lasersystem ausgegangen werden. Hier bietet sich der KrF-Excimerlaser mit einer Wellenlänge von 248.5 nm an. Besonders hohe Effizienzen ergeben sich bei der Erzeugung der Harmonischen unterhalb der Ionisierungsenergie des Mediums, da dann eine Reabsorption vermieden wird. Mit diesem Konzept konnte bei einer nahresonanten Anregung von Argon für die Verdreifachung eine Ausgangsenergie von $100 \mu\text{J}$ bei einer Konversionseffizienz von 0.7% erzielt werden [Dölle u. a. 2002]. Die Möglichkeiten der Phasenanpassung dieses Prozesses wurden in [C. Dölle 2003] und [Dölle Dissertation] bearbeitet, wobei zwar Aussagen über die spektralen Eigenschaften des Prozesses bei niedrigen Pumpintensitäten getroffen werden konnten, aber nicht über eine Phasenanpassung bei hohen Intensitäten.

In Erweiterung der vorangegangenen Arbeit sollte die Harmonische bei 82.8 nm weiter optimiert und die Konversionseffizienz weiter gesteigert werden. So lag ein Schwerpunkt auf der Untersuchung der Phasenanpassung unter Verwendung einer längeren Wechselwirkungszone. Dabei war es auch möglich, den von [M. Plummer 2002] vorhergesagten Einfluss des AC-Stark-Shift auf die Erzeugung der dritten Harmonischen zu studieren.

Ausgehend von diesen Experimenten sollte das Konzept der Vermeidung von Absorption und Ausnutzung von Resonanzen auf die Erzeugung der fünften Harmonische bei 49.7 nm in Argonionen angewendet werden, da sich hier eine ähnliche Konstellation bezüglich Wellenlänge und Resonanzen ergibt wie für die dritte Harmonische.

Dieses Vorgehen, durch Ionisation ein Medium zu schaffen, in dem Resonanzen ausgenutzt werden können, kann allerdings nicht beliebig weit in den kurzwelligen Bereich ausgedehnt werden. Bei kürzeren Wellenlängen wäre dazu eine immer höhere Ionisation erforderlich, was zu einer festeren Bindung der Elektronen des Mediums und damit zu einer Abnahme des nichtlinearen Dipolmoments führt. Daher wurden weiterhin Möglichkeiten der parametrischen Verstärkung im VUV und XUV untersucht. Als Modellsystem und Ausgangspunkt für die Experimente diente die parametrische Vierwellenmischung im Xenon ([Tünnermann u. a. 1992] und [Glowia u. a. 1994]), um die schon im sichtbaren Bereich beobachtete Verstärkung im VUV nachzuweisen.

Die Arbeit gliedert sich in vier Teile. Zuerst werden in Kapitel 2 die theoretischen

Grundlagen beschrieben, die für die Interpretation der Experimente zu Frequenzvervielfachung und zur parametrischen Verstärkung notwendig sind. Danach wird in Kapitel 3 das verwendete Pumplasersystem und der experimentelle Aufbau beschrieben. Dabei werden die Möglichkeit zur Wellenlängenänderung des Lasersystems und die Fokussierbarkeit der emittierten Strahlung erörtert. In Kapitel 4 wird die Erzeugung von leistungsstarker XUV Strahlung durch Frequenzverdreifachung und Frequenzverfünffachung behandelt und anhand eines theoretischen Modells der Einfluss des AC-Stark-Shift diskutiert. Die Untersuchungen zur parametrischen Verstärkung von Strahlung im VUV finden sich in Kapitel 5. Das Kapitel 6 umfasst Vorschläge für weitere Experimente zur Steigerung der Effizienz und zur Erzeugung kürzerer Wellenlänge.

2 Propagationsgleichungen der nichtlinearen Frequenzkonversion in Gasen und Plasmen

2.1 Die nichtlineare Wellengleichung zur Beschreibung von Frequenzkonversionsprozessen

Bei der Propagation intensiver Laserstrahlung der Frequenz ω_p durch ein Medium erzeugt das elektrische Feld $E_p(\vec{r}, t)$ eine Polarisation $P(\vec{r}, t)$. Diese rührt von einer Störung der elektronischen Wellenfunktion des Mediums her. Die Störung führt im Coulomb-Potential zu einem nichtlinearen Anteil P^{NL} der Polarisation

$$P(z, t) = P_L(z, t) + P_{NL}(z, t) \quad (2.1)$$

und damit zu einem nichtlinearen Dipolmoment d^{NL} . Dieser nichtlineare Anteil verursacht die Abstrahlung neuer Frequenzen ω_q , wobei q zunächst ein beliebiges Vielfaches der Pumpfrequenz ω_p gemäß $\omega_q = q\omega_p$ sein kann. Die Amplituden dieser neuen Frequenzen sind A_q .

Die Amplituden A_q sein weiterhin langsam variierende Funktionen in Raum und Zeit (slowly varying amplitude approximation). Diese Näherung ist gültig, wenn die Änderung der einhüllenden Amplitude der betrachteten Wellen klein ist gegenüber der entsprechenden Frequenz. In den später betrachteten Experimenten ist diese Näherung hinreichend erfüllt, da die Periodendauern der verwendeten Frequenzen um etwa zwei Größenordnungen über der Pulsdauer liegen. Physikalisch bedeutet diese Näherung, dass die Erzeugung von Strahlung in Rückwärtsrichtung vernachlässigt wird [Shen 1984].

Für die Erzeugung von Strahlung im VUV- und XUV-Bereich können aufgrund ihrer Transparenz Gase und niedrig ionisierte Plasmen als nichtlineares Medium verwendet werden. Die Isotropie dieser Materialien bedingt eine Einschränkung der möglichen abgestrahlten Frequenzen. Im Folgenden sei die Ausbreitungsrichtung der Pumpstrahlung in z -Richtung, ihre Polarisation oBdA linear in x -Richtung. Der Fall zirkularer Polarisation

soll an dieser Stelle nicht betrachtet werden.

Geht man zu einer Fourierdarstellung der Felder und der Polarisation über, d. h. einer Zerlegung nach ebenen Wellen mit den Amplituden A_q und P_q

$$E(z, t) = \frac{1}{2} \sum_q (A_q(z, t) e^{ikz_q - i\omega_q t} + c.c.) \quad (2.2)$$

$$P(z, t) = \frac{1}{2} \sum_q (P_q(z, t) e^{ikz_q - i\omega_q t} + c.c.). \quad (2.3)$$

wird die Propagation einer Fourierkomponente q mit der Frequenz ω_q durch die Grundgleichung der nichtlinearen Optik beschrieben ([Boyd 1992]). Diese kann leicht aus den Maxwellgleichungen unter Verwendung der paraxialen Näherung hergeleitet werden:

$$\frac{d}{dz} A_q + \frac{a_q}{2} A_q = i g_q e^{-i\Delta k z}, \quad (2.4)$$

mit

$$g_q = \frac{2\pi\omega_q}{cn_q} N d_q^{NL}, \quad (2.5)$$

a_q ist der lineare Absorptionskoeffizient und n_q der Brechungsindex der Frequenz ω_q (siehe auch [Meyer u. a. 1999], [S. Meyer 2000] und [Meyer 2000]). Die Größe $k_q = \frac{n_q\omega_q}{c}$ ist der Betrag der Wellenvektoren der beteiligten Wellen. Für jede erzeugte Welle gibt Δk die Phasenfehlانpassung an. Dieser Wert soll zunächst als beliebiger Parameter betrachtet werden, der später in Abschnitt 2.4 konkretisiert wird

Für ein atomares Medium ergibt sich das nichtlineare Dipolmoment d^{NL} aus dem Einzeldipolmoment d_{atom}^{NL} und der Teilchendichte N nach $d^{NL} = d_{atom}^{NL} N$. Zur Berechnung von d_{atom}^{NL} ist im Allgemeinen die Lösung der Schrödinger-Gleichung

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = H\psi, \quad (2.6)$$

bzw. der von-Neumann-Gleichung

$$\frac{d}{dt} \rho_{nm} = -\frac{i}{\hbar} [H, \rho] \quad (2.7)$$

unter Einbeziehung der Störung durch das Laserfeld erforderlich [Boyd 1992]. Der

Hamiltonian ist in diesem Fall

$$H = H_0 + \lambda V(t), \quad (2.8)$$

wobei H_0 der Operator für den ungestörten Fall ist und $V(t) = -\mu E = -erE$. Auch hier soll wieder nur eine lineare Polarisation der Strahlung betrachtet werden, μ bzw. r sind dann die Projektionen des Dipoloperators bzw. des Ortsoperators auf die Polarisationsrichtung. Die Größe λ bezeichnet nur in dieser Gleichung den Lagrangemultiplikator.

Kann die Störung als klein betrachtet werden (gegen die atomare Intensität, d.h. $\hbar\omega_q \ll E_{ion}$), bietet sich eine Entwicklung von Gleichung 2.6 oder Gleichung 2.7 nach dem Lagrange-Multiplikator λ an.

Nach dieser Entwicklung kann die Polarisation dargestellt werden als

$$\begin{aligned} P &= P_L + P_{NL} \\ &= \frac{1}{\sqrt{4\pi}} N \left(\sum_q \left(\chi^{(1)}(\omega_q) E(\omega_q) + \sum_{q>1, l=2}^q \chi^{(l)}(\omega_2 \dots \omega_l) E^l(\omega_2 \dots \omega_l) \right) \right), \end{aligned} \quad (2.9)$$

mit den Suszeptibilitäten $\chi^{(q)}$. Dabei ist der erste Term die lineare Polarisation P_L der Frequenzkomponenten q . Die Summation im zweiten Term, welcher die nichtlineare Polarisation P_{NL} beschreibt, über alle Kombinationen (d.h. möglichen Prozesse) zu erstrecken ist, die zur Frequenz ω_q beitragen. N bezeichnet hier und im Folgenden die Teilchendichte. Die Größen $\chi^{(q)}$ werden in Anhang C eingehender behandelt. In den hier betrachteten Fällen isotroper Medien können diese Tensoren $(q+1)$ -ter Stufe durch Skalare ausgedrückt werden.

Damit können die lineare Absorption und der Brechungsindex unter Ausnutzung der Dispersionsrelation für den Betrag des Wellenvektors $k_q^2 = \omega_q^2 n_q^2 / c^2$ geschrieben werden als

$$n_q = \sqrt{1 + 4\pi \Re(\chi^{(1)}(E_q))} \quad (2.10)$$

$$a_q = \frac{4\pi\omega_q}{cn_q} \Im(\chi^{(1)}(E_q)). \quad (2.11)$$

Für einen Konversionsprozess nach Abbildung 2.1, der die direkte Harmonischenerzeu-

gung darstellt, kann die zugehörige Fourierkomponente des nichtlinearen Dipolmomentes durch

$$d_q^{NL} = \frac{\chi^{(q)}}{2^{q-1}} A_p^q \quad (2.12)$$

beschrieben werden.

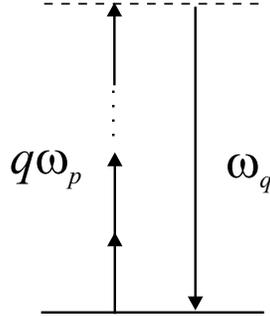


Abbildung 2.1: Erzeugung der q -ten Harmonischen: Die Absorption von q Photonen der Pumpstrahlung mit der Frequenz ω_p in ein virtuelles Niveau (gestrichelt) führt zur Emission eines Photons bei der q -fachen Frequenz ω_q .

Diese Beschreibung wird auf die direkte Harmonischenerzeugung und die Frequenzmischung bzw. parametrische Verstärkung angewendet. Wie oben erwähnt, werden Gase und niedrig ionisierte Plasmen als nichtlineare Medien eingesetzt. Die angegebene Grundgleichung der nichtlinearen Optik gilt in dieser Form aber nur für strom- und ladungsfreie Medien.

Gase erfüllen die Voraussetzung nach Strom- und Ladungsfreiheit sehr gut. Für Plasmen muss der Gültigkeitsbereich eingeschränkt werden. Sie müssen für die zu betrachtenden Wellenlängen transparent sein. Die charakteristische Materialgröße ist hierfür die Plasmafrequenz ω_{pl} , mit der eine induzierte Ladungsdichte oszilliert. Sie ist gegeben durch

$$\omega_{pl}^2 = \frac{4\pi e^2}{m_e} N_e, \quad (2.13)$$

wobei e die Elektronenladung, m_e die Elektronenmasse und N_e die Ladungsdichte ist. Für optische Frequenzen ω oberhalb der Plasmafrequenz ist das Plasma transparent. Aus der Gleichheit $\omega_{pl} = \omega$ kann eine kritische Elektronendichte N_{cr} des Plasmas bestimmt werden, bis zu der diese Bedingung erfüllt ist:

$$N_{cr} = \frac{m_e}{4\pi e^2} \omega = \frac{\pi m_e c^2}{e^2 \lambda^2} = \frac{\pi}{r_e \lambda^2}. \quad (2.14)$$

λ ist die Wellenlänge zur Frequenz ω . Hierbei wurde der klassische Elektronenradius $r_e = e^2/m_e c^2 = 2.818 \times 10^{-13} \text{ cm}^2$ eingeführt, der eine kompaktere Schreibweise ermöglicht und einen Wirkungsquerschnitt für die Wechselwirkung von Elektronen mit Licht darstellt. Für eine Wellenlänge von $1000 \text{ } \mu\text{m}$ ist die Transparenzbedingung demnach bis zu einer Elektronendichte von $N_e = 1.1 \times 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ erfüllt. Die Propagationsgleichung ist daher eine gute Beschreibung für die Ausbreitung kurzwelliger Strahlung in Gasen und Plasmen unter den typischen experimentellen Bedingungen. Die Plasmaelektronen geben allerdings einen Beitrag zum Brechungsindex, worauf an späterer Stelle noch eingegangen wird.

Im Folgenden wird die Pumpwelle als stark angenommen, das heißt es soll eine Rückwirkung der erzeugten Strahlung auf die Pumpstrahlung vernachlässigt werden. Eine Abschwächung der Pumpintensität durch Absorption oder Streuung (a_p) könnte über einen exponentiellen Zerfall des nichtlinearen Dipolmomentes $d_q^{NL} = d_{q0}^{NL} \exp(-qa_p z/2)$ implementiert werden ([Meyer 2000]), wobei d_{q0}^{NL} am Anfang des nichtlinearen Mediums berechnet wird.

Die Lösung der gewöhnlichen inhomogenen Differentialgleichung 2.4 folgt der Beschreibung in A. An dieser Stelle sei gleich die Lösung für die Intensität der q -ten Harmonischen

$$I_q = \frac{cn_q}{8\pi} |A_q|^2 \quad (2.15)$$

nach Integration über die Länge L des Mediums angegeben:

$$I_q = \frac{\pi\omega_q}{2cn_q} |d_q^{NL}|^2 N^2 L^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k_q L}{2}\right) + \sinh^2\left(\frac{a_q L}{4}\right)}{\left(\frac{\Delta k_q L}{2}\right)^2 + \left(\frac{a_q L}{4}\right)^2} e^{-\frac{a_q L}{2}} \quad (2.16)$$

$$= \frac{\pi\omega_q^2}{2cn_q} |d_q^{NL}|^2 N^2 F \quad . \quad (2.17)$$

Diese Lösung wird in [Meyer u. a. 1999], [S. Meyer 2000], [Meyer 2000], [Constant u. a. 1999] und [Czarnetzki und Döbele 1991] eingehend diskutiert und zur Interpretation von Experimenten zur Harmonischenerzeugung angewendet.

An dieser Lösung wird deutlich, dass eine Absorption a_q die maximal erreichbare Inten-

sität der q -ten Harmonischen selbst bei perfekter Phasenanpassung $\Delta k = 0$ beschränkt:

$$I_q^{max} = \frac{8\pi^3 c |d_q^{NL}|^2}{n_q \lambda_q^2 \sigma_q^2}. \quad (2.18)$$

Hierbei wurde der Absorptionsquerschnitt $\sigma_q = a_q/N$ eingeführt. Für nichtresonante Prozesse ergibt sich hieraus unter der Berücksichtigung, dass die Pumpstrahlquerschnittsfläche q -mal größer ist als der der Harmonischen eine maximale Konversionseffizienz von

$$\eta^{max} = \frac{I_q^{max}}{qI_p}. \quad (2.19)$$

Typische Werte liegen für die Erzeugung von Harmonischen im Plateaubereich mit Titan-Saphir-Kurzpulslasern bei etwa 10^{-7} bis 10^{-6} . Diese Plateauharmonischen der Ordnungen 11 bis 15 können zum Vergleich mit den in 4 betrachteten niedrigen Harmonischen herangezogen werden, da sie im gleichen Wellenlängenbereich zwischen 50 nm und 90 nm liegen. Es erweist sich als äußerst wichtig, neben einer guten Phasenanpassung, die Reabsorption der erzeugten Wellen zu vermeiden, oder durch Kopplung an andere Prozesse mit inhärenter Verstärkung zu kompensieren. Diese Überlegungen bilden den Ausgangspunkt für die in 4 bzw. 5 beschriebenen Experimente.

2.2 Differenzfrequenzmischung und parametrische Verstärkung

Bei der Differenzfrequenzmischung eines starken Pumpfeldes (Frequenz ω_p) mit einem schwachen Signalfeld (Frequenz ω_s) wird in einem nichtlinearen Prozess 2. Ordnung gemäß $\omega_i = \omega_p - \omega_s$ ein Differenzfeld (Idlerfeld, Frequenz ω_i) erzeugt. Im nichtlinearen Medium (Kristall) erfährt dabei sowohl das Signal- als auch das Idlerfeld eine exponentielle Verstärkung, die in parametrischen Verstärkern angewendet wird. Ist die durch das Pumpfeld induzierte Verstärkung groß genug, können sich Signal- und Idlerfeld aus dem Rauschen heraus entwickeln (parametrische Fluoreszenz). Dies führt zum parametrischen Generator bzw. Oszillator (OPG bzw. OPO). Eine ausführliche Darstellung dieser parametrischen Prozesse zweiter Ordnung ($\chi^{(2)}$) findet sich in [Boyd 1992], [Bergmann und Schäfer 1993], [Mills 1991] und Zitaten darin.

In diesem Abschnitt wird die Verallgemeinerung des parametrischen Verstärkungsprozesses auf beliebige Ordnungen der Pumpwelle nach [Meyer u. a. 1999] dargestellt. Für höhere Ordnungen sind Untersuchungen in Gasen und Plasmen notwendig, da diese im kurzwelligigen Spektralbereich noch ausreichend transparent sind. Die Prinzipien sind allerdings die gleichen wie in Kristallen: Die jetzt durch q Photonen einer eingestrahlten Pumpwelle A_q erzeugte nichtlineare Polarisation kann in der niedrigsten nichtlinearen Ordnung $\chi^{(q+1)}$ in zwei Photonen zerfallen. Sie bilden die Signal (A_s)- und die Idlerwelle (A_i) mit den assoziierten Frequenzen ω_s und ω_i . Der Prozess ist schematisch in Abbildung 2.2 skizziert.

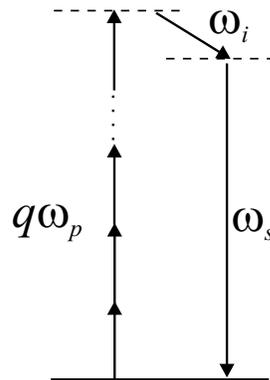


Abbildung 2.2: Differenzfrequenzmischung in $(q + 1)$ -ter Ordnung: Die durch q Pumpphotonen induzierte Polarisation kann über ein virtuelles Zwischenniveau in ein Idlerphoton (ω_i) und ein Signalphoton (ω_s) zerfallen.

Signal- und Idlerphotonen induzieren jeweils weitere Übergänge aus dem virtuellen Pumpniveau. Das bedeutet, dass die stimulierte Erzeugung eines Signalphotons auch die Erzeugung eines Idlerphotons bedingt und umgekehrt. Die Photonenzahlen bzw. die zugehörigen Amplituden der Wellen können so wie beim oben betrachteten $\chi^{(2)}$ -Prozess eine exponentielle Verstärkung erfahren.

Die Pumpwelle sei wieder als stark angenommen, so dass eine Prozessrückwirkung außer Acht gelassen werden kann. Eine detailliertere Beschreibung wird in A und [Meyer u. a. 1999] gegeben.

Aus der Grundgleichung 2.4 ergeben sich die Propagation von Signal- und Idlerwelle durch das nichtlineare Medium durch die gekoppelten Differentialgleichungen

$$\frac{d}{dz}A_s + \frac{a_s}{2}A_s = i\gamma_s A_i^* e^{-i\Delta kz} \quad (2.20)$$

$$\frac{d}{dz}A_i + \frac{a_i}{2}A_i = i\gamma_i A_s^* e^{-i\Delta kz}. \quad (2.21)$$

Die Phasenfehlانpassung für diesen Prozess ist

$$\Delta k = k_s + k_i - qk_p. \quad (2.22)$$

Die Kopplungskoeffizienten γ_s und γ_i sind hier

$$\gamma_{s,i} = \frac{2\pi\omega_{s,i}}{cn_{s,i}} N \frac{(q+1)\chi^{q+1}(\omega_{s,i})}{2^q} A_p^q = \frac{2\pi\omega_{s,i}}{cn_{s,i}} NX(\omega_{s,i}), \quad (2.23)$$

wobei die auftretenden Suszeptibilitäten verschieden und komplex sein können. Die Absorption von Signal- und Idlerstrahlung ist a_s und a_i . $X(\omega_{s,i})$ sind die Kreuzpolarisationen für den Prozess, bei dem die Pumpwelle in q -ter Ordnung vorliegt.

2.2.1 Seed mit schwacher Idlerstrahlung - parametrische Verstärkung

Die Lösung für die Amplituden A_s und A_i ergibt sich ebenfalls als ein Spezialfall der in A diskutierten Lösung und wird hier direkt angegeben:

$$A_s = \left\{ i\frac{\gamma_s}{G} A_{i0}^* \sinh(Gz) + A_{s0} \left[\cosh(Gz) - \frac{\beta}{G} \sinh(Gz) \right] \right\} e^{-\frac{a_i}{2}z + \beta z} \quad (2.24)$$

$$A_i^* = \left\{ -i\frac{\gamma_i^*}{G} A_{s0} \sinh(Gz) + A_{i0}^* \left[\cosh(Gz) + \frac{\beta}{G} \sinh(Gz) \right] \right\} e^{-\frac{a_i}{2}z - \beta z}. \quad (2.25)$$

Der Verstärkungskoeffizient ist

$$G = \sqrt{\beta^2 + \gamma^2}, \quad (2.26)$$

mit

$$\beta = \frac{1}{2} \left(\frac{a_s - a_i}{2} - i\Delta k \right) \quad (2.27)$$

$$\gamma^2 = \gamma_s^* \gamma_i = \frac{4\pi^2 \omega_s \omega_i}{c^2 n_s n_i} N^2 |X|^2. \quad (2.28)$$

Daraus ergibt sich sofort der Spezialfall verschwindender Absorption für Signal- und Idlerstrahlung. Für die Anfangsbedingungen $A_s(z=0) = 0$ und $A_i(z=0) \neq 0$ sind die entsprechenden Intensitäten von Signal- und Idlerwelle:

$$I_s^{diff} = \frac{\omega_s \gamma^2}{\omega_i G^2} I_{i0} \sinh^2(Gz) \quad (2.29)$$

$$I_i^{diff} = I_{i0} \left[1 + \frac{\gamma^2}{G^2} \sinh^2(Gz) \right]. \quad (2.30)$$

Der Verstärkungskoeffizient in diesem Fall ist

$$G = \sqrt{\gamma^2 - \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2}. \quad (2.31)$$

Es lässt sich also deutlich erkennen, dass die erzeugte Signalwelle und die eingestrahlte Idlerwelle eine exponentielle Verstärkung erfahren, wenn die Bedingung

$$|\gamma| > \frac{\Delta k}{2} \quad (2.32)$$

erfüllt ist. In diesem Fall wachsen Signal- und Idlerwelle in Analogie zum konventionellen optisch parametrischen Generator und Verstärker in Kristallen proportional zu

$$I_{s,i} \sim e^{2Gz}. \quad (2.33)$$

Bei einer Druckvariation bei fester Länge $z = L$ des nichtlinearen Mediums kann analog ein Druckverstärkungskoeffizient δ definiert werden:

$$\delta = \sqrt{\gamma^2 \frac{L^2}{N^2} - \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2 \frac{L^2}{N^2}} \cdot N. \quad (2.34)$$

Die Möglichkeiten der parametrischen Verstärkung von Strahlung motivierten die Experimente am KrF-gepumpten Xenonsystem, die in Kapitel 5 beschrieben sind. An diesem System konnten schon früh selbststartende Prozesse beobachtet werden ([Mossavi 1996], [Tünnermann u. a. 1992] und [Glownia u. a. 1994]). Allerdings wurden diese bislang noch nicht zur Verstärkung von Strahlung im VUV-Bereich herangezogen.

2.2.2 Seed mit starker Idlerstrahlung - Frequenzmischung

Wird die Idlerwelle mit hoher Intensität eingestrahlt, kann eine Rückwirkung der Signalstrahlung vernachlässigt werden. In diesem Fall ist $\frac{d}{dz}A_i$ in den Propagationsgleichungen 2.20 in guter Näherung null und das Gleichungssystem entkoppelt. Die verbleibende Gleichung für die Signalwelle (Formäquivalent zur Propagationsgleichung der Harmonischen) kann dann direkt gelöst werden und führt zu einem quadratischen Anwachsen der Signalintensität mit der Länge und der Teilchendichte. Das Regime der parametrischen Verstärkung geht dabei in das verstärkungslose Regime der Frequenzmischung über.

Bei gegebenenfalls nichtkollinearer Phasenanpassung, siehe 2.4.3 ist die Phasenanpassungsbedingung über die Winkel zwischen den an dem Prozess beteiligten Strahlen bestimmt. Dieser Winkel und die effektive Medienlänge sind abhängig von der vorliegenden Teilchendichte, d.h. sie sind Druckabhängig. Da der Kopplungskoeffizient γ für Prozesse hoher Ordnung klein ist, ist es überaus wichtig, für eine gute Phasenanpassung zu sorgen. Diese ist bei hohen Pumpintensitäten nicht immer einfach zu realisieren, da sich die Brechungsindices aufgrund der zeitabhängigen Ionisation während der Pumpimpulsdauer ändern. Möglichkeiten hierzu diesen Einfluss zu nutzen, werden in [Meyer 2000] gegeben.

2.2.3 Keine Seedstrahlung - selbststartende Prozesse

Die Verstärkung kann für Prozesse niedriger Ordnung ($\chi^{(2)}, \chi^{(3)}$) so groß werden, dass Signal- und Idlerwelle aus dem Rauschen heraus starten können. In diesem Fall gelten die Anfangsbedingungen $A_s(z = 0) = 0$ und $A_i(z = 0) = 0$ am Anfang des nichtlinearen Mediums. Die gegebene klassische Beschreibung deckt diesen Fall jedoch nicht ab. Dieses Problem muss quantenfeldtheoretisch behandelt werden, wie zum Beispiel in [W. H. Louisell 1961], [J. A. Armstrong 1962] und [Kleinman 1968]. Für die angegebene Theorie reicht es jedoch aus, von einem Startphoton für die Idler- oder Signalmode auszugehen. Es kann so eine Anfangsintensität der Wellen angenommen werden ([R. L. Byer

1968] und [Harris 1969]). Von [Kleinman 1968] wurde diese mit $\frac{1}{2}\hbar\omega$ gleich der Nullpunktsenergie der Signal- und Idlermoden gesetzt. Der elegantere Weg ist jedoch die quantenfeldtheoretische Streuamplitude für den entsprechenden Prozess zu berechnen, wie es in [Tang 1968] zu finden ist und in [L. Carrion 2000] auf $\chi^{(2)}$ -Prozesse angewendet wurde.

Da für die später betrachteten Prozesse höherer Ordnung keine solche Beschreibungen existieren, wird eine Rauschintensität für selbststartende Prozesse in Resonanznähe als freier Parameter gewählt, so dass obiges klassisches Modell angewendet werden kann. Da eine quantisierte Beschreibung eine Aussage über die Wahrscheinlichkeit gibt, mit der Pumpphotonen in Signal- und Idlerphotonen gestreut werden, sind die Rauschintensitäten abhängig von der Pumpintensität und dem Kopplungsparameter für den Streuprozess. Dieser enthält wiederum das Betragsquadrat der nichtlinearen Suszeptibilität [Tang 1968].

2.3 Summenfrequenzmischung und Verstärkungstransfer

Die Idlerstrahlung, die in einem Differenzfrequenzprozess entsteht, kann nicht nur zu einem Prozess beitragen (Abbildung 2.3).

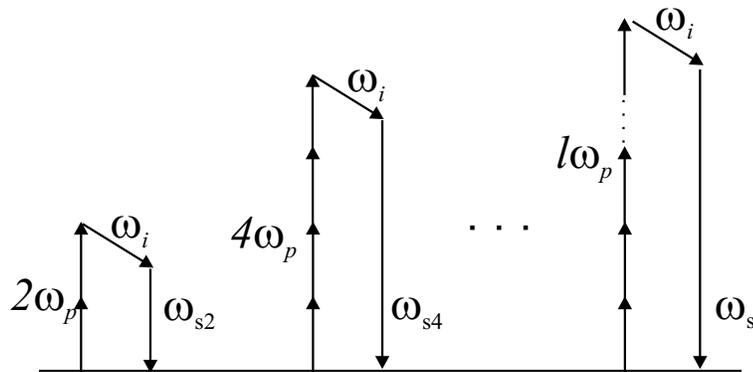


Abbildung 2.3: Erzeugungskanäle verschiedener Differenzfrequenzen mit dem selben Idlerfeld

Für ein vollständigeres Modell müssten daher alle Erzeugungskanäle für Frequenzen $\omega_l = l\omega_p - \omega_i$ berücksichtigt werden, womit sich für die Differentialgleichung für die Idlerwelle eine Summe über alle Kanäle

$$\frac{d}{dz}A_i = \sum_l i\gamma_l A_{sl}^* e^{-i\Delta k_l z} \quad (2.35)$$

ergibt, mit den Phasenfehlanspassungen $\Delta k_l = k_{sl} + k_i - lk_p$. Die obige Darstellung ist demnach nur gültig, wenn die Phasenanpassung für einen Prozess besser erfüllt ist, als für alle anderen, also $\Delta k_q \ll \Delta k_l$, für alle $l \neq q$.

Eine solche Kopplung kann sich aber auch nutzen lassen, Verstärkung von einem Prozess niedriger auf einen hoher Ordnung zu übertragen. Dabei liegt keine Beschränkung nur auf Differenzprozesse vor. Das Idlerfeld kann, vor allem bei hohen Intensitäten oder unter Ausnutzung von Resonanzen zur Erzeugung von Summenfrequenzsignalen führen. Dies soll im nächsten Abschnitt beschrieben werden.

Eine Kopplung verschiedener Prozesse kann zwischen gleichen, aber auch unterschiedlichen Ordnungen ablaufen. Generell kommen alle Summen- oder Differenzfrequenzmischprozesse mit dem gleichen Idlerfeld in Frage. Dies wurde ausführlich in [Meyer 2000] und [Meyer u. a. 1999] ausgearbeitet und diskutiert. Auf die Kopplung von Differenzprozessen höherer Ordnung an einen niedriger Ordnung wird nicht weiter eingegangen. An dieser Stelle sei auf die Literatur verwiesen [Meyer 2000].

Für die Interpretation der später beschriebenen Experimente wird ein einfaches Modell für den Verstärkungstransfer auf die Summenfrequenzmischung vorgestellt. Dabei ist es zunächst egal, in welcher Ordnung die Prozesse vorliegen. Das Schema ist in Abbildung 2.4 dargestellt.

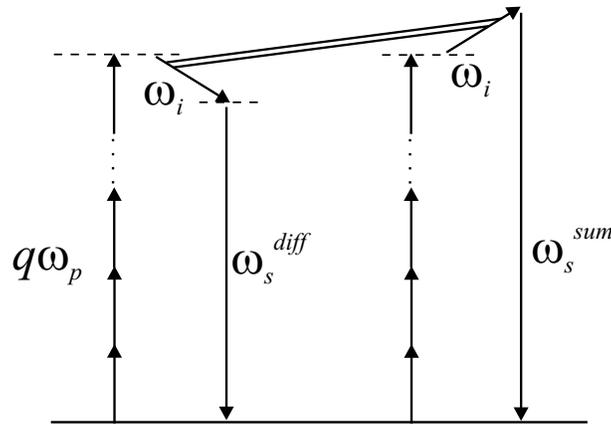


Abbildung 2.4: Kopplung zwischen Differenz- und Summenfrequenzmischung durch das selbe Idlerfeld

Die Annahme ist, dass der Differenzprozess phasenangepasst ist und eine hohe Verstärkung erfährt. Für die Pumpwelle gelte wieder die auch schon in den letzten Abschnitten getroffene Näherung einer konstanten Intensität.

Weiterhin sei die Kopplung der Idlerwelle an die Signalwelle des Differenzprozesses ω_s^{diff} groß gegen die Kopplung an die Signalwelle des Summenprozesses ω_s^{sum} . Daraus folgt, dass die Rückwirkung auf die Idlerwelle ω_i durch die Summenfrequenzmischung vernachlässigt werden kann. Die Lösung für den Differenzprozess ist also wieder nach Gleichung 2.29 gegeben und die Summenfrequenzmischung soll unabhängig betrachtet werden. Die gekoppelten Differentialgleichungen für den Summenprozess lauten

$$\frac{d}{dz}A_s + \frac{a_s}{2}A_s = i\rho_s A_i e^{-i\Delta kz} \quad (2.36)$$

$$\frac{d}{dz}A_i + \frac{a_i}{2}A_i = -i\rho_i^* A_s^* e^{+i\Delta kz}, \quad (2.37)$$

mit der Phasenfehlpassung

$$\Delta k^{sum} = k_s - k_i - qk_p, \quad (2.38)$$

da die Idlerwelle im Gegensatz zur Differenzfrequenzmischung in Absorption (als einlaufende Welle) auftritt. Die Kopplungskoeffizienten sind in Analogie zum Differenzprozess

$$\rho_{s,i} = \frac{2\pi\omega_{s,i}^{sum}}{cn_{s,i}} N \frac{(q+1)\chi^{q+1}(\omega_{s,i}^{sum})}{2^q} A_p^q = \frac{2\pi\omega_{s,i}^{sum}}{cn_{s,i}} N \Pi(\omega_{s,i}^{sum}), \quad (2.39)$$

mit den Kreuzpolarisationen $\Pi(\omega_{s,i}^{sum})$. Dieser Prozess kann nicht aus dem Rauschen heraus starten, da für die nichtlineare Polarisation, die die Signalwelle erzeugt zusätzlich die Idlerwelle notwendig ist. Die Erzeugung eines Signalphotons bedingt hier nicht wie bei der Differenzfrequenzmischung die Erzeugung eines Idlerphotons und umgekehrt, wodurch sich der Prozess nicht aufschaukeln kann. Als Anfangsbedingungen werden also $A_s(z=0) = 0$ und $A_i(z=0) \neq 0$ am Anfang des nichtlinearen Mediums gewählt. Der Standardansatz $A_s = Re^{pz} + Se^{-pz}$, mit p als Polynom in den vorkommenden Konstanten, und anschließender Koeffizientenvergleich liefert für die Intensitäten von Signal- und Idlerwelle

$$I_s^{sum} = \frac{\omega_s^{sum}}{\omega_i} \frac{\rho^2}{P^2} I_{i0} \sin^2(PL) \quad (2.40)$$

$$I_i^{sum} = I_{i0} \left[\cos^2(PL) + \frac{\Delta k^{sum}}{P^2} \sin^2(PL) \right]. \quad (2.41)$$

Eine Verstärkung, also ein exponentielles Anwachsen tritt in diesem Prozess nicht auf. Die Ausbreitung wird hier gekennzeichnet durch den Propagationskoeffizienten P

$$P^2 = \rho^2 + \left(\frac{\Delta k^{sum}}{2} \right)^2 \quad (2.42)$$

mit der nichtlinearen Prozesskopplung ρ

$$\rho^2 = \rho_s^* \rho_i = \frac{4\pi^2}{c^2} \frac{\omega_s^{sum} \omega_i}{n_s^{sum} n_i} N^2 |\Pi|^2. \quad (2.43)$$

Signal- und Idlerwelle beschreiben hier ein oszillatorisches Verhalten mit der Periode P , wobei ein Energieaustausch zwischen den Wellen stattfindet. Die Periode hängt neben dem nichtlinearen Kopplungskoeffizienten ρ auch von der Phasenfehlanpassung Δk ab und wird für $\Delta k = 0$ maximal, wobei auch die erreichbare Signalintensität maximal ist. Mit zunehmender Phasenfehlanpassung sinkt die erreichbare Intensität um den Faktor $\rho^2 / (\rho^2 + (\Delta k/2)^2)$. Es lässt sich so für den Summenmischprozess eine Kohärenzlänge L_{koh} definieren, bis zu der die Signalwelle anwächst:

$$L_{koh} = \frac{\pi}{2P}. \quad (2.44)$$

Dies gilt für kleine Idlerintensitäten. Für $I_{i0} \gg I_s^{sum}$ entkoppeln die Differentialgleichungen, und die Signalintensität wächst quadratisch mit der Länge des Mediums nach

$$I_s^{sum} = \frac{\omega_s^{sum}}{\omega_i} \frac{\rho^2}{P^2} I_{i0} I_p^2 L^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k^{sum} L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k^{sum} L}{2}\right)^2}. \quad (2.45)$$

Für die Kopplung des Summenfrequenzprozesses an den Differenzprozess sei nun angenommen, dass die Idlerintensität I_{i0} nur durch den Differenzprozess bestimmt ist. Sie wächst exponentiell mit dem Verstärkungskoeffizienten G aus Gleichung 2.30. So ergeben sich für die Signalintensitäten im Fall einer schwachen bzw. starken Idlerwelle

$$I_s^{sum} = \frac{\omega_s^{sum}}{\omega_i} \frac{\rho^2}{P^2} I_{i0} \left[1 + \frac{\gamma^2}{G^2} \sinh^2(Gz) \right] I_p^2 L^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k^{sum} L}{2}\right)}{\left(\frac{\Delta k^{sum} L}{2}\right)^2}, \quad I_{i0}^{diff} \gg I_s \quad (2.46)$$

$$I_s^{sum} = \frac{\omega_s^{sum}}{\omega_i} \frac{\rho^2}{P^2} I_{i0} \left[1 + \frac{\gamma^2}{G^2} \sinh^2(Gz) \right] \sin^2(PL), \quad I_{i0}^{diff} \sim I_s. \quad (2.47)$$

Bei einer kleinen Idlerintensität beschreibt die Lösung zwar wieder ein oszillatorisches Verhalten, deren Amplitude jetzt aber exponentiell anwächst, siehe Abbildung 2.5.

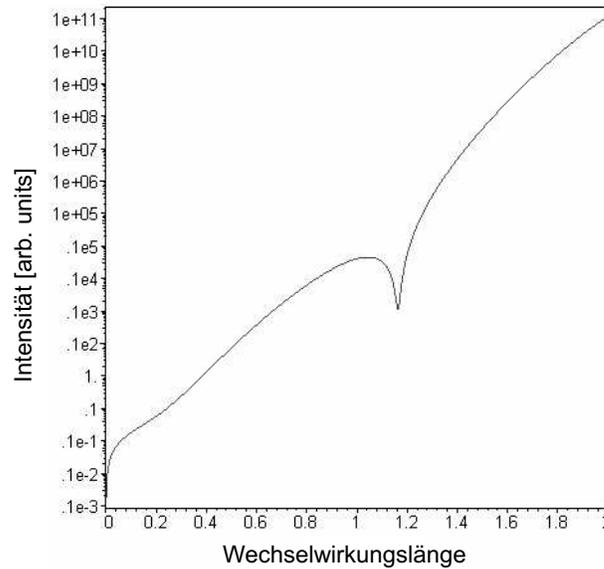


Abbildung 2.5: Theoretischer Verlauf eines Summenfrequenzsignals bei exponentiell anwachsendem Idlerfeld

Im Grenzfall $PL_{koh} \ll \pi/2$ zeigt die Signalwelle des Summenprozesses nun einen exponentiellen Anstieg und so einen Verstärkungstransfer vom Differenzprozess.

2.4 Phasen Anpassung

Für die Phasenfehlanpassung wird die Konvention

$$\Delta k = \sum_{out} k_{out} - \sum_{in} k_{in} = \Delta k_{geom} + \Delta k_{disp} \quad (2.48)$$

verwendet. Dabei sind die k_{out} die emittierten oder auslaufenden Wellen und die k_{in} die absorbierten oder einlaufenden Wellen. Die Phasenfehlanpassung kann für in einen geometrischen und einen dispersiven Anteil zerlegt werden.

Der geometrische Teil hängt von der betrachteten Wellenform ab. Für ebene Wellen ist $\Delta k_{geom} = 0$.

In den vorangegangenen Abschnitten wurde bei den theoretischen Beschreibungen von ebenen Wellen ausgegangen. Dies stellt aber eine sehr starke Idealisierung dar. In der Realität werden fokussierte gaußsche Strahlen eingesetzt. In diesem Fall hängt Δk_{geom} von der Fokussierung ab ([Eichmann Dissertation], [Boyd 1992]). Im Folgenden sollen die einzelnen Beiträge zum Brechungsindex erläutert werden.

Der erste Teil dieses Abschnitts beschäftigt sich mit der durch die Fokussierung verursachten Phasendifferenz. Diese führt zu dem geometrischen Korrekturterm Δk_{geom} der Phasenfehlanpassung.

Im zweiten Teil werden die Einflüsse von Atomen, Ionen und Elektronen aufgeführt, die im dispersiven Anteil der Phasenfehlanpassung Δk_{disp} zusammengefasst sind.

Zum Schluss wird noch die Möglichkeit der nicht-kollinearen Phasenanpassung diskutiert.

2.4.1 Geometrische Phasenfehlanpassung

Die geometrische Phasenfehlanpassung hat ihren Ursprung in der Abweichung eines gaußschen Strahls von einer ebenen Welle. Hierunter fallen aber auch Phasenabweichungen, die zum Beispiel durch Kapillaren verursacht werden. Diese sollen hier allerdings keine Erwähnung finden. An dieser Stelle wird auf die umfangreiche Literatur verwiesen [E. A. J. Marcatili 1964].

Ein- und auslaufenden Wellen werden als gaußsche Strahlen angenommen. Die erhaltenen Ausdrücke werden anschließend in den Grenzfällen der starken ($L \gg b$) und schwachen ($L \ll b$) Fokussierung entwickelt. Dadurch können analytische Ausdrücke für die Phasenanpassungsfunktion F (2.16) erhalten werden. Eine numerische Berechnung des Phasenanpassungsintegrals gestattet Aussagen über die Gültigkeit der Ebene-Wellen-Lösungen der angegebenen Prozesse.

Ein gaußscher Strahl, der zur Beschreibung der in den Experimenten eingesetzten Laserstrahlen herangezogen wird, ist eine Lösung der freien paraxialen Wellengleichung. Die räumliche Amplitude der q -ten Harmonischen kann nach [D. A. Kleinman 1966] und

[J. F. Ward 1969] dargestellt werden als (siehe auch [Boyd 1992])

$$A_q(r, z) = A_{q0} \frac{w_0}{w(z)} e^{-\frac{qr^2}{w(z)^2}} e^{\frac{iqkr^2}{2R(z)}} e^{iq\Phi(z)}, \quad (2.49)$$

wobei r die zur Ausbreitungsrichtung senkrechte Koordinate und k die Komponente des Wellenvektors der Grundwelle in Ausbreitungsrichtung darstellt.

Die Funktion $w(z)$ repräsentiert den $1/e$ -Radius des Strahls

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2} \quad (2.50)$$

und $R(z)$ den Krümmungsradius der optischen Wellenfronten

$$R(z) = z \left[1 + \left(\frac{\pi w_0^2}{\lambda z} \right)^2 \right]. \quad (2.51)$$

Der letzte Faktor in 2.49 ist die Gouy-Phase, die den Phasensprung beim Durchgang durch den Fokus beschreibt:

$$\Phi(z) = -\arctan \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right). \quad (2.52)$$

Im Fokus hat der Strahl den Radius w_0 (Waist). Der Ausdruck 2.49 kann mit Hilfe des konfokalen Parameters $b = \frac{2\pi w_0^2}{\lambda}$ umgeformt werden zu

$$A_q(r, z) = A_{q0} \frac{1}{1 + i\zeta} e^{-\frac{qr^2}{w_0^2(1+i\zeta)}}, \quad (2.53)$$

mit $\zeta = \frac{2z}{b}$. Diese Schreibweise ist wegen ihrer einfachen Struktur für viele Probleme geeigneter. Diese Formulierung gilt für beliebige Harmonische, wobei angenommen wird dass sie den gleichen konfokalen Parameter besitzen, wie die sie erzeugende Grundwelle. Dies bedeutet, dass eine Harmonische kohärent über die Länge des konfokalen Parameters der Pumpstrahlung erzeugt wird.

Der Strahlradius der Harmonischen, die von einem Pumpstrahl mit dem Waist $w_{0,p}$ erzeugt wird, beträgt dabei

$$w_{0,q} = \frac{w_{0,pump}}{\sqrt{q}}. \quad (2.54)$$

Der Strahldurchmesser ist also um den Faktor $q^{-1/2}$ kleiner.

Die Differentialgleichung für die Propagation der q -ten Harmonischen 2.4 lautet damit

$$\frac{2}{b} \frac{d}{d\zeta} A_q + \frac{a_q}{2} A_q = i g_q \frac{e^{-i\Delta k z}}{(1 + i\zeta)^{q-1}}. \quad (2.55)$$

Δk bezeichnet hier nur die dispersive Phasenfehlانpassung. Im weiteren soll der Fall vernachlässigbarer Absorption betrachtet werden. Zur Lösung der Differentialgleichung ist das Phasenanpassungsintegral

$$F = \int_{\zeta_u}^{\zeta_o} d\zeta \frac{e^{-i\Delta k z}}{(1 + i\zeta)^{(q-1)}} = \int_{z_u}^{z_o} dz \frac{2}{b} e^{-i\Delta k z} \left(1 + i \frac{2z}{b}\right)^{(1-q)} \quad (2.56)$$

zu lösen. Die untere und obere Grenze des Integrals entsprechen dem Anfang und dem Ende des nichtlinearen Mediums der Länge L . Eine Lösung ist nur in wenigen speziellen Fällen analytisch möglich. Zwei davon sind die Grenzfälle der starken und der schwachen Fokussierung.

2.4.1.1 Schwache Fokussierung

Bei der schwachen Fokussierung ist die Medienlänge klein gegen den konfokalen Parameter. Dabei muss sie nicht symmetrisch um die Fokusposition $z = 0$ zentriert sein. Ist dies jedoch der Fall, siehe Abbildung 2.6 lässt sich das Phasenanpassungsintegral lösen, wenn der Integrand nach ζ entwickelt wird.

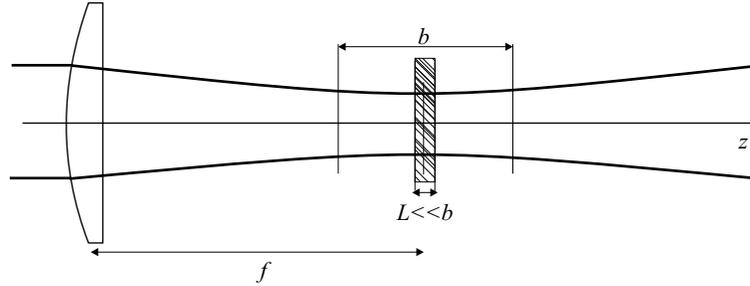


Abbildung 2.6: Prinzip der schwachen Fokussierung, die Medienlänge L ist sehr viel kleiner als der konfokale Parameter b .

In diesem Fall erhält man unter Ausnutzung der Beziehung

$$e^{i \arctan(\zeta)} = \frac{1 + i\zeta}{\sqrt{1 + \zeta^2}} \quad (2.57)$$

und der Entwicklung

$$\arctan(\zeta) = \zeta - \frac{\zeta^3}{3!} + \frac{\zeta^5}{5!} - \dots = \zeta + O(\zeta^3) \quad (2.58)$$

die Lösung

$$F = \frac{e^{i(\Delta k + \Delta k_{geom})z} + e^{-i(\Delta k + \Delta k_{geom})z}}{i(\Delta k + \Delta k_{geom})}, \quad (2.59)$$

was zu der obigen Gleichung 2.16 führt. Der Term $\Delta k_{q,geom}$ stellt eine Korrektur zur vorhandenen dispersiven Phasenfehlanspassung dar, der durch die Fokussierung verursacht wird. Er lautet für die q -te Harmonische

$$\Delta k_{q,geom} = \frac{2(q-1)}{b}. \quad (2.60)$$

Im Grenzfall $b \rightarrow \infty$ (ebene Welle) ist damit $\Delta k_{q,geom} = 0$.

2.4.1.2 Starke Fokussierung

In der starken Fokussierung, Abbildung 2.7 kann o.B.d.A. $z_u = z_o = L/2$ gesetzt werden.

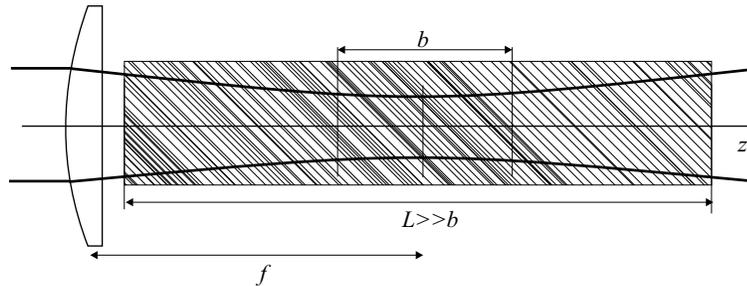


Abbildung 2.7: Prinzip der starken Fokussierung, die Medienlänge L ist sehr viel größer als der konfokale Parameter b .

Für $L \gg b$ erhält man im Limes $L \rightarrow \infty$ als Lösung

$$F_q = \frac{2\pi}{(q-2)!} \left(\frac{b\Delta k}{2} \right)^{q-2} e^{\frac{b\Delta k}{2}} \quad (2.61)$$

für $\Delta k < 0$. Das Phasen Anpassungsintegral verschwindet für $\Delta k \geq 0$ (Abbildung 2.8).

Insbesondere ist bei dieser Lösung keine Längenabhängigkeit mehr vorhanden, so dass sich beim Übergang von der schwachen zur starken Fokussierung eine Signalsättigung

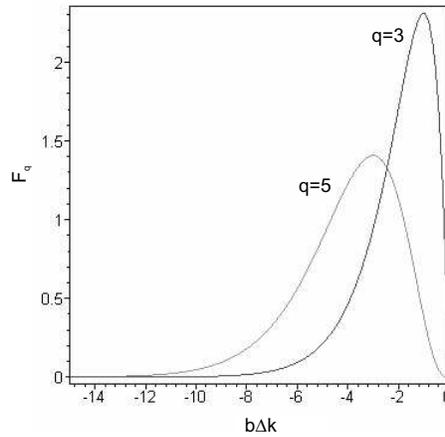


Abbildung 2.8: Phasenanpassungsfunktion F_q am Beispiel der dritten ($q = 3$) und fünften ($q = 5$) Harmonischen.

einstellen sollte.

2.4.1.3 Symmetrische Fokussierung

Experimentell ist der Übergangsbereich von schwacher zu starker Fokussierung interessant, da häufig der konfokale Parameter in der Größe der Medienlänge ist. In diesem Fall muss das Phasenanpassungsintegral numerisch gelöst werden. Zunächst soll der Fall betrachtet werden, bei dem die Grenzen des nichtlinearen Mediums symmetrisch zur Fokusposition liegen. (Abbildung 2.9)

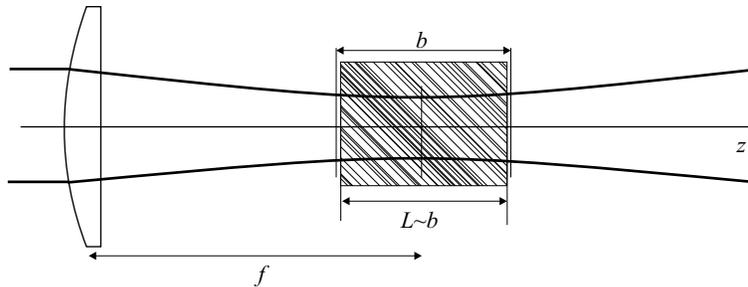


Abbildung 2.9: Symmetrische Verteilung des Mediums in Bezug auf die Fokusposition im Übergang von starker zu schwacher Fokussierung.

Abbildung 2.10 zeigt den Verlauf des geometrischen Teils der Funktion F^2 (Gleichung 2.56) in Abhängigkeit des dimensionslosen Parameters $\zeta/2 = L/b$ für die später zu

betrachtenden Fälle der dritten und fünften Harmonischen für eine symmetrische Fokussierung. Zur Berechnung wurde die Newton-Cotes Methode `quanc8` zur numerischen Integration unter Maple verwendet. Die Signale zeigen einen quadratischen Anstieg, wie er nach der Vorstellung ebener Wellen zu erwarten ist, bis zu $\frac{L}{b} \sim 1$ für die dritte Harmonische und $\frac{L}{b} \sim 0.5$ für die fünfte Harmonische.

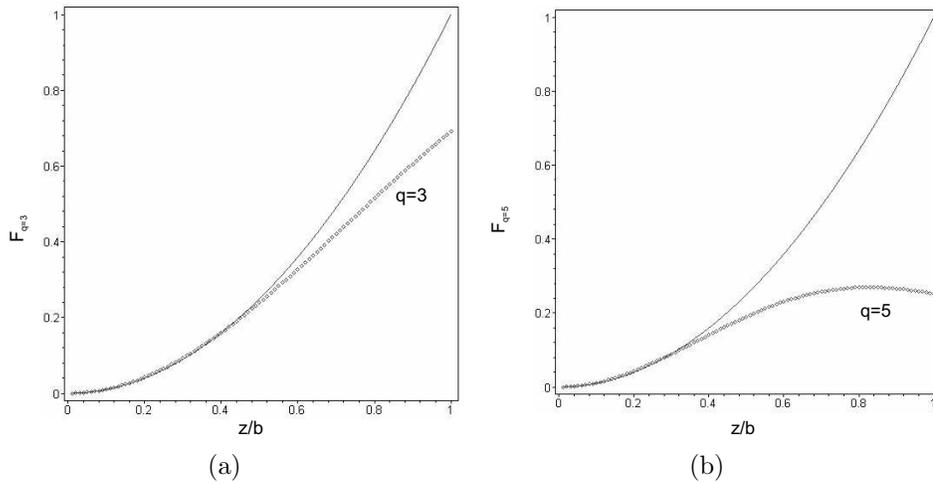


Abbildung 2.10: Symmetrische Fokussierung. Verlauf der geometrischen Formfunktion F_q für die dritte (a) und fünfte (b) Harmonische. Die gepunkteten Kurven sind numerisch nach Gleichung 2.56 berechnet, die jeweils durchgezogene Kurve zeigt vergleichend eine Parabel $F = (z/b)^2$

Erst für Medienlängen die signifikant größer sind als der konfokale Parameter macht sich eine Sättigung der dritten Harmonischen bemerkbar. Für $L \leq 0.8b$ ist die Beschreibung mit ebenen Wellen gerechtfertigt, wenn eine Abweichung um 20% zugelassen wird.

Bei der fünften Harmonischen gilt eine Beschreibung mit ebenen Wellen zumindest bis $L \leq 0.5b$. Darüber zeigen sich sehr schnell Abweichungen von einem quadratischen Anstieg. Dies gilt allerdings nur, wenn für die Signalintensität tatsächlich eine Abhängigkeit von der fünften Potenz der Pumpstrahlung vorliegt. In den Experimenten zur fünften Harmonischen, siehe Kapitel 4.4.1 und 4.4.2 und ebenso in [R. Rosmann 1988] und [L. J. Zych 1978] wurde eine Abweichung von dem störungstheoretischen I^5 -Verhalten festgestellt, wobei sich nur ein Signalanstieg von etwa $I^{2.5}$ zeigte. Damit bleibt natürlich die Beschreibung mit ebenen Wellen bis $\frac{L}{b} \sim 0.8$ erhalten. In der Berechnung von F_q kann dieses Verhalten durch verschiedene Werte von q berücksichtigt werden. Dieser Parameter repräsentiert dann nicht mehr die Prozessordnung, sondern den Exponenten der

experimentell bestimmten Signalintensitätsabhängigkeit I^q . Abbildung 2.11 zeigt den Übergang zwischen $q = 2$ und $q = 5$.

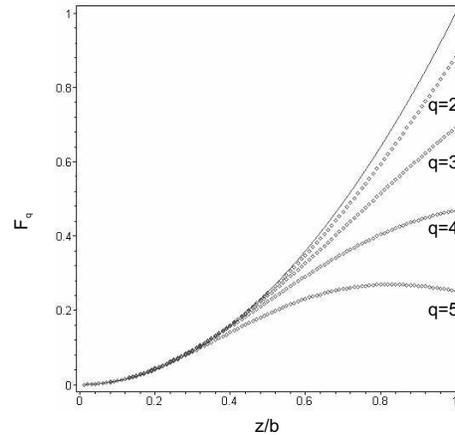


Abbildung 2.11: Übergang von starker zu schwacher Fokussierung bei verschiedenen Werten von q . Die gepunkteten Kurven sind numerisch nach Gleichung 2.56 berechnet, die jeweils durchgezogene Kurve zeigt vergleichend eine Parabel $F = (z/b)^2$

Je kleiner dieser Exponent ist, desto weiter gilt eine Beschreibung mit ebenen Wellen. Diese Situation ist in den Experimenten zur Erzeugung der fünften Harmonischen in Argonionen realisiert. Da die Signalintensitätsabhängigkeit von der Pumpintensität deutlich kleiner ist als $q = 5$ soll hier bis zu $L \sim q$ von ebenen Wellen ausgegangen werden.

2.4.1.4 Nicht-symmetrische Fokussierung

Den Fall der nicht-symmetrischen Fokussierung zeigt Abbildung 2.12.

Die Längenabhängigkeit für die dritte und fünfte Harmonische sind in Abbildung 2.13 dargestellt. Dabei wurde der Fokus um $d/b = 1.5$ aus dem Medienmittelpunkt heraus geschoben ($b \sim 5 \text{ mm}$ und $d \sim 7 \text{ mm}$). Dies entspricht etwa der später beschriebenen, experimentell realisierten Situation. Die Integration erfolgte analog zum vorherigen Abschnitt.

Es zeigt sich ein mit der Länge quadratisches Anwachsen der Signale der dritten und fünften Harmonischen, in guter Näherung bis zu $\frac{L}{b} \sim 1$. Dies Verhalten lässt sich verstehen, wenn man die Phasenfrontkrümmung betrachtet. Im Bereich des Fokus und weit weg davon sind die Krümmungen klein, und ebene Wellen sind eine gute Approximation.

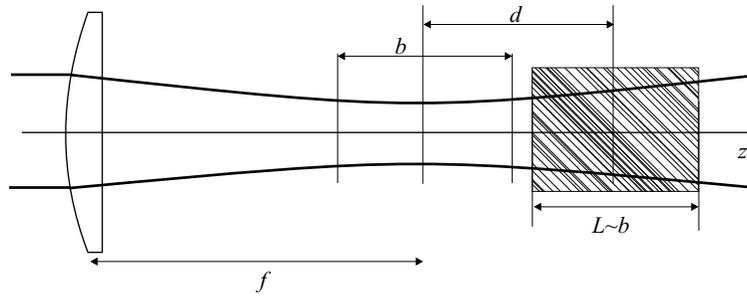


Abbildung 2.12: Nichtsymmetrische Verteilung des Mediums in Bezug auf die Fokussierung im Übergang von starker zu schwacher Fokussierung. Der Fokus ist um d gegenüber dem Medienmittelpunkt verschoben.

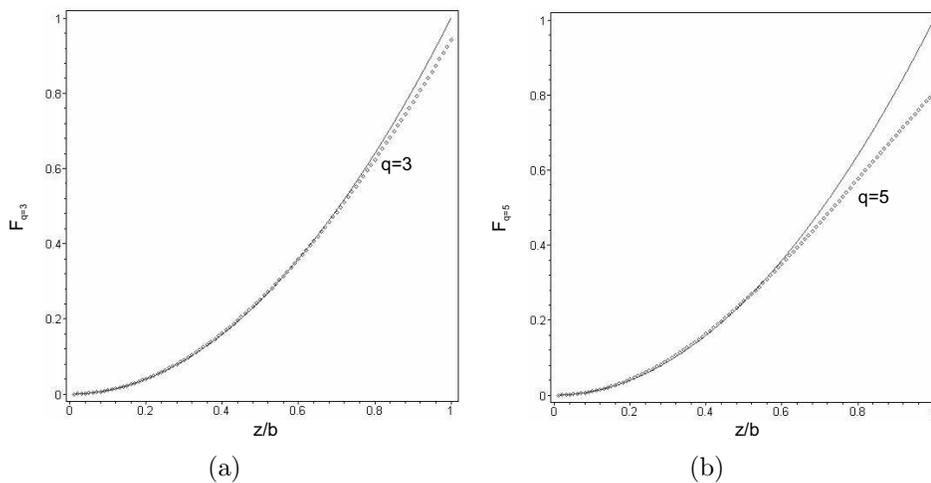


Abbildung 2.13: Nichtsymmetrische Fokussierung: $d/b = 1.5$, Verlauf der geometrischen Formfunktion F_q für die dritte (a) und fünfte (b) Harmonische. Die gepunkteten Kurven sind numerisch nach Gleichung 2.56 berechnet, die jeweils durchgezogene Kurve zeigt vergleichend eine Parabel $F = (z/b)^2$

Diese Situation entspricht der in den Experimenten zu Erzeugung der dritten Harmonischen in Argon und der Differenzfrequenzmischung im Xenon.

Es kann also abschließend festgestellt werden, dass solange die Näherung der ebenen Wellen gewählt werden darf, wie die Bedingung $L \leq b$ erfüllt ist. Dies gilt unabhängig von der Symmetrie der Fokussierung. Ebene Wellen stellen demnach eine gute Beschreibung der nachfolgend beschriebenen Experimente dar. Dies gilt sowohl für die Erzeugung von Harmonischen im Argon und in Argonionen, als auch für die Untersuchung paramete-

trischer Verstärkung am Vierwellendifferenzfrequenzprozess im Xenon.

2.4.2 Dispersive Phasenfehlانpassung

Die dispersive Phasenfehlانpassung beschreibt den Einfluss des nichtlinearen Mediums auf die Propagation der an den Prozessen beteiligten Wellen. Bei den hohen Intensitäten setzt sich das Medium im Allgemeinen aus Atomen, Ionen und Elektronen zusammen:

$$\Delta k_{disp} = \Delta k_{atom} + \Delta k_{el} + \Delta k_{ion}. \quad (2.62)$$

Die Wellenvektordifferenzen hängen über die Dispersionsrelation $k = \frac{n\omega}{c} = \frac{2\pi n}{\lambda}$ von den Brechungsindizes ab.

$$\Delta k_{disp} = 2\pi \left(\sum_{out} \frac{n_{out}}{\lambda_{out}} - \sum_{in} \frac{n_{in}}{\lambda_{in}} \right). \quad (2.63)$$

Für den atomaren und ionischen Beitrag ist die innere Struktur der Teilchen zu berücksichtigen. Der elektronische Beitrag bezieht sich auf die Elektronen im erzeugten Plasma.

2.4.2.1 Atomarer und ionischer Beitrag

Die Brechungsindizes sind nach Formel 2.10, zusammen mit dem Absorptionskoeffizienten, über die lineare Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ definiert. Da der Realteil klein ist gegen eins, kann die Wurzel entwickelt werden und man erhält

$$n_{atom,ion} - 1 = 2\pi N_{atom,ion} \Re \chi_{atom,ion}^{(1)}. \quad (2.64)$$

Die lineare Suszeptibilität ist gegeben durch (siehe Anhang C und [Boyd 1992])

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{1}{3\hbar} \sum_i |\mu_{gi}|^2 \left[\frac{1}{(\omega_{gi} - \omega) - i\gamma_{gi}} + \frac{1}{(\omega_{gi} + \omega) + i\gamma_{gi}} \right]. \quad (2.65)$$

Die ω_{gn} sind die atomaren oder ionischen Übergangsfrequenzen vom Zustand $|g\rangle$ in den angeregten Zustand $|i\rangle$ mit den entsprechenden Dämpfungstermen γ_{gi} und den Dipolmomenten μ_{gi} . Mit den Oszillatorstärken

$$|\mu_{gi}|^2 = \frac{3\hbar e^2}{2m_e \omega_{gi}} f_{gi}, \quad (2.66)$$

für die die Thomas-Reiche Kuhn-Summenregel $\sum_i f_i = Z$ gilt, erhält man:

$$\chi^{(1)}(\omega) = \frac{e^2}{m_e} \sum_i \frac{f_{gi}}{\omega_{gi}} \left[\frac{1}{(\omega_{gi} - \omega) - i\gamma_{gi}} + \frac{1}{(\omega_{gi} + \omega) + i\gamma_{gi}} \right] \quad (2.67)$$

$$\simeq \frac{e^2}{m_e} \sum_i \left[\frac{1}{\omega_{gi}^2 - \omega^2 - 2i\omega\gamma_{gi}} \right]. \quad (2.68)$$

In Abhängigkeit von der Wellenlänge, wie es für spätere Diskussionen nützlicher ist, lässt sich $\chi^{(1)}$ zunächst unter Vernachlässigung einer Dämpfung ausdrücken als

$$\chi^{(1)}(\lambda) = \frac{r_e}{4\pi^2} \sum_i \frac{f_{gi}}{\lambda_{gi}^{-2} - \lambda^{-2}}. \quad (2.69)$$

Unter Einbeziehung des Dämpfungsterms γ_{gi} , der einer Linienbreite $\Delta\omega_{gi} = \gamma_{gi}$ entspricht ergeben sich die Brechungsindices mit $\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ zu

$$n_{atom,ion} - 1 = N_{atom,ion} \frac{r_e}{2\pi} \sum_i \frac{f_{gi}(\lambda_{gi}^{-2} - \lambda^{-2})}{(\lambda_{gi}^{-2} - \lambda^{-2})^2 + \frac{\Delta\lambda^2}{\lambda^{-6}}}. \quad (2.70)$$

Im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich, fern ab von atomaren oder ionischen Resonanzen, kann der Brechungsindex auch vereinfacht mit einer Sellmeier-Gleichung nach [A. Bideau-Mehu 1981] ausgedrückt werden. Diese wird bei der Beschreibung der Eigenschaften von Argon und Xenon angewendet. Die relevanten Ausdrücke sind in den entsprechenden Abschnitten gegeben.

2.4.2.2 Elektronischer Beitrag

Der Brechungsindex von Elektronen in einem Plasma lässt sich am einfachsten über ein Oszillatormodell für die Suszeptibilität verstehen. Danach ist das Elektron harmonisch in seiner Ruhelage gebunden. Seine Bewegung erfahre die Dämpfung γ . Die Bewegungsgleichung lautet

$$\frac{d^2}{dt^2}x + \gamma \frac{d}{dt}x + \omega_0 x = \frac{e}{m_e} E, \quad (2.71)$$

wobei x die Ortskoordinate des Elektrons sei und ω_0 eine das System charakterisierende Frequenz, z.B. die bereits eingeführte Plasmafrequenz. Die Lösung dieser Gleichung liefert das Dipolmoment p

$$p = ex = \frac{e^2}{m} E \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2 - i\gamma\omega}. \quad (2.72)$$

Mit der linearen Suszeptibilität $\chi^{(1)}$ und Multiplikation mit der Teilchendichte N_e erhält man die Polarisation $P = N\chi^{(1)}E$. Im Folgenden soll die Dämpfung vernachlässigt werden. Dann kann die Dielektrizitätsfunktion $\epsilon(\omega) = 1 + 4\pi\chi^{(1)}$ angegeben werden zu

$$\epsilon(\omega) = 1 + \frac{4\pi N e^2}{m_e} \frac{1}{\omega_0^2 - \omega^2}. \quad (2.73)$$

Für Frequenzen weit oberhalb der Resonanzfrequenz ω_0 nimmt die Funktion die Form

$$\epsilon(\omega) \simeq 1 - \frac{4\pi N e^2}{m_e} \frac{1}{\omega^2}. \quad (2.74)$$

Unter Verwendung der Definition der Plasmafrequenz und der Maxwell-Relation $n = \sqrt{\epsilon}$ gelangt man so zu einem Ausdruck für den Brechungsindex von Elektronen in einem Plasma

$$n_{el}(\omega) \simeq 1 - \frac{\omega_{pl}^2}{2\omega^2}, \quad (2.75)$$

oder ausgedrückt mit dem klassischen Elektronenradius r_e

$$n_{el}(\omega) - 1 = -\frac{\lambda^2}{2\pi} r_e N_e. \quad (2.76)$$

Der elektronische Anteil liefert also einen negativen Beitrag zum Brechungsindex und im Fall der Erzeugung von Harmonischen $\omega_q = q\omega_p$ einen positiven Beitrag zur Phasenfehlanpassung ($\lambda_p < \lambda_q$). Dieser ist gegeben durch

$$\Delta k_{el} = (q - 1)r_e N_e \lambda_p. \quad (2.77)$$

2.4.3 Nichtkollineare Phasenanpassung

Eine spezielle Art der Phasenanpassung ist möglich, wenn mindestens zwei auslaufende oder einlaufende Felder vorliegen. Die erste Bedingung tritt beim Differenzfrequenzmischprozess auf, die zweite beim Summenfrequenzmischprozess.

Phasenanpassung kann dabei durch eine nichtkollineare Propagation erreicht werden. Dies ist in Abbildung 2.14 dargestellt.

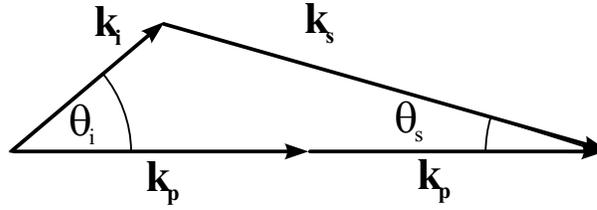


Abbildung 2.14: Nichtkollineare Phasenanpassung bei Vierwellenmischung

Die Emissionswinkel von Signal- und Idlerstrahlung lassen sich einfach über die Beträge der Pump- (k_p), Signal- (k_s) und Idlerwellenvektoren (k_i) errechnen:

$$\theta_i = \arccos\left(\frac{4k_p^2 + k_i^2 - k_s^2}{4k_p k_i}\right) \quad (2.78)$$

$$\theta_s = \arccos\left(\frac{4k_p^2 + k_s^2 - k_i^2}{4k_p k_s}\right). \quad (2.79)$$

Eine Besonderheit bei dieser Art der Phasenanpassung ist der walk-off: Durch die nichtkollineare Propagation überlappen die Strahlen nur in einem kleinen Bereich und laufen dann auseinander. Dabei verlassen sie das Wechselwirkungsvolumen und es kann kein weiterer Signalzuwachs stattfinden.

Über die Dispersionsrelation sind die Wellenvektoren und so die Winkel druckabhängig. Dies führt bei dem später untersuchten Xenon-System zu einer Vergrößerung des Winkels mit dem Druck und so zu einer Einschränkung der nutzbaren Wechselwirkungslänge. Aus diesem Grund wurden zusätzlich zu den Experimenten mit gepulsten Düsen auch Untersuchungen des Prozesses in einer statischen Gaszelle durchgeführt, um diesen Einfluss genauer zu studieren.

2.5 Zusammenfassung

Es wurden in diesem Kapitel die theoretischen Grundlagen der Propagation von Strahlungsfeldern in nichtlinearen Medien dargestellt. Dabei wurde insbesondere auf die experimentell wichtigen Fälle der Harmonischenerzeugung, der Differenz- und der Summenfrequenzmischung eingegangen. Es wurde ein Modell für die Kopplung eines Differenzprozesses an einen Summenprozess und dem daraus resultierenden Verstärkungstransfer

vorgestellt.

Eine detaillierte Beschreibung der nichtlinearen Suszeptibilitäten wurde hier außer Acht gelassen, da sie für das grundlegende Verständnis der Propagation nicht erforderlich sind. Auf sie wird in C genauer eingegangen und es werden dort die für die im Folgenden betrachteten Prozesse wichtigen Kenngrößen bestimmt.

Besonderer Wert wurde auf eine ausführliche Darstellung der Phasenanpassungsproblematik gelegt. Diese umfasst neben der Diskussion der dispersiven Einflüsse auf einen nichtlinearen Prozess auch die durch die Fokussierung der Pumpstrahlung verursachten Beiträge. Dabei wurde auf die verschiedenen Arten der Fokussierung gaußscher Strahlen eingegangen und so eine Rechtfertigung für die Prozessbeschreibung mit ebenen Wellen geliefert.

3 Das Excimer-Farbstoff-Hybridlasersystem und der experimentelle Aufbau

Im folgenden Kapitel werden das KrF-Kurzpulslasersystem und der experimentelle Aufbau für die Experimente zur effektiven Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen sowie zur parametrischen Verstärkung von Signalen im VUV-Spektralbereich beschrieben.

Dabei wird in Abschnitt 3.1 speziell auf die Durchstimmeigenschaften des Lasersystems eingegangen, da diese entscheidend sind bei der Ausnutzung inneratomarer oder -ionischer Resonanzen in den verwendeten Gasen Argon und Xenon.

In Abschnitt 3.2 wird der Aufbau der Vakuumapparatur und der Strahlengang beschrieben. Hier wurde auch auf die Monochromatoren zur Trennung der erzeugten Strahlung und der Pumpstrahlung eingegangen.

Die Fokussierung wird in Abschnitt 3.3 eingehend behandelt. Die in den einzelnen Experimenten vorliegenden Fokussierungsparametern wie Linsenbrennweite, Fokusposition, Strahldurchmesser, Pulsenergie und erreichbare Intensität sind hier in tabellarischer Form dargestellt.

Anschließend werden in Abschnitt 3.3.1 die verwendeten Detektoren und die Abschätzung der Energie der generierten Strahlung erläutert.

Danach werden in Abschnitt 3.3.2 die verwendeten Gasdüsen beschrieben, womit unter anderem eine kontinuierliche Einstellung der Medienlänge unter Vakuum möglich ist. Dieses hier vorgestellte Drehdüsenkonzept ermöglicht die Experimente zur Untersuchung parametrischer Verstärkung im VUV-Spektralbereich.

Die mit den verschiedenen Düsen und ihren Einstellungen erreichbaren Teilchendichten werden im letzten Abschnitt 3.3.3 behandelt. Hier sind, ebenfalls tabellarisch, die in den einzelnen Experimenten verwendeten Parameter und Teilchendichten aufgeführt.

3.1 Das KrF-Excimer-Kurzpulslasersystem

Das KrF-Kurzpulslasersystem wurde am Max-Planck-Institut für Biophysikalische Chemie in Göttingen entwickelt. Die Basis bildet ein modifizierter Zweikanal-Excimer Laser EMG 150 EST der Firma Lambda Physik. Ein Kanal ist mit XeCl gefüllt und wird als Oszillator betrieben. Er pumpt eine Kette von Farbstofflasern in der ein Distributed-Feedback-Laser (DFDL) den eigentliche Subpicosekundenpuls mit einer Wellenlänge um 497 nm erzeugt. Nach Durchlaufen eines 2-Pass Farbstoffverstärkers und einer Bethune-Verstärkerzelle steht genug Energie zur Verfügung, um die Pulse in einem BBO-Typ II frequenzverdoppeln zu können. Es werden so bis zu $12\ \mu\text{J}$ um 248.5 nm erzeugt. Von der nachverstärkten DFDL-Strahlung stehen für weitere Experimente $100\ \mu\text{J}$ mit einem Strahldurchmesser von 4 mm zur Verfügung.

Der zweite Kanal ist mit Kryptonfluorid gefüllt und wird als Verstärker für die frequenzverdoppelten DFDL-Pulse betrieben. Die UV-Pulse werden dazu durch eine Linse aufgeweitet und in einer 3-Pass off-axis Geometrie auf bis zu 15 mJ bei einem quadratischen Strahlprofil von $3\text{ cm} \times 3\text{ cm}$ verstärkt. Details dieses Systems und seine Eigenschaften sind in [Szatmari und Schäfer 1994] beschrieben.

Der Strahlengang und die optischen Komponenten sind in Abbildung 3.1 dargestellt.

Beide Entladungskanäle des Lasers werden über ein gemeinsames Thyatron gezündet, so dass zeitliche Fluktuationen in der Zündung der Kanäle auf unter 1 ns reduziert sind. Das richtige Timing der Gasentladung kann über den Druck im Verstärker eingestellt werden. Die Spektren der Emissionen bei 248.5 nm und 497 nm sind in Abbildung 3.2 dargestellt.

Die Pulsdauer bei 497 nm wurde mit einem Single-Shot-Autokorrelator vermessen und beträgt unter Annahme eines sech^2 -Pulsprofils 450 fs . Die Pulsdauer des UV-Pulses wurde mit einer Kreuzkorrelation durch Vierwellenmischung in Xenon zu 500 fs bestimmt. Die Korrelationsfunktionen sind in Abbildung ?? zu sehen. Auf diese Messungen wird im Zusammenhang mit den Experimenten an einer mit Xenongas gefüllten statischen Zelle in Kapitel 5.2.1 eingegangen.

Das Pulsdauer-Bandbreite-Produkt $\Delta\nu\Delta t$ ergibt für den 497 nm -Puls einen Wert von 0.83 und liegt damit um 2.5 über dem Fourierlimit. Der Puls ist nicht fourierlimitiert, da Selbst- und Kreuzphasenmodulation durch die intensive Pumpstrahlung in der Bethune-Zelle für eine spektrale Verbreiterung sorgen.

Für die 248 nm -Pulse ergibt sich ein Pulsdauer-Bandbreite-Produkt von 1.8 . Der Puls

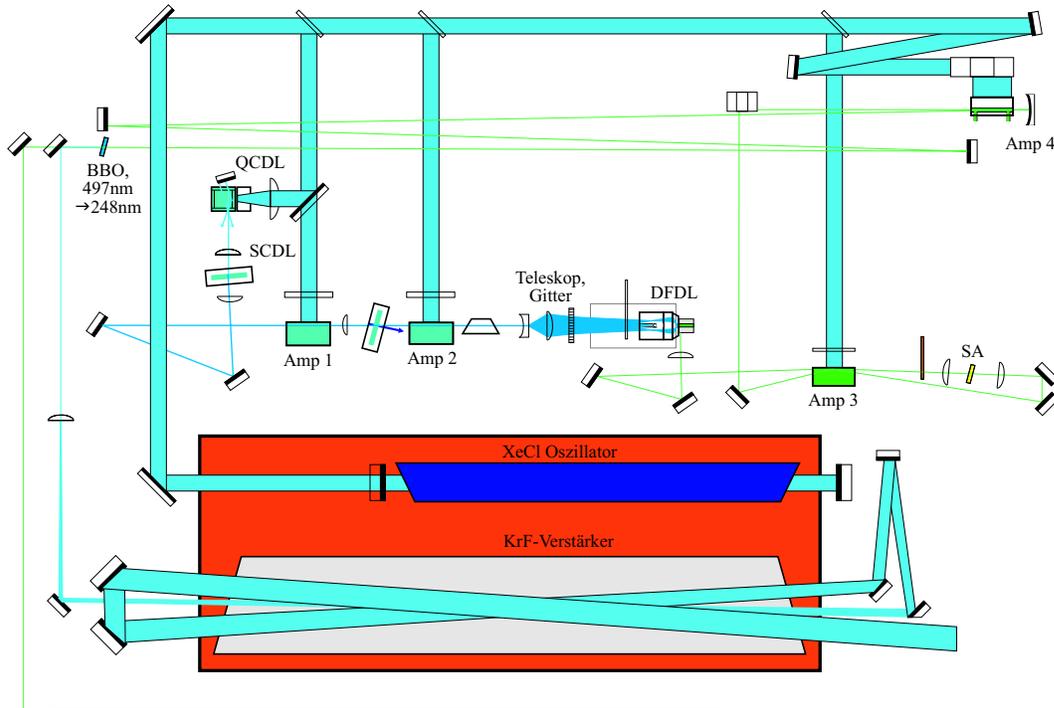


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Excimer-Femtosekunden-Lasersystems. Bedeutung der Abkürzungen in der Reihenfolge des Strahlverlaufs: QCDL: quenched cavity dye laser, SCDL: short cavity dye laser, Amp1 und Amp2: laminar flow amplifier cells, DFDL: distributed feedback dye laser, Amp3: 2-pass off axis dye amplifier, Amp4: Bethune-type amplifier cell

ist somit 5.5 mal über dem Fourierlimit (siehe Kapitel 5). Daher ist es prinzipiell möglich, die Pulsdauer durch einen Gitter- oder Prismenkompressor weiter zu reduzieren. Mit einem Prismenkompressor konnte von Szatmari et al. eine minimale Pulsdauer von 60 fs gemessen werden [Szatmari und Schäfer 1988].

3.1.1 Durchstimmeigenschaften

Für die Effektivität der in dieser Arbeit untersuchten Prozesse ist eine nahresonante Anregung ausschlaggebend. Ein großer Vorteil dieses KrF-Lasersystems ist seine einfache Durchstimmbare durch die Verwendung von Farbstofflasern zur Erzeugung der Kurzpulsstrahlung. Im hier vorliegenden Fall erlaubt der DFDL-Farbstoff Coumarin 307 zusammen mit dem Farbstoff Coumarin 102 in dem nachgeschalteten 2-Pass Verstärker einen Betrieb der Farbstofflaserkette von 480 nm bis 508 nm. Die Abstimmung in diesem

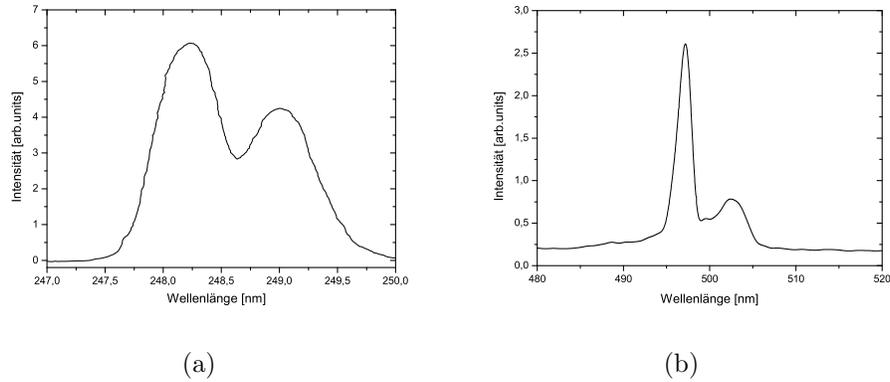


Abbildung 3.2: Emissionsspektren, a) KrF, Breite 1.3 nm, b) DFDL, Breite 1.5 nm

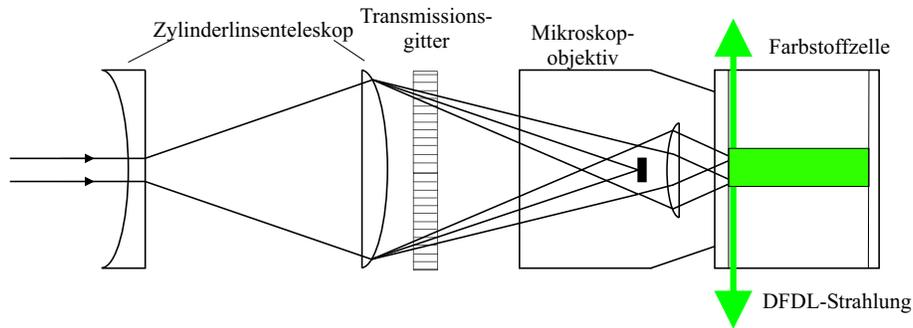


Abbildung 3.3: Schematischer Aufbau des Distributed Feedback Dye Lasers (DFDL).

Bereich erfolgt hierbei über eine Variation der distributed-feedback Struktur.

Der Schematische Aufbau des DFDL ist in Abbildung 3.3 dargestellt.

Der Pumpuls des DFDL aus dem SCDL wird durch ein Zylinderlinsenteleskop und durch ein Transmissionsgitter in die Bildebene eines Mikroskopobjektives abgebildet. Die 1. und -1. Gitterordnung werden in der Farbstoffküvette des DFDL überlagert. Die 0. Ordnung wird in der Bildebene geblockt. Das dabei erzeugte Interferenzmuster bewirkt eine räumliche Modulation der Verstärkung und des Brechungsindex der Farbstofflösung mit der Periode Λ . Der Interferenzabstand hängt dabei gemäß

$$\Lambda = \frac{\lambda_{SCDL}}{2 \sin(\theta^{DFDL})} \quad (3.1)$$

sowohl von der Pumpwellenlänge λ_{SCDL} , als auch von dem Winkel θ^{DFDL} ab, unter

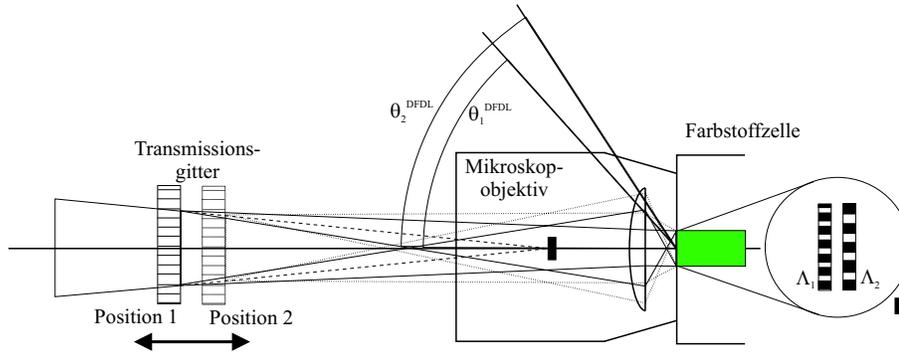


Abbildung 3.4: Überlagerungswinkel und Interferenzperiode für zwei Einstellungen der Gitterposition am DFDL. Index 1 entspricht einer kleinen Emissionswellenlänge, Index 2 einer großen.

dem sich die beiden Teilstrahlen überlagern. An der erzeugten Interferenzstruktur tritt Bragg-Reflexion der erzeugten Lichtwelle auf, wodurch eine optische Rückkopplung zustande kommt. Da diese Rückkopplung nicht an den Endspiegeln eines Laserresonators lokalisiert, sondern über die gesamte Länge des gepumpten Mediums verteilt ist, wird sie als verteilte Rückkopplung (distributed feedback) bezeichnet.

Es entstehen zunächst zwei schwache, gegenläufige Wellen, die in den invertierten Bereichen verstärkt und durch Bragg-Reflexion gekoppelt werden. Es resultiert eine schwache stehende Welle längs des Interferenzmusters. Für die erzeugte Wellenlänge λ_{DFB} des DFB-Lasers gilt

$$\lambda_{DFB} = 2n_{DFB}\Lambda = \frac{n_{DFB}}{\sin(\theta^{DFDL})}\lambda_{SCDL}, \quad (3.2)$$

wobei n_{DFB} der mittlere Brechungsindex der Farbstofflösung ist. Da die Pumpwellenlänge mit 365 nm festliegt, kann die Emissionswellenlänge nur noch durch den Überlagerungswinkel θ^{DFDL} eingestellt werden. Dies lässt sich durch Verschiebung des Gitters entlang der optischen Achse der DFDL-Pumpstrahlung erreichen, siehe Abbildung 3.4.

Der Abstand des Gitters von der Bildebene des Mikroskopobjektivs bestimmt, in welchem Maßstab das Gitter in die Farbstofflösung abgebildet wird. Hier wird die Interferenzperiode kleiner, je weiter das Gitter vom DFDL entfernt ist, entsprechend wird die Emissionswellenlänge des DFDL reduziert. Eine genaue theoretische Beschreibung von DFB-Lasern lässt sich in [Kneubühl und Sigrist 1995] finden. Nach der Verstärkung der DFDL-Pulse stehen im Spektralbereich zwischen 487 nm und 502 nm Pulsenergien von

mehr als $200 \mu J$ zur Verfügung. Diese Energien sind für die Frequenzverdopplung zum "Seeden" des Verstärkerkanals notwendig. Nach der Frequenzverdopplung verbleiben bis zu $120 \mu J$. Die Ausgangsenergie ist über den Durchstimmbereich nahezu konstant (Abbildung 3.5).

Für die UV-Pulse schränkt das KrF-Dimer den nutzbaren Durchstimmbereich durch sein Verstärkungsprofil entsprechend ein. Ist am DFDL eine Wellenlänge eingestellt, muss weiterhin noch die Phasenanpassung für die Frequenzverdopplung nachgestellt werden. Dazu muss der Kippwinkel des BBO-Kristalls unbedingt für jede Gitterposition optimiert werden. Andernfalls ist zwar die DFDL-Wellenlänge geändert, aber die Verdopplung für eine andere Wellenlänge eingestellt, so dass keine spektrale Verschiebung der UV-Ausgangswellenlänge stattfindet.

Zur Kalibrierung der Mikrometerschraube am Transmissionsgitter des DFDL wurden Spektren der DFDL-Emission und des frequenzverdoppelten nachverstärkten UV-Pulses bei verschiedenen Positionen des Transmissionsgitters mit einem Monochromator (Edinburgh 121S30M) und einer schnellen Photodiode (Thorlabs DET 200) aufgenommen.

Die Eichung des Monochromators erfolgte über einen Helium-Neon-Laser bei der Wellenlänge von 632.8 nm . Die Strahlung der DFDL-Emission und des KrF-Pulses wurde bis zum Gitter mit dem Strahl des He-Ne-Lasers überlagert. So konnte eine Auflösung des Monochromators von 0.1 nm erreicht werden.

Abbildung 3.6 zeigt zwei Spektren des KrF-Pulses nach der Verstärkung bei Wellenlängen von 247.6 nm bzw. 248.9 nm . Die Spektren haben eine Halbwertsbreite von ca.

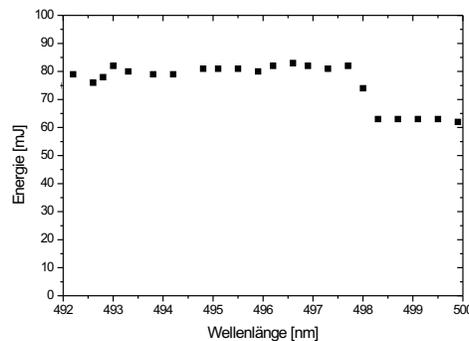


Abbildung 3.5: Pulsenergie der Nachverstärkten DFDL-Pulse.

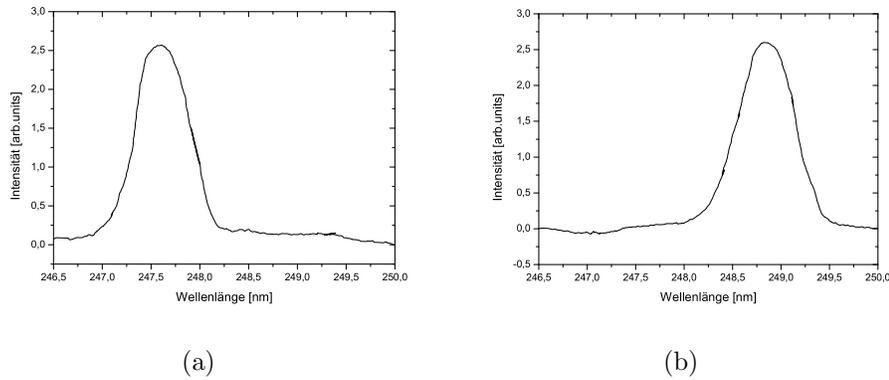


Abbildung 3.6: Spektren des KrF-Kurzpuls-Systems bei einer Wellenlänge von (a) 247.6 nm und (b) 248.9 nm.

1 nm.

Der gesamte Verstärkungsbereich ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Für diese Kurve wurde bei verschiedenen Wellenlängen die maximale Energie des Lasersystems gemessen und gegen die Wellenlänge aufgetragen. Inwieweit die unterschiedliche Struktur des Pulses bei unterschiedlichen Wellenlängen die behandelten Prozesse beeinflusst, wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht weiter untersucht.

Aus den Zentralwellenlängen dieser Spektren wurde schließlich eine Eichkurve erstellt (Abbildung 3.8), so dass die Laserstrahlung gezielt zwischen 480 nm und 508 nm, bzw.

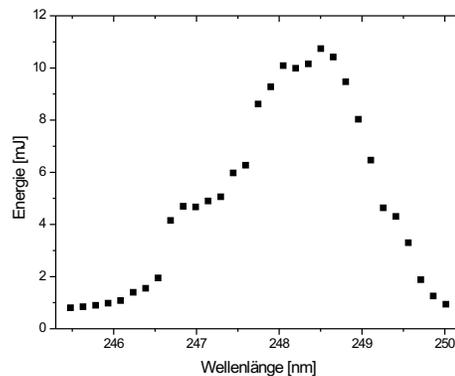


Abbildung 3.7: Ausgangsenergie und Verstärkungsbereich des KrF-Verstärkerkanals.

246.5 nm und 250 nm variiert werden konnte. Der Zusammenhang zwischen DFDL-Position und den hier relevanteren UV-Wellenlängen λ ergibt sich zu:

$$\lambda = 1,5115 \cdot \text{DFDL Position} + 238,11\text{nm.} \quad (3.3)$$

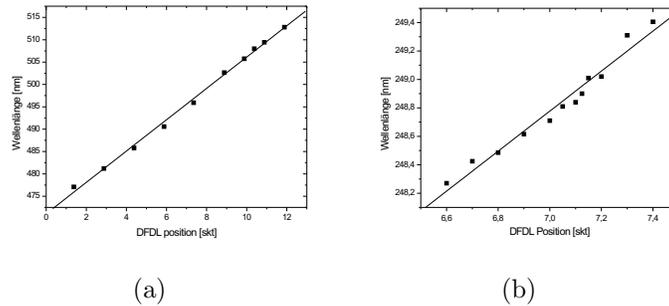


Abbildung 3.8: Abhängigkeit der Ausgangswellenlängen des Lasersystems von der Mikrometereinstellung des Transmissionsgitters vor dem DFDL. (a) DFDL-Wellenlänge, (b) verstärkte UV-Wellenlänge

Jedoch führen schon geringe Temperaturänderungen aufgrund der Wärmeausdehnung der Grundplatte, auf der die gesamte Farbstoffkette aufgebaut ist, zu einer Änderung des Abstandes zwischen Transmissionsgitter und der DFDL-Küvette. Durch diesen Umstand hängt die im DFDL erzeugte Wellenlänge von der Raumtemperatur ab. Eine Stabilisierung der Umgebungstemperatur ist daher für alle Experimente eine unablässige Voraussetzung. Die Eichkurve in Abbildung 3.8 ist daher nur gültig für eine Temperatur von 23° C, bei der die Spektren aufgenommen wurden.

Für eine genaue Bestimmung der Pumpwellenlänge müsste diese bei den Experimenten jedesmal mitgemessen werden. Dies ist allerdings mit den vorhandenen Monochromatoren und dem Messdatenerfassungssystem sehr aufwendig. Daher wurde ein einfacherer Weg gewählt, um eventuelle Fehler bei der Bestimmung der Pumpwellenlänge über die die DFDL-Einstellung auszuschließen. Bei allen Experimenten wurde die UV-Energie über einen Reflex vom Eintrittsfenster der Vakuumapparatur mitgemessen, so dass bei einer temperaturbedingten Verschiebung des Verstärkungsprofils in Bezug auf die DFDL-Mikrometereinstellung wieder auf die tatsächliche UV-Wellenlänge geschlossen werden konnte. Da aus der Messung einer einzelnen Ausgangsenergie nicht eindeutig auf die Wel-

lenlänge geschlossen werden kann, muss prinzipiell eine komplette Wellenlängenvariation erfolgen. Diese muss immer vor, und bei starken Temperaturschwankungen auch während der Experimente stattfinden. In der Praxis hat sich jedoch folgendes, einfacheres und zeitlich kürzeres Verfahren als effektiv erwiesen:

- 1) Energiemessung der verstärkten Pulse erfolgt zunächst für die aktuelle Einstellung der Mikrometerschraube.
- 2) Optimierung der Frequenzverdopplung durch Maximierung der KrF-Ausgangsenergie (Justage des BBO-Kippwinkels)
- 3) Mikrometerschraube in kleinen Schritten ($50 \mu m$) verstellen. Bei Temperaturen unterhalb der zuletzt bei bekannter Eichung vorherrschenden Temperatur zu größeren Werten (Gitter näher an den DFDL), bei höheren Temperaturen zu kleineren Werten.
- 4) Für jede Einstellung die Frequenzverdopplung optimieren, Ausgangsenergie messen und notieren
- 5) Bei eindeutiger Identifizierung des Maximums Mikrometerschraube auf diesen Wert stellen. Anschließend in größeren Schritten ($200 \mu m$) den Verstärkungsbereich durchfahren. Für jede Einstellung die Frequenzverdopplung optimieren.
- 6) Die so erhaltene Eichkurve kann direkt mit der oben angegebenen verglichen werden und gibt die neuen Einstellungen an.

In den Experimenten hat sich gezeigt, dass die Reproduzierbarkeit sehr gut war. Bei konstanten Temperaturen konnte auf diese aufwendige Prozedur verzichtet werden. Auch eine Verschlechterung der Gasfüllung des Verstärkerkanals machte sich nicht in einer Verschiebung der Ausgangswellenlänge bemerkbar.

3.2 Experimenteller Aufbau

Da Strahlung in Luft unterhalb von 200 nm vom Sauerstoff und unter 145 nm von Stickstoff absorbiert wird, erfolgt die gesamte Strahlführung im Vakuum. Abbildung 3.9 zeigt die verwendete Vakuumapparatur und die Strahlführung in einer schematischen Darstellung. Die Einkopplung des Pumpulses in die Vakuumapparatur erfolgte über ein Magnesiumfluoridfenster, das für den verwendeten Pumpwellenlängenbereich eine Transmission von etwa 92.2% aufweist.

Da das Eintrittsfenster nicht entspiegelt ist treten an den Oberflächen Reflexionen von jeweils etwa 4% auf.

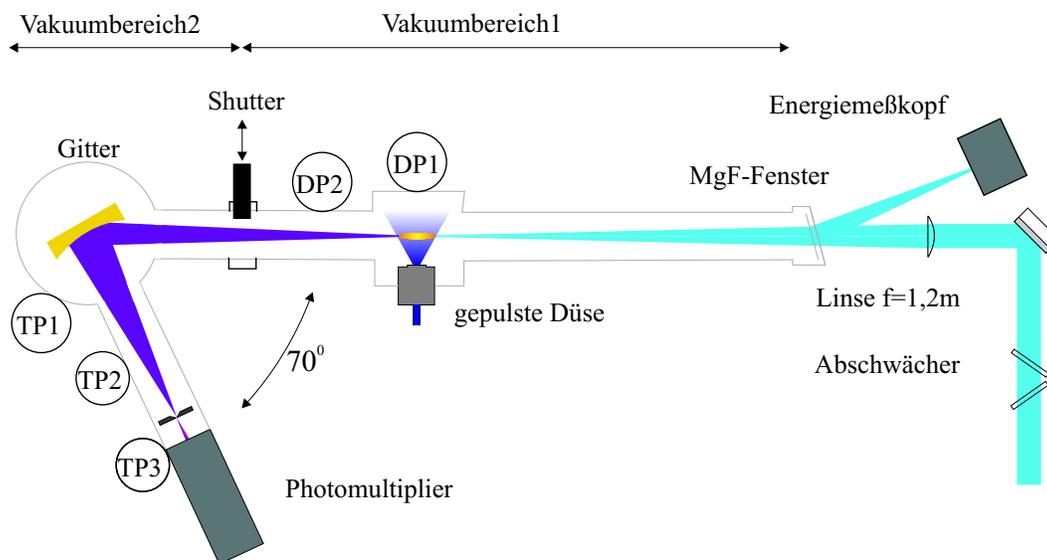


Abbildung 3.9: Vakuumanlage und Strahlführung. DP=Drehschieberpumpe, TP=Turbomolekularpumpe. Vakuumbereich 1 ist der Niedervakuumbereich mit der gepulsten Düse, Vakuumbereich 2 ist der Hochvakuumbereich, der das Gitter und den Detektor enthält.

Zur Anregung des Argons bzw. Xenons wurde der Puls des KrF-Femtosekunden-Lasersystems mit langbrennweitigen Quarzlinen vor die im übernächsten Abschnitt 3.3.2 beschriebenen Gasdüsen fokussiert. Zur Einstellung der Fokusposition sind die Linsen auf einen Verschiebetisch montiert. Auf die Fokussierungseigenschaften wird im folgenden Abschnitt 3.3 eingegangen. Die Intensität der Laserstrahlung konnte über dielektrische Abschwächer variiert werden. Kleinere Veränderungen der Energie wurden über die Spannungsversorgung des Lasersystems geregelt. Insgesamt standen für die Experimente nach den Umlenkspiegeln und dem Eintrittsfenster Pulsenergien bis zu 6.5 mJ zur Verfügung, in den Vorexperimenten zur Frequenzverdreifung aufgrund einer homogenen Gasentladung im KrF-Verstärkerkanal sogar bis zu 15 mJ .

Zur Trennung der emittierten Strahlung wurde ein selbstgebauter Monochromator im Seya-Namioka-Anordnung verwendet. Der Monochromator besitzt eine Armlänge von 1.2 m und einen konstanten Ablenkwinkel von 70° [Samson 1967]. Das Toroidgitter mit 1200 Linien pro Millimeter hat eine Fläche von $5 \text{ cm} \times 7 \text{ cm}$ und konnte mit Hilfe einer selbstgebauten Motorkonstruktion unter Vakuum bewegt werden. Zur Untersuchung der emittierten Strahlung wurde das Gitter in der negativen ersten Gitterordnung betrieben. Der Zusammenhang zwischen Drehwinkel und der selektierten Wellenlänge ist in diesem

Fall linear. Auf die Verwendung eines Eintrittspaltes wurde verzichtet, da die Wechselwirkungszone direkt in den vorderen Gitterfokus gelegt werden konnte. Durch die große Gitterfläche konnte auf diese Weise die gesamte erzeugte Strahlung auf den Austrittspalt abgebildet werden. Zur Aufzeichnung von Spektren, die durch den Motorantrieb ermöglicht wurden, wurde eine Spaltbreite von 0.2 mm gewählt. Zur Bestimmung von Ausgangsenergien wurde eine Spaltbreite etwa 2 mm gewählt. Diese erlaubte damit eine vollständige Transmission der in den einzelnen Prozessen erzeugten Strahlung.

Die gesamte Apparatur ist in zwei Bereiche unterteilt, dem Bereich 1, in dem sich die Düse befindet, und dem Bereich 2, der den Monochromator und die Detektion enthält. Der größte Teil des anfallenden Gases wurde direkt gegenüber der Drehdüse mit einer Drehschieberpumpe abgepumpt. So wurde im Vakuumbereich 1, der mit Hilfe eines Shuttters abgetrennt werden konnte, ein Druck bis zu 3×10^{-3} und im Vakuumbereich 2 bis zu $1,2 \times 10^{-4}$ erreicht. Der Shutter erwies sich bei der Justage des Aufbaus als äußerst nützlich, da bei laufenden Turbomolekularpumpen der Niederdruckbereich geöffnet werden konnte, um die Position des Pumplasers bezüglich der Düsenöffnung zu überprüfen. Zur Druckkontrolle wurde im Vakuumbereich 1 ein Edwards PRH-10-Druckmesskopf (Messbereich bis 1×10^{-3}) eingesetzt. Im Vakuumbereich 2 wurde zusätzlich ein weiterer Druckmesskopf (Edwards CP-25K, Messbereich von 1×10^{-3} bis 1×10^{-6}) verwendet, um auch Druckwerte bis zum Enddruck am Detektor aufzunehmen.

Der Vordruck für den Gaseinlass wurde mit einem Nadelventil geregelt und mit einem Vakuum-Meter (Greisinger Electronic GDH 12 AN) kontrolliert. Dieses Messgerät ist im Druckbereich von 1 mbar bis 2000 mbar geeicht, so dass sehr zuverlässige Vordrücke abgelesen werden konnten.

3.3 Fokussierung der KrF-Strahlung

Die Fokussierung der KrF-Pumplaserstrahlung erfolgte in den Experimenten mit zwei verschiedenen Linsen. Zur Bestimmung der Laserstrahl- und Fokussierungsparameter wurde zunächst die jeweilige Brennweite für die KrF-Laserstrahlung gemessen. Für die Vorexperimente zur Erzeugung der dritten Harmonischen in Argon wurde eine 2 m -Linse verwendet. Die reale Brennweite wurde zu $f = 1980\text{ mm}$ bestimmt.

Bei den weiterführenden Experimenten zur Erzeugung der dritten Harmonischen, bei der Erzeugung der fünften Harmonischen und für die Untersuchung der Vierwellenmisch-

prozesse in Xenon wurde eine 1200 mm-Linse eingesetzt. Die reale Brennweite betrug $f = 1300 \text{ mm}$.

Die Strahlprofile des DF DL-Laserpulses und des daraus erzeugten frequenzverdoppelten Laserpulses weisen in guter Übereinstimmung ein gaußförmiges Strahlprofil auf. Durch Phasenfrontverzerrungen in den Verstärkerfenstern und den im Strahlengang befindlichen Optiken kann für den verstärkten Puls nicht mehr von einem reinen Gaußprofil ausgegangen werden. Das Strahlprofil der verstärkten KrF-Laserstrahlung auf den jeweiligen Linsen hat eine Abmessung von $3 \text{ cm} \times 3 \text{ cm}$. Es entspricht näherungsweise einem homogenen Flattop-Profil [Feuerhake Dissertation].

Zudem verursacht das quadratische Profil in der Fokusebene ein Beugungsmuster der Form [Stöbel 1993]

$$I(x, y) = I_0 \frac{\sin(x)^2}{x^2} \frac{\sin(y)^2}{y^2}, \quad (3.4)$$

wobei I_0 die Spitzenintensität bezeichnet. Eine graphische Darstellung ist in Abbildung 3.10 zu sehen.

Zur Vereinfachung wird der zentrale Bereich durch eine gaußförmige Intensitätsverteilung angenähert. Hierin befinden sich aber nur 81.45% der gesamten Pulsenergie, wie

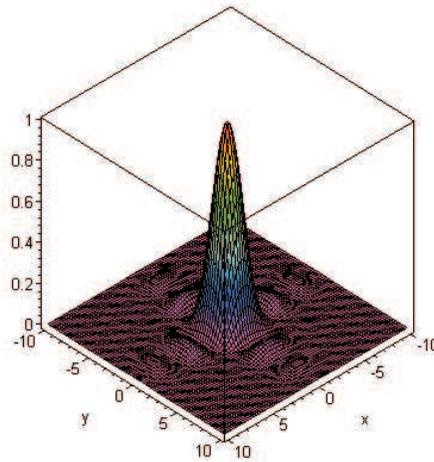


Abbildung 3.10: Berechnetes Beugungsbild im Fokus nach Gleichung 3.10 bei rechteckigem Strahlprofil

eine Integration bis zum ersten Minimum zeigt. Dies muss bei der Berechnung der in den jeweiligen Experimenten vorliegenden Intensitäten berücksichtigt werden.

Die Beschreibung eines gaußschen Strahls, wie sie bei der Diskussion der Phasenanpassung verwendet wurde, trifft allerdings auf reale Laserstrahlung nur selten zu. Phasenfrontverzerrungen und Abweichungen des Strahlprofils vom idealen Gaussprofil, z. B. durch Überlagerung mehrerer transversaler Strahlmoden, führen zu einer Verschlechterung der Fokussierbarkeit.

Dieser Tatsache kann pauschal durch Einführung des Strahlparameters M^2 Rechnung getragen werden, ohne dass dieser eine Beschreibung der Ursache der schlechteren Fokussierung geben würde. Er repräsentiert lediglich den Faktor, um den der Strahldurchmesser vom idealen gaußschen Strahl abweicht, vgl. [Siegmann 1990]. Daher soll im Folgenden ein Strahl mit einem $M^2 \neq 1$ als realer Strahl bezeichnet werden. In Abbildung 3.11 sind ein einfacher gaußscher Strahl mit $M^2 = 1$ und einer mit $M^2 = 1.5$ dargestellt.

Bei einem gaußschen Strahl ist die Abhängigkeit des Strahldurchmessers $w(z)$ von der Propagationskoordinate z gegeben durch 2.50 aus Kapitel 2.4.1:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2}, \quad (3.5)$$

mit der Strahltaille (Waist) $w_0 = w(0)$. Weit weg vom Fokus kann der Öffnungswinkel θ des Strahls angegeben werden durch

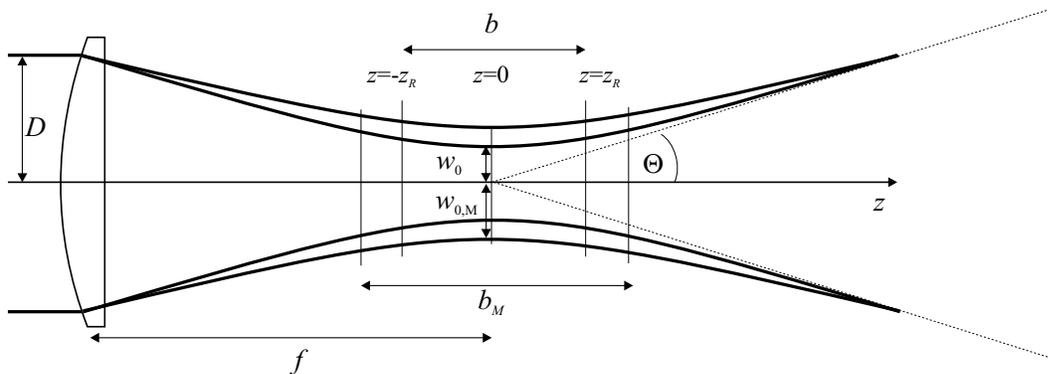


Abbildung 3.11: Gaußsche Strahlen mit fokussierender Linse für $M^2 = 1$ und $M^2 = 1.5$. Größen mit Index M beziehen sich auf $M^2 \neq 1$. Weiterhin ist $b_\omega = b$, da ω fest

$$\theta = \lim_{z \rightarrow \infty} \frac{w(z)}{z} = \frac{\lambda}{\pi w_0}, \quad (3.6)$$

was für Linsen großer Brennweiten f und kleine Winkel θ mit

$$\theta = \frac{\lambda}{\pi w_0} \simeq \frac{D}{2f} \quad (3.7)$$

angenähert werden kann. D ist der Strahldurchmesser auf der Linse.

Der Waist kann so einfach angegeben werden zu

$$w_0 = \frac{\lambda[\mu m] 2f[mm]}{\pi D[mm]} [\mu m]. \quad (3.8)$$

Die entsprechende Größen eines realen Strahls sollen im Folgenden mit dem Index M gekennzeichnet werden. Der Fokusradius $w_{0,M}$ ist in diesem Fall um M^2 größer, als beim gaußschen Strahl, $w_{0,M} = w_0 M^2$, die Profilform bleibt dabei erhalten. Das heißt, der reale Strahl wird wieder durch eine Gaußfunktion beschrieben, jedoch mit einem größeren Fokusradius. Aus der Bedingung, dass aber die Öffnungswinkel von realem und idealem Strahl die gleichen sind, also $\theta_M = \theta$, ergeben sich die relevanten Größen Strahldurchmesser $w_M(z)$ und Rayleigh-Länge $z_{ray,M}$ bzw. konfokaler Parameter $b_{\omega,M} = 2z_{ray,M}$ zu

$$w_M(z) = w_0 M^2 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right) M^2} \quad (3.9)$$

$$b_{\omega,M} = \frac{2\pi w_M(0)}{\lambda M^2}. \quad (3.10)$$

$$(3.11)$$

Um Angaben über den konfokalen Parameter und die erreichbaren Intensitäten machen zu können, ist die Kenntnis des Strahlparameters M^2 erforderlich. Dieser kann aus einer Bestimmung des tatsächlichen Fokusradius erhalten werden.

Die erreichbaren Intensitäten $I(r, z)$ lassen sich anschließend mit der Pulsenergie E_p und der Pulsdauer τ_p berechnen:

$$I(r, z) = 2 \frac{E_p}{\tau \pi w_M(z)^2} e^{-2r^2/w_M(z)^2}. \quad (3.12)$$

Im Fall der $f = 1980 \text{ mm}$ -Linse erfolgte die Vermessung über einen CCD basierten Beamprofiler "Mr Beam" von METROLUX. Der $1/e$ -Strahlradius konnte damit zu $27.1 \mu\text{m}$ bestimmt werden. Daraus ergibt sich ein M^2 von 2.6 und ein konfokaler Parameter von 0.74 cm . Bei einer Pulsenergie von maximal 14 mJ lässt sich eine über den Strahlquerschnitt gemittelte Intensität von $1.2 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ erreichen, wie der Darstellung 3.12(b) entnommen werden kann. Die radiale Energieverteilung ist in Abbildung 3.12(a) zu sehen. Die Berechnung der Intensitätsverteilung wurde unter Berücksichtigung der experimentell zugänglichen Parameter durchgeführt.

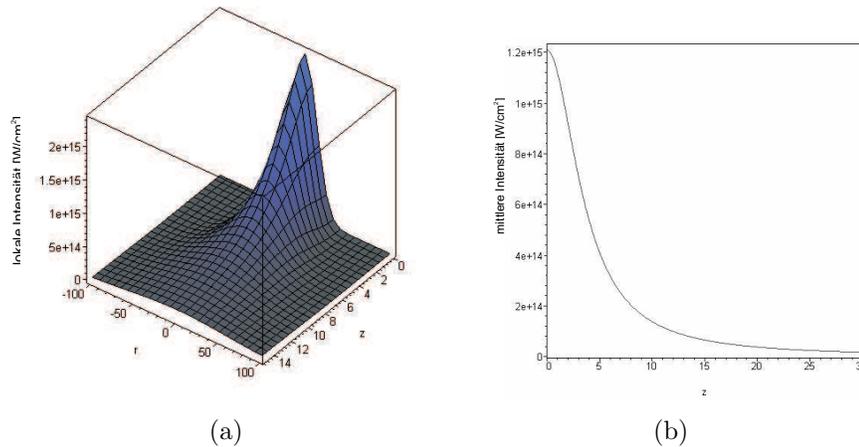


Abbildung 3.12: Berechnete Intensitätsverteilungen für die $f = 1980 \text{ mm}$ -Linse, Pulsenergie 14 mJ und $M^2 = 2.6$. (a) radiale Intensitätsverteilung, (b) über den Strahlquerschnitt gemittelte Intensitätsverteilung

Da der Beamprofiler für die Experimente mit der $f = 1300 \text{ mm}$ -Linse nicht mehr zur Verfügung stand, wurde hier ein anderes Verfahren angewendet, um zu einem verlässlichen Wert für den Strahldurchmesser zu gelangen. Der KrF-Laser bohrte dabei ein Loch in eine dünne Aluminiumfolie, bis die transmittierte Pulsenergie 50% der einfallenden Energie betrug. Abbildung 3.13 zeigt den berechneten Verlauf der transmittierten Energie in Abhängigkeit von der auf den $1/e$ -Strahlradius normierten Lochgröße a .

Bei einer Transmission von 50% entspricht der Lochdurchmesser dem 1.18-fachen des $1/e$ -Strahlradius. Die Messung der Lochgröße von $35 \mu\text{m}$ ergab so einen $1/e$ -Strahlradius von $30 \mu\text{m}$, woraus für den Laser ein M^2 von 4.5 folgt und ein konfokaler Parameter von 0.54 cm . Die berechnete Intensitätsverteilung ist in Abbildung 3.14(a) dargestellt. Bei einer maximalen Pulsenergie von 6 mJ kann eine über den Strahlquerschnitt gemittelte

Intensität von $4 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ erreicht werden, 3.14(b).

Der Strahlquerschnitt bei den Experimenten zur Vierwellenmischung wurde durch Schwärzung von gestrichenem Papier bestimmt, das an der entsprechenden Stellen in den Strahl gehalten wurde. Die Untersuchung der geschwärzten Fläche ergab ein quadratisches Profil mit einer Kantenlänge von 1.1 mm und einer nahezu homogenen Intensitätsverteilung.

Um die in den einzelnen Experimenten vorliegenden mittleren Intensitäten

$$I_M(z) = \left(\int_0^{R_q} dr \ 2 \frac{E_p}{\tau \pi w_M(z)^2} e^{-2r^2/w_M(z)^2} \right) / \left(\int_0^{R_q} dr w(z) \right). \quad (3.13)$$

abzuschätzen, muß berücksichtigt werden, dass die Strahlradien R_q der erzeugten Harmonischen $\omega_q = q\omega$ um \sqrt{q} kleiner sind, als die der Pumpstrahlung. Dadurch verkleinert sich der genutzte Strahldurchmesser und die Mittelung wird über einen kleineren Bereich um die optische Achse erstreckt.

Eine Verschiebung d des Fokus in Bezug auf das Medium bewirkt in erster Linie eine Reduktion der Intensität der Strahlung bei gleichzeitiger Vergrößerung der Querschnittsfläche. Die relevanten Größen sind in Tabelle 3.3 für die verwendeten Entfernungen d zur Fokusposition, die Linsen und die jeweiligen Strahlqualitäten dargestellt. In allen Fällen

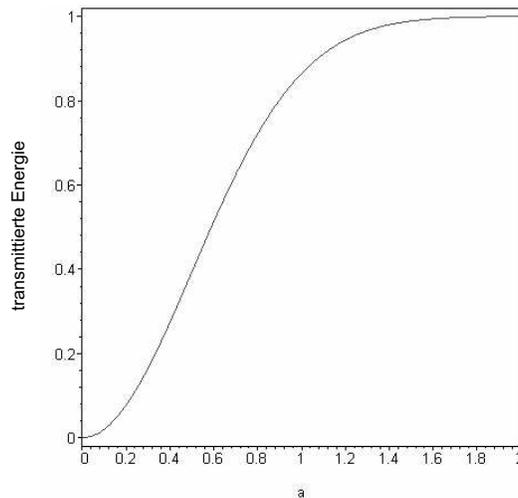


Abbildung 3.13: Abhängigkeit der durch ein Loch der Größe a transmittierten, normierten Energie. Die Lochgröße wurde auf den $1/e$ -Strahldurchmesser normiert

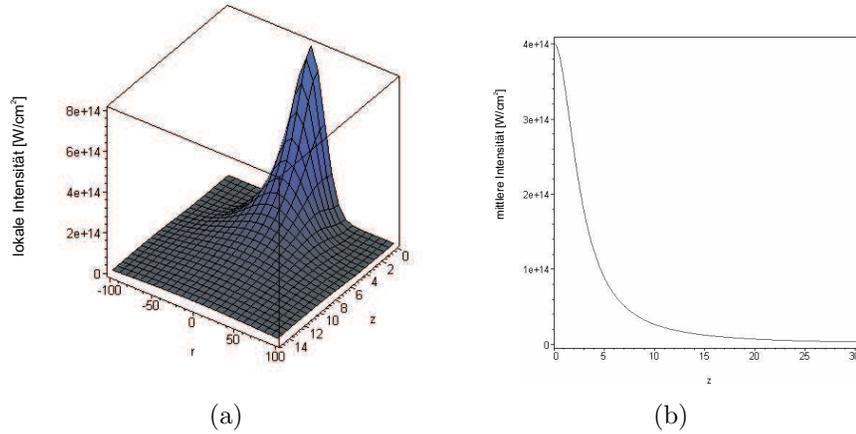


Abbildung 3.14: Berechnete Intensitätsverteilungen für die $f = 1300 \text{ mm}$ -Linse, Pulsenergie 6 mJ und $M^2 = 4.5$. (a) radiale Intensitätsverteilung, (b) über den Strahlquerschnitt gemittelte Intensitätsverteilung

f[mm]	q	$w_{0,pump}[\mu\text{m}]$	$w_{0,q}[\mu\text{m}]$	d[mm]	$w_q(d)[\mu\text{m}]$	$b_\omega[\text{mm}]$	$I_p(d)[\text{W cm}^{-2}]$
1980	3	$27 (M^2 = 2.6)$	15.5	12	116.2	7.4	6.3×10^{13}
1300	3	$30 (M^2 = 4.5)$	17.3	7	76.2	5.5	6.4×10^{13}
1300	5	$30 (M^2 = 4.5)$	13.4	0	13.4	5.5	5.2×10^{14}
1300	DFM	$30 (M^2 = 4.5)$	26.8	30	1100	–	1×10^{12}

Tabelle 3.1: Parameter der Fokussierung und erreichte Intensitäten bei den einzelnen Experimenten.

der $f = 1300\text{mm}$ -Linse wurde eine Pulsenergie von 6 mJ und für die $f = 1980\text{mm}$ -Linse wurde eine Pulsenergie von 14 mJ angenommen. $w_{0,pump}$ und $w_{0,q}$ sind die Radien der Pump- und der Harmonischenstrahlung, wovon letzterer für die Berechnung der Intensität benutzt wurde.

Das schlechtere M^2 in den weiterführenden Experimenten zur Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen ist auf eine Verschlechterung der Qualität der Gasentladung zurückzuführen. Verunreinigungen und Schäden an den Elektroden des Verstärkerkanals führten zu einer nicht zu beseitigenden Inhomogenität im räumlichen Profil der Entladung.

3.3.1 Detektoren und Energiemessung

Die Detektion der Prozesssignale ist nach den auftretenden Strahlungsbereichen und nach relativer und absoluter Energiemessung unterteilt. Die Energiemessung der KrF-Pumpstrahlung wurde dabei schon in den vorangegangenen Abschnitten erwähnt.

Für die Energiemessung sichtbarer und ultravioletter Laserstrahlung standen drei genormte pyroelektrische Energiemessköpfe zur Verfügung. GenTec ED-500 wurde für einen Energiebereich von 1 mJ bis 100 mJ verwendet und diente neben der Energiemessung der KrF-Kurzpulsstrahlung auch der Messung und Kontrolle der Energie des XeCl-Oszillators, um ein einwandfreies Arbeiten der Farbstoffkette zu garantieren.

Der Energiebereich von 10 μJ bis 1 mJ wurde von einem GenTec ED-200 abgedeckt. Dieser wurde ausschließlich zur Messung der Verstärkten DF DL-Strahlung verwendet und besitzt eine Empfindlichkeit von 20.83 $\mu J/mV$.

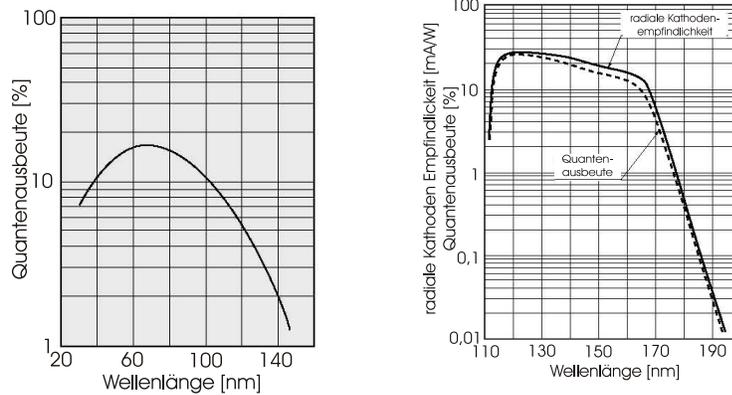
Zur Bestimmung von Pulsenergien bis hinunter zu 0.16 μJ kam ein GenTec ED-100A zum Einsatz. Neben der Detektion sichtbarer Strahlung wurde dieser Messkopf auch zu einer Energiemessung der parametrischen Signalstrahlung verwendet. Die angegebene minimale Energie ergibt sich hier aus der Auflösung von 8.07 $\mu J/mV$ und der kleinsten messbaren Spannung von 20 μV .

Die Messung der VUV-Signalstrahlung erfolgte durch einen mit einem dünnen LiF-Fenster abgeschlossenen Photomultiplier EMP Photoelectric 541G-08-18-03900 mit einer CsI-Photokathode. Er deckt einen Spektralbereich von 105 nm bis 195 nm ab und ist baugleich mit dem bekannteren Hamamatsu R1259. Seine Betriebsspannung liegt in allen Experimenten bei 2400 V .

Im Spektralbereich von 20 nm bis 120 nm wurde ein offener Photomultiplier Hamamatsu R596 mit Cu-BeO Photokathode verwendet. Er benötigt ein Vakuum von besser als 10^{-3} $mbar$ zur Vermeidung von Überschlägen und wird in den Experimenten, bei denen nur relative Signalintensitäten gemessen werden ebenfalls mit 2400 V betrieben. In Abb. 3.15 sind die Empfindlichkeitskurven der verwendeten Photomultiplier zu sehen [Hamamatsu Photonics K.K. 1999], [Hamamatsu Photonics K.K. 2002].

Wichtig ist hierbei, dass der offene Photomultiplier sowohl bei 83 nm als auch bei 50 nm die gleiche Quanteneffizienz aufweist, und so durch die beiden nachfolgend beschriebenen Detektoren für diese Wellenlängen bei einer Betriebsspannung von 2000 V über die Messung der Energie der dritten Harmonischen geeicht werden konnte.

Zur Bestimmung der absoluten Energie wurden für die dritte und fünfte Harmonische



(a) Hamamatsu R596 mit Cu-BeO Photokathode. (b) Hamamatsu R1259 mit CsI Photokathode.

Abbildung 3.15: Empfindlichkeitskurve der verwendeten Photomultiplier.

zwei Photodioden verwendet. Die eine ist eine selbstgebaute Diode mit einer polierten Aluminiumkathode und einem sehr feinen Edelmetz als Anode. Der Kathodendurchmesser beträgt 23 mm , so dass auf eine Refokussierung der erzeugten Strahlung verzichtet werden kann. Der prinzipielle Aufbau ist in 3.16 abgebildet.

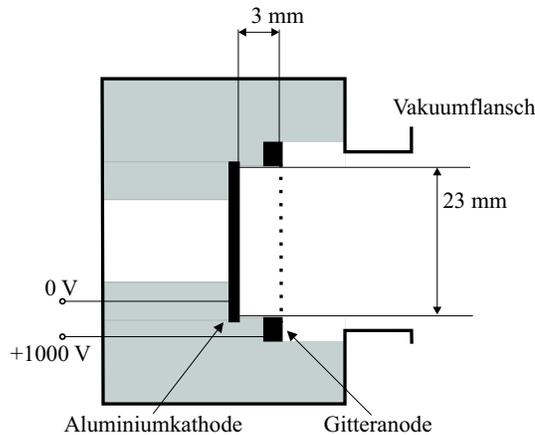


Abbildung 3.16: Schnitt durch die Vakuumphotodiode zur Bestimmung von Pulsenergien im XUV-Bereich.

Die Spannung zwischen Anode und Kathode betrug 1000 V . Die absolute Energie kann hier über die auf die Kathode treffende Photonenzahl N_γ bestimmt werden. Die durch den äußeren photoelektrischen Effekt herausgelösten Elektronen führen dabei zu

einem Spannungspuls U_0 der Zeitdauer τ (FWHM) am Abschlusswiderstand R eines Oszilloskopes. Bei bekannter Quanteneffizienz Q für die zu messende Wellenlänge ergibt sich die Pulsenergie zu

$$E_p = N_\gamma h\nu = \frac{1}{r} \frac{U_0 \tau h\nu}{eRQ}, \quad (3.14)$$

wobei h das Plancksche Wirkungsquantum, ν die Frequenz der Strahlung und e die Elementarladung bezeichnen. Die Quanteneffizienz beträgt im Fall der dritten Harmonischen 15% [Samson 1967]. Der Faktor $\frac{1}{r}$ beschreibt bei Verwendung von Filtern oder Gittern den Anteil der Strahlung, die den Detektor erreicht. Die oben angegebene Gleichung ist jedoch nur unter der Annahme richtig, dass Raumladungseffekte der herausgelösten Elektronen keine Rolle spielen. Sie führen dazu, dass ein Teil der Ladungen wieder in die Kathode zurückgedrückt werden und sind bei den in dieser Arbeit auftretenden Intensitäten nicht mehr zu vernachlässigen. Deshalb wurde analog zu den Messungen in [Liu 1995] bei einem Abschlusswiderstand des Oszilloskopes von $1\text{ M}\Omega$ mit einem Aluminiumfilter gearbeitet, der bei dieser Strahlung eine Transmission von 4×10^{-4} aufwies. Auf diese Weise konnten Pulsenergien bis mindestens $150\ \mu\text{J}$ gemessen werden.

Die Diode kann auch ohne Aluminiumfilter betrieben werden, wobei es aber gerade bei größeren Pulsenergien zu einer Raumladungswolke vor der Kathode kommen kann. Die Signalstärke ist in diesem Bereich auch noch linear von der Pulsenergie abhängig, nur kann die Energie nicht mehr nach Gleichung 3.14 berechnet werden.

Um diese Ergebnisse weiter abzusichern, wurde die Energie der dritten Harmonischen zusätzlich noch mit einer kommerziellen XUV-Photodiode AXUV-100 [E. M. Gullikson 1996] gemessen, wie sie bereits von anderen Gruppen zur absoluten Energiemessung eingesetzt wurde [Constant u. a. 1999]. Sie basiert auf dem inneren photoelektrischen Effekt und besitzt eine mit 1 cm^2 relativ kleine Detektionsfläche, so dass hier eine Refokussierung unerlässlich ist. Aus diesem Grund wurden beide Dioden zur Energiemessung hinter dem Austrittsspalt des Monochromators verwendet. Die AXUV-Diode kann ohne Vorspannung betrieben und die Signalspannung direkt am Oszilloskop gemessen werden. Zum Schutz vor langwelliger Strahlung ist eine 300 nm dicke Aluminiumschicht direkt auf die Detektorfläche aufgebracht. Die XUV-Pulsenergie ergibt sich laut Hersteller zu

$$E_\omega = \frac{1}{r} \frac{U_0 C}{ST}, \quad (3.15)$$

mit der Kapazität der Diode C , der Transmission der Aluminiumschicht $T = 2.7 \times 10^{-4}$

(bei 83 nm) und der spektralen Empfindlichkeit $S = 0.1A/W$. U_0 ist wiederum die gemessene Signalspannung und r beschreibt die Reflektivität des Gitters.

Die Bestimmung der Reflektivität des Toroidgitters ist deswegen ein wichtiger Punkt bei der Angabe absoluter Energiewerte. Wie bereits erwähnt, beziehen sich diese Werte nur auf die erste negative Gitterordnung.

Bei 83 nm wurde dazu die Harmonische selbst gewählt. Die oben beschriebene selbstgebaute Photodiode besitzt bei der Pumplaserwellenlänge nur eine Quanteneffizienz von 10^{-3} , so dass der KrF-Pumplaser und die erzeugte Strahlung Signale in der gleichen Größenordnung hervorrufen. Da außerdem die sensitive Fläche recht groß bemessen ist, konnte die dritte Harmonische auch direkt hinter der Wechselwirkungszone vermessen werden, wobei die verbleibende Pumpstrahlung lediglich einen Untergrund zu dem Signal der Harmonischen bildet. Messungen vor dem Gitter wurden in einem Abstand von 50 cm vom Medium durchgeführt, damit die gesamte generierte Harmonischenenergie die Diode traf. Zur Bestimmung der Signalstärke wurde an dieser Stelle sowohl mit und ohne Gas als auch mit Gas und zirkular polarisierter Pumpstrahlung gearbeitet, da bei dieser keine Harmonischenerzeugung auftritt. Danach wurde unter gleichen Bedingungen hinter dem Gitter gemessen und aus dem Verhältnis die Reflektivität zu $(8 \pm 1)\%$ bestimmt. Da das Gitter für diese Wellenlänge geblazed ist, kann er als verlässlich angenommen werden.

Um die Reflektivität in der Nähe von 50 nm zu bestimmen, wurde nach der gleichen Methode die fünfte Harmonische mit dem offenen Photomultiplier vermessen. Um Störungen durch die dritte Harmonische zu vermeiden, wurde zusätzlich ein Aluminiumfilter verwendet. Dieser hatte eine Transmission von 60% bei 50 nm, aber nur eine Transmission von 4×10^{-4} bei 83 nm [filtertransmission], so dass diese nicht mehr detektiert werden konnte. Da der anfallende Gasballast durch die arbeitende Düse in der Vakuumapparatur jedoch nach kurzer Zeit zu Überschlügen in dem Detektor führte, wurde die Messung mit einer Hohlkathodenemission in Helium bei 56 nm wiederholt. Der Öffnungswinkel der abgegebenen Strahlung wurde dabei durch eine Blende, die darüber hinaus den Gasdurchfluss minimiert, soweit reduziert, dass die Detektorfläche des offenen Multipliers gerade ausgeleuchtet wurde. Mit beiden Messungen konnte dabei eine Gittereffizienz von $(0.5 \pm 0.2)\%$ gemessen werden.

Da in den Experimenten jedoch meistens mit dem offenen XUV-Photomultiplier gearbeitet wurde, um auch schwächere Signale detektieren zu können, erwies es sich als nützlich, bei bekannten Signalstärken an der selbstgebauten Photodiode, und damit be-

kannter Energie der Strahlung, auch hier eine Eichung durchzuführen. Damit war über die Messung der Signalspannung des Multipliers bei fester Betriebsspannung direkt eine Aussage über die Pulsenergie der XUV-Strahlung möglich. Dabei ergab sich für Signale um 50 nm bzw. 80 nm folgender Zusammenhang:

$$\begin{aligned} 50nm : 1\mu J &\triangleq 19mV \\ 80nm : 1\mu J &\triangleq 5mV(\text{mit Alufilter}). \end{aligned}$$

Die Betriebsspannung des XUV-Photomultiplier betrug hierbei 2000 V.

3.3.2 Gasdüsen

Zur Injektion der Gase in die Vakuumapparatur dient ein kommerzielles gepulstes Ventil VAC-1250 PSI und ein Düsenkontroller Iote-One von General Valve Corporation. Dieses Ventil besitzt einen runden Gasauslass von 0.5 mm Durchmesser und wurde in allen Experimenten mit einer Öffnungszeit von 800 μs betrieben. Die Synchronisation mit dem Lasersystem erfolgte über eine Triggereinheit, die zwei Impulse mit variabler Verzögerung und einer Frequenz von 1, 2, 5 oder 10 Hz liefert. Die Anlage wurde bei Verwendung von Xenon mit 2 H betrieben, da sich bei höheren Taktfrequenzen zu viel Restgas in der Vakuumapparatur befindet und durch die sehr nahresonante Anregung die Messergebnisse verfälscht werden. Bei der Aufnahme der Spektren und bei den Experimenten zur Frequenzverdreifachung und -verfünffachung wurde mit einer Wiederholrate von 5 Hz gearbeitet. Das Ventil wurde so eingestellt, dass es 600 μs vor Ankunft des Laserpulses öffnete.

In den Vorxperimenten zur Erzeugung der dritten Harmonischen wurde das Gas aus dem Ventil durch ein 0.5 mm großes Loch im Ventilhalter in die Vakuumkammer injiziert. Dabei expandiert es sehr schnell und bildete eine kegelförmige Gasdichteverteilung aus. Die erreichte Wechselwirkungslänge in einer Entfernung von ca. 0.5 mm von der Düsenöffnung konnte in den Experimenten zu (1 ± 0.25) mm abgeschätzt werden. Details sind in Abbildung 3.17 dargestellt.

Um die Wechselwirkungslänge kontinuierlich variieren zu können, wurde ein spezieller Düsenkopf konstruiert, der eine Einstellung unter Vakuum erlaubt. Das Prinzip ist in Abbildung 3.18 zu sehen. In Teil 3.18(a) ist die Einstellmöglichkeit über die Gabel zu

sehen, in Teil 3.18(b) der Betrieb mit eingestellter Wechselwirkungslänge.

Es handelt sich dabei um eine schlitzförmig ausgeführte Gasöffnung, die in einen Aluminiumzylinder eingearbeitet ist. Die Abmessungen der Öffnung sind $5.5 \text{ mm} \times 0.2 \text{ mm}$. Der Zylinder ist an der dem Ventil zugewandten Seite hohl und bildet so einen Vorraum, der der Homogenisierung des von dem gepulsten Ventils abgegebenen Gasstrahls dient. Das Gas füllt zunächst den Vorraum und strömt dann gleichmäßig durch die Schlitzöffnung. Auf diese Weise ist es möglich, eine konstante Teilchendichte über die gesamte Länge des Schlitzes zu erzeugen. Der Zylinder ist drehbar und gasdicht auf den Vakuumteil des Ventilhalters montiert, der als ganzes in die Vakuumapparatur eingebaut wird. An der Drehdüse waren zusätzlich zwei Stifte befestigt, durch die mit Hilfe einer Gabel der Drehwinkel verändert werden konnte. Dadurch kann über den Winkel des Schlitzes bezüglich der Strahlachse die Wechselwirkungslänge kontinuierlich verändert werden, siehe Abbildung 3.19.

Der Gasstrom zeigt in dieser Darstellung aus der Papierebene heraus. Um aus dem Drehwinkel α der Düse auf die tatsächliche Wechselwirkungslänge l schließen zu können, wurde der KrF-Puls vor die Schlitzöffnung fokussiert, und so bei Betrieb der Düse ein Plasma erzeugt. Das Fluoreszenzleuchten des Plasmas wurde transversal bei verschiedenen Drehwinkeln mit einer CCD-Kamera Hamamatsu C4742-95 aufgenommen.

Abbildung 3.20 zeigt vier Aufnahmen des Plasmaleuchtens bei verschiedenen Drehwinkeln der Düse. Neben dem Düsenaufsatz und dem erzeugten Plasma ist im unteren Teil der Photos die Skala zu sehen, durch die der Drehwinkel abgelesen werden kann-

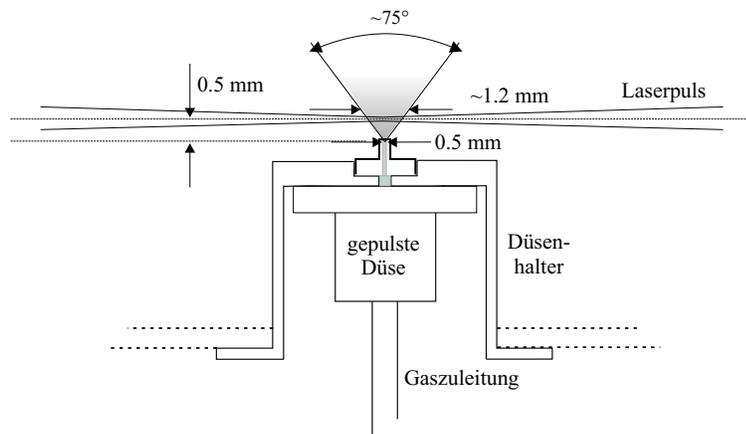


Abbildung 3.17: Schematische Darstellung der Lochdüse mit Gasverteilung.

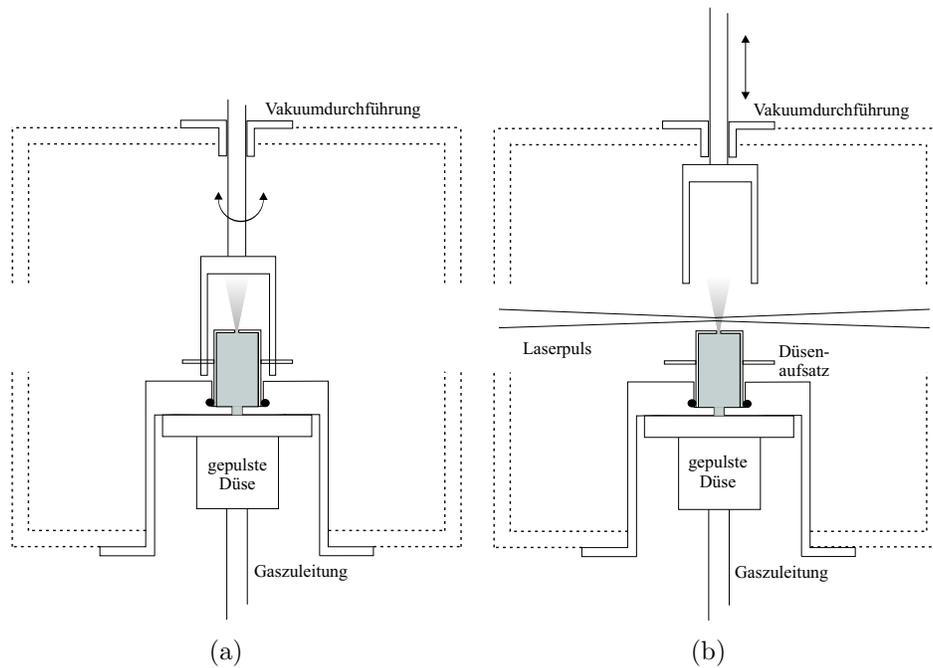


Abbildung 3.18: Schematische Darstellung der Drehdüse für (a) Einstellung und (b) Betrieb. Die Einstellung des Drehaufsatzes geschieht über eine Gabel gegenüber des Düsenkopfes, die über eine Vakuumdurchführung betätigt werden kann.

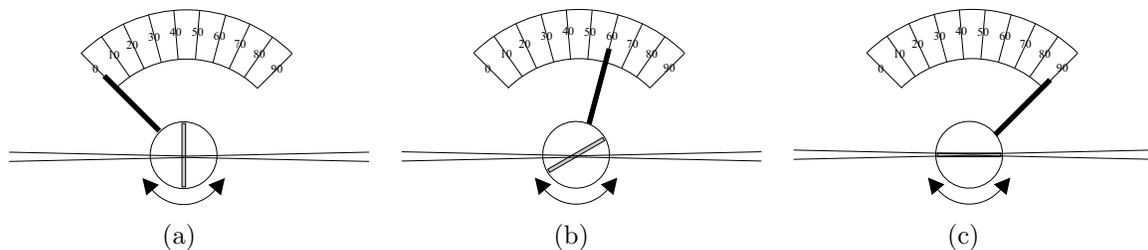


Abbildung 3.19: Schematische Sicht auf den Drehdüsenkopf bei verschiedenen Drehwinkeln.

te. Diese Bilder wurden mit dem Programm IrfanView 3.7 (Irfan Skijan) in Graustufen umgerechnet. Ein Schnitt auf der Höhe des Laserstrahls durch das Bild ergibt eine Intensitätsverteilung, die der Teilchendichte des Plasmas entspricht. Dies ist in Abbildung 3.21 dargestellt. Um eine Umrechnung der Bilddaten in tatsächliche Plasmalänge vornehmen zu können, wurde direkt unter der Düse ein Millimeterpapier plaziert. Dieses verursachte in den Randbereichen die Oszillationen in der Graustufenverteilung.

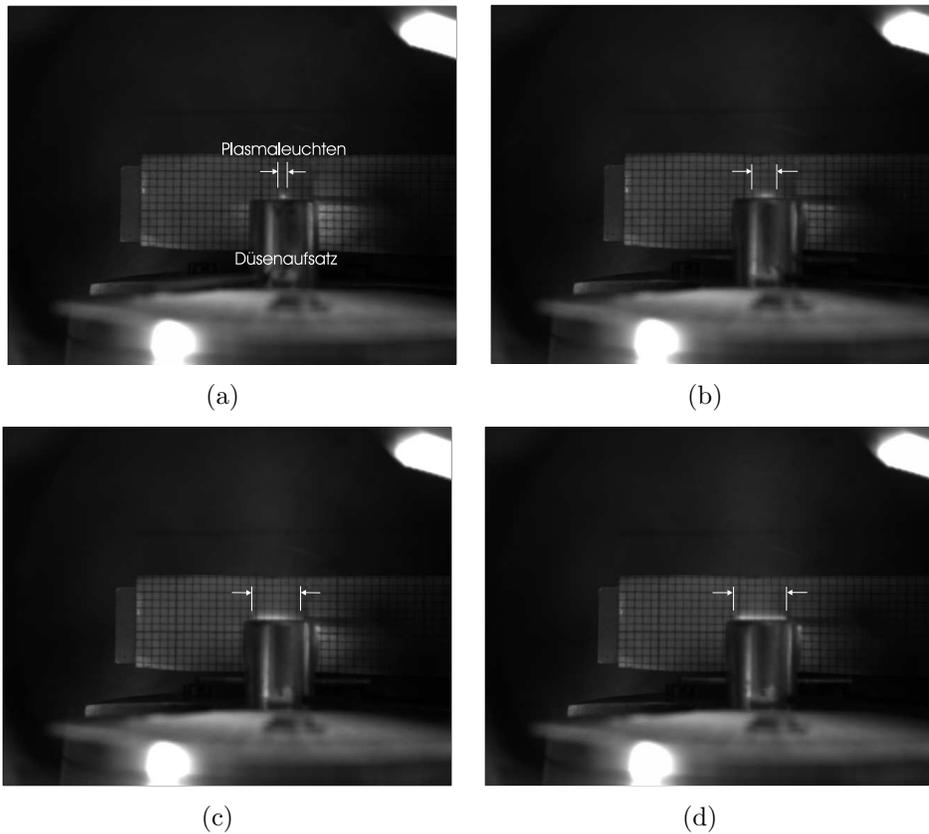


Abbildung 3.20: Aufnahmen des Plasmas bei einem Drehwinkel von (a) 0° , (b) 75° , (c) 85° und (d) 90° .

Die erhaltenen Längen sind allerdings noch durch den sehr geringen Abstand der Kamera zum Plasma verzerrt, so dass die realen Werte als etwas kürzer angenommen werden müssen. Da auch das Medium keine scharfen Grenzen aufweist, wurde die Winkeleichung mit den gemessenen Längen durchgeführt. Diese Werte wurden mit einer inhomogenen Ellipsengleichung angenähert (Abbildung 3.22), so dass sich für die tatsächliche Wechselwirkungslänge folgender Zusammenhang ergibt:

$$l = 1,18 \cdot \frac{0,65}{1 + 0,882 \cdot \cos\left(2 \cdot \alpha \cdot \frac{\pi}{90}\right)}. \quad (3.16)$$

Auf diese Weise erhält man als minimale Wechselwirkungslänge 1.25 mm und 6.7 mm als maximalen Wert. Für die Winkeleinstellungen sind die entsprechenden Wechselwir-

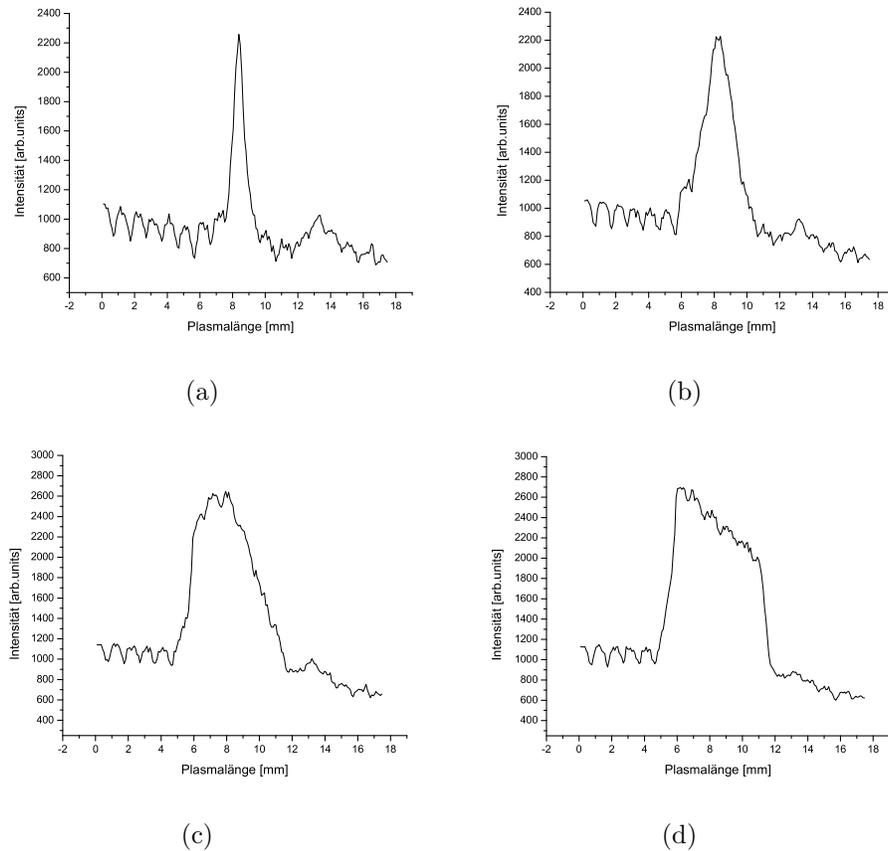


Abbildung 3.21: Intensitätsverteilungen des Plasmas bei einem Drehwinkel von (a) 0° , (b) 75° , (c) 85° und (d) 90° .

kungslängen in Tabelle 3.3.2 dargestellt. Die minimale Wechselwirkungslänge entspricht damit der Medienlänge, die mit der einfachen Lochdüse erreicht werden kann. Dies ermöglicht durch Signalvergleich der dritten Harmonischen des KrF-Kurzpulslasers eine Bestimmung der Teilchendichte. Hierauf wird in Abschnitt 3.3.3 eingegangen.

Da das Gas sehr schnell ins Vakuum expandiert und der Düsenstrahl Druck mit zunehmendem Abstand von der Düsenöffnung stark abnimmt, hängt die Teilchendichte in der Wechselwirkungszone insbesondere vom genauen Abstand des Laserstrahls von der Düsenöffnung ab. Abbildung 3.23 zeigt den Zusammenhang zwischen dem Abstand zur Düsenöffnung und der Signalstärke der dritten Harmonischen in Argon bei einem Vordruck von 500 *mbar* ([Nolte 1995]).

Die Experimente wurden bei einem mittleren Abstand des Pumpstrahls von ca. 0.75

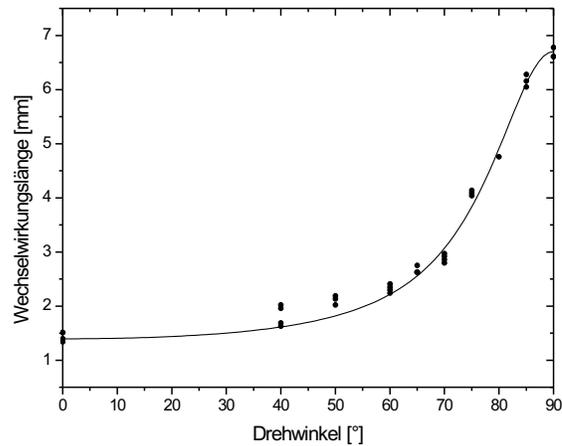


Abbildung 3.22: Eichkurve der Drehdüse mit theoretischer Kurve nach Gleichung 3.16.

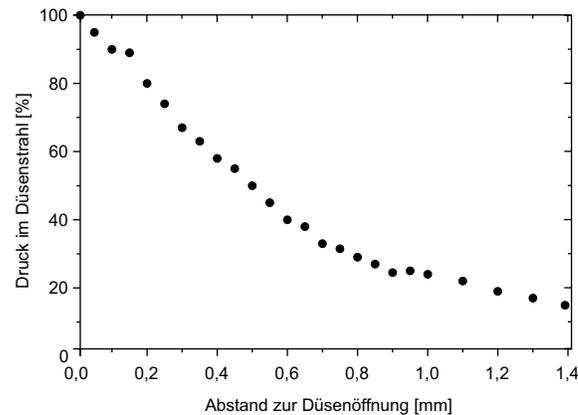


Abbildung 3.23: Zusammenhang zwischen Düsenstrahlendruck und Abstand zur Düsenöffnung in Argon bei einem Vordruck von 580 mbar.

mm zur Düsenöffnung durchgeführt.

3.3.3 Bestimmung der Teilchendichte

Da in den Experimenten mit der gepulsten Düse nur der Vordruck in der Gasleitung gemessen wurde, muss ein Zusammenhang zwischen dem Vordruck und der Gasdichte im Wechselwirkungsbereich ermittelt werden. In [Nolte 1995] wurden Untersuchungen des Zusammenhangs zwischen Vordruck und Düsenstrahlendruck vorgenommen, aus denen

Drehwinkel [°]	Wechselwirkungslänge [mm]
0	1.25
40	1.57
50	1.74
55	1.95
60	2.34
65	2.68
70	3.18
75	3.93
80	4.98
85	6.13
90	6.70

Tabelle 3.2: Abhängigkeit der Wechselwirkungslänge vom Drehwinkel des Düsenkopfes in Bezug auf die Strahlachse.

hervorgeht, dass der Düsenstrahl Druck bei ähnlichen Düsenkonzepten etwa 5% des Vor drucks beträgt. Dabei wurde die transversale Plasmastrahlung des verwendeten Gases bei laufender Düse mit der Strahlung aus derselben Zelle bei einem statischen Gasdruck verglichen. Für diese Messungen wurde ein Titan-Saphir-Laser mit einer Pulsdauer von rund 200 ps verwendet, um eine durch den Kerr-Effekt bedingte Selbstfokussierung und damit eine Verschiebung des Fokus zu vermeiden. Die Genauigkeit wurde hierbei zu 20% angegeben.

Da in den hier beschriebenen Experimenten die Pulsdauer des Pumplasers nicht verändert werden konnte, war eine Fokusverschiebung zwischen dem Düsenbetrieb und einem statischen Gasdruck in der Vakuumapparatur nicht zu vermeiden, womit diese Möglichkeit zur Teilchendichtebestimmung ausschied. Es wurden deshalb zwei andere Methoden benutzt, um Aussagen über den Gasdruck in der Wechselwirkungszone zu erhalten.

Die erste ist eine interferometrische Methode, die bei der Bestimmung der Teilchendichte der einfachen Lochdüse angewandt wurde. Hierbei wurde mit Hilfe eines Michelson-Interferometers die Phasenverschiebung eines kollimierten Laserstrahls durch den Gasstrahl gemessen (siehe [Dölle u. a. 2002] und [Dölle Dissertation]). Der Laserstrahl durchläuft dabei in einem Arm des Interferometers zweimal den Gasstrahl und wurde anschließend mit dem ungestörten Referenzstrahl aus dem zweiten Arm überlagert. Die dabei auftretende Phasenverschiebung im Interferenzstreifenmuster liefert bei bekannter Wechselwirkungslänge, die über das Leuchten des Plasmas zu 1.25 mm bestimmt werden

konnte, den zur Teilchendichte proportionalen Brechungsindex. Da diese Art der Düse nur in den Experimenten zur dritten Harmonischen Verwendung fand, wurde hierbei nur Argongas eingesetzt. Es wurde so festgestellt, dass der Druck in der Wechselwirkungszone nur noch 2.3% des eingestellten Vordrucks beträgt.

Bis zu einem Vordruck von etwa 8 *bar* kann bei diesem Düsenkonzept von einem linearen Zusammenhang zwischen Vordruck und tatsächlicher Teilchendichte ausgegangen werden. Dies wurde durch ergänzende Messungen am Laser-Labor Göttingen durch Fluoreszenzmessungen mit einem Aceton-Stickstoff-Gemisch gezeigt. Zur Anregung wurde das von der Düse in die Vakuumapparatur injizierte Gemisch transversal zur Beobachtungsrichtung mit einem frequenzverdoppelten Nd-YAG-Laser beleuchtet, wobei der Gasstrahl ebenfalls senkrecht zur Beobachtungsrichtung orientiert war ([Dölle Dissertation]).

Diese Ergebnisse stehen auch mit theoretischen Simulationen in Einklang, die zur Interpretation des Verhaltens der dritten Harmonischen bei Verwendung dieser einfachen Lochdüse angestellt wurden (Kapitel 4.3.1). Der Wert für das Verhältnis von tatsächlichem Druck zu Vordruck kann daher als verlässlich angesehen werden.

Bei der Verwendung der Drehdüse wurde die Teilchendichte bzw. der Gasdruck in der Wechselwirkungszone für Argon über die Signalstärke der dritten Harmonischen im Vergleich zur Lochdüse bestimmt. Dazu wurden hier gleiche Bedingungen realisiert, d. h. es wurde bei gleichem Vordruck von 500 *mbar* und gleicher Fokussierung die kürzeste Wechselwirkungslänge eingestellt. Da die Fehler in der Bestimmung der Länge bei 0.2 *mm* liegen, stimmen die Medienlängen von Loch- und Drehdüse im Rahmen der Messgenauigkeit überein. Es wurde so ein um 70% geringeres Signal bei der Drehdüse detektiert, was auf eine um 45% reduzierte Teilchendicht hinweist ($I \sim N^2$). Als Verhältnis von tatsächlichem Druck zu Vordruck ergibt sich so ein Faktor 0.013.

Nach einer Reinigung des Teflonverschlusses des Ventils und anschließender Neueinstellung des Öffnungsverhaltens konnten sogar Teilchendichten bis $1.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ bei einem Vordruck von 2 *bar* realisiert werden. Dies entspricht einem Verhältnis von tatsächlichem Druck zu Vordruck von 0.024. Diese Einstellung wurde ausschließlich bei den Experimenten zur Harmonischenerzeugung angewandt (Kapitel 4.3.2 und 4.4.1).

Die Umrechnungsfaktoren und die Gültigkeitsbereiche sind noch einmal in Tabelle 3.3.3 zusammengefasst.

Eine weitere Möglichkeit bietet die spektral aufgelöste Emission des selbststartenden Vierwellenprozesses, der in Kapitel 5 beschrieben wird. Die über den Raum integrierte

Design	Experiment	Faktor	Druckbereich [mbar]
Loch	$3\omega, Ar$	0.023	8000
Dreh	$3\omega, Ar$	0.024	2000
Dreh	$5\omega, Ar$	0.024	2000
Dreh	DFM, SFM, Xe	0.013	1200

Tabelle 3.3: Vordrücke und Umrechnungsfactoren zur Bestimmung der Teilchendichte für die Verwendeten Düsen und die einzelnen Experimente.

spektrale Verteilung zeigt dabei eine starke Druckabhängigkeit. Dadurch ist es möglich über den Vergleich der Spektren aus der Düse mit denen einer statischen Zelle eine Aussage über die Teilchendicht in der Wechselwirkungszone der Düse zu bekommen. Auf diesen Zusammenhang wird in Abschnitt 5.2.1 noch einmal eingegangen.

4 Effektive Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen von 248.5 nm in Argon

Im Folgenden werden Untersuchungen zur effektiven Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen von KrF-Kurzpuls laserstrahlung beschrieben. Eine besonders hohe Effizienz lässt sich in Prozessen niedriger Ordnung erreichen, wenn in nichtlinearen Medien geeignete Resonanzen ausgenutzt werden können, und wenn die erzeugte Strahlung nicht reabsorbiert wird. Desweiteren ist Phasenanpassung erforderlich, wozu wiederum eine geeignete Lage von Resonanzen von Bedeutung ist. Für die Verdreifachung von KrF-Strahlung ist Argon als nichtlineares Medium besonders geeignet, da hier eine nahresonante Dreiphotonenanregung möglich ist. In 4.1 ist eine Übersicht über die Energieniveaus und die Ionisationspotentiale der Edelgase in Verbindung mit der Dreiphotonenanregung durch die KrF-Wellenlänge von 248.5 nm abgebildet.

Anhand dieser Abbildung wird klar, dass sich unter den Edelgasen Argon besonders gut als Medium zur Frequenzverdreifachung eignet, da es neben der Dreiphotonenresonanz mit 15.76 eV ein so hohes Ionisationspotential besitzt, dass eine limitierende Reabsorption der generierten Strahlung vermieden wird.

Helium, Neon und Krypton haben aufgrund des Fehlens von Resonanzen in diesem Bereich eine geringe Polarisierbarkeit, Xenon weist zwar Zustände in der Nähe einer Zweiphotonenresonanz auf, die ebenfalls zu einer erhöhten Suszeptibilität führen, hat mit 12.13 eV aber ein geringeres Ionisationspotential, so dass hier starke Absorption der dritten Harmonischen auftritt.

Denkbar ist in Hinsicht auf die Resonanzstruktur und das Ionisationspotential auch das einfach ionisierte Siliziumion Si^+ als Medium zur Frequenzverdreifachung, da es ebenfalls eine nahresonante Dreiphotonenanregung erlaubt [Frost 1994]. Der experimentelle Aufwand zur Erzeugung des notwendigen Ablationsplasmas ist allerdings höher, und die dabei entstehenden Elektronen können einen störenden Einfluss auf die Phasenanpassung haben. Weiterhin können in Ablationsplasmen Inhomogenitäten durch Clusterbildung auftreten, die zu starken Signalschwankungen führen können [Egbert 1999]. Für

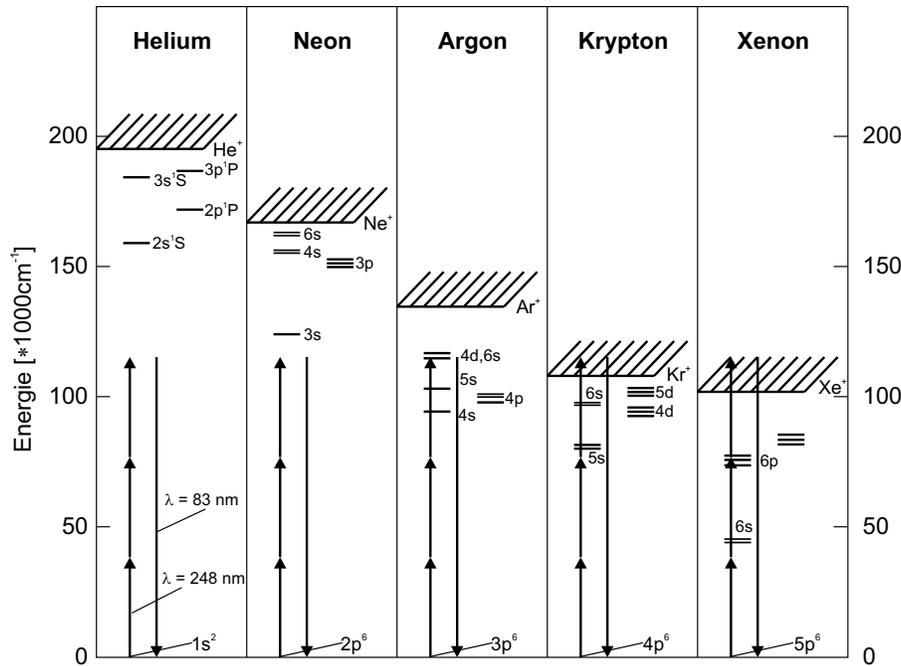


Abbildung 4.1: Vereinfachte Energieniveauschemata der Edelgase bei Drei-Photonen Anregung mit KrF-Kurzpuls laserstrahlung.

Metalldämpfe kann zwar in einer Heatpipe eine homogene Verteilung des Mediums erreicht werden, allerdings ist auch hier der apparative Aufwand zum Nachweis der XUV-Strahlung recht groß. Molekül-gase, wie z.B. Kohlenmonoxid CO , kommen durchaus in Frage, weisen allerdings kompliziertere Niveaustrukturen auf. Dies würde die Interpretation der Ergebnisse in Bezug auf eventuelle Niveaushiftungen erschweren. Daher soll in den Experimenten zur Frequenzverdreifachung ausschließlich Argon als nichtlineares Medium angewendet werden.

In Experimenten zur Frequenzverdreifachung konnte in [B. Wellegehausen 1996a] eine Ausgangsenergie von $14 \mu J$ und eine Konversionseffizienz von 0.2 % gemessen werden. Diese waren Ausgangspunkt für die in [Dölle u. a. 2002] beschriebenen grundlegenden Untersuchungen zur Optimierung der Frequenzverdreifachung der KrF-Kurzpulsstrahlung in Argon. In [C. Dölle 2003] wurden weiterhin Möglichkeiten der spektralen Phasen-anpassung diskutiert.

In vorangegangenen Experimenten in Zusammenarbeit mit dem Laser-Labor Göttingen konnte so eine Konversionseffizienz von 0.7 % für die dritte Harmonische in Argon

demonstriert werden. Dabei wurde eine Ausgangsenergie von maximal $100 \mu J$ erreicht. Diese Untersuchungen sind im Detail in [Dölle Dissertation] beschrieben.

Anknüpfend an diese Untersuchungen soll hier die Effizienz und die Energie der dritten Harmonischen weiter gesteigert werden. Dies soll vor allem durch eine Optimierung der Wechselwirkungslänge, der Teilchendichte und damit der Phasenanpassung geschehen. Auf neue Aspekte dieser Experimente hinsichtlich der Ionisation des Mediums wird in Abschnitt 4.3.1 eingegangen.

In der vorliegenden Arbeit wird ausgehend von diesen Ergebnissen die Untersuchung zur Konversionssteigerung dahingehend erweitert, dass ponderomotive Verschiebungen der beteiligten Zustände berücksichtigt werden [P. Mulser]. Dieser Aspekt wurde in experimentellen Arbeiten gerade zur Erzeugung niedriger Harmonischer wenig berücksichtigt. Theoretische Untersuchungen zu diesem Problem wurden von Maquet et al. [M. L. Pons 1996] mit *ab initio* Floquet-Berechnungen durchgeführt, wo sich ein deutlicher Einfluss bei der Harmonischerzeugung von KrF-Kurzpulsstrahlung in Argon abzeichnete. Weiter theoretische Untersuchungen finden sich in [E. S. Toma 1999] und [C. Figuiera de Morisson Faria 2002]. Die Intensitätsabhängigkeit von hohen Harmonischen der Titan:Saphir-Wellenlänge sind in [E. S. Toma 1999] beschrieben.

Hier soll unter Ausnutzung von Phasenanpassung und einer größeren Wechselwirkungslänge durch Verwendung des Drehdüsenkonzeptes (siehe Abschnitt 3.3.2) die Niveauverschiebung bei Erzeugung der dritten Harmonischen von KrF-Kurzpulsstrahlung in Argon untersucht werden. Eine Darstellung der Experimente erfolgt in Abschnitt 4.3.2, eine theoretische Modellierung in Abschnitt 4.3.3. Es zeigte sich in den Untersuchungen, dass für eine effektive Erzeugung der dritten Harmonischen eine Ionisation des nichtlinearen Mediums vermieden werden muss.

Die Ergebnisse, nämlich die Möglichkeiten der Ausnutzung von Resonanzen und die Vermeidung von Reabsorption, sollen schließlich auch für die effektive Erzeugung der fünften Harmonischen angewendet werden.

Grundlegende Untersuchungen zur Frequenzverfünffachung der KrF-Kurzpulsstrahlung in Argon und Neon wurden in [R. Rosmann 1988] veröffentlicht. Hierbei konnte in Argon eine deutliche Steigerung der Ausgangsenergie beim Erreichen der Ionisationsschwelle bei einer Variation der Pumplaserenergie festgestellt werden. Die Harmonischerzeugung in Ionen wurde u. a. von [S. G. Preston 1996] und [S. Kubodera 1993] beobachtet und beschrieben. Die Edelgase wurden hinsichtlich der Effizienz der Verfünffachung in [D. Yoshitomi 2002] untersucht. Dabei wurde eine höchste Ausgangsenergie von $1.2 \mu J$

in Neon in einer quasistatischen Gaszelle festgestellt. Auf den Einfluss der Ionisation des Mediums wurde allerdings nicht weiter eingegangen.

Die Frequenzverfünffachung findet in den Edelgasen ausschließlich oberhalb der Ionisationsgrenze statt, so dass in der neutralen Spezies nur geringe Ausgangsenergien zu erwarten wären. Die nahen Resonanzen können allerdings zu einer Überhöhung der nichtlinearen Antwort des Mediums und so zu einem Anwachsen der Emissionsraten aller Harmonischen führen ([E. S. Toma 1999], [M. B. Gaarde 2001] und [C. Figuera de Morisson Faria 2002]). Weiterhin kann der Erzeugungsprozess in Ionen betrachtet werden, wenn dabei der Einfluss der Elektronen auf den Brechungsindex und somit auf die Phasenanpassung berücksichtigt wird. Vereinfachte Termschemata sind analog zu 4.1 in Abbildung 4.2 dargestellt.

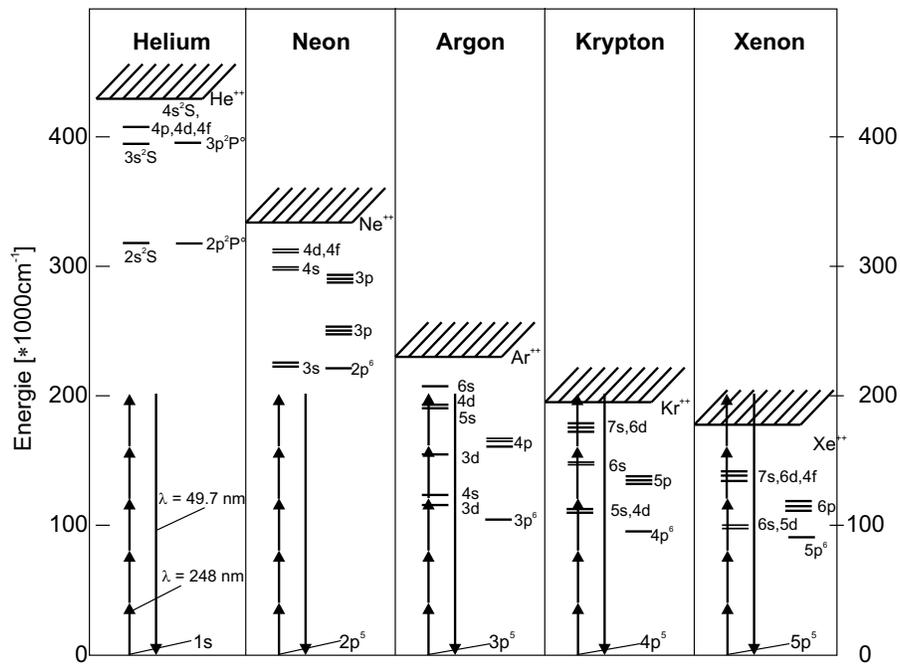


Abbildung 4.2: Vereinfachte Energieniveauschemata der Edelgaseionen bei Fünf-Photonen Anregung mit KrF-Kurzpuls laserstrahlung.

In den Experimenten zeigte sich eine hohe Ausgangsenergie der fünften Harmonischen in Argon beim Erreichen der ersten Ionisierungsenergie. Da sowohl Argon als auch Argonionen Resonanzen für die KrF-Pumpstrahlung aufweisen und sich dabei ein Vergleich mit der dritten Harmonischen in Argon anbietet, zeigt sich dieses Gas als interessanter

Zustand $3s^23p^5(^2P_{1/2}^o)$	Energie [eV]	Frequenz [$10^{16}s^{-1}$]	Wellenlänge [nm]	A [10^8s^{-1}]	$\delta\lambda$ [$10^{-6}nm$]	f
6s	15.023	2.2825	82.5346	23.64	8.5	0.0221
4d	15.005	2.2797	82.6365	7.29	2.6	0.0209
4d	14.860	2.2577	83.4392	7.66	2.8	0.0484
6s	14.849	2.2560	83.5002	37.47	13.0	0.0144
4d	14.712	2.2352	84.2805	21.16	7.9	0.0019

Tabelle 4.1: Zustände und Oszillatorenstärken für die Frequenzverdreifachung.

Kandidat für die folgenden Untersuchungen zur Frequenzvervielfachung. Andere Gase, Plasmen und Dämpfe wurden an dieser Stelle nicht untersucht.

Das einfach geladene Argonion besitzt Zustände in der Nähe der Fünfphotonenanregung durch die KrF-Kurzpulsstrahlung, welche zu einer erhöhten Suszeptibilität führen können. Zudem zeigen sich noch weitere Resonanzen bei einer Drei- und Vierphotonenanregung. Zur Interpretation werden die Ergebnisse zur Niveaushiftung aus den Experimenten zur dritten Harmonischen angewendet. Auch hierbei wird eine Steigerung der Konversionseffizienz durch Phasenanpassung unter Ausnutzung einer größeren Wechselwirkungslänge untersucht.

4.1 Grundlagen der Frequenzverdreifachung in Argon

In diesem Abschnitt werden die für die Frequenzverdreifachung wichtigen Eigenschaften von Argon zusammengefasst. Die bei der Verdreifachung relevanten Niveaus, ihre Übergangsfrequenzen und zugehörigen Wellenlängen, die Einstein-A Koeffizienten, die daraus resultierenden Linienbreiten $\Delta\lambda$ und ihre Oszillatorstärken f (nach [Chang u. a. 1992]) sind in Tabelle 4.1 dargestellt. Die Basiskonfiguration ist $3s^23p^5(^2P_{1/2}^o)$.

Das Termschema für die Frequenzverdreifachung ist in Abbildung 4.3 gezeigt, in dem die der Dreiphotonanregung nächsten Niveaus eingezeichnet sind.

Im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich, fern ab von atomaren oder ionischen Resonanzen, kann der Brechungsindex vereinfacht mit einer Sellmeier-Gleichung nach [A. Bideau-Mehu 1981] ausgerechnet werden, deren Parameter durch Fabry-Perot-Interferometrie für einen Druck von 1 bar (760 torr) und eine Temperatur von 0 °C bestimmt worden sind. Für Argon ergibt sich so bei 1 bar ein Brechungsindex von

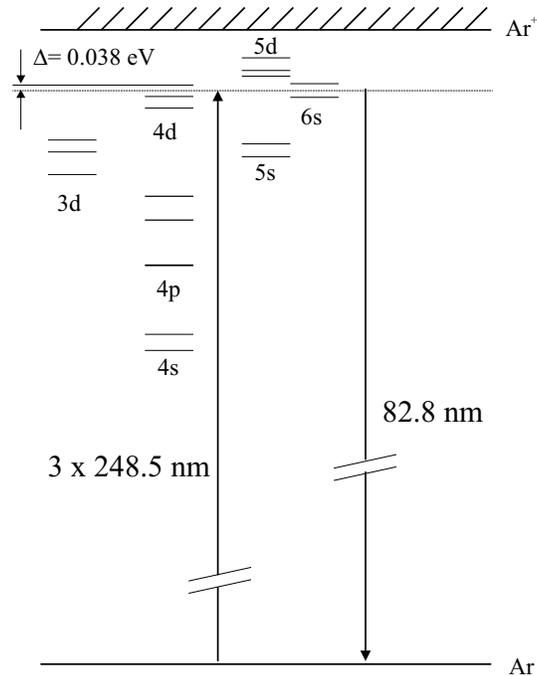


Abbildung 4.3: Energieniveauschema von Argon mit Drei-Photonenanregung.

$$n_{Ar}(\lambda) - 1 = 0.012055 \cdot \left(\frac{0.2075}{91.012 - \lambda^{-2}} + \frac{0.0415}{87.892 - \lambda^{-2}} + \frac{4.33}{214.02 - \lambda^{-2}} \right) \quad (4.1)$$

Die Wellenlänge ist hierbei in μm anzugeben. Der Verlauf des Indexes pro Atom im Bereich der Pumplaserwellenlänge zeigt Abbildung 4.4.

Diese Darstellung ist im gesamten sichtbaren bis in den VUV- Spektralbereich bis zu 140 nm gültig.

Nach den Gleichungen 2.63, 2.70 und 4.1 lässt sich die dispersive Phasenfehlانpassung pro Atom $\Delta k_{disp,atom}$ für die Frequenzverdreifachung in Abhängigkeit der Pumpwellenlänge angeben. Der Verlauf ist unter Verwendung der angegebenen Oszillatorstärken in Abbildung 4.5 dargestellt. Zum Vergleich ist das zu erwartende Spektrum der dritten Harmonischen dargestellt.

In der Berechnung wurden keine Niveaueverschiebungen einbezogen. Sie gilt daher nur für kleine Intensitäten. Deutlich zu erkennen ist eine Nullstelle bei einer Harmonischenwellenlänge von 82.83 nm, was einer Pumplaserwellenlänge von 248.5 nm entspricht.

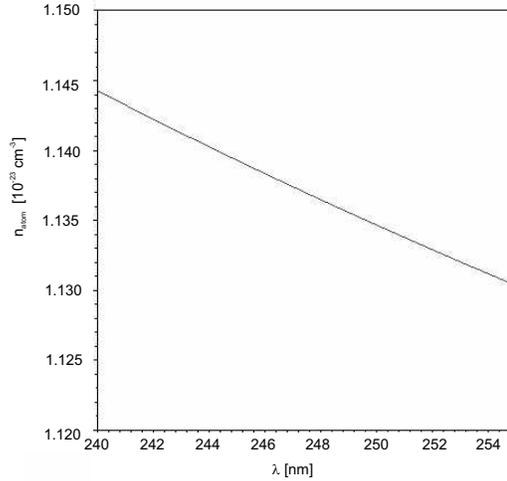


Abbildung 4.4: Brechungsindex pro Atom $n_{atom} = n_{Ar}/2.69 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ von Argon um 248.5 nm .

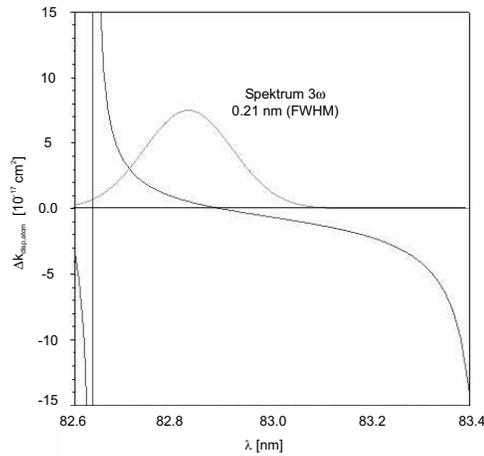


Abbildung 4.5: Phasenfehlanpassung pro Atom bei Frequenzverdreifachung mit Spektrum der dritten Harmonischen.

Bei dieser Wellenlänge wäre daher $\Delta k_{disp} = \Delta k_{disp,atom} N$ für jede Dichte null und die gesamte Phasenfehlanpassung allein durch den geometrischen Term $\Delta k_{geom} = \frac{4}{b}$ gegeben. Bei schwacher Fokussierung ist somit immer eine Quasiphasenanpassung bei kleinen Medienlängen L mit $L < L_{koh} = \frac{2\pi}{\Delta k_{geom}}$ leicht möglich. Dies wurde in den Experimenten in [Dölle u. a. 2002] gezeigt (siehe auch 4.3.1). Da jedoch das Spektrum breitbandig ist und intensitätsabhängige Niveauverschiebungen auftreten können, ist eine Realisierung

mit $\Delta k_{disp} = 0$ nicht möglich. Es muss vielmehr von einem effektiven Δk_{disp} ausgegangen werden, was sich aber auch aus den Experimenten in Abschnitt 4.3.2 ergibt.

Neben der Dispersion ist auch der Verlauf der nichtlinearen Suszeptibilität für die Frequenzverdreifung in Argon von Bedeutung. Abbildung 4.6 zeigt diesen Verlauf, wie er sich nach Anhang C ergibt. Hierfür wurden ebenfalls die Oszillatorstärken nach [Chang u. a. 1992] verwendet.

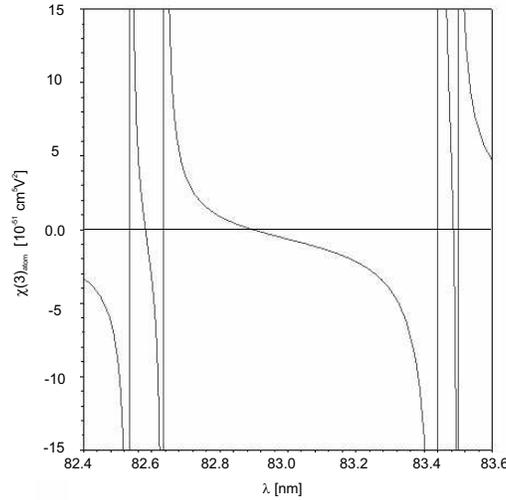


Abbildung 4.6: Nichtlineare Suszeptibilität für die Frequenzverdreifung im Bereich der dritten Harmonischen der KrF-Wellenlänge.

Auch hier liegt eine Nullstelle bei der Harmonischenwellenlänge von 82.83 nm vor, was zunächst nicht für eine starke Erzeugung der dritten Harmonischen sprechen sollte. Dies steht allerdings im Widerspruch zu den experimentellen Resultaten, wo eine sehr hohe Ausgangsintensität beobachtet werden konnte. Diese Tatsache lässt vermuten, dass die spektrale Breite und eine Niveaushift der angeregten Zustände durch den AC-Stark-Shift eine wichtige Rolle spielen. Aufgrund des relativ kleinen Energieabstandes von 0.13 eV (288 cm^{-1}) der Dreiphotonenanregung vom $3p^5 4d$ -Zustand können sich kleinste Verschiebungen bemerkbar machen. Dies zeigen die Experimenten in 4.3.2, die unter Verwendung der Drehdüse durchgeführt wurden.

Neben möglichen Niveaushiftungen, ist bei hohen Intensitäten auch mit einer Ionisation des Argons zu rechnen. Daraus resultiert eine Beeinflussung des nichtlinearen Dipolmoments durch eine Reduktion der atomaren Dichte und der Dispersion durch die

Erzeugung von Elektronen. Auf diesen Effekt wird in 4.2 eingegangen.

4.1.1 Frequenzverfünffachung in Argon und Argonionen

Abbildung 4.7 zeigt die Energieniveauschemata für die Frequenzverfünffachung in Ar und Ar^+ .

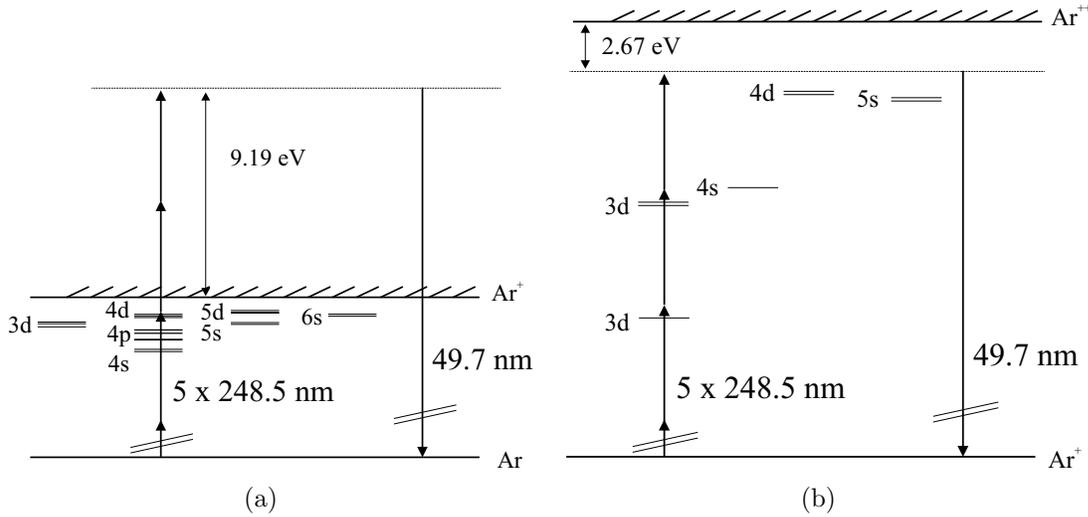


Abbildung 4.7: Relevante Energieniveaus und Fünf-Photonenanregung für die Frequenzverfünffachung in (a) Argon (Ionisationspotential $E_{ion} = 15.759 \text{ eV}$) und (b) Argonionen (Ionisationspotential $E_{ion} = 27.621 \text{ eV}$).

Die im vorangegangenen Abschnitt erwähnten Resonanzen im Argon können ebenfalls bei der Erzeugung der fünften Harmonischen zu einer Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität führen, wie bereits im letzten Abschnitt dargelegt. Betrachtet man aber die Erzeugung in Atomen, so ist mit einer starken Absorption der generierten Strahlung aufgrund von Einphotonenionisation zu rechnen. Die Photonenenergie der fünften Harmonischen liegt mit 24.95 eV um 9.19 eV oberhalb der Ionisierungsenergie von Argon von 15.76 eV . Der Absorptionsquerschnitt für Strahlung um 50 nm ist nach [Meyer 2000], [G. V. Marr 1976] und [J. J. Yeh 1985] mit 35 Mbarn angegeben. Die Phasenfehlanpassung ist hierbei im Wesentlichen durch den Brechungsindex der Grundwelle bestimmt. Der Brechungsindex der Harmonischen wird als 1 angenommen. Der Verlauf der Phasenfehlanpassung ist in Abbildung 4.8 dargestellt.

Für die KrF-Wellenlänge von 248.5 nm ergibt sich so eine Wert des dispersiven Bei-

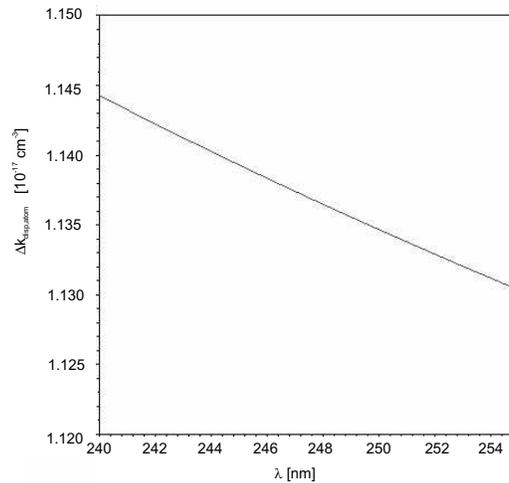


Abbildung 4.8: Phasenfehlpassung pro Atom für die Frequenzverfünffachung in Argon-Atomen.

trags pro Atom von $-1.136 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$. Die Berechnung des nichtlinearen Dipolmoments der Argonatome, welches zur Emission der fünften Harmonischen führt, kann in diesem Fall nicht mehr störungstheoretisch erfolgen, siehe Kapitel 2, Abschnitt 2.1. Hierzu ist es erforderlich, die nichtlineare Schrödingergleichung direkt zu lösen.

Die Absorption wird vermieden, wenn die fünfte Harmonische in Argonionen erzeugt wird. Das Ionisationspotential von Ar^+ liegt mit 27.62 eV 2.67 eV über der Fünfphotonenanregung. Für die Pumpstrahlung, deren Wellenlänge fern ab von Resonanzen liegt, kann in guter Näherung ein Brechungsindex von 1 angenommen werden. Bei der Berechnung der Phasenfehlpassung sind die dispersiven Beiträge der Ionen und der Elektronen zu berücksichtigen. Die Berechnung des nichtlinearen Dipolmomentes für die Verfünffachung könnte in diesem Fall auch wieder störungstheoretisch erfolgen, siehe Anhang C

Die bei der Verfünffachung in Ionen relevanten Niveaus, ihre Oszillatorstärken und Linienbreiten sind in Tabelle 4.1.1 dargestellt.

Da Intensitäten bis zu $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bei den Experimenten eingesetzt wurden, ist eine Verschiebung der Niveaus durch den Stark-Shift einzubeziehen, was die Auswahl der Zustände bestimmt. Zur Vereinfachung sei angenommen, dass die Vergrößerung des Energieabstandes der höher angeregten Zustände zum Ionengrundzustand in der Größe des ponderomotiven Potentials U_p liegt. Die zur Ionisation des Argons notwendige In-

Zustand $3s^23p^5(^2P_{1/2}^o)$	Energie [eV]	Frequenz [$10^{16}s^{-1}$]	Wellenlänge [nm]	A [10^8s^{-1}]	$\delta\lambda$ [$10^{-8}nm$]	f
4d	23.10	3.5100	53.67	0.026	0.04	0.0048
4d	22.82	3.4661	54.35	28.391	4.45	0.0822
5s	22.70	3.4490	54.62	7.037	1.11	0.0082
5s	22.59	3.4327	54.88	3.043	0.48	0.0055
3d	18.26	2.7736	67.92	1.224	0.30	0.0532
3d	17.95	2.7263	69.10	1.331	0.34	0.0291
3d	16.45	2.4985	75.40	0.025	0.08	0.0133

Tabelle 4.2: Zustände des Argonions für die Frequenzverfünffachung

tensität von $2.5 \times 10^{14} W/cm^2$, siehe Abschnitt 4.2, führt danach zu einer Anhebung der Zustandsenergien um $> 1.44 eV$ gegenüber dem Grundzustand. Es können also nur Zustände in Resonanz kommen, die mindestens um diesen Betrag unterhalb der Fünfphotonenanregung liegen. Dies entspricht Energien von $23.5 eV$ weniger.

Die nach den Gleichungen 2.63 und 2.70 berechnete dispersive Phasenfehlانpassung pro Ion ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Niveaueverschiebungen durch den AC-Stark-Shift führen zu einer Verschiebung der Kurve zu kürzeren Wellenlängen.

Der Verlauf der elektronischen Phasenfehlانpassung pro Elektron nach Gleichung 2.77 ist in Abbildung 4.10 zu sehen. Der Wert bei einer Wellenlänge von $248.5 nm$ beträgt demnach $2.8 \times 10^{-17} cm^2$.

Die nichtlineare Suszeptibilität soll für diesem Fall (Photonenenergie der Harmonischen unterhalb des Ionisationspotentials) störungstheoretisch berechnet werden, siehe Anhang C. Es sind die Einflüsse aller in Resonanz kommenden Zustände berücksichtigt. Abbildung 4.11 zeigt den Verlauf der nichtlinearen Suszeptibilität für zunächst geringe Intensitäten. Der Stark-Shift führt auch hier wieder zu einer Verschiebung zu kleineren Wellenlängen.

Inwiefern sich die Niveaueverschiebungen durch den Stark-Shift bemerkbar machen, und ob die Annahme einer Verschiebung in der Größenordnung des ponderomotiven Potentials gerechtfertigt ist, wird in den Abschnitten 4.4.1 und 4.4.2 untersucht. Dabei zeigt sich auch, ob die störungstheoretische Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität für diesen Fall der Verfünffachung in Argonionen gerechtfertigt ist.

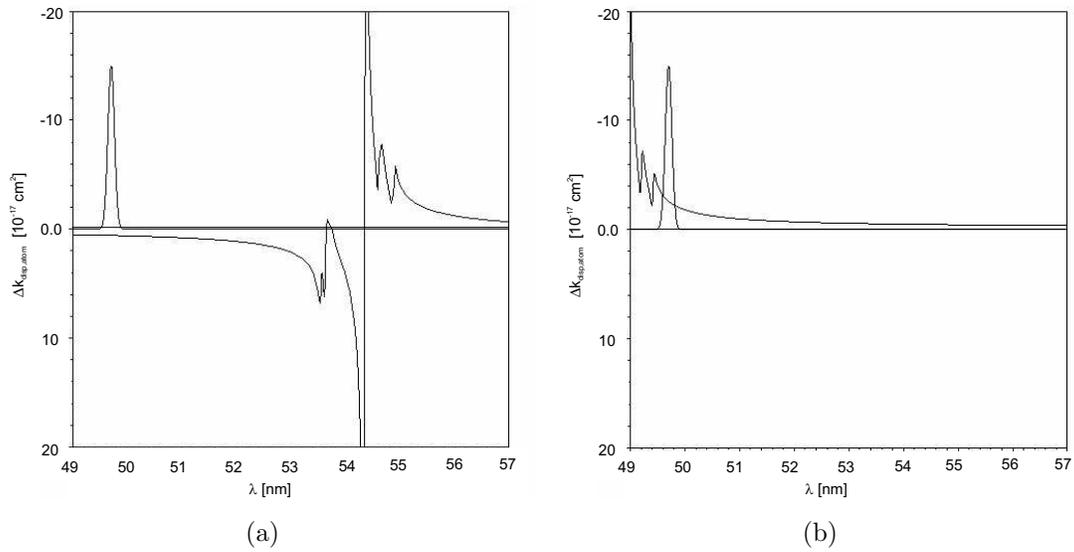


Abbildung 4.9: Phasenfehlانpassung bei Frequenzverfünffachung in Argonionen (a) ohne und (b) mit Verschiebung der Niveaus durch den Stark-Shift um U_p ($I_{pump} = 5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$).

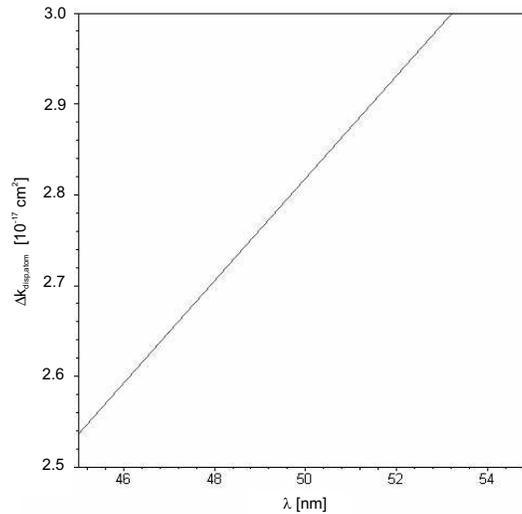


Abbildung 4.10: Elektronischer Beitrag zur Phasenfehlانpassung bei der Frequenzverfünffachung im Bereich der fünften Harmonischen.

4.2 Ionisation von Argon durch KrF-Kurzpulsstrahlung

Eine Ionisation von Argon im Laserfeld kann im Prinzip durch zwei Mechanismen, die Multiphotonenionisation oder die Tunnel- bzw barrier-suppression-Ionisation (optische

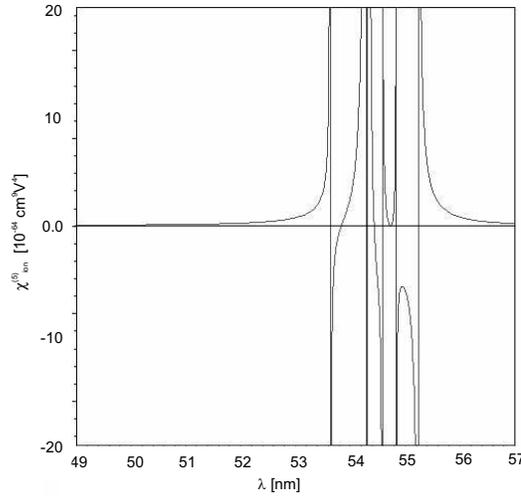


Abbildung 4.11: Nichtlineare Suszeptibilität $\chi^{(5)}$ für die Frequenzverfünffachung in Argonionen für kleine Intensitäten.

Feldionisation) erfolgen. Ein Entscheidungskriterium, welches Modell gültig ist, hängt von dem Verhältnis der Ionisationsenergie E_{ion} zum ponderomotiven Potential U_p ab. Dieses Verhältnis wird in dem Keldysh-Parameter γ_{kel} zusammengefasst:

$$\gamma_{kel} = \sqrt{\frac{E_{ion}}{2U_p}} . \quad (4.2)$$

Für $U_p \ll E_{ion} \Rightarrow \gamma_{kel} \gg 1$ kann das Laserfeld als kleine Störung behandelt werden. In diesem Regime liegt Multiphotonenionisation vor.

Für die Absorption von m Photonen der Frequenz ω mit $m\hbar\omega > E_{ion}$ ist die Ionisationsrate gegeben durch ([Raizer 1966])

$$w_{MPI} = \omega m^{3/2} \frac{e^2 A(t)}{8m_e \omega^2 E_{ion}} . \quad (4.3)$$

Dabei ist e die Elektronenladung, $A(t)$ die Laserfeldstärke und m_e die Elektronenmasse. Die innere Struktur ist hierbei jedoch nicht berücksichtigt.

Der Tunnelionisationsmechanismus tritt auf, wenn $\gamma_{kel} \leq 1$ und das Laserfeld nicht mehr als kleine Störung betrachtet werden darf. In diesem Fall wird das Coulombpotential des zu ionisierenden, als strukturlos angenommenen Atoms durch das Laserfeld verbogen, und ein Elektron kann die so entstandene Barriere durchtunneln.

Die Tunnelionisationsrate (ADK-Rate) ist nach [A. M. Perelmov 1966] und [N. B. Delone 1991]

$$w_{ADK} = \omega_a \frac{(2l+1)A_{au}(t)}{8\pi Z} P_{ADK} \left(\frac{4e^* Z^3}{n^* A_{au}(t)} \right)^{2n^*} \exp\left(-\frac{2Z^3}{3n^* A_{au}(t)}\right) \quad (4.4)$$

$\omega_a = 4.1 \times 10^{16} \text{ s}^{-1}$ ist die atomare Umlauffrequenz eines Elektrons für das Wasserstoffatom, l ist die Drehimpulsquantenzahl des Grundzustandes, $A_{au}(t)$ die Amplitude des Laserfeldes in atomaren Einheiten (au , atomic units), Z die Ladungszahl des erzeugten Ions und e^* die Eulersche Zahl. $n^* = Z\sqrt{E_H/E_{ion}}$ beschreibt die effektive Grundzustandsquantenzahl eines Atoms oder Ions mit dem Ionisationspotential E_{ion} im Vergleich zum Wasserstoffatom mit $E_H = 13.6 \text{ eV}$. Der Faktor P bezeichnet einen polarisationsabhängigen Faktor, der für linear polarisiertes Licht die Form

$$P_{ADK} = \sqrt{\frac{3A_{au}(t)(n^*)^3}{\pi Z^3}} \quad (4.5)$$

hat.

Bei entsprechend starken Laserfeldern kann das Atompotential auch soweit verformt werden, dass ein zuerst gebundenes Elektron direkt freigesetzt wird (above barrier ionization). Dies führt zu den Appearance-Intensitäten für die einzelnen Ionisationsstufen, bei denen die Ionisationsrate auf 1 ansteigt. Die Appearance-Intensität von Ionen der Ladungsstufe Z ist gegeben durch

$$I_{app}[W/cm^2] = 4 \times 10^9 E_{ion}^4 [eV] / Z^2 \quad (4.6)$$

Für die Ionisation von Ar zu Ar^+ ist demnach eine Intensität von $2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ erforderlich.

Der Verlauf des Keldysh-Parameters, durch den sich diese Bereiche voneinander trennen lassen, ist in Abbildung 4.12 für die Pumplaserwellenlänge von 248.5 nm in dem Intensitätsintervall von 10^{13} W/cm^2 bis 10^{15} W/cm^2 angegeben.

Die Grafik zeigt, dass für den gesamten zugänglichen Intensitätsbereich γ_{kel} zwar größer ist als 1, aber immer noch in der gleichen Größenordnung von 1 liegt.

Abbildung 4.13 zeigt einen Vergleich der nach

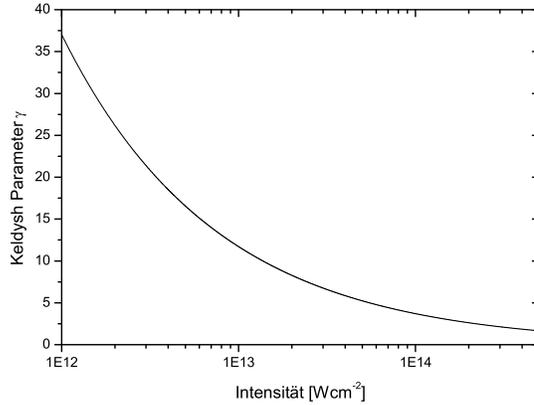


Abbildung 4.12: Keldysh-Parameter γ_{kel} für 248.5 nm im Intensitätsintervall von 10^{13} W/cm^2 bis 10^{15} W/cm^2 .

$$\eta_{ion}(T) = 1 - e^{-\int_{-\infty}^T dt w_{ADK, MPI}(t)} \quad (4.7)$$

berechneten Ionisationsgrade, wie sie sich aus den angegebenen Raten ergeben (aus [Dölle Dissertation]). Zur Berechnung wurde ein gaußförmiges zeitliches Strahlprofil und eine Pulsdauer von 500 fs angenommen. Die Integration erfolgt sowohl bis zum Pulsmaximum ($T = 0$, durchgezogene Kurve), wo noch eine Harmonischenerzeugung stattfinden kann, als auch bis zu $T = +\infty$ (gestrichelte Kurve).

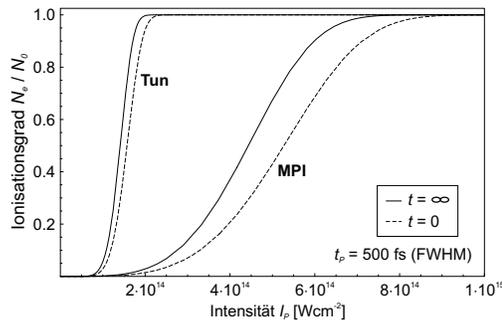


Abbildung 4.13: Vergleich der Tunnelionisationsrate mit der Multiphotonenionisation im Pulsmaximum (durchgezogene Kurve) und am Pulsende (gestrichelte Kurve).

Es zeigt sich ein sehr deutlicher Unterschied der beiden Modelle hinsichtlich des erreichbaren Ionisationsgrades für $T = 0$. Nach der Tunnelionisation wird Argon schon ab

Energie mJ	Intensität $10^{14}W/cm^{-2}$	Feldstärke A $10^8V/cm$	A/A_{au} 1
14	6.5	7.3	0.14142
7	3.5	5.4	0.1000
4.2	2.1	4.1	0.07746
2.1	1.1	2.8	0.05477
1.2	0.6	2.2	0.04140
0.6	0.3	1.6	0.02928

Tabelle 4.3: Zusammenhang zwischen den eingesetzten Energien und der elektrischen Feldstärke in atomaren Einheiten.

Intensitäten von $2 \times 10^{14} W/cm^2$ vollständig ionisiert, wohingegen nach dem Mechanismus der Multiphotonenionisation dafür eine Intensität von $1 \times 10^{15} W/cm^2$ erforderlich ist. Da die experimentellen Resultate in Abschnitt 4.3.1 eine deutliche Übereinstimmung mit der Tunnelionisation zeigen, soll für die folgenden Berechnungen nur von diesem Modell ausgegangen werden.

Für die Berechnung ist die Angabe der Laserfeldstärke in Vielfachen der atomaren Feldstärke $A_{au} = 5.4 \times 10^9 V/cm$ erforderlich. Die entsprechende atomare Intensität ist $I_{au} = 3.5 \times 10^{16} W/cm^{-2}$. Es gilt weiter $A_{au} = 28.86\sqrt{I_{au}}$. Der Zusammenhang von Pulsenergien, Intensitäten und Feldstärken ist in Tabelle 4.2 dargestellt.

Durch die intensitätsbedingte Ionisation wird die Neutralteilchendichte zeitabhängig, was zu einer starken zeitabhängigkeit der Erzeugung und der Phasenanpassung führt. Abbildung 4.14 zeigt die ionisationsbedingte Abnahme der Neutralteilchendichte N_{Ar} für die angegebenen Pulsenergien.

Zu berücksichtigen ist weiterhin noch die Änderung der Phasenanpassungsfunktion F durch die fortschreitende Ionisierung ($F \rightarrow F(t)$). Die Berechnung erfolgt nach Gleichungen 2.16 und 2.76 mit der zeitabhängigen Variation der Elektronendichte, siehe Abbildung 4.15.

Dies bewirkt eine Reduktion der Ausgangsenergie im Vergleich zur Erzeugung ohne Ionisation bei gleichzeitiger Abnahme des Wertes der Phasenanpassungsfunktion F . Die messbare Ausgangsenergie ist proportional zu den Flächen unter den Intensitätsverläufen in 4.16.

Die Berechnung erfolgt nach

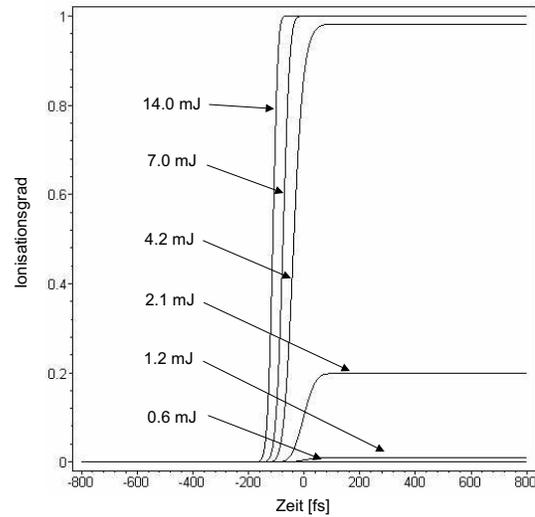


Abbildung 4.14: Zeitabhängiger Ionisationsgrad in Bezug auf das Pumpimpulsmaximum ($t = 0$).

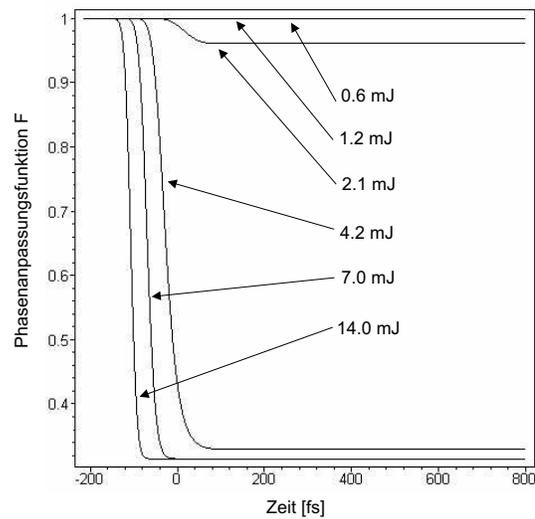


Abbildung 4.15: Zeitlicher Verlauf der Phasen Anpassungsfunktion F bei verschiedenen Pumpenergien.

$$I_{3\omega}(t) \sim I_p^3(t) N_{Ar}^2(t) F(t). \quad (4.8)$$

Die mit der Energie (Intensität) zunehmende Ionisation verschiebt die Erzeugung der dritten Harmonischen immer weiter in die ansteigende Pulsflanke, wie in Abbildung 4.16

zu sehen ist.

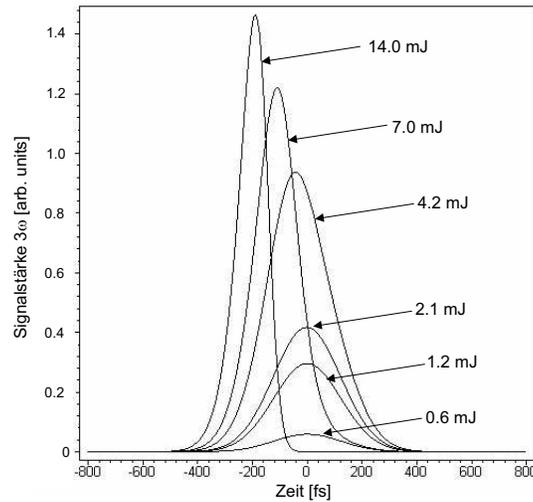


Abbildung 4.16: Zeitlich verteilte Emission der dritten Harmonischen bei verschiedenen Pumpenergien.

Gleichzeitig findet eine Pulsverkürzung statt. Eine detailliertere Rechnung analog zu der Darstellung in 4.16 für Intensitäten bis zu 1.2 au , entsprechend etwa 10^{16} W/cm^2 zeigt, dass die Pulsdauer der dritten Harmonischen mit steigender Intensität sinkt und gegen ca. 60 fs konvergiert, wie in Abbildung 4.17 zu erkennen ist.

Analoge Berechnungen sind in [Meyer 2000] für die Erzeugung hoher Harmonischer von Titan-Saphir-Laserstrahlung dargestellt. Experimentelle Untersuchungen wurden hierzu nicht durchgeführt.

Der folgenden Abschnitt dargestellte Signalverlauf in Abbildung 4.19 reproduziert sehr gut die durch die Ionisation bedingte Sättigung der dritten Harmonischen im Fokus. Obwohl der Ionisationsmechanismus auf den ersten Blick eher dem Multiphotonenionisationsregime zuzuordnen wäre, liefert hier das Modell der Tunnelionisation eine adäquate Beschreibung des experimentellen Ergebnisses. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass in Gleichung 4.3 keine inneratomare Struktur berücksichtigt ist. Es wird daher nicht der Tatsache Rechnung getragen, dass die nahe Dreiphotonenresonanz, die zu einer erhöhten Emission der dritten Harmonischen führt ebenfalls eine resonant erhöhte Vierphotonenionisation bedingt.

Auf der Multiphotonenionisationsrate 4.3 basierende zeit- und intensitätsabhängige Simulationen ([Dölle Dissertation]) können daher zu falschen Ergebnissen führen.

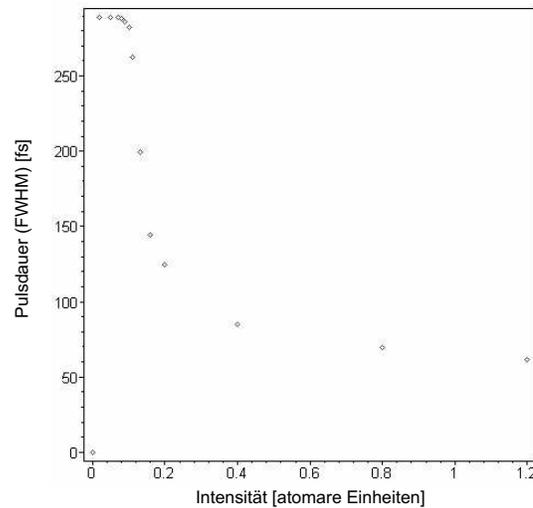


Abbildung 4.17: Abhängigkeit der Pulsdauer der erzeugten Strahlung von der Pumpintensität.

Ein maximales Signal ergibt sich für die frequenzverdreifachte Strahlung bei einer Pumpimpulsenergie von 14 mJ nach 4.18 bei einer Verschiebung des Fokus um 12 mm . Die Intensität beträgt hier nach $3.3 I_p = 6.3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, was unterhalb der Appearance-Intensität für Argonionen ist, es tritt daher unter diesen Bedingungen keine Ionisation des Mediums auf.

Als wichtiges Ergebnis dieses Abschnitts ist festzuhalten, dass ab Intensitäten von mehr als $2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ mit einer vollständigen Ionisation zu rechnen ist. Dies ist in Übereinstimmung mit Untersuchungen der fünften Harmonischen in [R. Rosmann 1988], wo ab einer Intensität von $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ein starker Signalanstieg beobachtet werden konnte (Seite 1240, Abbildung 5). Dieser wurde ebenfalls auf eine Ionisation des Mediums und eine damit verbundene Erzeugung der fünften Harmonischen in Ionen zurückgeführt.

4.3 Leistungsstarke Erzeugung der dritten Harmonischen bei 82.8 nm

Die Experimente zur Erzeugung der dritten Harmonischen von KrF-Kurzpuls laserstrahlung erfolgten zum Teil in Zusammenarbeit mit dem Laser-Labor Göttingen e. V.. Sie wur-

den an der im Rahmen dieser Arbeit konzipierten und aufgebauten Apparatur durchgeführt. Bei dieser Kooperation wurden grundlegende Untersuchungen der Frequenzverdreifung mit der einfachen Lochdüse durchgeführt. Der Schwerpunkt war hierbei auf die Abhängigkeit des Harmonischensignals von der Teilchendichte, auf die dispersiven Eigenschaften von Argon und auf die Phasenanpassung gelegt. Weitere Experimente und Simulationen zur Phasenanpassung und ihre spektrale Abhängigkeit wurden am Laser-Labor Göttingen e. V. durchgeführt und finden sich in [C. Dölle 2003] und [Dölle Dissertation]. Auf sie soll an dieser Stelle nicht weiter eingegangen werden (siehe hierzu auch Ende des letzten Abschnitts).

In dieser Arbeit wird der Ionisationsprozess basierend auf der Tunnelionisation genauer untersucht und mit den im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen theoretischen Berechnungen verglichen 4.3.1. Dieser Abschnitt geht hinsichtlich der Darstellung der ionisationsbedingten Sättigung der dritten Harmonischen beim Erreichen der Appearance-Intensität von einem anderen Modell aus und führt zu genaueren Ergebnissen als in [Dölle Dissertation].

Weiterhin war ein wichtiger Aspekt die Längenabhängigkeit der Harmonischen, der in [Dölle Dissertation] keine Berücksichtigung fand. Die Längenvariation wurde mit der neu konstruierten drehbaren Schlitzdüse vorgenommen. Es wurden Möglichkeiten der Phasenanpassung und der Struktur der nichtlinearen Suszeptibilität untersucht. Unter Ausnutzung der maximal möglichen Wechselwirkungslänge von 6.7 mm konnte hier eine phasengepasste Erzeugung der dritten Harmonischen demonstriert werden. Diese Experimente sind in Abschnitt 4.3.2 dargestellt.

Eine Untersuchung der nichtlinearen Suszeptibilität hinsichtlich einer Niveauverschiebung der beteiligten Zustände und eine theoretische Berechnung der Harmonischenenergien bei verschiedenen Pumplaserenergien und Wechselwirkungslängen findet sich in 4.3.3. Erst damit lassen sich die hohen Ausgangsenergien bei der Frequenzverdreifung verstehen und erklären. Dabei wird eine anderer Standpunkt vertreten als in [Dölle Dissertation], wo eine Niveauverschiebung vernachlässigt wurde.

4.3.1 Frequenzverdreifung im Gasstrahl

Die Erzeugung der dritten Harmonischen in den hier beschriebenen Experimenten erfolgte in einem Argon-Gasjet. Die Wechselwirkungslänge betrug dabei $L = 1.25 \text{ mm}$, vgl. Kapitel 3.3.2. Bei Vordrücken bis zu 8 bar konnten Teilchendichten bis $4.6 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$

realisiert werden (Kapitel 3.3.3, $a = 0.023$). Zur Fokussierung der KrF-Strahlung wurde eine $f = 1980 \text{ mm}$ -Linse verwendet. Die Position der Linse wurde in Bezug auf das Ausgangssignal optimiert, um eine Zerstörung des nichtlinearen Mediums durch Ionisation zu vermeiden (4.2). Der Fokus befand sich dabei 12 mm vor der Mitte der Düsenöffnung. Nach Kapitel 2.4.1 und 3.3 ergeben sich so ein konfokaler Parameter von 7.4 mm und ein geometrischer Beitrag zur Phasenfehlpassung von $\Delta k_{geom} = 5.4 \text{ cm}^{-1}$.

Wie im vorangegangenen Abschnitt dargelegt, spielt die Ionisation des Mediums eine entscheidende Rolle. Um zu untersuchen, ab wann eine starke Ionisation des Mediums auftritt, wurde die Intensität des Pumplasers bei der Erzeugung der dritten Harmonischen durch Verschieben der $f = 1980 \text{ mm}$ -Linse entlang der optischen Achse variiert.

Hierbei kam die einfache Lochdüse zum Einsatz, die mit einem Vordruck von etwa 5 bar betrieben wurde. Vier Pulsenergien von 0.6 mJ bis 14 mJ , die mit Hilfe eines dielektrischen Abschwächers eingestellt werden konnten, ergaben dabei Fokusintensitäten von $2.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $9.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $6.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$, siehe 3.3. Eine Verschiebung des Fokus gegenüber des Gasstrahls führt zu einer Abnahme der Intensität, aber gleichzeitig auch zu einer größeren Querschnittsfläche. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.18 dargestellt.

An der Position 0 befindet sich der Fokus im Medium. Für kleine Pulsenergien ist das Signal maximal, wenn sich der Fokus im Medium befindet, da hier die Intensitäten ausreichend sind, um die Harmonische zu erzeugen, aber noch nicht so groß sind, dass das Gas ionisiert wird. Bei den höheren Pulsenergien verschiebt sich dieses Maximum zu Positionen vor (positive Werte) bzw. hinter (negative Werte) dem Argonstrahl. Durch das größere Volumen wird dabei ein höheres Signal generiert, als mit dem Fokus direkt im Medium, wo ab einer Intensität von $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ eine deutliche ionisationsbedingte Signalsättigung eintritt. Zur Interpretation der Ergebnisse gibt es die Möglichkeiten der Multiphotonenionisation und der Tunnelionisation.

Die experimentellen Resultate lassen sich in guter Übereinstimmung mit der Tunnelionisation erklären. Abbildung 4.19 zeigt die Abhängigkeit der Erzeugung der dritten Harmonischen im Fokus von den Pulsenergien und stellt einen Schnitt der Abbildung 4.18 bei $z = 0$ dar.

Die durchgezogene Kurve in Abbildung 4.19 zeigt eine Simulation basierend auf der ADK-Tunnelionisationsrate. Dafür wurde angenommen, dass eine Frequenzverdreifung nur in neutralem Argon stattfindet. Die Integration in Gleichung 4.7 erfolgt numerisch mit der Newton-Cotes Methode `quanc8` (Maple).

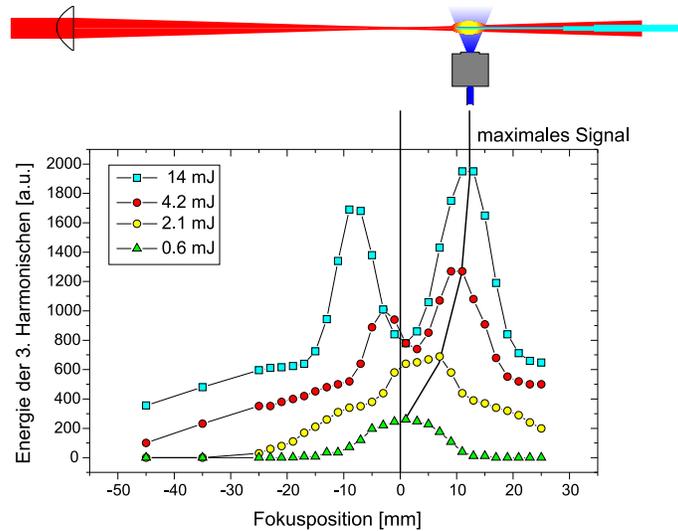


Abbildung 4.18: Signalstärke der dritten Harmonischen in Abhängigkeit der Fokusposition. Die Variation erfolgte über die Verschiebung der Linse gegenüber dem Gasjet. Bei Fokusposition 0 liegt der Fokus genau im Gasjet. Die Pulsenergien von 0.6 mJ, 2.1 mJ, 4.2 mJ und 14 mJ führen zu Intensitäten von $2.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $9.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $6.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ im Fokus.

Eine theoretische Modellierung der Fokusvariation mit der Intensitätsvariation eines gaußschen Strahls entlang der optischen Achse und Gleichung 4.8, wie sie in Abbildung 4.20 dargestellt ist, zeigt eine gute Übereinstimmung mit der Abbildung 4.18.

Allerdings kann hier noch ein Einfluss des Kerr-Effekts auftreten. Ein Indiz dafür ist die asymmetrische Struktur des Kurvenverlaufes in Abbildung 4.18, bei dem ein höheres Ausgangssignal erreicht wird, wenn der Fokus vor dem Gasstrahl liegt. Eine Ionisation des Mediums jedoch kann an dieser Position vernachlässigt werden.

Für eine effiziente Frequenzkonversion ist die Phasenanpassung zwischen der Pumpstrahlung und der Harmonischen eine wichtige Forderung. Die Phasenfelanpassung für diesen Prozess ist

$$\Delta k_{3\omega} = k_{3\omega} - 3k_{\omega} = \Delta k_{disp} + \Delta k_{geom}, \quad (4.9)$$

mit den Wellenvektoren $k_{3\omega}$ und k_{ω} für die Harmonische und die Grundwelle.

Zur Untersuchung der dispersiven Phasenfelanpassung wurde eine Druckvariation

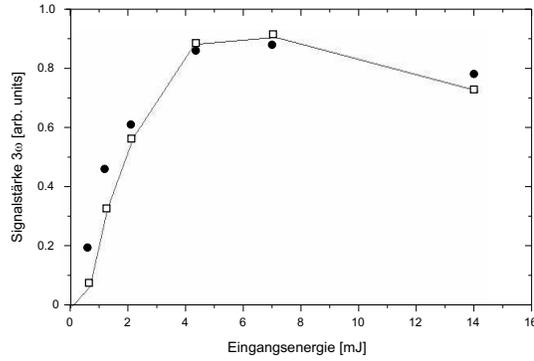


Abbildung 4.19: Sättigung der Harmonischenenergie im Fokus ($z = 0$), Punkte: experimentelle Daten, Quadrate und Linien: theoretisch Berechnete Werte nach 4.8.

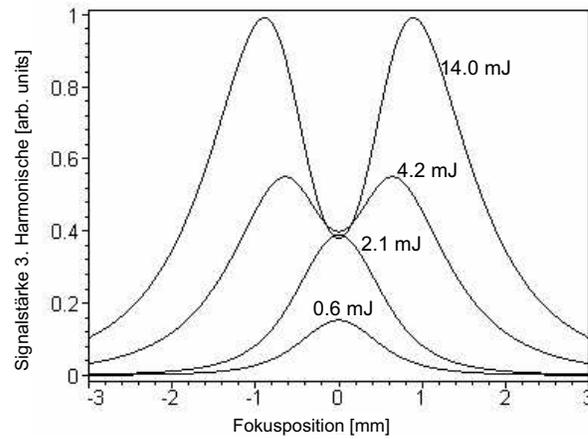


Abbildung 4.20: Theoretische Simulation der Fokusvariation aus Abbildung 4.18 für fokussierte Intensitäten von $2.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $9.8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $6.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

vorgenommen. Abbildung 4.21 zeigt die Druckabhängigkeit der dritten Harmonischen.

Die Signalstärke ist in dieser Darstellung gegen den Vordruck aufgetragen. Sie besitzt ein Maximum bei etwa 4500 mbar , was einer Teilchendichte von $2.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ entspricht. Nach Gleichung 2.16 lässt sich der Intensitätsverlauf $I_{3\omega}(N, L)$ unter Vernachlässigung von Absorption durch

$$I_{3\omega}(N, L) \sim N^2 L^2 \frac{\sin^2(\Delta k_{3\omega} L/2)}{(\Delta k_{3\omega} L/2)^2} \quad (4.10)$$

als Funktion von der Teilchendichte N beschreiben, $\Delta k_{3\omega}$ ist durch Gleichung 4.9

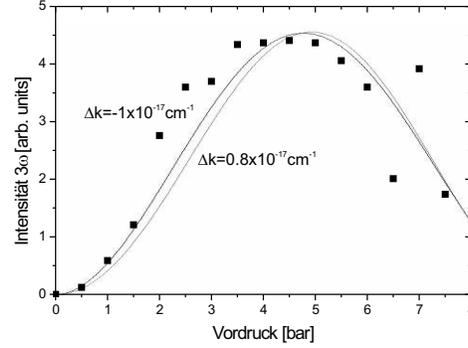


Abbildung 4.21: Druckvariation der dritten Harmonischen bei $L = 1.25 \text{ mm}$. Durchgezogene Kurven stellen theoretische Simulationen für $-1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$, bzw. $+0.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ dar.

gegeben. Der dispersive Anteil enthält die zu bestimmende Phasenfehlانpassung pro Atom $\Delta k_{disp,atom}$

$$\Delta k_{disp} = a \frac{N_0}{1000} p \Delta k_{disp,atom}. \quad (4.11)$$

$N_0 = 2.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ ist die Teilchendichte bei einem Druck von 1000 mbar, a ist der Reduktionsfaktor für die Teilchendichte in der Wechselwirkungszone, und p ist der Vordruck im mbar.

Die Wechselwirkungslänge geht in Formel 4.10 mit $L = 1.25 \text{ mm}$ ein. Die durchgezogenen Kurven in Abbildung 4.21 stellen diese Funktion für eine mittlere Dispersion pro Atom von $-1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$, bzw. $+0.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ dar.

Mit diesen Werten zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung zwischen der theoretischen Beschreibung und dem experimentellen Resultat. Für die Ausgangsenergie der dritten Harmonischen spielt der genaue Wert der dispersiven Phasenfehlانpassung keine entscheidende Rolle. In beiden Fällen kann unter den experimentellen Gegebenheiten von einer nahezu phasenangepassten Erzeugung ausgegangen werden. Unter den optimalen Bedingungen einer Teilchendichte von $2.8 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und einer Pumpintensität von $6.3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ konnte so für eine Eingangsenergie von 14 mJ eine Harmonischenenergie von $(100 \pm 10) \mu\text{J}$ gemessen werden. Die Messung erfolgte mit den in Abschnitt 3.3.1 angegebenen Methoden. Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 0.7 % ([Dölle u. a. 2002]).

Eine weiterführende Untersuchung der Dispersion und einer ponderomotiven Niveaushiftung folgt in den nächsten Abschnitten.

4.3.2 Frequenzverdrehung mit variabler Wechselwirkungslänge

Die dispersive Phasenfehlanpassung bei der Erzeugung der dritten Harmonischen bedarf noch einer weiteren Diskussion, da mit dem vorangegangenen Experiment nicht eindeutig auf die tatsächliche Dispersion geschlossen werden kann. Der druckabhängige Dispersionsverlauf zeigt nach Abschnitt 4.1 gerade bei der betrachteten Wellenlänge einen Nulldurchgang. Von dieser Darstellung ausgehend wäre eine mittlere Phasenfehlanpassung pro Atom von 0 cm^2 zu erwarten.

Der theoretische Fit der Messdaten im vorangegangenen Abschnitt zeigt aber eine deutliche Abweichung von dem augenscheinlichen Mittelwert. Zunächst soll daher geklärt werden, welcher Wert der Dispersion richtig ist.

Da sich Phasenadaptation nur für negative atomare Dispersion erreichen lässt, kann bei einer Längenvariation eine klare Aussage getroffen werden.

Die Experimente wurden mit der Drehdüse und einer $f = 1380 \text{ mm}$ -Linse durchgeführt. Die Wechselwirkungslänge konnte mit diesem Düsensystem kontinuierlich zwischen 1.25 mm und 6.7 mm variiert werden. Der Vordruck ließ sich im Bereich bis 2000 mbar variieren, so dass noch ein linearer Zusammenhang zu der in der Wechselwirkungszone vorliegenden Teilchendichte bestand (3.3.3). Der konfokale Parameter ergibt sich zu 5.5 mm , woraus eine geometrische Phasenfehlanpassung von $\Delta k_{geom} = 7.2 \text{ cm}^{-1}$ folgt.

Abbildung 4.22 zeigt den nach Formel 4.10 berechneten Intensitätsverlauf der dritten Harmonischen für die beiden möglichen Werte von $\Delta k_{disp,atom} = -1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ und $\Delta k_{disp,atom} = +0.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ in Abhängigkeit von der Wechselwirkungslänge L und dem Vordruck p . In der Rechnung wurde die für diese Experimente nach Kapitel 3.3.3 gültige Umrechnung für die tatsächliche Teilchendichte verwendet (Reduktionsfaktor des Vordrucks: 0.024).

Bei vorliegender negativer Dispersion kann bei Steigerung der Wechselwirkungslänge ein anwachsendes Ausgangssignal beobachtet werden. Phasenadaptation liegt hierbei bei einem Vordruck von 1252 mbar vor, entsprechend einer Teilchendichte von $7.2 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ ($\Delta k_{disp} = \Delta k_{geom}$).

Positive atomare Dispersion führt zwar auch zu einem Signalanstieg, jedoch in Richtung steigenden Drucks bei gleichzeitig immer kürzer werdender Wechselwirkungslänge.

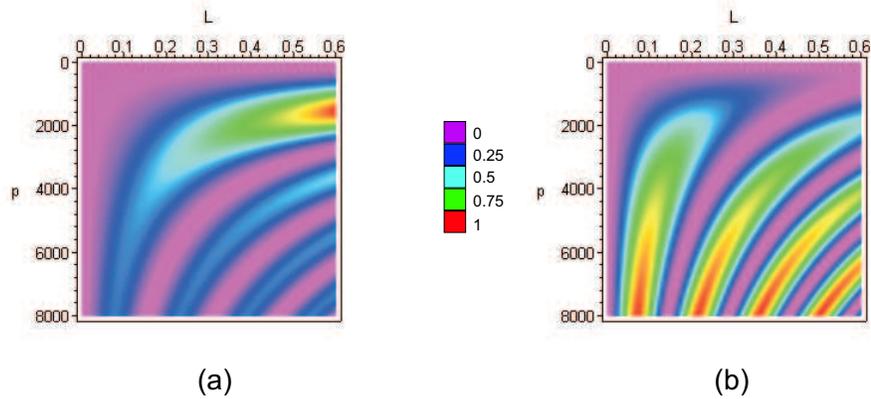


Abbildung 4.22: Berechnete Intensitätsabhängigkeit der dritten Harmonischen für (a) $\Delta k_{disp,atom} = -1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ und (b) $\Delta k_{disp,atom} = +0.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$.

Hohe Drücke im Bereich von 6000 *mbar* Vordruck sollten zu einem oszillatorischen Verhalten bei einer Längenvariation führen (Maker-Fringes) [P. D. Maker 1962].

Dieses deutlich unterschiedliche Verhalten soll in den folgenden Experiment untersucht werden.

Die Eingangsenergie der KrF-Pumpstrahlung betrug 6 *mJ*, vgl. Kapitel 3. Die mittlere Fokussintensität über den Strahlquerschnitt der dritten Harmonischen betrug ca. $5 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$. Bei dieser Intensität tritt wie im vorangegangenen Experiment eine starke Ionisation des Mediums auf. Zur Optimierung des Signals und Vermeidung der Ionisation wurde der Fokus um 7 *mm* gegenüber dem Medium verschoben. Die Abhängigkeit des Signals der dritten Harmonischen von der Fokusposition ist in Abbildung 4.23 zu sehen.

Bei dem maximalen Signal betrug die Intensität $6.4 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$, was der Intensität entspricht, die bei dem Experiment mit der einfachen Lochdüse vorlag.

Druckvariationen bei kleinen Wechselwirkungslängen geben keinen Aufschluss, da sowohl bei positiver als auch bei negativer Dispersion nahezu Phasenanpassung (Signalanstieg innerhalb der Kohärenzlänge) gegeben ist. Abbildung 4.24 zeigt eine Druckvariation bei der maximalen Wechselwirkungslänge von 6.7 *mm*, zusammen mit den berechneten Intensitäten für beide möglichen Dispersionswerte.

Der positive Dispersionswert ergibt dabei für die kleineren Druckwerte die bessere Beschreibung, während der negative bei höheren Drücken zu einer Übereinstimmung

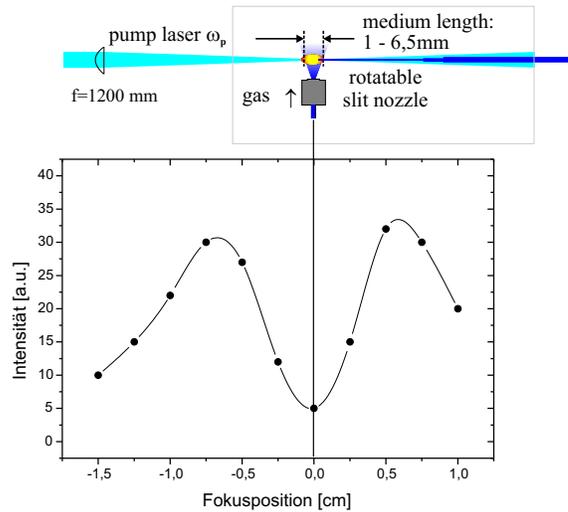


Abbildung 4.23: Variation der Fokusposition ($f = 1300 \text{ mm}$) in Bezug auf das Medium bei einer Wechselwirkungslänge von $L = 1.25 \text{ mm}$.

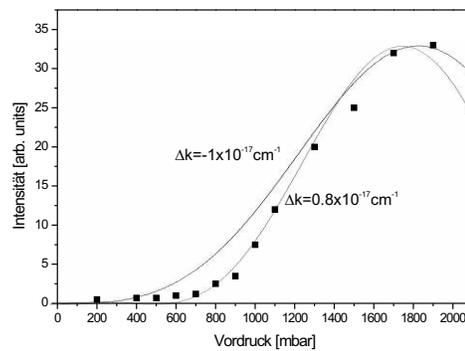


Abbildung 4.24: Signalstärke der dritten Harmonischen in Abhängigkeit vom Düsen-vordruck für eine Wechselwirkungslänge von 6.7 mm zusammen mit theoretische berechneten Signalverläufen für die Dispersionswerte $\Delta k_{disp,atom} = -1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ und $\Delta k_{disp,atom} = +0.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$.

führt. Aber obwohl das Signal für den positiven Wert bei den höchst möglichen Drücken schneller abfällt, als für den negativen, kann hieraus nicht mit Sicherheit auf das richtige Vorzeichen geschlossen werden, da nicht auszuschließen ist, dass die Teilchendichte über der Düse nicht doch knapp unter 2000 mbar Vordruck schon gesättigt sein könnte.

Sehr viel eindeutiger ist hier die Längenvariation. Der Vordruck wurde auf ca. 2000

mbar eingestellt. Während des Experiments fiel er auf etwa 1800 *mbar* ab, was aber nach der vorangegangenen Druckvariation in diesem Bereich nicht zu einem starken Intensitätsabfall des Signals führt. Die Teilchendichte betrug damit $1.1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$. Das Ergebnis der Längenvariation ist in Abbildung 4.25 zu sehen.

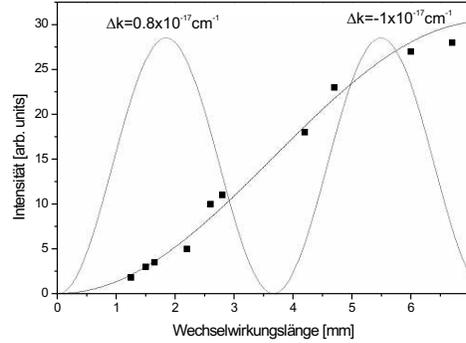


Abbildung 4.25: Längenvariation bei einem Vordruck von 1800 *mbar*, entsprechend einer Teilchendichte von $1.1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$, zusammen mit den theoretisch berechneten Signalverläufen für die Dispersionswerte $\Delta k_{disp,atom} = -1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ und $\Delta k_{disp,atom} = +0.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$.

Es zeigt sich eine gute Übereinstimmung für den Dispersionswert von $\Delta k_{disp,atom} = -1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$. Im Fall positiver Dispersion sollte, wie bereits oben erwähnt, ein oszillatorisches Verhalten vorliegen, welches aber eindeutig nicht auftritt.

Im Vergleich zur Erzeugung der dritten Harmonischen mit der einfachen Lochdüse kann durch die größere Wechselwirkungslänge trotz der um den Faktor 2.3 geringeren Pumpenergie eine Signalsteigerung auftreten. Die maximale Ausgangsenergie konnte in diesem Experiment tatsächlich mit $150 \pm 10 \mu\text{J}$ zu einem größeren Wert bestimmt werden, wobei wie im Fall der Frequenzkonversion in der einfachen Lochdüse die Vakuumphotodiode und der XUV-Photomultiplier eingesetzt wurden.

Die Pumpintensität blieb in beiden Fällen konstant, da die Linse hier nur um 7 *mm* verschoben wurde, im Gegensatz zu 12 *mm* Verschiebeweg bei der höheren Pumpenergie. Die Wechselwirkungslänge konnte in diesem Aufbau um den Faktor 5.3 gesteigert werden, der Strahlquerschnitt war mit 76.2 μm gegenüber 116.2 μm um den Faktor 1.5 kleiner, die Querschnittsfläche also um den Faktor 2.25. Die Teilchendichte war in diesem Experiment um 2.8 geringer.

Diese Skalierungen erlauben eine Abschätzung über die mögliche Steigerung der Ausgangsenergie im Vergleich zu den Experimenten zur Frequenzverdreifung, die im vorangegangenen Abschnitt beschrieben wurden. Es kann so die Frage beantwortet werden, ob eine weitere Steigerung, und damit eine noch höhere Energie als 150 μJ bei den gegebenen experimentellen Bedingungen möglich gewesen wäre.

Die Harmonischenintensität ist direkt proportional zur Pulsenergie E , und es gilt

$$E \propto I_p^3 N^2 L^2 A, \quad (4.12)$$

wobei I_p die Pumpintensität, N die Teilchendichte, L die Wechselwirkungslänge und A die effektive Strahlquerschnittsfläche ist. Die Pumpintensitäten sind jeweils gleich, und für den Zusammenhang zwischen den Energien E_1 (Lochdüse) und E_2 (Drehdüse) in den beiden Experimenten gilt

$$\begin{aligned} E_2 &= E_1 \cdot \left(\frac{L_2}{L_1}\right)^2 \cdot \left(\frac{N_2}{N_1}\right)^2 \cdot \left(\frac{A_2}{A_1}\right) \\ &= E_1 \cdot \frac{5.3^2}{2.25 \cdot 2.8^2} \quad (4.13) \\ &= E_1 \cdot 1.59. \quad (4.14) \end{aligned}$$

Die Energieskalierung zeigt tatsächlich eine sehr gute Übereinstimmung mit dem experimentell bestimmten Wert. Die Konversionseffizienz der Pumplaserenergie in die Pulsenergie der dritten Harmonischen ergibt sich damit zu 2.5%. Dies ist der höchste Wert, der bislang für die Konversion der Strahlung eines kommerziellen Kurzpulslasersystems in den XUV-Spektralbereich unter 100 nm erreicht wurde.

Weiterhin zeigen die Experimente deutlich das Vorliegen einer negativen mittleren Dispersion von $\Delta k_{disp,atom} = -1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ für den Verdreifungsprozess. Dieser Wert ergibt sich nicht aus der störungstheoretischen Berechnung der Brechungsindices, wie sie für kleine Intensitäten gültig ist. Vielmehr zeichnet sich eine kleine aber deutliche Niveaushiftung der beteiligten Zustände ab.

4.3.3 Niveaushiftung und theoretische Simulation

Die im letzten Abschnitt angedeutete Niveaushiftung durch den AC-Stark-Shift stellt eine Möglichkeit bereit, über die Intensität der Pumplaserstrahlung gezielt Ein-

fluss auf die Resonanzstruktur des nichtlinearen Mediums zu nehmen. Diese hat nicht nur Einfluss auf die Phasenfehlانpassung, sondern auch auf die nichtlineare Suszeptibilität. Damit ist die Pumpintensität ein weiterer Parameter zur weiteren Optimierung der Ausgangsenergien und der Konversionseffizienzen. In diesem Abschnitt wird gezeigt, welchen Einfluss eine Verschiebung der Zustände des Argons auf die Erzeugung der dritten Harmonischen hat.

Theoretische Untersuchungen zu diesem Problem wurden von Plummer et al. [M. Plummer 2002] angestellt. Der Einfluss des $3s^23p^54d$ -Zustandes auf die Erzeugung niedriger Harmonischer wurde mit *ab initio* Floquet-Berechnungen untersucht, wobei sich ein deutlicher Einfluss auf die Erzeugungsraten zeigte. In den Berechnungen wurde von einer Wellenlänge von 248 nm ausgegangen, was einer Photonenenergie von 5 eV entspricht, der Zustand besitzt eine Energie von 14.860 eV. Die Floquet-Zustände beschreiben die atomaren gebundenen Zustände zusammen mit dem Laserfeld (dressed states). Bei einer Variation der Laserintensität ergibt sich eine Kreuzung der Floquet-Zustände bei einer Intensität von $7.5 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Weitere theoretische Untersuchungen finden sich in [C. Figuera de Morisson Faria 2002]. Die Intensitätsabhängigkeit von hohen Harmonischen der Titan-Saphir-Wellenlänge sind in [E. S. Toma 1999] beschrieben.

Hier soll in einem einfacheren Modell angenommen werden, dass die angeregten Zustände um Energiebeträge in der Größenordnung des ponderomotiven Potentials ([P. Mulser],[N. B. Delone 1999])

$$U_p = 9.33 \times 10^{-14} I(t) \lambda^2 \quad [\text{eV}] \quad (4.15)$$

zu höheren Energien verschoben werden. Die Laserintensität ist dabei in W/cm^2 anzugeben und die Wellenlänge in μm . Das ponderomotive Potential in Abhängigkeit von der Laserintensität ist in Abbildung 4.26 für eine Wellenlänge von 248.5 nm zu sehen.

Entspricht die Verschiebung genau dem ponderomotiven Potential, sollte sich für eine Intensität von $2.3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ eine Verschiebung des 4d-Niveaus um 0.13 eV ergeben, was bei einer Pumpwellenlänge um 248.2 nm zu einer starken Emission der dritten Harmonischen führen sollte.

Die Durchstimmeigenschaften des verwendeten Lasersystems ermöglichen eine einfache Untersuchung dieses Effekts. Die Variation der Zentralwellenlänge ergibt dabei einen charakteristischen Verlauf des nichtlinearen Antwortspektrums, also der Abhängigkeit der Energie der dritten Harmonischen von der Zentralwellenlänge. Darüber kann auf die

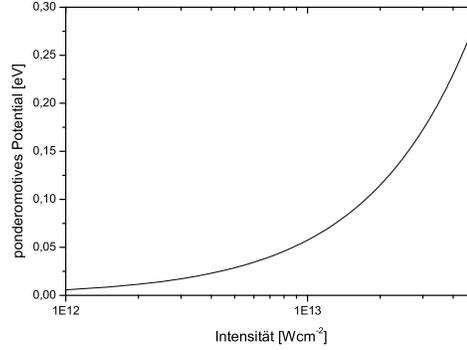


Abbildung 4.26: Ponderomotives Potential in Abhängigkeit von der Laserintensität.

Größe der tatsächlichen Verschiebung der Niveaus geschlossen werden. Ist diese bekannt, kann der Wert der nichtlinearen Suszeptibilität berechnet werden.

Eine anschließende analytische Berechnung der Konversionseffizienz sollte damit zu einer guten Übereinstimmung mit den experimentellen Daten führen.

Zur Aufnahme des Antwortspektrums wurde zu jeder Einstellung einer Zentralwellenlänge λ_z die Energie der dritten Harmonischen gemessen. Die Parameter entsprechen denen des letzten Experiments. Abbildung 4.27 zeigt die Durchstimmkurve des Lasersystems nach der Verstärkung und das daraus erhaltene Antwortspektrum der frequenzverdreifachten Strahlung. Beide Verläufe stimmen mit ihren Maxima überein.

Für die numerische Berechnung wurde die Durchstimmkurve D (nach der Verstärkung) durch eine Superposition von vier Gauß-Funktionen K_j modelliert (durchgezogene Kurve in Abbildung 4.27):

$$K1 = \exp(-4\ln(2)(\lambda_z - 0.2499)^2/(0.003)^2) \cdot ((0.24963 - \lambda_z)8000 + 1)$$

$$K2 = \exp(-4\ln(2)(\lambda_z - 0.250)^2/(0.0005)^2) \cdot ((0.257 - \lambda_z)8000 + 1)$$

$$K3 = \exp(-4\ln(2)(\lambda_z - 0.2496)^2/(0.0003)^2)$$

$$K4 = \exp(-4\ln(2)(\lambda_z - 0.24675)^2/(0.0006)^2) \tag{4.16}$$

$$\tag{4.17}$$

Die Summation

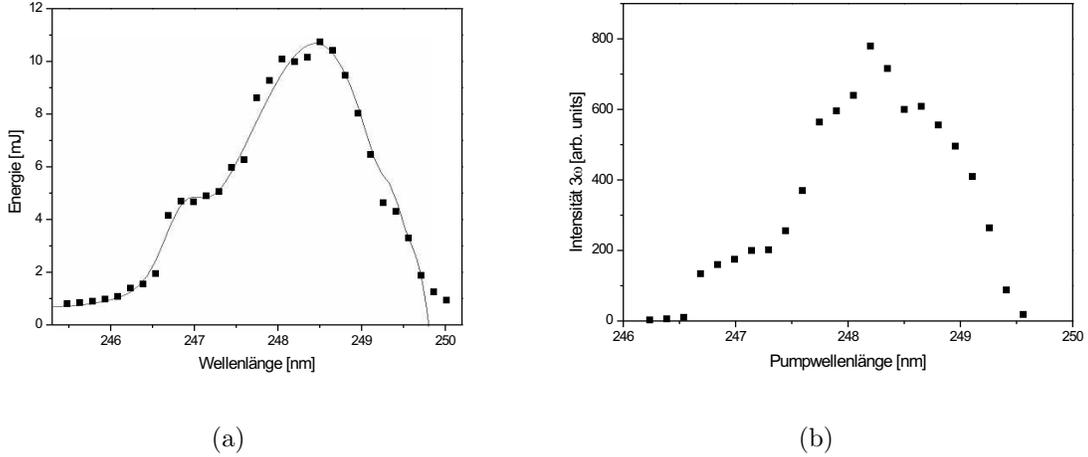


Abbildung 4.27: Verlauf der Pulsenergie des KrF-Lasersystems bei Durchstimmen des DF DL-Seedlasers zusammen mit der theoretischen (modellierten) Durchstimmkurve (a) und die damit erhaltenen spektrale Signalstärke der dritten Harmonischen (nicht-lineares Antwortspektrum) (b).

$$D = \frac{1.63K1 + 0.07K2 + 1.30K3 + 1.70K4}{8.965380402} \quad (4.18)$$

repräsentiert die Ausgangsenergieabhängigkeit und dadurch die Intensitätsabhängigkeit bei fester Fokussierung des Lasersystems von der entsprechenden Zentralwellenlänge. Durch Wahl der Koeffizienten ist diese Funktion auf eins normiert.

An jeder Position λ_z wurde ein gaußförmiges Spektrum in Abhängigkeit von λ mit einer Halbwertsbreite von $\Delta\lambda = 1.6nm$ angenommen. Die Dip-Struktur wurde dabei nicht berücksichtigt. Das Durchstimmverhalten und die spektrale Abhängigkeit werden insgesamt durch das Eingangsspektrum K für den nichtlinearen Prozess

$$K = I(t) \cdot D \cdot \exp(-4\ln(2)(\lambda - \lambda_z)^2/0.0016^2) \quad (4.19)$$

simuliert. Abbildung 4.28 zeigt eine 2D-Darstellung des KrF-Spektrums (λ) bei einer Variation der Zentralwellenlänge (λ_z).

Die Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ wurde nach Anhang C störungstheoretische berechnet. Die Niveaushiftung durch das Laserfeld der Intensität $I(t)$ ändert die Energieabstände E_i der Niveaus zum Grundzustand. Dabei wurde zur Vereinfachung für alle relevanten Zustände i die gleiche Verschiebung angenommen, also

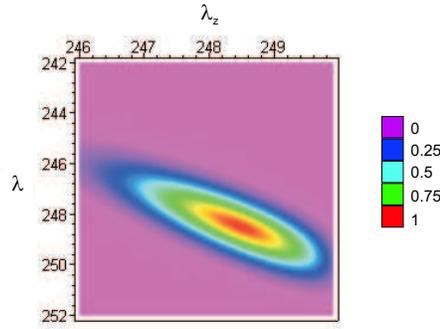


Abbildung 4.28: Spektrale Verteilung (λ) der KrF-Ausgangsenergie bei Variation der Zentralwellenlänge (λ_z).

$$\overline{E}_i = E_i + \xi U_p \quad \Rightarrow \quad \chi^{(3)} \rightarrow \overline{\chi^{(3)}} \quad (4.20)$$

wobei ξ ein zunächst beliebiger Faktor ist. Die Berechnung des damit zu erwartenden Antwortspektrum $A_{3\omega}$ erfolgt schließlich nach Gleichung 4.10 durch

$$A_{3\omega} = \int d\lambda \int dt |\overline{\chi^{(3)}}|^2 \cdot K^3. \quad (4.21)$$

Hierbei wurde der Verlauf der Zentralwellenlänge in 1000 Schritte diskretisiert und das jeweilige Harmonischensignal durch Integration über das Pulsspektrum und die zeitabhängige Intensität bestimmt. Die Integration über das Spektrum erfolgte mit der Newton-Cotes Methode unter Maple. Die Integration über die Zeit wurde zur Zeitersparnis durch eine Summation über die momentanen Intensitäten ersetzt, welche zwischen $0.2 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ und $1 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$ in Schritten von $0.2 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ erfolgte. Die maximale momentane Intensität entsprach dabei genau einer über den Strahlquerschnitt gemittelten Intensität von $6.4 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$.

Abbildung 4.29 zeigt die Ergebnisse für $\xi = 0$ (keine Verschiebung der Zustände) und $\xi = 1$ zusammen mit dem gemessenen Antwortspektrum der dritten Harmonischen. Eine Verschiebung der Zustände um U_p ergibt eine sehr gute Übereinstimmung mit dem Experiment, wohingegen keine Verschiebung zu einem deutlich anderen Resultat führt.

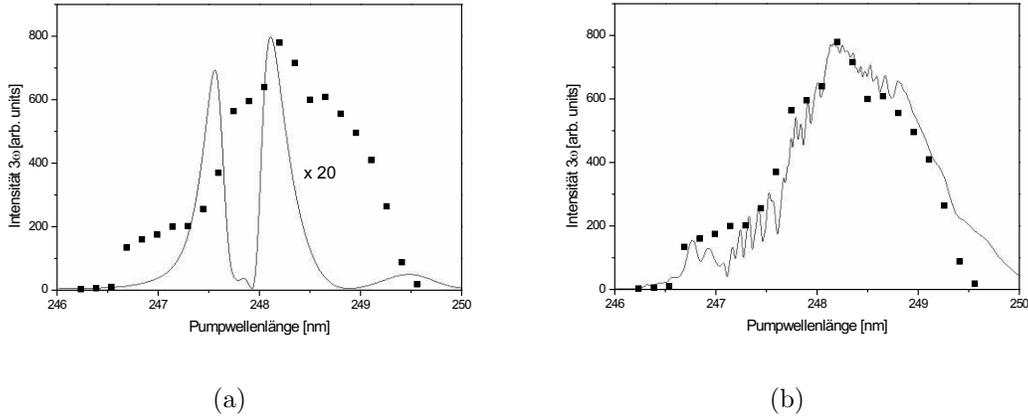


Abbildung 4.29: Das nichtlineare Antwortspektrum von Argon bei Variation der KrF-Wellenlänge zusammen mit theoretisch berechneten Kurven für (a) keine Niveaushiftung und (b) Niveaushiftung in der Größe des ponderomotiven Potentials.

Es zeigt sich hier, dass für eine Interpretation der Frequenzverdreifung unter den gegebenen experimentellen Bedingungen die ponderomotive Niveaushiftung um 0.13 eV berücksichtigt werden muss. Beschreibungen ([Dölle Dissertation]), in denen dieser Effekt nicht enthalten ist, können daher fragliche Aussagen liefern.

Der Verlauf der nichtlinearen Suszeptibilität ist unter Berücksichtigung einer Verschiebung der Niveaus um U_p in Abbildung 4.30 dargestellt. Dadurch ergibt sich nun einen Wert von $28 \times 10^{-38} \text{ esu}$, entsprechend $4 \times 10^{-51} \text{ m}^5/\text{V}^2$ für die nichtlineare Suszeptibilität bei der Pumpwellenlänge von 248.5 nm.

Damit soll nun die Konversionseffizienz analytisch berechnet werden. Die Intensität der dritten Harmonischen ist nach Gleichung 2.16 aus Kapitel 2 gegeben durch

$$\begin{aligned}
 I_q &= \frac{\pi \omega_q^2}{2cn_q} |d_q^{NL}|^2 N^2 F \\
 &= \frac{\pi \omega_q^2}{2cn_q} \frac{|\chi_{atom}^{(q)}|}{(2^{q-1})^2} (A_1^q)^2 N^2 F,
 \end{aligned} \tag{4.22}$$

was mit dem Zusammenhang zwischen Feldstärke und Intensität

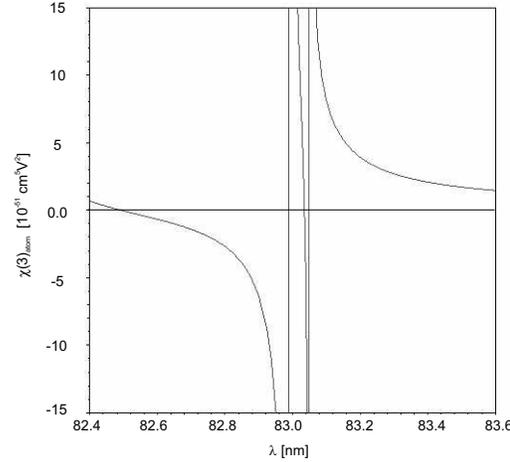


Abbildung 4.30: Verlauf der nichtlinearen Suszeptibilität für einer über den Strahlquerschnitt gemittelten Intensität von $6.4 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$.

$$|A_1^q|^2 = I_1^q \left(\frac{8\pi}{cn_q} \right)^q \quad (4.23)$$

für die dritte Harmonische mit $q = 3$ zu dem Ausdruck

$$I_3 = \frac{576\pi^6}{\lambda_1^2 c^2 n_3 n_1^2} |\chi^{(3)}|^2 N^2 I_1^3 F, \quad (4.24)$$

führt. Die Konversionseffizienz ist definiert als das Verhältnis der Harmonischenenergie zur Pumpulsenergie. Die Pulsintensitäten lassen sich mit den Pulsdauern t_q und den Strahlquerschnittsflächen S_q mit $E_q = I_q t_q S_q$ durch die Pulsenergien ausdrücken. Damit erhält man als Gleichung für die Konversionseffizienz

$$\eta = \frac{E_3}{E_1} = \frac{576\pi^6}{\lambda_1^2 c^2 n_3 n_1^2} |\chi^{(3)}|^2 N^2 I_1^2 F \frac{S_3 t_3}{S_1 t_1}. \quad (4.25)$$

Die Verhältnisse der Fläche bzw. Pulsdauern können nach 4.3.1 und 2.4.1 durch $S_3/S_1 = 1/3$ bzw. $t_3/t_1 = 1/\sqrt{3} \approx 2$ ausgedrückt werden. Als Intensität I_1 sind die mittleren Intensitäten in $\text{erg/cm}^2\text{s}$ anzugeben, also 6.3 bzw. $6.4 \times 10^{13} \text{ Wcm}^2$ ($10^{14} \text{ Wcm}^{-2} = 10^{21} \text{ erg/cm}^2\text{s}$). Für die in allen Experimenten gültige Näherung der schwachen Fokussierung kann $F = L^2 \text{sinc}^2(\Delta k L/2)$ gesetzt werden. Die Phasenfehlanspassung ist $\Delta k = \Delta k_{\text{disp,atom}} N + \Delta k_{\text{geom}}$. Für den aus den Experimenten folgenden Wert der

f [mm]	Intensität [Wcm ⁻²]	Teilchendichte [cm ⁻³]	Δk_{geom} [cm ⁻¹]	L [cm]	F [cm ²]
1980	6.3×10^{13}	2.8×10^{18}	5.4	0.125	0.008
1300	6.4×10^{13}	1.1×10^{18}	7.2	0.650	0.238

Tabelle 4.4: Parameter der Experimente zur Frequenzverdreifung.

atomaren Dispersion $\Delta k_{disp,atom} = -1 \times 10^{17} \text{ cm}^2$ können nun die Konversionseffizienzen bestimmt werden. In der Tabelle 4.3.3 sind noch einmal die Parameter der Experimente zusammengefasst, die für die Rechnung notwendig sind.

Aus Gleichung 4.25 ergeben sich damit Effizienzen von 0.7 % für die kurze Wechselwirkungslänge bei Verwendung der einfachen Lochdüse und 3.2 % für die lange Wechselwirkungslänge. Die Übereinstimmung mit den experimentellen Ergebnissen ist im ersten Fall sehr gut. Für die größere Medienlänge zeigt sich jedoch eine Abweichung zu einem größeren Wert. Dies kann darauf zurückgeführt werden, dass die tatsächliche Länge kleiner gewesen ist, als gemessen wurde. Die Angabe der möglichen Wechselwirkungslänge nach Kapitel 3.3.2 ging zur Sicherheit von leicht größeren Werten aus. Bei der Annahme, dass die maximale Wechselwirkung der Drehdüse genau der Schlitzbreite von 5.5 mm des Düsenkopfes entspricht, ließe sich jedoch auch hier mit einer daraus berechneten Konversionseffizienz von 2.7 % eine gute Übereinstimmung erreichen.

4.4 Effektive Erzeugung der fünften Harmonischen bei 49.7 nm

Die Untersuchungen zur Erzeugung der fünften Harmonischen wurden ausschließlich mit der Drehdüse durchgeführt. Der Aufbau ist also identisch mit dem zur Erzeugung der dritten Harmonischen bei variabler Wechselwirkungslänge. Der einzige Unterschied tritt in der Linsenposition auf, da die Frequenzverfünffachung eine höhere Intensität erfordert, und in der Position des Monochromators, der zur Detektion der Strahlung verwendet wurde. In den Experimenten konnte bei Variation der Linsenposition zwischen der Generation in neutralen Argonatomen und einfach ionisiertem Argon unterschieden werden.

Im nächsten Abschnitt folgen zunächst die experimentellen Resultate und deren In-

terpretation aufgrund der Gleichung 2.16.

Anschließend wird mit dem im letzten Abschnitt vorgestellten numerischen Vorgehen der Einfluss der intensitätsbedingten Niveaushiftung dargestellt.

4.4.1 Frequenzverfünffachung mit variabler Wechselwirkungslänge

Zur Bestimmung der optimalen Fokusposition wurde die Wechselwirkungslänge auf den minimalen Wert von 1.25 mm eingestellt. Die Variation der Linsenposition in Bezug auf das Medium zeigt einen deutlich anderen Verlauf, als das Signal der dritten Harmonischen, wie in Abbildung 4.31 dargestellt ist.

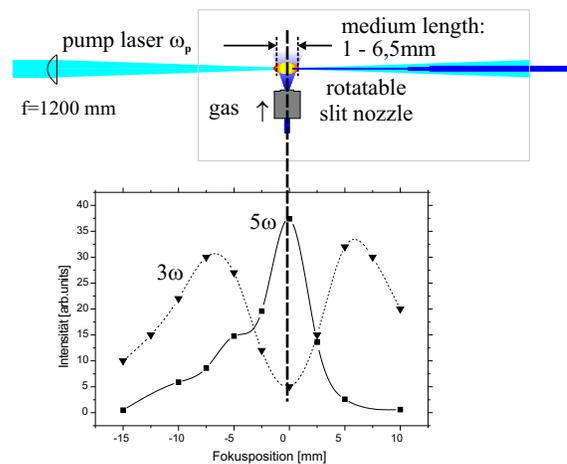


Abbildung 4.31: Vergleich der Fokusvariationen der dritten und fünften Harmonischen. Die Wechselwirkungslänge ist hierbei 1.25 mm.

Die fünfte Harmonische weist ein deutliches Maximum auf, wenn der Fokus genau im Medium liegt. Die mittlere Intensität beträgt hier über den Querschnitt $w_0/\sqrt{5}$ gemittelt (nach 3.3) $5.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^{-2}$. Das Argongas wird an dieser Stelle vollständig ionisiert. Es findet jedoch auch eine Erzeugung der fünften Harmonischen an der Stelle statt, die für die dritte Harmonische optimal ist. Dort liegt nur noch eine Intensität von $6.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^{-2}$ vor, und eine Ionisation des nichtlinearen Mediums wird vermieden. Die Linse ist dafür um 7 mm relativ zu dem Medium verschoben worden. Die beiden verschiedenen Medien (neutrales Argon und Argonionen) zeigen aufgrund anderer Phasenanpassungsbedingungen ein deutlich unterschiedliches Verhalten bei Druck- und Längenvariationen (Abbildungen 4.32 und 4.33).

Der geometrische Anteil der Phasenfehlانpassung ist gegeben durch $\Delta k_{geom} = 2(q - 1)/b_\omega = 14.5 \text{ cm}^{-1}$. Dieser Anteil bleibt nach Kapitel 2.4.1 unverändert. Im Fall der Harmonischenerzeugung in Atomen ist die Phasenfehlانpassung für diesen Prozess gegeben durch

$$\begin{aligned}\Delta k_{5\omega} &= k_{5\omega} - 5k_\omega \\ &= \Delta k_{disp,atom}N + \Delta k_{geom},\end{aligned}\tag{4.26}$$

während im ionisierten Medium der Beitrag der Elektronen zu berücksichtigen ist. Statt der Dispersion der Atome ist diejenige der Ionen einzusetzen.

$$\begin{aligned}\Delta k_{5\omega} &= k_{5\omega} - 5k_\omega \\ &= \Delta k_{disp,e}N + \Delta k_{disp,ion}N + \Delta k_{geom}.\end{aligned}\tag{4.27}$$

$k_{5\omega}$ und k_ω sind die Wellenvektoren für die Harmonische und die Grundwelle. Die atomare Dispersion $\Delta k_{disp,atom} = -1.136 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ ist nach 4.1.1 durch den Brechungsindex der Pumpstrahlung bestimmt. Der ionische Anteil kann unter der Annahme derselben ponderomotiven Verschiebung um U_p wie im Fall der dritten Harmonischen aus 2.63 und 2.70 berechnet werden (hier $U_p = 2.88 \text{ eV}$). Daraus lässt sich ein Wert von etwa $\Delta k_{disp,ion} = -4 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ ablesen. Der Wert für $\Delta k_{disp,e}$ bleibt unverändert bei $2.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$.

Das Ausgangssignal $I_{5\omega}$ wird nach Kapitel 2, 2.16 beschrieben durch

$$I_{5\omega} = \frac{\pi 5\omega}{2cn_{5\omega}} |d_{5\omega}^{NL}|^2 N^2 L^2 \frac{\sin^2\left(\frac{\Delta k_{5\omega} L}{2}\right) + \sinh^2\left(\frac{a_{5\omega} L}{4}\right)}{\left(\frac{\Delta k_{5\omega} L}{2}\right)^2 + \left(\frac{a_{5\omega} L}{4}\right)^2} e^{-\frac{a_{5\omega} L}{2}}\tag{4.28}$$

$$= \frac{\pi \omega_{5\omega}^2}{2cn_{5\omega}} |d_{5\omega}^{NL}|^2 N^2 F_{5\omega} \quad .\tag{4.29}$$

Dabei ist $n_{5\omega}$ der Brechungsindex der fünften Harmonischen, der nach 4.1.1 zu eins angenähert werden kann, $d_{5\omega}^{NL}$ das nach Abschnitt 2.1 definierte Dipolmoment und $a_{5\omega}$ der ebenfalls unter 4.1.1 aufgeführte Absorptionskoeffizient. Letzter hat für die Erzeugung in Atomen den Wert $a_{5\omega} = 35 \text{ Mbarn}$, während er im ionisierten Medium verschwindet.

Druckvariationen zur Demonstration des unterschiedlichen Verhaltens im neutralen und ionisierten Medium wurden bei maximaler Wechselwirkungslänge von 6.7 mm vorgenommen. Abbildung 4.32 zeigt die Druckabhängigkeit des Signals der fünften Harmonischen für die Intensitäten $5.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^{-2}$ und $6.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^{-2}$.

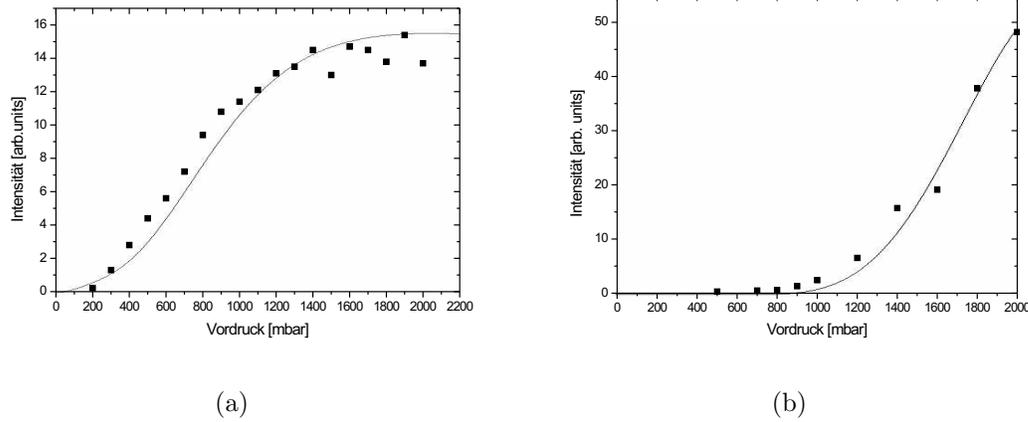


Abbildung 4.32: Druckvariationen bei einer Wechselwirkungslänge von 6.7 mm für (a) eine geringe Intensität von $6.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^{-2}$ (keine Ionisation) und (b) eine hohe Intensität von $5.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^{-2}$ (vollständige Ionisation).

Im nicht ionisierten Medium zeigt sich eine Sättigung der Harmonischenenergie ab ca. 1500 mbar. Im ionisierten Medium ergibt sich hingegen ein Signalanstieg bis etwa 2000 mbar. Die gefittete theoretische Kurve, die unter der Annahme von $\Delta k_{disp,ion} = -4 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ berechnet wurde, weist hier ein Maximum auf. Bei der dem Vordruck entsprechenden Teilchendichte von $1.2 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ ergibt sich nach 4.27

$$\begin{aligned}
 \Delta k_{5\omega} &= \Delta k_{disp,e}N + \Delta k_{disp,ion}N + \Delta k_{geom} \\
 &= 33.6 \text{ cm}^{-1} - 48 \text{ cm}^{-1} + 14.5 \text{ cm}^{-1} \\
 &= 0.1 \text{ cm}^{-1}
 \end{aligned} \tag{4.30}$$

eine phasenangepasste Erzeugung der fünften Harmonischen.

Für diesen Fall zeigt eine Längenvariation bei dem Vordruck von 2000 mbar den dazu entsprechenden quadratischen Anstieg, siehe Abbildung 4.33(b), während Abbildung

4.33(a) für niedrige Intensitäten wiederum eine Signalsättigung zeigt

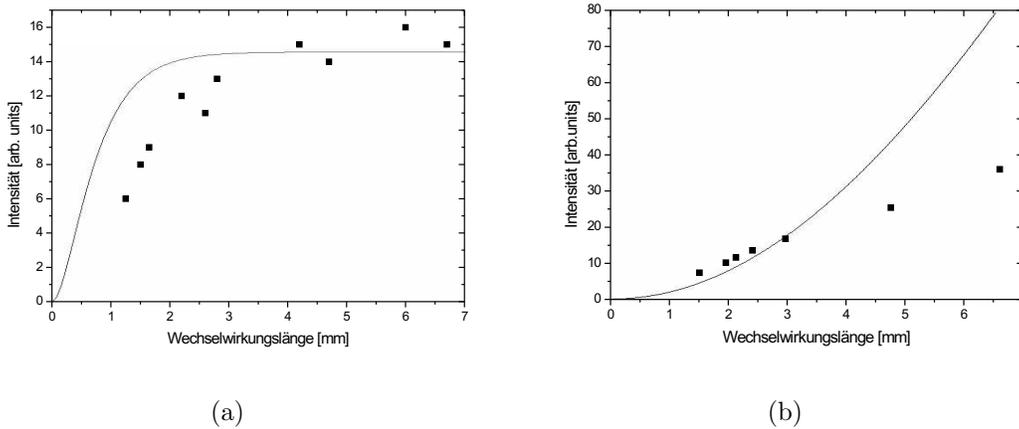


Abbildung 4.33: Längenvariationen bei einem Vordruck von 2000 *mbar* für (a) eine geringe Intensität von $6.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^{-2}$ (keine Ionisation) und (b) eine hohe Intensität von $5.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^{-2}$ (vollständige Ionisation).

Die theoretische Kurve, die nach Gleichung 4.28 berechnet wurde, zeigt oberhalb von 5 *mm* Wechselwirkungslänge eine deutliche Abweichung, was auf den konfokalen Parameter von 5.5 *mm* zurückgeführt werden kann. Nur bis dort hin ist die Näherung der schwachen Fokussierung erlaubt, und die gemessenen Signale sind für größere Wechselwirkungslänge schwächer als nach der theoretischen Kurve zu erwarten.

Bei kleineren Pumpintensitäten tritt eine Signalsättigung der Harmonischenintensität durch Reabsorption der generierten Strahlung ein. Die theoretische Kurve zeigt hier nur eine ungefähre Übereinstimmung, was auf eine schwache schon vorhandene Ionisation des Mediums zurückzuführen sein kann. Dennoch zeigt sich in dem zugänglichen Parameterbereich ein Unterschied in der Erzeugung der fünften Harmonischen in Argonatomen, die als Plateauharmonische zu betrachten ist, und in Argonionen, wo unter den gegebenen Bedingungen eine störungstheoretische Behandlung möglich ist. Durch die Wahl der Fokusslage ist es möglich zwischen diesen beiden Regimen gezielt zu wechseln.

Ein direkter Vergleich der optimierten Signalstärken der fünften und der dritten Harmonischen zeigt eine hohe Pulsenergie an. Eine Messung der Ausgangsenergie der frequenzverfünffachten Strahlung nach 3.3.1 ergab einen Wert von $15 \pm 2 \mu\text{J}$. In einzelnen Pulsen konnten sogar Pulsenergien bis zu $20 \mu\text{J}$ gemessen werden. Bei einer Pumpenergie von nur 6 *mJ* entspricht dies einer mittleren Konversionseffizienz in die fünfte

Harmonische bei 49.7 nm von 0.25 %. Dieser Wert liegt um etwa zwei Größenordnungen über Angaben, die mit Titan:Saphir-Lasersystemen bei vergleichbaren Wellenlänge (15. Harmonische) erreicht worden sind ([Constant u. a. 1999], [J. F. Hergott 2002]). Das Resultat unterstreicht damit die eingangs beschriebenen Vorteile von bereits kurzwelligen Pump Lasern für die Frequenzkonversion in den VUV- und XUV-Bereich.

Die relativ geringen Energieschwankungen des Harmonischensignals von $2 \mu J$ spiegeln sich auch in einer Variation der Pumpenergie und damit der Pumpintensität wieder, Abbildung 4.34.

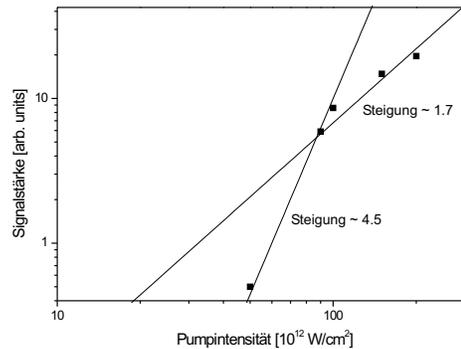


Abbildung 4.34: Abhängigkeit der Signalstärke der fünften Harmonischen von der Pumpintensität. Bei Eintritt der Ionisation von Argon zu Argonionen setzt eine Änderung des Signalanstiegs ein.

Unterhalb einer Intensität von $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^{-2}$ ergibt sich ein Signalanstieg mit einer Potenz von etwa 4.5 von der Pumpintensität, was auf einen Prozess fünfter Ordnung deuten kann. Allerdings sollte bei diesen kleinen Intensitäten keine Ionisation des Mediums stattfinden, und da die Erzeugung der fünften Harmonischen oberhalb der Ionisierungsenergie von Argon abläuft, ist diese Interpretation nur als ein Indiz zu werten.

Obwohl es sich bei Intensitäten oberhalb von $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^{-2}$ um einen störungstheoretisch beschreibbaren Prozess fünfter Ordnung handelt, zeigt sich kein Signalanstieg mit der fünften Potenz der Pumpintensität, sondern lediglich ein Exponent von 1.7 für hohe Intensitäten. Dieses Ergebnis wurde auch von [R. Rosmann 1988] beobachtet, wo ebenfalls nur ein Signalanstieg proportional zu $I_{pump}^{2.5}$ festgestellt werden konnten. Dieser Effekt wurde dort auf den Einfluss des nichtlinearen Brechungsindex von Argonionen bei der Harmonischenfrequenz zurückgeführt ([R. Rosmann 1988], [L. J. Zych 1978]), hier

aber nicht weiter untersucht.

Die Angabe einer nach Anhang B theoretisch abgeschätzten Pulsdauer und einer spektralen Breite der Emission ist daher etwas schwierig. Wird für die fünfte Harmonische analog zu 4.3.1 eine Pulsdauer von $\Delta t_{3\omega} = \Delta t/\sqrt{5}$ angenommen, entspricht das bei einer Pumpulsdauer von 450 fs einer Pulsdauer der fünften Harmonischen von 201 fs, woraus eine spektrale Breite von 0.1 nm folgt. Der tatsächliche Signalanstieg ist hier aber eher vergleichbar mit dem der dritten Harmonischen, weshalb man auch für die fünfte eher eine Pulsdauer von 250 fs und eine spektrale Breite von etwa 0.2 nm annehmen kann.

4.4.2 Theoretische Simulation der Wellenlängenabhängigkeit

Analog zum Vorgehen bei der dritten Harmonischen kann auch bei der Erzeugung der fünften Harmonischen der Einfluss der ponderomotiven Niveauverschiebung an dem Ausgangsenergiespektrum bei Variation der Pumplaserwellenlänge untersucht werden. Zur numerischen Berechnung wurde wiederum die Modellierung der KrF-Energie in Abhängigkeit von der Zentralwellenlänge K aus 4.3.3 verwendet. Da der Zusammenhang zwischen der Pumpintensität und der Signalintensität hier durch einen Exponenten von 1.7 gegeben ist erfolgt die Berechnung des Antwortspektrums $A_{5\omega}$ durch

$$A_{5\omega} = \int d\lambda \int dt |\overline{\chi^{(5)}}|^2 \cdot K^{1.7}. \quad (4.31)$$

Die Energien E_i der Zustände i wurden bei der Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilität wie im vorangegangenen Fall der dritten Harmonischen wieder um das ponderomotive Potential verschoben, d.h. $\overline{E}_i = E_i + U_p$. Die Auswertung von $A_{5\omega}$ erfolgte für jede Zentralwellenlänge λ_z wie oben durch Integration über das zugehörige Pulsspektrum und Summation über die zeitabhängigen Pumpintensitäten. Dazu wurden Intensitäten von $1.8 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$ bis $5.2 \times 10^{14} \text{ Wcm}^{-2}$ in Schritten von $2 \times 10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$ aufaddiert. Die maximale Intensität entspricht dabei der maximalen Pumpintensität.

Abbildung 4.35 zeigt das gemessene Antwortspektrum der fünften Harmonischen bei der Variation der Zentralwellenlänge des Pumplasers zusammen mit dem nach obiger Gleichung berechneten.

Hier zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung. Die Simulation reproduziert die angedeutete Flattop-Struktur, sowie die Schultern, die an den Rändern des Durchstimm-

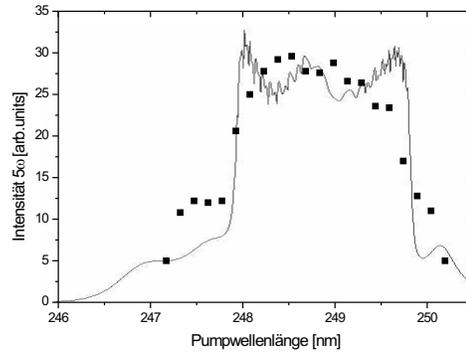


Abbildung 4.35: Nichtlineare Antwort von Argon bei der fünften Harmonischen bei Durchstimmung des KrF-Lasersystems.

bereiches auftauchen. Diese lassen sich auf die Struktur der nichtlinearen Suszeptibilität zurückzuführen. Dadurch lässt sich gut verdeutlichen, dass eine störungstheoretische Behandlung des nichtlinearen Dipolmoments für das vorliegende ionisierte Medium in so fern gerechtfertigt ist, als dass seine Struktur im Rahmen des Experimentes richtig wiedergegeben wird. Allerdings gestaltet sich eine Beschreibung nach Formel 2.16 als schwierig, da die Intensität nicht mit der fünften Potenz in die Gleichung eingeht, sondern mit einer sehr viel niedrigeren. Es ließe sich zwar ein Wert für die nichtlineare Suszeptibilität angeben, doch wäre seine Dimension und somit die physikalische Bedeutung unklar. Auf eine Berechnung soll daher verzichtet werden.

4.5 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde die effektive Frequenzverdreifachung und Frequenzverfünffachung von KrF-Kurzpuls laserstrahlung vorgestellt. Diese Experimente führten zu leistungsstarken, kohärenten Lichtquellen bei 82.8 nm und bei 49.7 nm . Dabei war es durch geeignete Wahl des nichtlinearen Mediums und der Wellenlänge und Intensität des Pumplasersystems möglich, den limitierenden Einfluss einer Reabsorption der generierten Strahlung zu umgehen. Mit Argon als Medium für die Erzeugung der dritten Harmonischen und Argonionen für die Erzeugung der fünften Harmonischen liegen die jeweiligen Photonenenergie unter der nächsten Ionisierungsenergie, wodurch die Absorption durch Ein-Photonen-Ionisation verhindert wird. Weiterhin wurden inneratomare

(dritte Harmonische) und innerionische (fünfte Harmonische) Resonanzen ausgenutzt, um eine hohe nichtlineare Polarisierung zu erzeugen, die zu einer Steigerung der Effizienz führte.

Dazu wurde ausführlich die Wahl und die Eigenschaften von Argon bzw. Argonionen als nichtlineares Medium diskutiert. Der Ionisationsmechanismus wurde anhand einer Energievariation untersucht, wobei sich eine sehr gute Übereinstimmung mit dem theoretischen Modell der Tunnelionisation zeigte. Durch Nachweis einer Appearance-Intensität von $2.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ für Argonionen war es möglich, bei der Frequenzverfünffachung sicher zwischen der Erzeugung in Atomen und Ionen zu unterscheiden.

In den Experimenten wurde weiterhin mit einem speziellen Gasdüsendesign gearbeitet, mit dem die Wechselwirkungslänge kontinuierlich zwischen 1.25 mm und 6.7 mm variiert werden konnte.

Vergleiche mit den theoretischen Beschreibungen aus Kapitel 2 weisen auf eine zumindest quasiphasenangepasste Erzeugung der Harmonischen über die maximal mögliche Medienlänge hin. Unter optimalen Bedingungen konnten so Pulsenergien im XUV von 150 μJ bei 82.8 nm und 15 μJ bei 49.7 nm erreicht werden. Die bei einer Pumpulsenergie resultierenden Konversionseffizienzen von 2.5 % und 0.25 % gehören zu den höchsten bislang gemessenen in diesem Spektralbereich. Hierbei zeigt sich noch einmal der Vorteil von bereits kurzwelligen kommerziellen PumpLasern.

5 Parametrische Verstärkung im VUV

In diesem Kapitel wird das Potential parametrischer Prozesse zur Erzeugung und vor allem zur Verstärkung von kohärenter Strahlung im VUV-Spektralbereich betrachtet.

Grundlage der Untersuchungen, die in diesem Kapitel vorgestellt werden, bildet das von Tünnermann [Tünnermann u. a. 1992], Glowina [Glowina u. a. 1994] und [S. P. Le Blanc 1995] untersuchte KrF-gepumpte Xenonsystem. Die hierbei beobachteten selbststartenden parametrischen Emissionen bei 149 nm und 760 nm deuten auf eine große nichtlineare Suszeptibilität und somit auf eine hohe mögliche Verstärkung im Bereich dieser Wellenlängen hin. Tatsächlich konnte von Glowina eine makroskopische Verstärkung von Strahlung bei 620 nm in einer mit Xenon gefüllten Zelle nachgewiesen werden. Eine experimentelle Bestimmung des erreichbaren Verstärkungskoeffizienten wurde allerdings nicht durchgeführt. Für die Emission im VUV-Spektralbereich existierte bislang noch kein experimenteller Nachweis der exponentiellen Verstärkung. Dieser gelang jedoch im Rahmen dieser Arbeit. Darüber hinaus konnte auch das Potential demonstriert werden, diesen Prozess zur Verstärkung externer Strahlquellen einzusetzen.

Der Prozess und die Materialeigenschaften von Xenon für die Frequenzmischung werden im nächsten Abschnitt 5.1 vorgestellt.

Danach folgen in Abschnitt 5.2 die Untersuchungen zu den Verstärkungseigenschaften des selbststartenden Mischprozesses. Hierbei konnten eindeutig Verstärkungskoeffizienten bis zu 5.4 cm^{-1} und makroskopische Verstärkungen bis zu 320 bei einer Wechselwirkungslänge von 6.7 mm nachgewiesen werden.

Im Abschnitt 5.3 werden die Möglichkeiten untersucht, diesen Prozess zur Verstärkung von Signalen in der Nähe der selbststartenden Wellenlänge zu nutzen. Dazu wird das Idlerfeld von einer externen Quelle geseeded und die Längenabhängigkeit der korrespondierenden VUV-Strahlung bestimmt.

Die Möglichkeit, durch dieses Konzept eine externe VUV-Strahlung nachzuverstärken wird in Abschnitt 5.4 demonstriert.

Die hohen Verstärkungen und das im Differenzfrequenzmischprozess erzeugte Idlerfeld

führen darüber hinaus zu einem Signalfeld bei 106 nm , das aus der Summenfrequenzmischung von zwei Pumpphotonen mit einem Idlerphoton resultiert. Dieser Prozess, nämlich die Kopplung von Differenz- und Summenprozess führt zu einem Verstärkungstransfer, wobei nun auch die Amplitude der Summenfrequenz ein exponentielles anwachsen mit der Medienlänge zeigt. Ein solcher Mechanismus wurde in [Meyer u. a. 1999] vorgeschlagen und konnte im Rahmen dieser Arbeit erstmals experimentell nachgewiesen werden.

5.1 Vierwellen-Differenzfrequenzmischung im Xenon

Ein vereinfachtes Termschema des Xenons mit den für die Vierwellenmischung relevanten Niveaus ist in Abbildung 5.1 dargestellt.

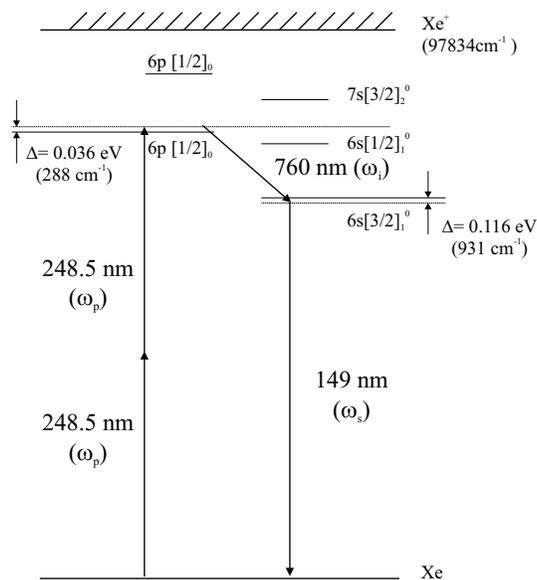


Abbildung 5.1: Termniveauschema für die nahresonante Zweiphotonenanregung von Xenon durch KrF-Kurzpulslaserstrahlung und die aus dem Rauschen entstehenden Signal- und Idlerwellen.

Die zugehörigen Oszillatorenstärken und Übergangsfrequenzen sind in Tabelle 5.1 aufgeführt [Mossavi 1996].

Die Anregung erfolgt nahresonant bzw. resonant durch zwei Photonen der KrF-Pumpstrahlung ω_p vom Grundzustand $5p^6$ des Xenonatoms. Die Verstimmung $\Delta\omega = 2\omega_{KrF} - \Omega_{30}$ zu dem $6p[1/2]_0$ -Zustand ($|3\rangle$) reicht über den Durchstimmbereich des KrF-Pumpasersystems

Übergang $5s^25p^5$	Frequenz $[10^{16} s^{-1}]$	Wellenlänge $[nm]$	f
$0 - 6s[3/2]_1^0$	1.28	147.16	0.273
$0 - 6s[1/2]_1^0$	1.45	129.99	0.186
$0 - 6p[1/2]_0$	1.51	124.83	-
$6p[1/2]_0 - 6s[1/2]_1^0$	0.06	3141.59	0.00551
$6p[1/2]_0 - 6s[3/2]_1^0$	0.23	828.8	0.153

Tabelle 5.1: Zustände des Xenons für die Vierwellenmischung.

von 1016 cm^{-1} bei 246.5 nm bis -119 cm^{-1} bei 250 nm . Bei der zentralen Wellenlänge von 248.5 nm ist die Verstimmung 363 cm^{-1} , und damit nah genug, um zu einer resonanten Überhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität zu führen. Gleichzeitig ist $\Delta\omega$ gross gegenüber der Bandbreite der Pump laserstrahlung von 178 cm^{-1} ($\Delta\lambda_p/\lambda_p = \Delta k_p/k_p$). Hierbei ist ein Besetzungstransfer noch zu vernachlässigen, und die induzierte Polarisation folgt instantan dem Pump puls [Reintjes 1984].

Für den hier betrachteten Vierwellenmischprozess

$$\omega_s = 2\omega_p - \omega_i \quad (5.1)$$

bedeutet das, dass der KrF-Pump puls mit dem Idlerfeld ω_i überlappen muss, damit ein Mischsignal ω_s im VUV-Bereich entstehen kann. Dabei wird zunächst davon ausgegangen, dass ein Idlerfeld vorgegeben, d.h. geseeded wird. Ist die Verstimmung signifikant kleiner als 178 cm^{-1} , also bei Wellenlängen größer als 249.1 nm , kann eine Signalsättigung durch Besetzungstransfer zustande kommen. Ein solcher Einfluss konnte auch schon für kürzere Wellenlängen beobachtet werden ([J. H. Glowonia 1993]), war aber klein gegen die induzierte instantane Polarisation. In [Tünnermann u. a. 1992] konnte so auch eine stimulierte Emission auf dem $6p[1/2]_0-6s[3/2]_1$ -Übergang bei einer Wellenlänge von 828.8 nm beobachtet werden. Dies entspricht dem direkten Übergang $|3\rangle-|1\rangle$ in der Abbildung 5.1. Dieser Aspekt wird an verschiedenen Stellen dieses Kapitels noch einmal aufgegriffen.

Die Brechungsindizes der beteiligten Wellen können im sichtbaren und ultravioletten Spektralbereich analog zu Argon durch eine vereinfachte Sellmeier-Gleichung nach [A. Bideau-Mehu 1981] angegeben werden:

$$n(\lambda) - 1 = 0.012055 \cdot \left(\frac{0.26783}{46.301 - \lambda^{-2}} + \frac{0.29481}{50.578 - \lambda^{-2}} + \frac{5.0333}{112.74 - \lambda^{-2}} \right) . \quad (5.2)$$

Dies gilt für einen Druck von 1 *bar* (Teilchendichte $N_0 = 2.69 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$) und eine Temperatur von 0 °C. Die Wellenlänge ist hierbei in μm anzugeben.

Im Bereich der Resonanzen, also um 147.16 *nm*, wird der Brechungsindex durch

$$n = \sqrt{1 + \frac{r_e}{2\pi} \sum_i \frac{f_{gi}(\lambda_{gi}^{-2} - \lambda^{-2})}{(\lambda_{gi}^{-2} - \lambda^{-2})^2 + \frac{\Delta\lambda^2}{\lambda^{-6}}} } \quad (5.3)$$

dargestellt, vgl 2.4.2.1, wobei die f_{gi} die Oszillatorenstärken aus Tabelle 5.1 sind. Die Linienbreiten $\Delta\lambda$ können in nichtresonanten Anregungen prinzipiell vernachlässigt werden.

Die Resonanznähe der Wellenlängen bei der Vierwellenmischung führt hier zu einer nichtkollinearen Phasenanpassung. Die Phasenfehlانpassung für den oben beschriebenen Prozess ist

$$\Delta\vec{k} = \vec{k}_s + \vec{k}_i - 2\vec{k}_p. \quad (5.4)$$

Die Signal- und Idlerfelder befinden sich dabei auf Kegelflächen mit den Öffnungswinkeln

$$\theta_s = \arccos \frac{4k_p^2 + k_s^2 - k_i^2}{4k_p k_s} \quad (5.5)$$

und

$$\theta_i = \arccos \frac{4k_p^2 + k_i^2 - k_s^2}{4k_p k_i}. \quad (5.6)$$

Die $k_j = \omega_j n_j / c$ sind die Beträge der Wellenvektoren. Die nichtkollineare Phasenanpassung führt dazu, dass die Strahlen auseinander laufen (walk-off) und nur über eine effektive Länge l_{eff} überlappen können. Bei einer Variation der Wechselwirkungslänge über l_{eff} hinaus stellt sich eine Signalsättigung ein.

Die nichtlineare Suszeptibilität $\chi^3(-\omega_s; \omega_p, \omega_p, \omega_i)$ nach Anhang C ist in Abbildung 5.2 für eine Pumplaserwellenlänge von 248.5 *nm* dargestellt.

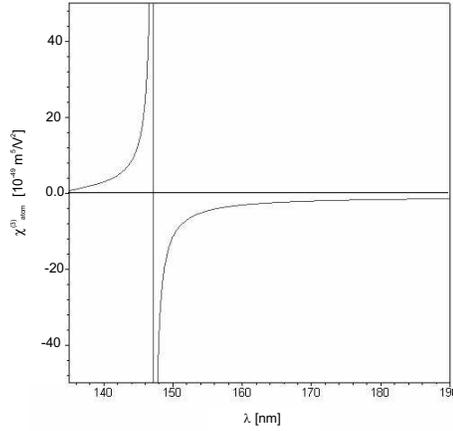


Abbildung 5.2: Nichtlineare Suszeptibilität $\chi^3(-\omega_s; \omega_p, \omega_p, \omega_i)$ für den Differenzfrequenzmischprozess in Xenon.

Die Polstelle bei 147.16 nm wird durch den $6s[3/2]_1$ -Zustand verursacht. Eine Variation der Pump laserwellenlänge ermöglicht eine Annäherung des virtuellen Pumpniveaus an den $6p[1/2]_0$ -Zustand und damit eine weitere Steigerung der nichtlinearen Suszeptibilität. Die Struktur des $\chi^3(-\omega_s; \omega_p, \omega_p, \omega_i)$ im Bereich der Signalstrahlung im VUV-Bereich wird dabei nicht beeinflusst. Für den Differenzprozess $\omega_{149} = 2\omega_{248.5} - \omega_{760}$ ergibt sich ein Wert von $-2,55 \times 10^{-49} m^5/V^2$. Bei einer festen Signalwellenlänge von 149 nm ergibt eine Pumpwellenlänge von 249 nm bereits einen Wert von $-5,21 \times 10^{-49} m^5/V^2$, der weiter steigt auf $-13,37 \times 10^{-49} m^5/V^2$ für eine Pumpwellenlänge von 249,3 nm. Fern ab der Resonanz ergeben sich Werte von etwa 10^{-52} . Diese Überhöhung führt zu einer großen Verstärkung im Bereich der Zustände $6p[1/2]_0$ und $6s[3/2]_1$ in dem VUV-Wellenlängenbereich um 149 nm und im roten Spektralbereich um 760 nm. In unmittelbarer Nähe der Resonanz kann der Differenzfrequenzmischprozess aus den Vakuumfluktuationen (Photonenhintergrundrauschen) heraus starten und führt so zu den bereits erwähnten selbststartenden Emissionen bei 149 nm und 760 nm, siehe 5.2.

5.2 Selbststartende parametrische Superfluoreszenz und Verstärkung bei 149 nm

Die selbststartenden Emissionen wurden sowohl mit der Drehdüse, als auch in einer statischen Gaszelle untersucht. Die nichtkollineare Phasenanpassung und der resultierende

Öffnungswinkel der Strahlung weisen eine starke Druckabhängigkeit auf. Dies kann bei großen Öffnungswinkeln zu einer Reduktion der effektiven Wechselwirkungslänge in Bezug auf die an der Drehdüse eingestellten Medienlängen führen. Daher wurde zunächst der sichtbare Teil der Emission in der Gaszelle untersucht, um Aussagen über die Druckabhängigkeit zu erhalten. Ähnlich Experimente wurden bereits von Mossavi [Mossavi 1991] durchgeführt. Die Druckabhängigkeit des Öffnungswinkels und dadurch der Phasen Anpassung beeinflusst das emittierte Spektrum. Dadurch war es ebenfalls möglich, über den Vergleich der Spektren der sichtbaren Emission aus der Zelle und der Düse das Verhältnis von Vordruck zu tatsächlichem Druck in der Wechselwirkungszone bei der Drehdüse festzulegen. Auf diese Messungen wird im Folgenden Abschnitt eingegangen. Weiterhin kommt es bei höheren Teilchendichten zu einem Hyperramanprozess [Mossavi 1991] mit Linienemissionen bei 828.8 nm und der anschließenden Relaxation bei 147.16 nm . Dieser würde bei der Detektion der VUV-Signale durch die begrenzte spektrale Auflösung des verwendeten Monochromators unvermeidliche Beiträge liefern und so zu einer Verfälschung der Messwerte führen. Eine Trennung der Prozesse ist notwendig, um verlässliche Aussagen über den zu erwartenden Verstärkungskoeffizienten zu erhalten.

Die VUV-Emission wurde ausschließlich unter Verwendung der Drehdüse untersucht. Das Verhalten des nichtlinearen Prozesses bei Druck- und Längenvariation wird in Abschnitt 5.2.2 dargestellt.

5.2.1 Gaszelle - Nichtkollineare Emission und Spektrum

Die Fokussierung erfolgte mit einer $f = 1300 \text{ mm}$ -Linse, wie sie ebenfalls in [Mossavi 1996] und in den folgenden Experimenten verwendet wurde. Zur Druckmessung in der Zelle wurde ein kommerzieller Druckmesskopf der Firma Edwards verwendet, der in seinem Arbeitsbereich von 1 mbar bis 1000 mbar gute Übereinstimmung mit dem geeichten elektronischen Vakuum-Meter (Greisinger Electronic GDH 12 AN) liefert. Dies ermöglicht einen direkten Vergleich des Zellendrucks mit dem Düsen vordruck in den späteren Experimenten, und ergibt somit einen Zusammenhang zwischen den Signalen aus der Zelle und der Düse.

Zur Untersuchung der erzeugten Strahlung wurde diese mit einer $f = 200 \text{ mm}$ -Linse refokussiert. Zur Energiemessung konnten einzelne Emissionsbereiche durch optische Filter bekannter Transmission selektiert werden, die anschließend mit einem Energiemesskopf GenTec ED-100A detektiert wurden. Für spektrale Untersuchungen wurde ein

Monochromator Edinburgh 121S30M und eine schnelle Photodiode Thorlabs DET200 verwendet.

5.2.1.1 Druckabhängige Spektren- und Energiemessung

Abbildung 5.3 zeigt die bei verschiedenen Drücken aufgenommenen Emissionsspektren im Wellenlängenbereich zwischen 630 nm und 850 nm. Die Anregung erfolgte mit der Zentralwellenlänge des UV-Kurzpulslasersystems bei 248.5 nm. Dabei ist ein deutlicher Übergang von der breitbandigen, aus dem parametrischen Prozess stammenden Strahlung zur schmalbandigen Hyperramanemission bei 828.8 nm zu erkennen. Zusätzlich tritt eine spektrale Verschiebung der Idleremission auf.

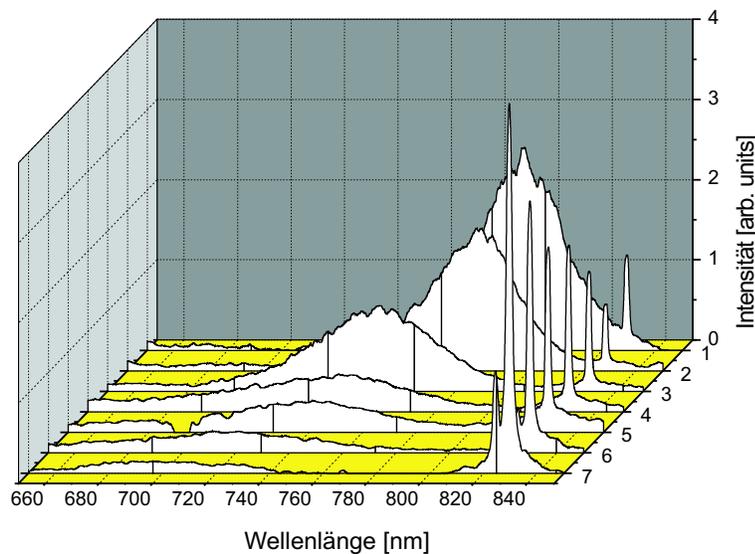


Abbildung 5.3: Spektren der Idlerstrahlung zwischen 650 nm und 850 nm bei verschiedenen Zelldrücken: 1=20 mbar, 2=30 mbar, 3=60 mbar, 4=100 mbar, 5=150 mbar, 6=200 mbar, 7=300 mbar.

Der Übergang zwischen den beiden Regimen spiegelt sich auch in der druckabhängigen Ausgangsenergie der sichtbaren Emission zwischen 630 nm und 850 nm wieder, wie sie in Abbildung 5.4 dargestellt ist.

Die Ausgangsenergie weist bei etwa 20 mbar Zellendruck ein lokales Maximum von 4 μJ auf. In den Spektren ist hier nur eine schwache Linie bei 828.8 nm zu erkennen. Die Ausgangsleistung ist bis zu 20 mbar also hauptsächlich auf den parametrischen Vierwellenprozess zurückzuführen. Darüber fällt die Ausgangsenergie wieder ab, was nach

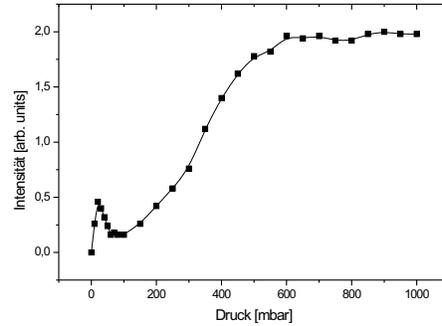


Abbildung 5.4: Abhängigkeit der Ausgangsenergie zwischen 630 nm und 850 nm vom Zellendruck.

den Spektren auf eine sinkende Effizienz des parametrischen Prozesses zurückzuführen ist. Erst ab ca. 100 mbar Zellendruck steigt das Signal der Hyperramanemission an. Diese Tatsache lässt sich auch an der Winkelverteilung der Strahlung im Spektralbereich zwischen 730 nm und 850 nm bei Verwendung eines RG 730-Kantenfilters (Schott) erkennen: Die parametrischen Vierwellenmischung führt aufgrund der nichtkollinearen Phasenanpassung zu einer konischen Emission der Strahlung, während der Hyperramanprozess dem Verlauf der Pumpstrahlung folgt. Dazu wurde die Emission bei 20 mbar und bei 250 mbar mit einer CCD-Kamera Aufgenommen. Die räumlichen Emissionsprofile sind in 5.5 abgebildet [Mossavi 1991].

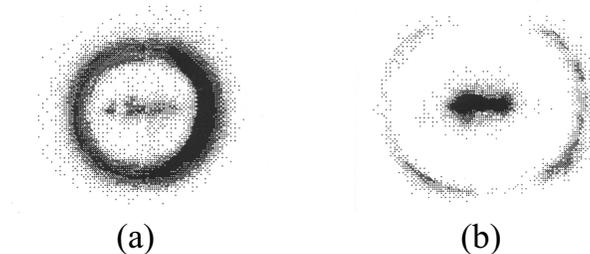


Abbildung 5.5: Räumliches Emissionsprofil der nahinfraroten Strahlung (mit RG730-Filter) aus der Zelle bei verschiedenen Drücken. (a) Druck 30 mbar , (b) Druck 500 mbar (aus [Mossavi 1991]).

Dieses Ergebnis kann auf die im nächsten Abschnitt beschriebenen Experimente unter Verwendung der Drehdüse übertragen werden. Nach Abschnitt 3.3.3 beträgt der

Druck in der Wechselwirkungszone nur ca. $1/77 = 0.013$ des Düsenvordrucks. Wenn eine Sättigung der Teilchendichte über der Düsenöffnung vernachlässigt wird, kann bis zu einem Düsenvordruck von 1500 *mbar* davon ausgegangen werden, dass die parametrische Vierwellenmischung vorherrschend ist. Dieser Wert entspricht einem Druck in der Wechselwirkungszone über der Düse von 20 *mbar*.

5.2.1.2 Theoretisches Modell für die Idlerspektren

Die Verschiebung der Emissionsspektren bei steigendem Druck zu kürzeren Wellenlängen ist auf das Anwachsen des Öffnungswinkels der Strahlung zurückzuführen. Eine Untersuchung des Öffnungswinkels der Idlerstrahlung des parametrischen Prozesses ist übersichtlich in [Mossavi 1996] dargestellt. Die Ergebnisse konnten bei den hier beschriebenen Experimenten verifiziert werden. Die Abhängigkeit des Öffnungswinkels vom Zellendruck ist in Abbildung 5.6 zu sehen.

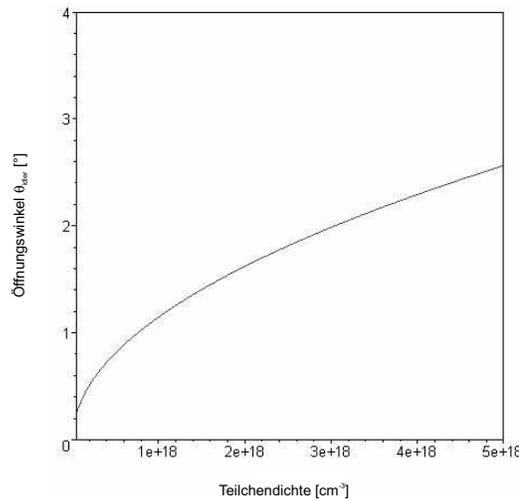


Abbildung 5.6: Abhängigkeit des Öffnungswinkels der Idlerstrahlung von der Teilchendichte für eine Wellenlänge von 760 *nm*.

Die durchgezogene Kurve stellt eine Berechnung des Winkels nach 5.6, 2.70 und 5.2 dar. Die Berechnung entspricht der, die in [Mossavi 1996] durchgeführt wurde. Zu beachten ist hierbei, dass durch die intensive Pumplaserstrahlung von $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ zu einer recht hohen Ionisation des Mediums kommt. Diese wurde von Mossavi bei dieser Intensität zu 97% im Pulsmaximum angegeben. Entsprechende Berechnungen sind in [Mossavi

1996] anhand eines Ratengleichungsmodell durchgeführt worden. Die gemessenen Drücke in der Zelle sind für theoretische Rechnungen entsprechend zu korrigieren.

Entsprechend kann auch der Öffnungswinkel für einen festen Zellendruck in Abhängigkeit der Wellenlänge angegeben werden, siehe Abbildung 5.7.

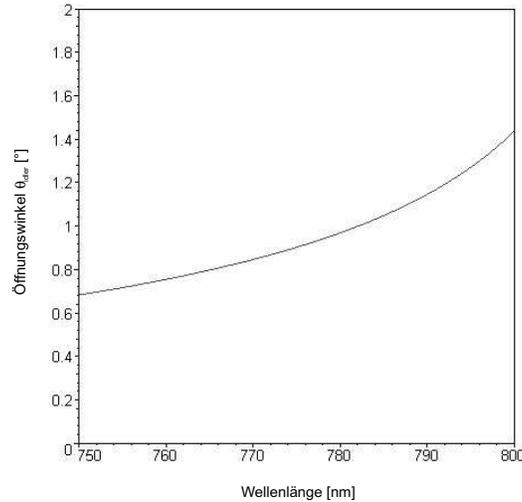


Abbildung 5.7: Abhängigkeit des Öffnungswinkels der Idlerstrahlung von der Wellenlänge für eine Teilchendichte von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

Bei der Strahlung um 760 nm ist bei konstantem Druck die kollineare Phasenanpassung für größer werdende Wellenlängen immer schlechter erfüllt, so dass ihr Emissionswinkel ebenfalls größer werden muss, um die Bedingung $\Delta \vec{k} = \vec{0}$ zu erfüllen.

Da das aktive Volumen durch den Strahlengang des Pumpimpulses eingeschränkt ist, führt eine Vergrößerung des Öffnungswinkels zu einer Reduktion der effektiven Wechselwirkungslänge (Abbildung 5.8).

Diese ist in der Zelle durch den Intensitätsverlauf der Pumpstrahlung auf den Bereich zwischen zu hoher Ionisation im Fokusbereich und zu niedriger Intensität beschränkt. In [Mossavi 1996] wurde ein Wert der Wechselwirkungslänge von ca. 8 mm angegeben, der sich etwa 3 cm vor und hinter dem Fokus befindet, siehe Abschnitt 5.2.2. Für große Emissionswinkel verringert sich dieser Wert jedoch, und bei der Annahme eines rechteckigen Querschnitts der aktiven Zone kann die effektive Wechselwirkungslänge l_{eff} annähernd durch

$$l_{eff} = w_M(z) / \sin \theta_i \quad (5.7)$$

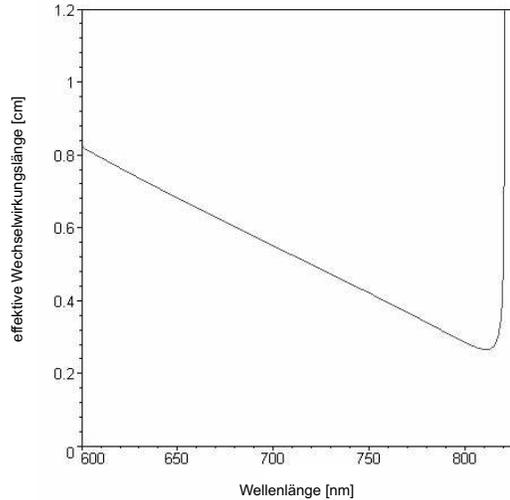


Abbildung 5.8: Wellenlängenabhängigkeit der Wechselwirkungslänge bei einer Teilchendichte von $1 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$.

beschrieben werden, wobei $w_M(z) = 0.5 \text{ mm}$ der Strahlradius an der Position der Wechselwirkung ist. Dieser Wert wird in den folgenden Kapiteln genauer belegt, wenn bei Verwendung der Düse die optimale Fokusposition untersucht wird. Hierbei ist es ausreichend, von dem Winkel der Idlerstrahlung auszugehen, da dieser generell größer ist als der der Signalstrahlung im VUV-Bereich.

Mit dem druck- und wellenlängenabhängigen Öffnungswinkel der Idlerstrahlung ist es nun zusammen mit der Suszeptibilität des Vierwellenmischprozesses möglich die Idlerspektren S_i zu modellieren. Abbildung 5.9 zeigt die nach $S_i = (l_{eff}(N, \lambda) \chi^{(3)}(N, \lambda) N)^2$ für feste Teilchendichten $N = 0.03 p_{zelle} [\text{mbar}] / 1000 * 2.5 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$ berechneten Spektren im Bereich von 650 nm bis 830 nm .

Zum Vergleich sind die Emissionsspektren für 20 mbar , 30 mbar , 60 mbar , 100 mbar und 200 mbar dargestellt. Die Singularität bei 828.8 nm ist wieder auf den Übergang $6p[1/2]_0 - 6s[3/2]_1$ zurückzuführen.

Es lässt sich so qualitativ das Ergebnis der Messungen reproduzieren. Es zeigt sich hier auch sehr klar, warum die Strahlung der parametrischen Vierwellenmischung im Xenon unterhalb des $6s[3/2]_1$ -Zustandes entsteht: Trotz der zur Resonanz hin anwachsenden Suszeptibilität verschlechtert sich gerade wegen der Resonanznähe die Phasenanpassung für den Prozess, und die effektive Wechselwirkungslänge wird minimal (Abbildung 5.8). Durch den Vorzeichenwechsel der Phasenfehlanspassung beim Übergang zu Wellenlängen

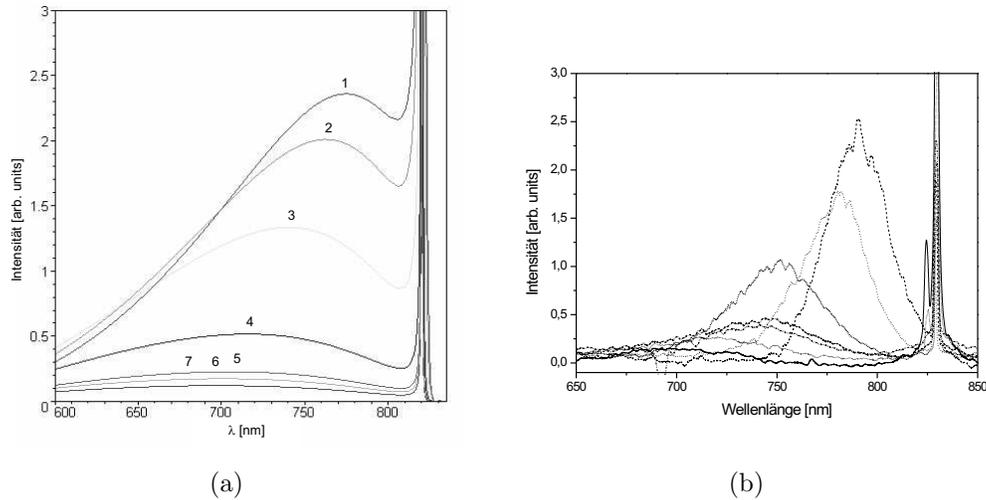


Abbildung 5.9: Berechnete Iderspektren, 1=20 mbar, 2=30 mbar, 3=60 mbar, 4=100 mbar, 5=150 mbar, 6=200 mbar, 7=300 mbar (a) und die gemessenen Spektren (b).

größer als 828.8 nm kann hier die Bedingung $\Delta\vec{k} = \vec{0}$ nicht mehr erfüllt werden. Damit ist 5.6 nicht für positive Werte lösbar, und die effektive Länge verschwindet. Trotz der starken Phasenfehlpassung in diesem Bereich kann wegen der Resonanznähe und der relativ kurzen Wechselwirkungslänge von 8 mm dennoch Strahlung erzeugt werden. Das Modell zeigt allerdings keine gute Übereinstimmung zu kürzeren Wellenlängen. Dies könnte auf die große Reduktion der Pumpintensität durch die Strahlung mit längeren Wellenlängen in dem Prozess zurückzuführen sein. Eine genaue Erklärung konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht gefunden werden. Insgesamt ergibt sich aber eine befriedigende Erklärung für die Druckabhängigkeit der Emissionsspektren

Durch diese Druckabhängigkeit ergibt sich eine elegante Möglichkeit, die Teilchendichte bei der Verwendung von Gasdüsen in der Wechselwirkungszone zu bestimmen. So können die Spektren aus der Zelle und der Düse miteinander verglichen werden. Es zeigt sich dabei eine Korrespondenz zwischen der spektralen Verteilung der Strahlung aus der Zelle bei ca. 20 mbar mit der Strahlung aus der Düse bei einem Vordruck von 900 mbar (Abbildung 5.10).

Für eine bessere Übereinstimmung der Spektren sollte ein etwas geringerer Zellen- druck von etwa 15 mbar angenommen werden. Dadurch kann wiederum ein Quotient von tatsächlichem Druck in der Wechselwirkungszone zum angelegten Vordruck von 0.013 abgeleitet werden, wie er über den Vergleich der dritten Harmonischen erhalten

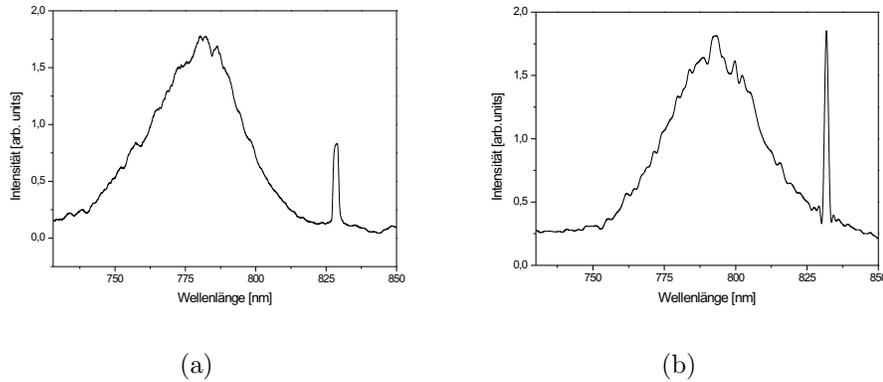


Abbildung 5.10: Spektren im Bereich zwischen 730 *nm* und 850 *nm*. a) Zelle 20 *mbar*, b) Düse 900 *mbar*.

werden konnte, siehe hierzu auch 3.3.3.

5.2.2 Exponentielle Verstärkung

In den hier beschriebenen Experimenten wurde ausschließlich die Drehdüse mit variabler Wechselwirkungslänge verwendet. Der erreichbare Druck in der Wechselwirkungszone in Bezug auf den Vordruck ist nach Abschnitt 5.2.1 und 3.3.3 um den Faktor 0.013 geringer. Zur Übersicht der bei der Anregung des Xenon entstehenden Emissionen wurde zunächst ein Spektrum im Bereich zwischen 20 *nm* und 200 *nm* aufgenommen. Der Düsenvordruck betrug 2000 *mbar*, die Pulsenergie 10 *mJ*. Die Pumplaserwellenlänge wurde hier auf das Verstärkungsmaximum des KrF-Kanals eingestellt, die Zentralwellenlänge lag also bei 248.5 *nm*. Die KrF-Laserpulse wurden etwa 5 *mm* entlang der optischen Achse vor die Düse fokussiert.

Abbildung 5.11 zeigt eine Übersicht über die in diesem Spektralbereich generierte Strahlung. Sehr auffällig ist zunächst eine starke Emission der dritten Harmonischen. Diese relativiert sich jedoch in Hinsicht auf die spektrale Empfindlichkeit des offenen Photomultipliers, die im Bereich unter 100 *nm* wesentlich größer ist als im VUV-Bereich. Die Linienintensitäten sind daher nicht miteinander vergleichbar und im VUV um etwa 2 Größenordnungen stärker. Neben der dritten Harmonischen, der entsprechenden zweiten Gitterordnung und der fünften Harmonischen sind deutlich zwei Mischsignale zu erkennen. Die Strahlung bei 149 *nm* entspricht dem zu untersuchenden selbststar-

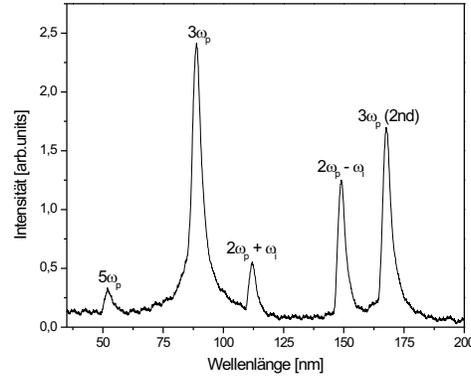


Abbildung 5.11: Übersichtsspektrum der Emissionen im VUV- und XUV-Bereich nach Zweiphotonenanregung von Xenon.

tenden parametrischen Differenzfrequenzmischprozess. Die Emission bei 106 *nm* kann dem Summenfrequenzmischprozess $\omega_{106} = 2\omega_p + \omega_i$ zugeordnet werden, wobei hier das Idlerfeld aus dem Differenzprozess stammt. Wegen dieser Besonderheit wird auf diesen Prozess und seine Abhängigkeiten noch einmal in Abschnitt 5.5 eingegangen.

Die Korrelation zwischen der Signalstrahlung und der Idlerstrahlung lässt sich anhand ihrer Spektren verifizieren. Diese sind in Abbildung 5.12 zu sehen.

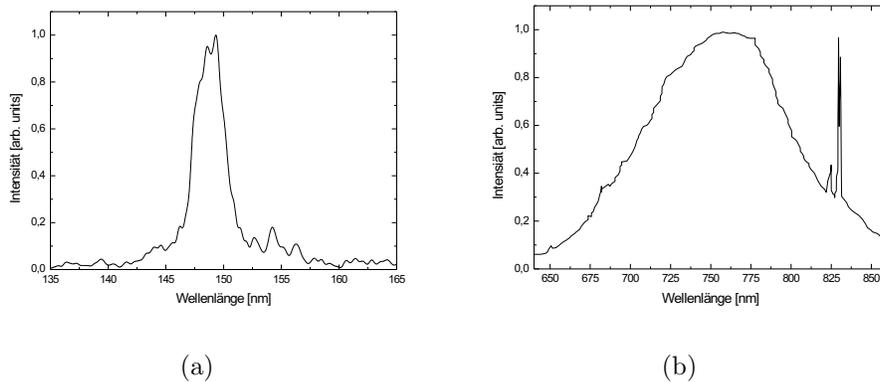


Abbildung 5.12: Emissionsspektren der parametrischen Vierwellenmischung bei a) 149 *nm* (spektrale Breite FWHM = 1600 cm^{-1}) und b) 760 *nm* (spektrale Breite FWHM = 1678 cm^{-1}).

Die Halbwertsbreiten betragen für die VUV-Emission 3.1 *nm* und für die sichtbare

Emission 91 nm. Die daraus resultierenden Breiten sind mit 1600 cm^{-1} (149 nm) und 1678 cm^{-1} (760 nm) annähernd gleich und verdeutlichen so ihren Ursprung in dem gleichen Prozess. Die scharfen Linienemissionen bei 823.2 nm und 828.8 nm entsprechen den Übergängen $6p[3/2]_2$ nach $6s[3/2]_2$ und $6p[1/2]_0$ nach $6s[3/2]_1$. Sie setzen sich zusammen aus dem resonanten Hyperramanprozess, sowie Laseremission auf den Übergängen durch Besetzungstransfer [S. P. Le Blanc 1995], was hier aber nicht unterschieden werden kann. Dies zeigt, dass in den Experimenten mit einem Besetzungstransfer zu rechnen ist. Allerdings ist dieser klein und bewirkt lediglich eine geringe Reduktion der effektiven Teilchendichte. Sie liefern in diesem Druckbereich keinen messbare Beitrag zur Gesamtenergie (vgl. Abschnitt 5.2.1) der Strahlung im infraroten Spektralbereich, so dass sichergestellt ist, dass sich die Signalstärken nur auf den parametrischen Prozess beziehen. Das beobachtete Summensignal kann deshalb ebenfalls nur aus den an dem Differenzfrequenzmischprozess beteiligten Feldern hervorgehen.

In Analogie zu den Experimenten zur Erzeugung der dritten Harmonischen in Argon in Abschnitt 4.3.1 wurde für die weiteren Untersuchungen eine Linsenposition festgelegt, um auch hier eine Ionisation des Mediums zu vermeiden.

Die Variation der Linsenposition in Bezug auf die Düsenposition wurde bei einer Pulsenergie von 10 mJ durchgeführt. Abbildung 5.13 zeigt die Abhängigkeit der Signalstärke der Strahlung bei 149 nm von der relativen Fokusposition, mit deutlichen Maxima etwa 3 cm vor bzw. hinter dem Fokus.

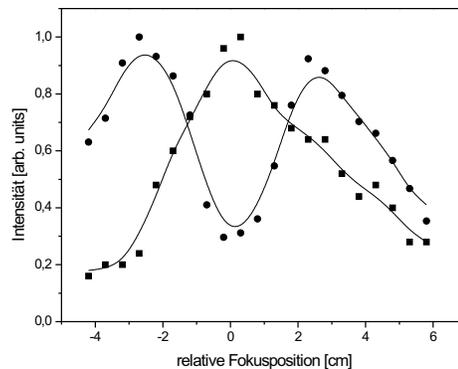


Abbildung 5.13: Variation der Fokusposition in Bezug auf die Gasdüse bei 3 mJ (Quadrate) und 8 mJ (Kreise).

Der Einbruch im Fokus ist wiederum auf eine Ionisation des Mediums zurückzuführen, wie sich auch am starken Plasmaleuchten erkennen lässt, welches in Abschnitt 3.3.2 zur Bestimmung der Wechselwirkungslänge herangezogen wurde. Zum Vergleich ist dieselbe Variation für eine Pulsenergie von 3 mJ dargestellt. Diese zeigt ein Maximum, wenn der Fokus im Medium liegt. Hier wird das Medium noch nicht ionisiert. Die Kurvenverläufe sind jeweils auf eins normiert. In den folgenden Experimenten wurde mit Pumpulsenergien zwischen 3 mJ und 6 mJ gearbeitet. Die Fokusposition wurde dabei immer 3 cm vor das Medium gelegt, so dass sich nur die Intensitäten ändern und die Resultate miteinander Vergleichbar sind. Die Strahlquerschnittsfläche beträgt an dieser Stelle 1.2 mm^2 und die mittlere Intensität für die Pulsenergie von 6 mJ ist $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Das ponderomotive Potential bei dieser Intensität beträgt $U_p = 0.0048 \text{ eV}$. Die dadurch verursachte Niveaushiftung kann also im Vergleich zu den Intensitäten bei der Harmonischenerzeugung vernachlässigt werden.

5.2.3 Druck- und Längenvariation bei fester Pumpwellenlänge

Druckvariationen wurden bei einer Pumplaserwellenlänge von 248.5 nm für die Pulsenergien 4 mJ und 6 mJ durchgeführt.

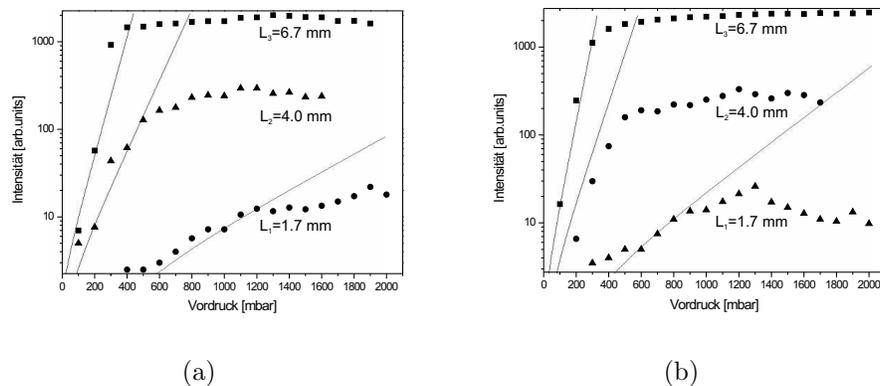


Abbildung 5.14: Druckabhängigkeit des VUV-Signals bei 149 nm für drei Wechselwirkungslängen, (a) Pumpenergie 4 mJ , (b) Pumpenergie 6 mJ .

Abbildung 5.14 zeigt die Abhängigkeit des Signals I_s bei 149 nm für die Wechselwirkungslängen $L_1 = 1.7 \text{ mm}$, $L_2 = 4.0 \text{ mm}$ und $L_3 = 6.7 \text{ mm}$. Für alle Kurven zeigt sich zunächst ein exponentieller Anstieg, der schließlich in eine Signalsättigung übergeht. Un-

abhängig von der Pumpimpulsenergie beginnt die Sättigung bei 400 mbar für L_3 , 600 mbar für L_2 und 1200 mbar für L_1 . Die erreichbaren Signalintensitäten unterscheiden sich dabei um das Verhältnis der Pumpenergien, also $I_s(6mJ) = 1.5I_s(4mJ)$. Dies kann zum einen auf eine Sättigung der mit der Düse erreichbaren Teilchendichte zurückzuführen sein, zum anderen auf das Anwachsen des Öffnungswinkels der Signal- und vor allem der Idlerstrahlung.

Der Signalverlauf der Signal- und Idlerstrahlung wird nach den Gleichungen 2.29 und 2.30 aus Kapitel 2 beschrieben:

$$I_s^{diff} = \frac{\omega_s}{\omega_i} \frac{\gamma^2}{G^2} I_{i0} \sinh^2(Gz) \quad (5.8)$$

$$I_i^{diff} = I_{i0} \left[1 + \frac{\gamma^2}{G^2} \sinh^2(Gz) \right]. \quad (5.9)$$

Der Verstärkungskoeffizient

$$G = \sqrt{\gamma^2 - \left(\frac{\Delta k}{2} \right)^2} \quad (5.10)$$

enthält dabei die Einflüsse der Teilchendichte N , der Suszeptibilität $\chi^{(3)}$ und der Pumpintensität I_p . Für die Rechnungen haben sich SI Einheiten als günstig erwiesen, in denen der Betrag des Kopplungskoeffizienten die Form

$$\gamma^2 = \frac{9\omega_i\omega_s N^2}{(2c)^4 \epsilon_0^2 n_s n_i n_p^2} |\chi^{(3)}|^2 I_p^2. \quad (5.11)$$

annimmt. Die Intensität ist $I_s = \frac{\epsilon_0 c}{2} |A_p|^2$. ϵ_0 ist die Dielektrizitätskonstante. Da der Prozess nichtkollinear phasenangepasst ist, ist in allen Fällen $\Delta k = 0$. Ionisation des nichtlinearen Mediums führt zu einer Reduktion der effektiven Teilchendichte auf ca. 3 % der Ausgangsteilchendichte, wie in Abschnitt 5.2.1. Bei einem Vordruck von 900 mbar wird daher von einer Teilchendichte von $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ ausgegangen.

Mit der in Abschnitt 3.3 angegebenen Intensität von $I_p = 1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ kann das exponentielle Verhalten in Abbildung 5.14 gut beschrieben werden. Zur Berechnung der Kurven wurde der Wert der Suszeptibilität aus Abschnitt 5.1 von $-2,55 \times 10^{-49} \text{ m}^5/\text{V}^2$ verwendet.

Die nach $\sinh^2 \delta p$ entsprechenden Druck-Verstärkungskoeffizienten δ sind in Tabelle 5.2 zusammengefasst. Die Anpassung an das theoretische Modell erfolgte nach Gleichung 2.34.

Energie	Länge	δ [$mbar^{-1}$]
4mJ	1.7 mm	0.013
4mJ	4.0 mm	0.045
4mJ	6.7 mm	0.119
6mJ	1.7 mm	0.013
6mJ	4.0 mm	0.047
6mJ	6.7 mm	0.130

Tabelle 5.2: Druck-Verstärkungskoeffizienten in Abhängigkeit der Pumpenergie und der Wechselwirkungslänge.

Längenvariationen wurden bei einer Pumpenergie von 4 mJ durchgeführt. Es wurden Drücke von 300 $mbar$ (kein Sättigungsverhalten), von 600 $mbar$ (Beginn der Sättigung) und von 900 $mbar$ (bereits vorhandene Sättigung) eingestellt (Abbildung 5.15).

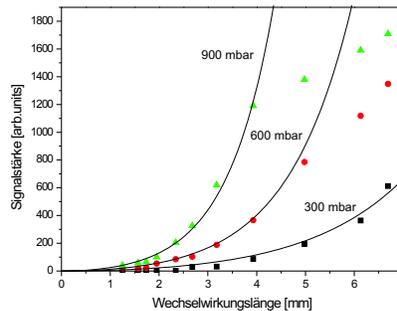


Abbildung 5.15: Längenvariationen bei fester Pumpwellenlänge ($\omega_p = 248.5$ nm) und verschiedenen Vordrücken.

Diese Längenvariationen stimmen mit den entsprechenden Schnitten der Druckvariation erwartungsgemäß überein (bis auf Skalierung). Für den kleinsten Druck kann durchgehend bis 6.7 mm Wechselwirkungslänge ein nichtlinearer Anstieg beobachtet werden. Dieser setzt für höhere Drücke durch die Vergrößerung des Phasenanpassungswinkels deutlich früher ein. So zeigt sich, ebenfalls in guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Druckvariation, für 600 $mbar$ eine Signalsättigung ab etwa 5 mm Medienlänge,

die sich auf 4 mm bei 900 mbar verkürzt. Gemäß Formel 5.8 wurden die nichtlinearen Bereiche in den Signalverläufen mit einer \sinh^2 -Funktion gefittet. Die resultierenden Verstärkungskoeffizienten G_{exp} sind in Tabelle 5.3 zusammengefasst und mit den nach den Gleichungen 5.10 und 5.11 berechneten Verstärkungskoeffizienten G_{theo} verglichen. Hierbei zeigt sich, dass alle G_{exp} größer sind als die für eine Pumpwellenlänge von $\lambda_p = 248.5$ nm errechneten Werte. Es zeigt sich für die beiden höheren Druckwerte eine Übereinstimmung, wenn eine Laserwellenlänge von 248.9 nm angenommen wird.

Druck [mbar]	G_{exp} [cm^{-1}]	$G_{theo}(248.5nm)$ [cm^{-1}]	$G_{theo}(248.9nm)$ [cm^{-1}]
300	2.5	1.1	1.8
600	3.8	2.1	3.6
900	5.2	3.2	5.4

Tabelle 5.3: Vergleich gemessener und berechneter Verstärkungskoeffizienten.

Der im Vergleich mit der Theorie sehr hohe Verstärkungskoeffizient für 300 mbar würde besser beschrieben werden durch eine Pumpwellenlänge von 249.2 nm. Dies legt den Schluss nah, dass sich die Wellenlänge des Lasersystems während der Messreihen verändert hat. Eine steigende Temperatur während der Messungen führt zu längeren Wellenlängen und die Pumpwellenlänge liegt näher an der Resonanz. Um gezielt diesen Einfluss zu studieren, wurde die Temperatur des Lasersystems konstant gehalten und die Emissionswellenlänge gezielt verändert, siehe Abschnitt 3.1.1. Messungen mit variabler Pumpwellenlänge sind der Inhalt des nächsten Abschnitts.

Das bei der Auswertung der Messdaten ein exponentieller Fit gerechtfertigt ist, zeigt ein Vergleich mit der in Xenon erzeugten dritten Harmonischen. Für sie tritt keine Verstärkung auf, und die Signalabhängigkeit ist bei optimaler Phasenanpassung ([Meyer 2000]) quadratisch in Wechselwirkungslänge und Teilchendichte.

Abbildung 5.16 zeigt den Vergleich des Differenzfrequenzmischsignals mit dem der dritten Harmonischen zusammen mit entsprechenden quadratischen und exponentiellen Fit-Kurven. Für das Mischsignal lässt sich der untere Teil der Daten bis ca. 2.5 mm durch einen quadratischen Kurvenverlauf annähern, was auch im Einklang mit der Theorie ist, da $\sinh^2(x) \sim x^2$ für kleine Argumente gilt. Bei größeren Wechselwirkungslängen ergeben sich jedoch massive Abweichungen von dem anfänglichen quadratischen Verlauf. Die zweite Kurve in der Graphik stellt einen Fit-Versuch mit einer Parabel mit der geringsten quadratischen Abweichung dar. Bei ihr zeigt sich keine Übereinstimmung mit

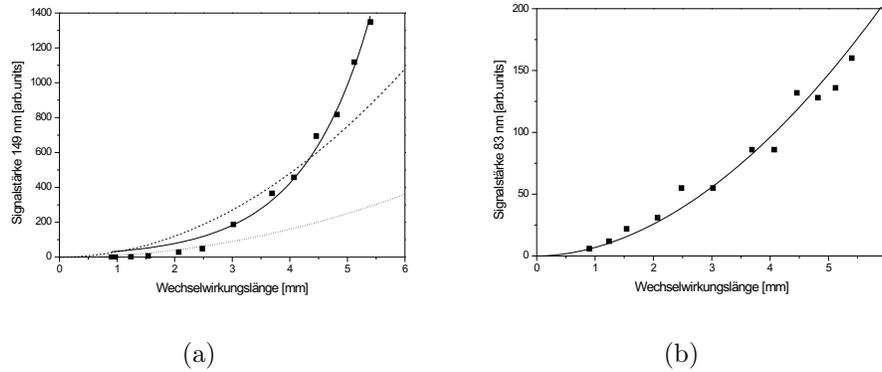


Abbildung 5.16: Vergleich der Längenvariationen für das Signal der parametrischen Vierwellenmischung (a) und der dritten Harmonischen (b). Die gestrichelte Kurve in a) zeigt einen quadratischen Fit der kleineren Signalstärken, die gepunktete Kurve stellt einen least square-Fit dar.

den Messwerten. Die Signalintensitäten weisen nach $I_s \sim \sinh^2 GL \sim \exp(2GL)$ einen exponentiellen Anstieg für Wechselwirkungsängen L größer als 2.5 mm auf.

Die in Gleichung 2.29 aufgeführte Idler-Anfangsintensität stellt hier zunächst einen beliebigen Parameter dar. Streng genommen ist diese Lösung für den selbststartenden Prozess nicht gültig. Allerdings ist die Wechselwirkung mit den Vakuummoden des elektromagnetischen Feldes so groß, dass selbst bei einer kurzen Wechselwirkungslänge so viele Photonen des Idlerfeldes vorhanden sind, dass eine endliche Anfangsintensität bei der kleinst möglichen Wechselwirkungslänge vorliegt. Diese führt zwar bei einer Medienlänge von 1.25 mm nicht zwangsläufig zu einem detektierbaren Signal, hat aber zur Folge, dass der Formalismus für ein geseedetes Idlerfeld in diesen Experimenten seine Gültigkeit behält und zu einer hinreichend genauen Beschreibung der Ergebnisse führt.

Die dritte Harmonische zeigt bis 6.7 mm Wechselwirkungslänge einen quadratischen Anstieg. Ein exponentieller Fit der Messdaten bis etwa 2.5 mm führt hierbei zu deutlichen Abweichungen bei größeren Medienlängen. Bei den größten Wechselwirkungsängen deutet sich zusätzlich eine beginnende Signalsättigung an. Diese ist auf eine Reabsorption der generierten Strahlung zurückzuführen, da die Photonenenergie mit 120724 cm^{-1} oberhalb der Ionisierungsenergie von Xenon von 97834 cm^{-1} liegt. Der Absorptionsquerschnitt ist nach [G. V. Marr 1976] und [J. J. Yeh 1985] bei der dritten Harmonischen der KrF-Wellenlänge mit 20 Mbarn angegeben.

5.2.4 Längenvariationen bei variabler Pumpwellenlänge

Da die Anregung des Xenons in den im letzten Abschnitt beschriebenen Experimenten oberhalb der $6p[1/2]_0$ Resonanz erfolgte, sollte eine Verstimmung der KrF-Pumplaserwellenlänge zu größeren Wellenlängen zu einer deutlichen Erhöhung der beobachtbaren Verstärkung führen. Wie im vorangegangenen Kapitel wurde die Einstellung der Pumplaserwellenlänge über den DFDL vorgenommen. In den Experimenten wurde mit Werten zwischen 247.0 nm und 249.8 nm gearbeitet, was Verstimnungen von 852.1 cm^{-1} bis -59.5 cm^{-1} entspricht.

5.2.4.1 Wellenlängenabhängigkeit

Zuerst wurden die Antwortspektren des nichtlinearen Mischprozesses untersucht. Diese sind in Abbildung 5.17 zusammen mit dem Antwortspektrum der dritten Harmonischen dargestellt.

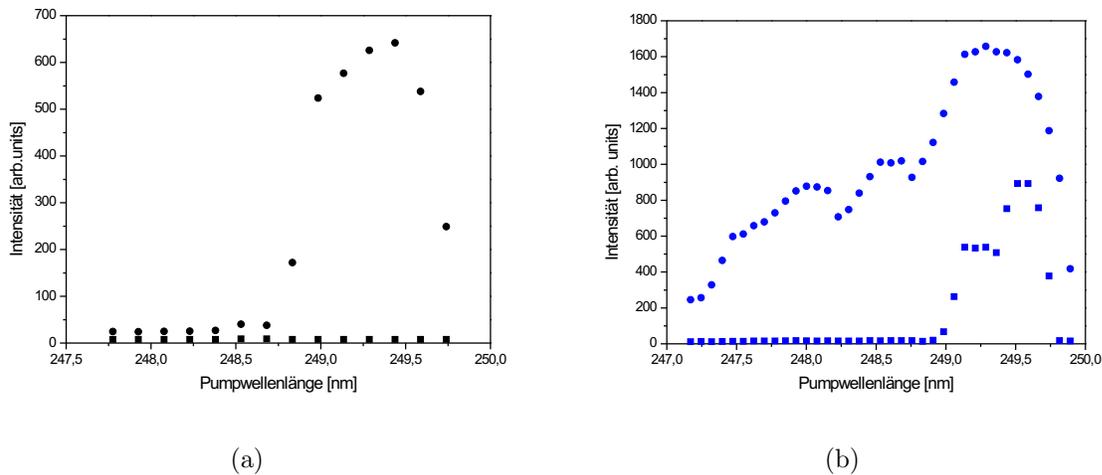


Abbildung 5.17: Signalstärke um 149 nm bei Variation der Pumplaserwellenlänge, a) 160 mbar und b) 900 mbar Vordruck. Quadrate: kurze Wechselwirkungsweite (1.25 mm), Kreise: lange Wechselwirkungsweite (6.7 mm).

Es zeigt sich ein drastisch anderes Verhalten des Vierwellenprozesses, als das der Harmonischen, was auf die niedrigere Ordnung des Pumpfeldes und auf die unmittelbare Resonanznähe zurückzuführen ist. Die Antwortspektren wurden sowohl für die lange (6.7 mm) als auch für die kurze (1.25 mm) Wechselwirkungsweite bei Düsenvordrücken

von 160 *mbar* (5.17(a)) und 900 *mbar* (5.17(b)) vorgenommen. Für beide Drücke zeigt sich ein deutliches Anwachsen des Signals, und damit der parametrischen Verstärkung mit Annäherung an die Resonanz.

Auffällig ist jedoch ein Anstieg des Signals bei kurzer Wechselwirkungslänge für den Vordruck von 900 *mbar*. Bei Wellenlängen oberhalb von 249.1 *nm* ist die Wechselwirkung praktisch unabhängig von der Lage des Pumpstrahls in Bezug auf die Düsenöffnung, insbesondere von der vertikalen Position bei langer Wechselwirkungslänge. So kann vollkommen am Medium vorbeigeschossen werden, ohne dass sich das Ausgangssignal signifikant ändert. Die Ursache dafür findet sich in dem in der Vakuumapparatur befindlichen Hintergrundgas. Wird die Schlitzdüse horizontal eingestellt, der Pumpstrahl jedoch an der Öffnung vorbeigeführt, so ergibt sich dasselbe Ergebnis, wie bei der kurzen Wechselwirkungslänge, siehe Abbildung 5.18.



Abbildung 5.18: Schematische Darstellung zur Messung des Hintergrundgaseinflusses.

Dieses Verhalten kann beeinflusst werden, wenn das Abpumpen des Gases aus der Apparatur durch eine Lochblende eingeschränkt wird. Zur Überprüfung wurde zwischen Düsenkammer und dem Hochvakuumteil der Apparatur die lichte Weite der verbindenden Vakuumröhren von 38 *mm* auf 5 *mm* eingeschränkt. Die Lochblende wurde dazu in der Nähe der Düse platziert, wie in Abbildung 5.19 zu sehen ist.

Die Teilchendichte vor der Düsenöffnung bleibt dabei nahezu ungeändert, während sich aber das Gas in der Vakuumapparatur staut. Der Signalanstieg für die kurze Wechselwirkungslänge bzw. bei Wechselwirkung nur mit dem Hintergrundgas verschiebt sich hierbei von 249.1 *nm* auf 248.8 *nm*. Eine Erklärung liefert die in 5.1 beschriebene Nähe zur $6p[1/2]_0$ -Resonanz und der Spektralbreite des Pumpimpulses, die ab einer Verstimmung von 178 cm^{-1} , also bei Wellenlängen grösser als 249.1 *nm* zu einem Besetzungstransfer führt. Dadurch sinkt die Verstärkung für den parametrischen Prozess (vgl. Anhang C), und die Wechselwirkungslänge erstreckt sich praktisch durch die gesamte Apparatur. Unter diesen Bedingungen startet der Hyperramanprozess nach Abbildung 5.20.

Gleichzeitig kann eine starke Emission bei 828.8 *nm* beobachtet werden, die kollinear mit der Pumpstrahlung propagiert. Dies ist in Übereinstimmung mit den Ergebnissen

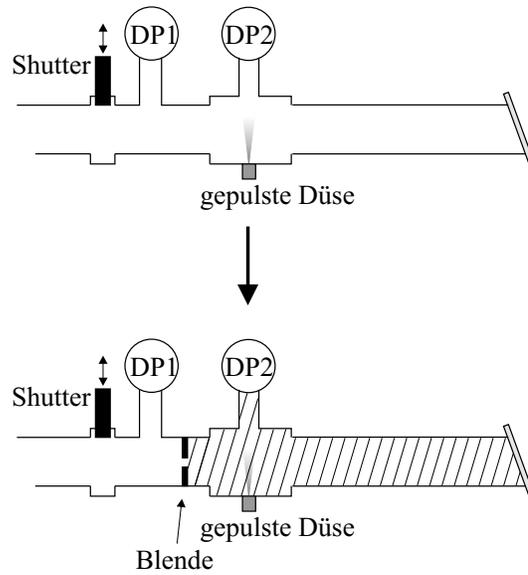


Abbildung 5.19: Erhöhung des Hintergrundgasdrucks durch Anstau des Gases im Bereich der Düse.

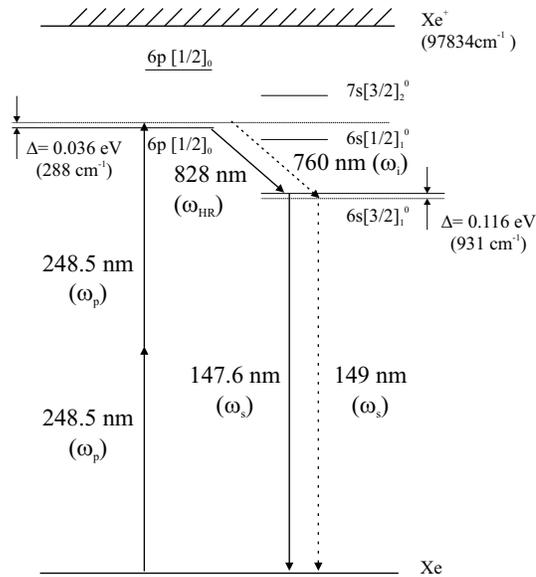


Abbildung 5.20: Übergänge des Vierwellenmischprozesses (gestrichelte Pfeile) und des Hyperramanprozesses (durchgezogene Pfeile).

bei der Untersuchung der Anregung des Xenons in der statischen Gaszelle.

Ein geringer Besetzungstransfer findet auch schon ab 248.8 nm statt. Allerdings be-

nötigt der Hyperramanprozess zum Starten eine höhere Teilchendichte, die erst durch eine Reduktion des Abpumpens erreicht wird.

Der Übergang von der parametrischen Vierwellenmischung zum Hyperramanprozess spiegelt sich auch in Korrelationsmessungen der Signalintensität zur Pumpintensität/-energie wider. Dabei wurde bei einer Wechselwirkungslänge von 2 mm für jedes Ereignis einzeln die Energie der Pumpstrahlung und die zugehörige Signalstärke bei 149 nm aufgenommen.

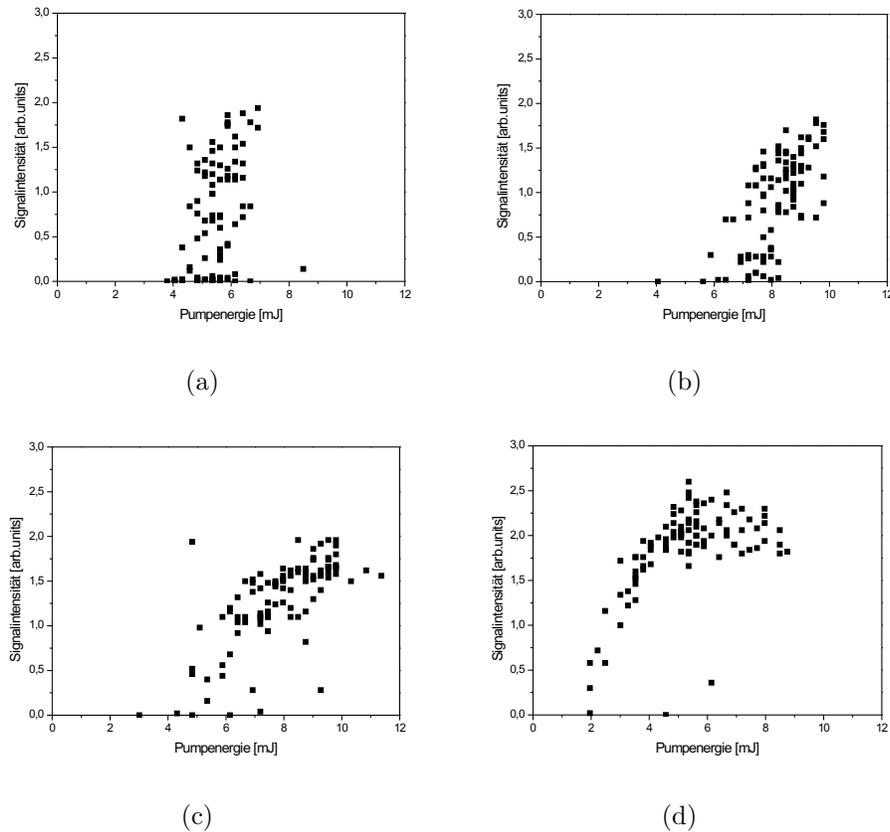


Abbildung 5.21: Korrelation zwischen Signalstärke und Pumpenergie bei Pumpwellenlänge von a) 248.4 nm , b) 248.6 nm , c) 248.75 nm und d) 248.9 nm .

Während in Abbildung 5.21 bei einer Pumpwellenlänge von 248.5 nm die Signalstärken für jeden KrF-Energiewert noch starken Schwankungen unterworfen sind, zeigt sich bei Zunahme der Wellenlänge auf 248.7 nm und 248.9 nm eine immer deutlicher werdende Korrelation der Messwerte mit gleichzeitigem Absinken der Schwellintensität. Hierbei

wurde wiederum mit einer reduzierten Gasabfuhr gearbeitet, so dass der Übergang bei 248.8 nm stattfindet. Dies hat den Grund, dass bedingt durch unvermeidbare Energieschwankungen des Pumplasers, bei allen drei Einstellungen der Zentralwellenlänge gleiche Energiebereiche (2 – 10 mJ) abgedeckt werden und die Ergebnisse miteinander verglichen werden können.

Eine weitere Auffälligkeit in den Antwortspektren sind die Intensitätseinbrüche (Dips) der Signalstrahlung bei 248.2 nm und 248.8 nm bei 900 mbar Vordruck, die sowohl bei fast vollständiger Absaugung des Hintergrundgases, als auch bei reduzierter Absaugung auftreten. In letzterem Fall ist in der Abbildung 5.19 nur der Einbruch bei 248.8 nm zu sehen, da hier nur der Bereich zwischen 248.4 nm und 249.1 nm dargestellt ist. Diese Dips treten bei dem Vierwellenmischprozess, bei dem Hyperramanprozess und bei der Harmonischen gleichermaßen auf. Da das KrF-Eingangsspektrum keine solchen Auffälligkeiten zeigt, und die Dips prozessunabhängig sind, könnte das Vorhandensein von Xenonmolekülen dafür eine Erklärung liefern. Die Signaleinbrüche lassen sich so auf die Absorption der Pumpstrahlung durch die Molekülzustände $1g(^3P_1)$ bei 248.22 nm und $1g(^3P_2)$ bei 248.75 nm zurückführen ([Raymond u. a. 1984]). Die Xe_2 -Moleküle können bei der Überschallexpansion des atomaren Gases ins Vakuum durch den Dreierstoßprozess



([Rhodes 1979]) und durch Van-der-Waals-Wechselwirkung entstehen. Letztere führt zu einer natürlichen Konzentration von Xenonmolekülen [Mossavi 1991], die bei einem Druck von 1 bar zu 0.6 % angegeben werden kann ([Castex 1981]). Die Moleküldichte ist hier quadratisch in der Teilchendichte, so dass dieser Prozess bei einem effektiven Druck von maximal 10 mbar in der Wechselwirkungszone keine Rolle spielen sollte. Der Hauptbeitrag ist so auf die Expansion zurückzuführen.

Zusammenfassend kann also festgehalten werden, dass die Längenvariationen zur Bestimmung der Verstärkungseigenschaften nur bis zu einer Pumplaserwellenlänge von 249 nm bei einem Vordruck von 900 mbar durchgeführt werden können. Für Messungen näher an der Resonanz muss die Teilchendichte in der Wechselwirkungszone stark abgesenkt werden, um eine Beeinflussung der Ergebnisse durch das Hintergrundgas zu vermeiden.

5.2.4.2 Längenvariation

Die Messungen der Längenabhängigkeit erfolgten bei Pulsenergien von $4 - 5 \text{ mJ}$. Die verwendeten Pumplaserwellenlängen wurden so gewählt, dass eine Wechselwirkung mit dem Hintergrundgas in der Vakuumapparatur ausgeschlossen werden konnte. Analog zu Abschnitt 5.2.3 wurde Düsenvordrücke von 300 mbar , 600 mbar und 900 mbar eingesetzt. Dabei sind maximale Wellenlängen von entsprechend 249.4 nm , 249.2 nm und 249.0 nm möglich. Zur Vermeidung von Signalsättigung durch eine Sättigung der Teilchendichte in der Wechselwirkungszone und durch einen walk-off der Idlerstrahlung werden die Längenvariationen nur bis etwa 5 mm durchgeführt.

Der Vergleich mit den theoretisch berechneten Werten erfolgt wiederum unter der Annahme einer Intensität von $1 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$ und einer Teilchendichte von $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ für einen Vordruck von 900 mbar . Die Teilchendichte wird für die anderen Drücke entsprechend skaliert. Die Verstärkungskoeffizienten $g(\lambda_p)$ werden wieder nach Gleichung 5.11 berechnet. Für die Anpassung der theoretischen Kurven an die experimentellen Daten sind nach Gleichung 2.29 die Idler-Intensitäten am Beginn des nichtlinearen Mediums erforderlich. Diese könnten prinzipiell ebenfalls wie in 5.2.3 als beliebige Parameter behandelt werden, jedoch darf nicht vernachlässigt werden, dass sich bei einer Änderung der Verstimmung der Pumplaserwellenlänge zur Resonanz auch der Streuquerschnitt der zwei Pump photons in Signal- und Idlerphotonen ändert ([Tang 1968], [Kleinman 1968]). Daher wird die Rauschintensität der Idlerstrahlung hier als einziger Fit-Parameter behandelt. Die Verstärkungskoeffizienten liegen nach Gleichung 5.11 fest. Als Randbedingung für die Rauschintensitäten gilt, dass sie mit Annäherung an die Resonanz größer werden sollten.

Die experimentellen Ergebnisse sind in Abbildung 5.22(c) dargestellt.

Die berechneten Verstärkungskoeffizienten ergeben hier eine gute Übereinstimmung mit den Daten, wenn die Rauschintensitäten aus Tabelle 5.2.4.2 eingesetzt werden.

Sie liegen alle in derselben Größenordnung und weisen einen leichten Anstieg mit kleiner werdender Verstimmung und steigendem Druck auf. Dies reflektiert die Änderung des nichtlinearen Streuquerschnitts und entspricht damit der theoretischen Vorstellung. Die theoretischen Verstärkungskoeffizienten sind noch einmal in Abbildung 5.23 dargestellt. Die experimentell bestimmten Werte sind entsprechend markiert.

Für den zugänglichen Parameterbereich zeigt sich eine deutliche Zunahme der parametrischen Verstärkung mit Annäherung an die $6p[1/2]_0$ -Resonanz. Allerdings hat hier

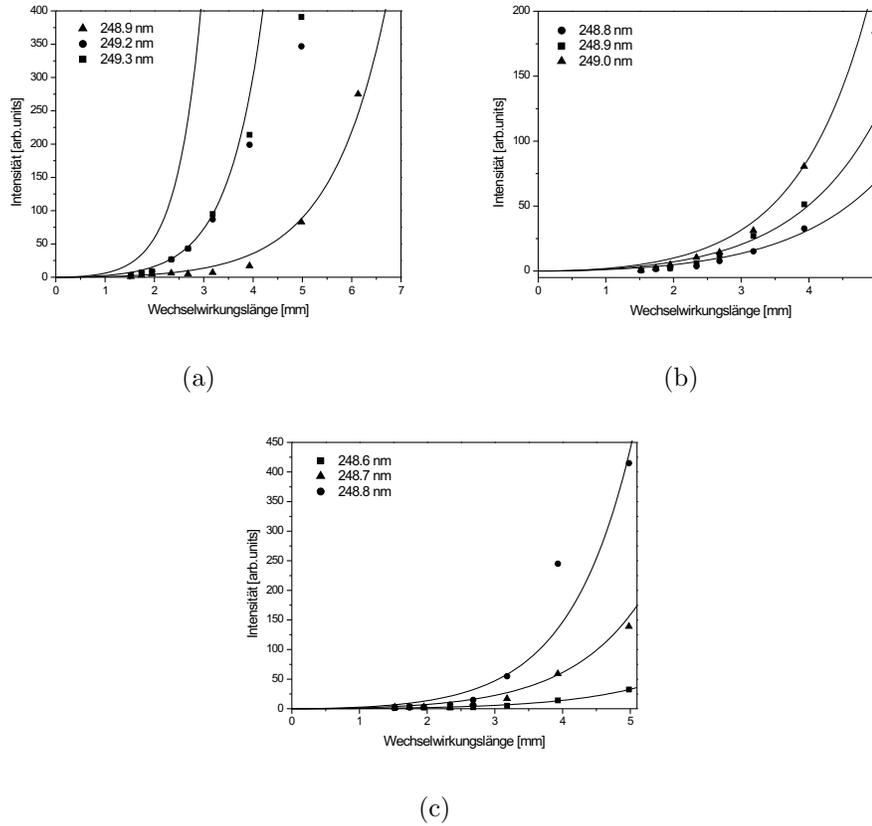


Abbildung 5.22: Abhängigkeit des VUV-Signals bei 149 nm für jeweils drei Pumpwellenlängen bei Düsenvordrücken von (a) 230 mbar, (b) 600 mbar und (c) 900 mbar.

Vordruck [mbar]	Pumpenergie [mJ]	Wellenlänge [nm]	I_{i0} [arb. units]
230	5	248.9	8
230	5	249.2	9
230	5	249.3	9
600	4	248.8	8
600	4	248.9	8.5
600	4	249.0	9
900	4	248.6	7.5
900	4	248.7	8
900	4	248.8	8

Tabelle 5.4: Rauschintensitäten des Idlerfeldes für die theoretischen Fitkurven.

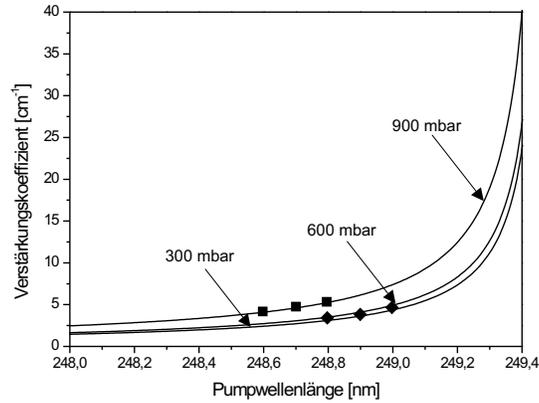


Abbildung 5.23: Berechneter Verstärkungskoeffizient in Abhängigkeit der Pumpwellenlänge für die in den Experimenten verwendeten Drücke mit den experimentell bestimmten Werten für 600 *mbar* (Rauten) und 900 *mbar* (Quadrate).

eine Erhöhung des Druckes den größeren Einfluss. So ergibt sich bei einem Vordruck von 900 *mbar* und einer Wellenlänge von 248.8 *nm* eine Verstärkung von 5.4 cm^{-1} und damit ein Verstärkungs-Längen-Produkt von $GL = 3.7 \text{ cm}^{-1}$. Dies ist das erste mal, das eine parametrische Verstärkung im VUV-Bereich für einen $\chi^{(3)}$ in einem Edelgas gemessen wurde. Ein Teil der Ergebnisse wurde in [Reinhardt u. a. 2004] veröffentlicht.

5.3 Durchstimmbare parametrische Verstärkung mit geseedetem Idlerfeld

Um die durch KrF-Kurzpulslaserstrahlung angeregte starke nichtlineare Polarisation auf ihre Verstärkungseigenschaften nicht nur bei 149 *nm* zu untersuchen, wurde dieser Prozess auch mit Strahlung zwischen 497 *nm* und 800 *nm* geseeded. Ähnliche Experimente wurden auch von Mossavi [Mossavi 1996] und Glowonia [Glowonia u. a. 1994] unternommen. In diesen vorangegangenen Experimenten lag der Schwerpunkt allerdings mehr in der Frequenzmischung mit starken Idlerfeldern zur Erzeugung Leistungsstarken VUV-Kurzpulsstrahlung ([Mossavi 1996]) und in der möglichen Verstärkung externer, also nicht aus dem Prozess stammenden Idlerfeldern ([Glowonia u. a. 1994]). In den im Folgenden beschriebenen Experimenten wird zum erstmalig die parametrische Verstärkung

im VUV-Bereich zwischen 145 nm und 165 nm betrachtet.

Die Seedstrahlung bei 497 nm stammt direkt aus dem Lasersystem, siehe Abschnitt 3.1. Desweiteren wurde durchstimmbare Seedstrahlung aus einem optisch parametrischen Generator, der durch den verstärkten DF DL-Laserpuls gepumpt wurde. Es wurde mit einem Zwei-Kristall-Aufbau gearbeitet, wobei auf den Einsatz eines justageaufwendigen Teleskops verzichtet werden konnte. Zur Fokussierung wurde eine $f = 250 \text{ mm}$ -Linse verwendet. Der Aufbau ist in Abbildung 5.24 dargestellt. Die Emissionswellenlängen des OPG wurden mit Hilfe eines Monochromators bestimmt.

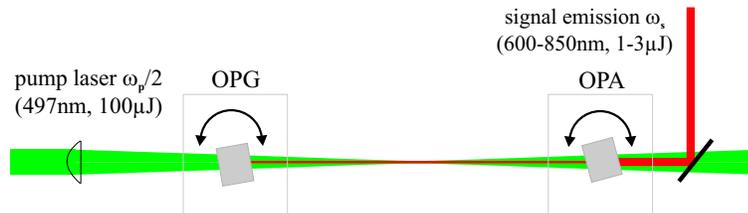


Abbildung 5.24: Schematischer OPG/OPA-Aufbau zur Erzeugung durchstimmbarer Strahlung um 680 nm .

Die Strahlung konnte über optische Filter und einen drehbar gelagerten Polfilter abgeschwächt werden. Somit ergab sich die Möglichkeit, den Differenzfrequenzprozess mit verschiedenen Intensitäten zu seeden. Die Fokussierung erfolgte dabei über eine separate $f = 800 \text{ mm}$ -Linse. Die Fokussdurchmesser wurden annähernd gleich gewählt. Die Verzögerung zwischen den Pulsen und die Linsenposition wurden für jedes Experiment optimiert, wobei sich zeigte, dass die Linsenposition sehr unkritisch ist. Dies ist bedingt durch den mit 4 mm recht kleinen Durchmesser der Seed-Strahlung und dem damit verbundenen langen konfokalen Parameter. Die 497 nm -Strahlung und die in dem OPG/OPA erzeugte Strahlung wiesen dabei den gleichen Strahldurchmesser auf. Die experimentelle Realisation ist in Abbildung 5.25 skizziert.

5.3.1 Injektion von Idlerstrahlung um 700 nm

Die Untersuchungen der parametrischen Verstärkung der erzeugten VUV-Strahlung wurde bei Idlerwellenlängen um 700 nm durchgeführt. Der Düsenvordruck wurde zum Vergleich mit dem selbststartenden Prozess auf 900 mbar eingestellt. Die KrF-Pumplaserwellenlänge betrug 248.8 nm . Die KrF-Pulsenergie entspricht mit 4 mJ der aus den Experimenten

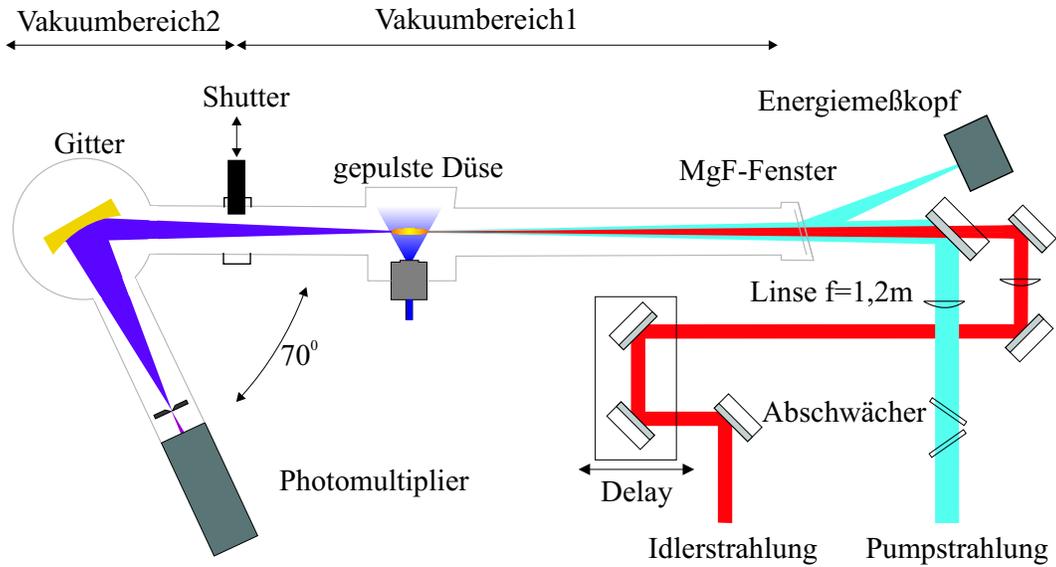


Abbildung 5.25: Schematische Strahlführung bei geseedetem Idlerfeld.

zum selbststartenden Prozess. Längenvariationen wurden wieder bis 5 mm vorgenommen. Die theoretischen Verstärkungskoeffizienten G_{theo} sind in Abbildung 5.26 dargestellt.

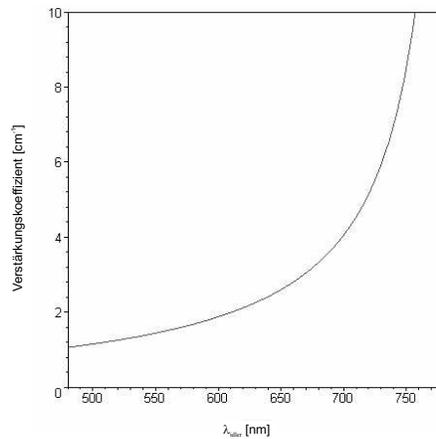


Abbildung 5.26: Berechnete Verstärkungskoeffizienten für eine Pumpwellenlänge von 248.8 nm und einen Düsenvordruck von 900 mbar im Bereich von 480 nm bis 780 nm .

Abbildung 5.27 zeigt die VUV-Spektren für Idlerwellenlängen von 700 nm , 720 nm und 800 nm .

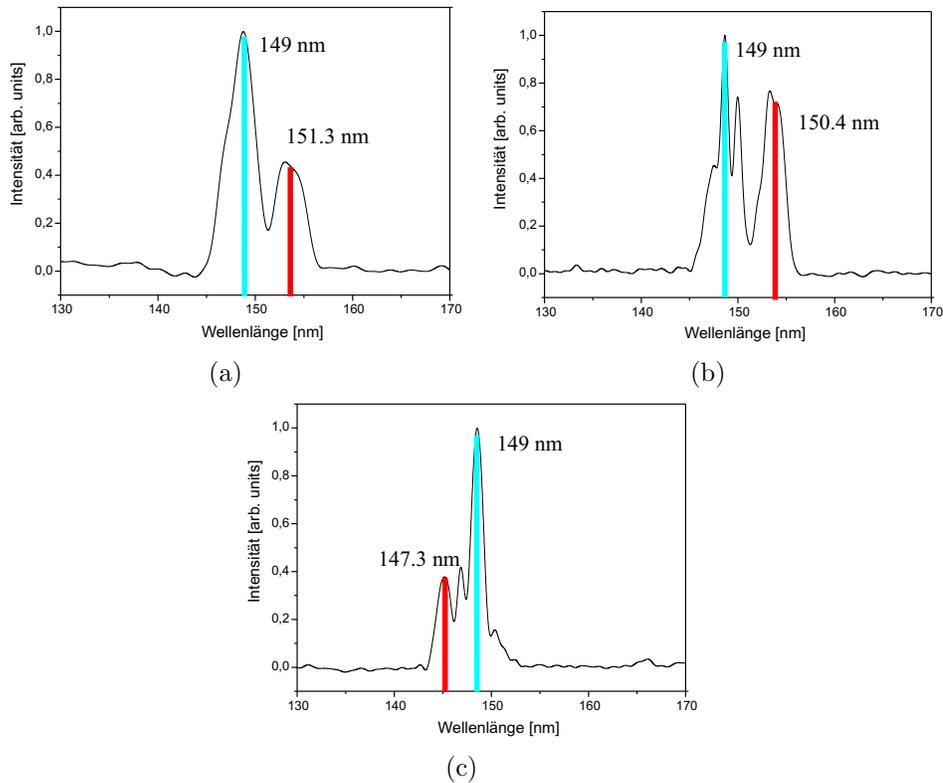


Abbildung 5.27: Emissionsspektren von Xenon bei Vierwellenmischung. Das Signal bei 149 nm aus dem selbststartenden ist generell präsent. Mischung der KrF-Uv-Pulse erfolgte mit (a) 700 nm , (b) 720 nm und (c) 800 nm .

Im letzteren Fall findet der Prozess oberhalb der $6s[3/2]_1$ -Resonanz statt. Für diesen Prozess ist keine Phasenanpassung möglich, was sich auch in der im Vergleich zur 149 nm -Strahlung geringeren Intensität widerspiegelt. Dennoch zeigt sich hierbei deutlich das Potential des Xenon-Systems zur Erzeugung breitbandiger VUV-Strahlung durch Frequenzmischung. Die Pulsenergie der Idlerstrahlung betrug für alle Wellenlängen 100 nJ .

Bei intensiven Idlerfeldern können jedoch nach 2.2 die Differentialgleichungen für Signal- und Idlerfelder entkoppeln. Der parametrische Differenzfrequenzprozess geht dabei in die Vierwellenmischung über, und es lässt sich im phasenangepassten Fall nur noch ein Anwachsen der Signalstrahlung mit dem Quadrat der Länge beobachten. Für die weitere Untersuchung ist es daher wichtig, den Intensitätsbereich zu bestimmen, in dem die Signalstrahlung noch exponentiell anwächst. Dazu wurden bei einer festen Id-

Iderwellenlänge von 700 nm Längenvariationen bei Pulsenergien von 20 nJ bis 100 nJ vorgenommen. Abbildung 5.28 zeigt die Ergebnisse zusammen mit quadratischen (a) und exponentiellen (b) Fitkurven.

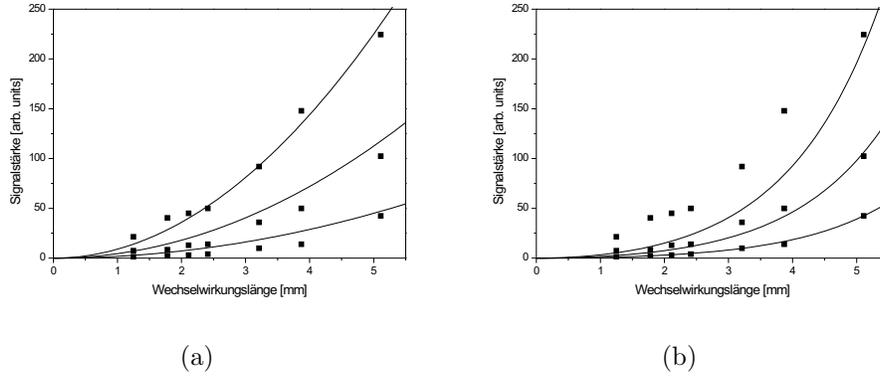


Abbildung 5.28: Längenvariation des Vierwellenprozesses bei Seed-Energien von 20 nJ , 50 nJ 100 nJ . Die theoretischen Kurven zeigen einen (a) quadratischen (Fit für hohe Seed-Energie) und (b) einen exponentiellen (Fit für kleine Seed-Energie) Signalverlauf.

In Abbildung 5.28(a) wurden die Messdaten für die Pulsenergie von 100 nJ angepasst und anschließend entsprechend der anderen Pulsenergien mit 0.5, bzw. 0.2 skaliert. Der quadratische Kurvenverlauf führt bei den geringeren Energien zu deutlichen Abweichungen. In Abbildung 5.28(b) wurden die Messdaten für 20 nJ mit einem Verstärkungskoeffizienten von $G = 3.4\text{ cm}^{-1}$ angepasst. Aus Abbildung 5.26 erhält man einen theoretischen Wert von $G_{theo}(700\text{nm})$ von 3.9 cm^{-1} . Eine Skalierung der Seedintensität $I_{i,0}$ führt hierbei nur noch mit den Messwerten für eine Idlerenergie von 50 nJ zu einer ungefähren Übereinstimmung.

Es zeichnet sich hierbei ein Übergang vom Regime der parametrischen Verstärkung zur Vierwellenmischung unterhalb von 50 nJ Idlerenergie ab. Ein Vergleich der Längenvariationen bei 670 nm , 705 nm und 730 nm Idlerwellenlänge wurden deshalb bei einer Seedenergie von 20 nJ durchgeführt. Wie zu erwarten ergibt sich zu kürzeren Idlerwellenlängen eine starke Abnahme des Verstärkungskoeffizienten, siehe Abbildung 5.29.

Die Parameter der Verstärkungsmessung sind in Tabelle 5.3.1 zusammengefasst und mit den entsprechenden theoretischen Werten verglichen.

In diesen Experimenten stellt sich sehr deutlich der Einfluss der $6s[3/2]_1$ -Resonanz auf die Überhöhung des nichtlinearen Prozesses, und damit auf die möglichen Verstärkungen

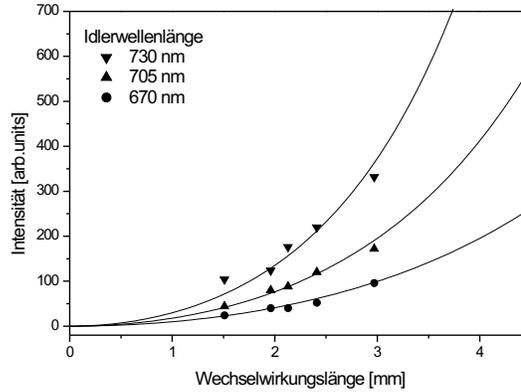


Abbildung 5.29: Abhängigkeit des Mischsignals für Idlerwellenlänge von 670 *nm*, 705 *nm* und 730 *nm*.

Druck [<i>mbar</i>]	Idlerwellenlänge	G_{exp} [cm^{-1}]	$G_{theo}(248.8nm)$ [cm^{-1}]
900	670	2.3	2.3
900	705	3.0	3.9
900	730	4	5.1

Tabelle 5.5: Parameter der Längenvariation bei 670 *nm*, 705 *nm* und 730 *nm*

im VUV-Bereich dar.

Die Winkelabhängigkeit der Prozesse wurde nicht weiter betrachtet, da bei dem gewählten Aufbau durch die großen Strahldurchmesser in der Wechselwirkungszone die Bestimmung der Winkel nicht möglich war. Ähnliche Untersuchungen wurden allerdings von Mossavi durchgeführt, auf die an dieser Stelle verwiesen sei [Mossavi 1996]. Dennoch entsprechen die gemessenen Werte ungefähr den theoretischen, wodurch für Wechselwirkungen bis zu 5 *mm* von einer Quasiphasenanpassung ausgegangen werden kann.

5.3.2 Injektion von Idlerstrahlung bei 497 nm

Die Mischung mit Wellenlängen um 497 *nm* (aus dem DF DL) führt zur Erzeugung von Signalwellen bei 165 *nm*. Um die Ergebnisse direkt mit den vorangegangenen Experimenten zu vergleichen, wurden wiederum die selben Bedingungen für Pumpimpulsenergie, Fokusposition und Vordruck eingestellt. Aufgrund der möglichen höheren Pulsenergie

der DF DL-Strahlung ergab sich bei diesen Experimenten zusätzlich die Gelegenheit, die Pulsdauern der Strahlung bei 248.8 nm und 497 nm durch Kreuz- bzw. Autokorrelationen zu bestimmen.

5.3.2.1 Korrelationsmessungen zur Pulsdauerbestimmung

Die Pulsenergie der DF DL-Pulse in den Experimenten dieses Abschnitts betrug $100 \mu\text{J}$. Die Pulsdauer wurde durch eine Autokorrelationsmessung basierend auf der Erzeugung der zweiten Harmonischen in einem BBO-Kristall bestimmt.

Zur Messung der Pulsdauer der DF DL-Pulse wurde ein single-shot Autokorrelator verwendet.

Die Autokorrelationskurve ist in Abbildung 5.30 dargestellt.

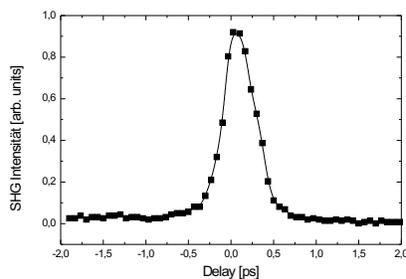


Abbildung 5.30: Autokorrelationsfunktion der Strahlung bei 497 nm .

Die Halbwertsbreite beträgt 700 fs , was unter Annahme eines sech^2 -Pulses zu einer Pulsdauer von ca. 450 fs führt.

Durch den Differenzfrequenzmischprozess selbst ist eine Bestimmung der Pulsdauer der verstärkten Strahlung bei 248.5 nm möglich. Bei einer Variation der Verzögerung Δt zwischen dem Pump- und dem Idlerpuls erhält man so eine Intensitätskreuzkorrelation dritter Ordnung. Das Korrelationssignal I_{KK} ist dabei gegeben durch

$$I_{KK} = \int_{-\infty}^{\infty} I_{248\text{nm}}^2(t) I_{497\text{nm}}(t - \Delta t) \quad (5.13)$$

Die gemessene Halbwertsbreite der Korrelationskurve führt so, ebenfalls unter der Annahme von sech^2 -Pulsformen zu einer Pulsdauer von ca. 500 fs für die verstärkte Pumpstrahlung.

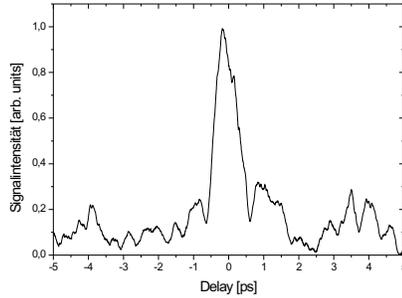


Abbildung 5.31: Kreuzkorrelation der UV-Pulse (248.5 nm)

Abbildung 5.31 zeigt die Kreuzkorrelationskurve zusammen mit der nach 5.13 für die entsprechenden Pulsdauern berechneten Kurve.

Bei einer Variation der Pumpwellenlänge ergibt sich mit Hilfe der Kreuzkorrelation auch die Möglichkeit, einen Besetzungstransfer in den $6p[1/2]_0$ -Zustand zu Proben. Diese Messung kann als Ergänzung zu den Experimenten in Abschnitt 5.2.4.1 betrachtet werden, in denen für größere Wellenlängen eine starke Wechselwirkung mit dem Hintergrundgas in der Vakuumapparatur beobachtet werden konnte.

Eine Besetzung des oberen Zustandes führt dabei zu Emissionen im VUV-Bereich, auch dann, wenn die Pulse nicht mehr zeitlich exakt überlappen [H. Friedmann 1998], [O. Kittelmann 1996]. Da der direkte Übergang in den Grundzustand dipolverboten ist, induziert die Strahlung bei 497 nm dabei einen Zwei-Photonen-Übergang (Abbildung 5.32).

Das dabei entstehende Signalfeld entspricht einer um die Verstimmung der Pumpwelle zum $6p$ -Zustand verschobenen Wellenlänge. Das Signalfeld des parametrischen Prozesses hat eine Wellenlänge von

$$\left(\frac{2}{248.8\text{nm}} - \frac{1}{497.6\text{nm}} \right)^{-1} = 165.9\text{nm} \quad (5.14)$$

wohingegen für zeitlich nicht überlappende Pulse (Idler- nach Pumpimpuls) eine Wellenlänge von

$$\left(\frac{1}{124.8\text{nm}} - \frac{1}{497.6\text{nm}} \right)^{-1} = 166.6\text{nm} \quad (5.15)$$

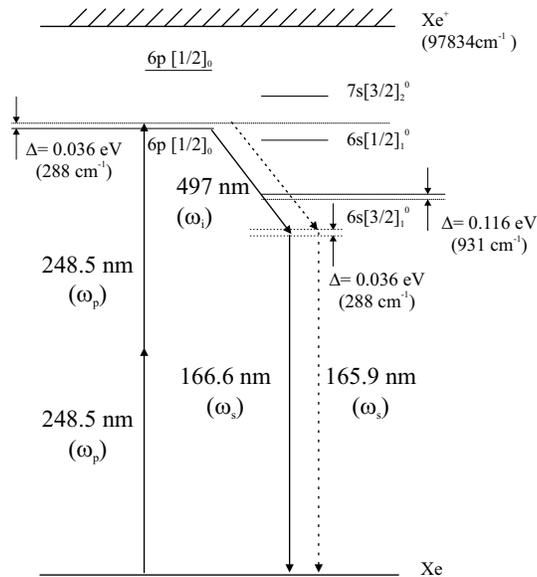


Abbildung 5.32: Die Zweiphotonenanregung des Xenon kann bei Mischung mit 497 nm-Strahlung zum direkten Mischsignal bei 165.9 nm und durch Besetzungstransfer in den 6p-Zustand und anschliessenden Zweiphotonenübergang in den Grundzustand auch zu einem Signal bei 166.6 nm führen.

emittiert wird. Dem 6p-Zustand (80119 cm^{-1}) entspricht dabei eine Wellenlänge von 124.8 nm. Dies konnte allerdings mit der verwendeten Apparatur nicht nachgewiesen werden. Eine genauere Beschreibung des zugrunde liegenden Prozesses soll an dieser Stelle nicht stattfinden; ähnliche Beobachtungen wurden in [H. Friedmann 1998] und [O. Kittelmann 1996] berichtet, worauf hier verwiesen wird.

Die Ergebnisse der Delayvariation für verschiedene Pumpwellenlängen sind in Abbildung 5.33 dargestellt.

Bei 248.8 nm und kürzeren Wellenlängen ist nur ein Signal bei einem zeitlichen Überlapp der beiden Pulse festzustellen. Dieses lässt sich so dem parametrischen Prozess zuordnen. Für Pumpwellenlängen oberhalb von 249 nm tritt zusätzlich eine deutliche Emission auf, wenn der DFDL-Puls zeitlich dem Pumpuls folgt. Dies ist in Übereinstimmung mit den Beobachtungen in Abschnitt 5.2.4.1 und der Abschätzung in 5.1.

Mit einer Pumpwellenlänge von 248.8 nm kann also ein nennenswerter Besetzungstransfer und damit verbunden eine Verfälschung der Messergebnisse durch einen Konkurrenzprozess noch weitgehend vermieden werden.

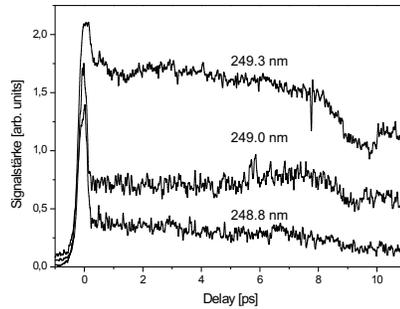


Abbildung 5.33: Delayvariation zwischen KrF-Pumppuls und 497 nm-Seedpuls.

5.3.2.2 Längenvariation

Die Längenvariationen wurden mit Pulsenergien der Seed-Strahlung zwischen 20 nJ und 100 μJ durchgeführt. Wie bei der Verwendung der 700 nm-Strahlung zeigt sich hier wiederum ein Übergang von einem nichtlinearen Anwachsen in das Regime der Frequenzmischung (Abbildung 5.34).

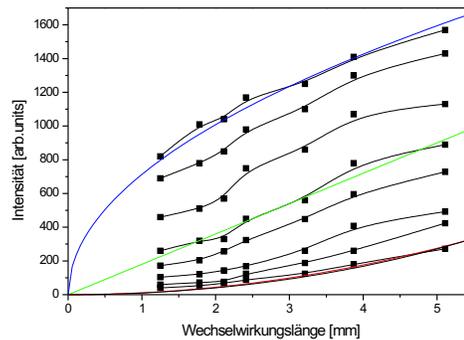


Abbildung 5.34: Längenabhängigkeit der Strahlung bei verschiedenen Seedenergien.

Durch die höheren Pulsenergien im μJ -Bereich zeigt sich hier darüber hinaus eine deutliche Sättigung des VUV-Signals. Durch den nur schwachen Anstieg des Signals für die kleinste Pulsenergie kann hier jedoch keine Aussage über einen exponentiellen oder quadratischen Anstieg getroffen werden. Versuche, die Messwerte durch eine entsprechende Funktion anzupassen, zeigen kein eindeutiges Verhalten. Die Anpassung einer \sinh^2 -Funktion würde hier lediglich einen Verstärkungskoeffizienten von 1 cm^{-1} ergeben,

so dass eine Parabel zu einer eben so guten Beschreibung führt. Da in diesen Fall sehr weit ab von der $6s[3/2]_1$ -Resonanz gearbeitet wird ergibt eine theoretische Berechnung in Analogie zu den vorangegangenen Rechnungen ebenfalls nur einen Verstärkungskoeffizienten von 1.1 cm^{-1} . Dass dieser Prozess aber dennoch zu einer Verstärkung von VUV-Strahlung bei 165 nm benutzt werden kann, wird in Abschnitt 5.4 gezeigt.

5.3.2.3 Zirkulare Polarisation der Idlerstrahlung

Des Weiteren ergab sich bei der Verwendung der DF DL-Strahlung als Idlerwelle die Möglichkeit, durch Einfügen einer $\lambda/2$ -Platte in den Strahlengang, auch mit zirkular polarisiertem Licht zu arbeiten. Die dadurch erzeugte Signalstrahlung ist dann auf Grund der Impulserhaltung ebenfalls zirkular polarisiert. Der Grad der Idler-Polarisation konnte mit einem drehbaren Polfilter überprüft werden.

Abbildung 5.35 zeigt die Abhängigkeit der Idler-Intensität von dem Drehwinkel des Polfilters mit und ohne die $\lambda/2$ -Platte.

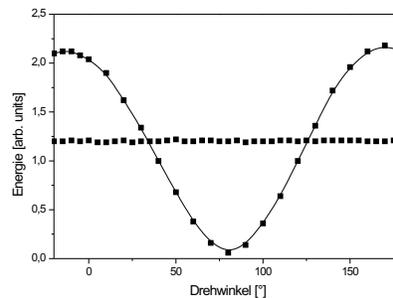


Abbildung 5.35: Nachweis der zirkularen Polarisation der Idlerstrahlung bei 497 nm .

Dabei konnte ein linearer Anteil sehr gut minimiert werden, und der Prozess lässt sich ausschließlich durch zirkular polarisiertes Licht seeden.

Bei einer Längenvariation ergaben sich jedoch keine grundsätzlich anderen Abhängigkeiten, als bei Verwendung von linearer Polarisation. Auch die erreichbaren relativen Signalstärken sind gleich, was auf gleiche Suszeptibilitäten für beide Fälle schließen lässt. Dies ist auf die gleichen Auswahlregeln der Zustände zur Bestimmung der nichtlinearen Suszeptibilität zurückzuführen. Eine separate Berechnung wurde daher nicht durchgeführt.

Als Ergebnis kann aber festgehalten werden, dass sich der Prozess auch zur Erzeugung und Verstärkung von zirkular polarisiertem Licht im VUV-Spektralbereich eignet.

5.4 OPG/OPA-Anordnungen zur Demonstration parametrischer Verstärker im VUV

In den vorangegangenen Abschnitten wurden bislang nur die Abhängigkeiten der Signalstrahlungen untersucht, wie sie aus dem verstärkenden parametrischen Prozess selbst entstehen. Um die Prozesse als echte Verstärker zu benutzen, ist neben der Injektion der Idlerstrahlung, die dazu dient, den Verstärkungsbereich festzulegen, auch die Einstrahlung eines externen Signals notwendig. Erst damit lässt sich ein Betrieb als optisch parametrischer Verstärker realisieren (Abbildung 5.36).

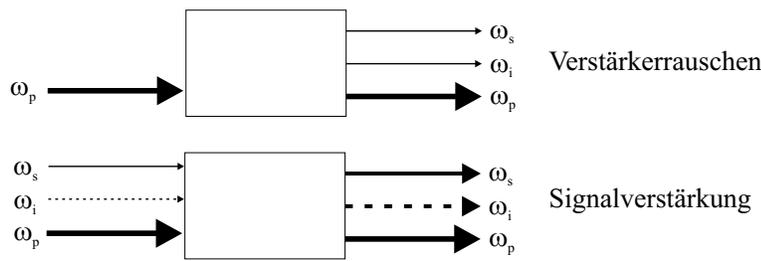


Abbildung 5.36: Schematische Darstellung eines freilaufenden und eines geseedeten Verstärkers.

Als Quelle der Signalstrahlung können unter anderem Laserquellen im VUV (ArF 193 nm, F₂ 157 nm, He (OFI) 164 nm [Egbert 1999]) und Harmonische in Frage kommen. Natürlich kann auch die in dem Prozess selbst in einer separaten Quelle erzeugte Strahlung verwendet werden.

Letztere hat den Vorteil, dass dabei eine Einstellung des parametrischen Verstärkers auf die zu verstärkende Wellenlänge entfällt. Im Folgenden werden dazu zwei Beispiele betrachtet.

5.4.1 OPG/OPA-Modell mit selbststartendem Prozess

Die einfachste Möglichkeit für den Betrieb eines parametrischen Verstärker im KrF-gepumpten Xenon besteht sicher darin, den selbststartenden Prozess zu benutzen, da

dieser die höchste Verstärkung aufweist. Um einen solchen Betrieb zu simulieren, wurde als Modell angenommen, dass die Idler- und Signalstrahlung auf einer Medienlänge, die der in den Experimenten kürzest möglichen Wechselwirkungslänge $l = 1.25 \text{ mm}$ entspricht erzeugt wird. Dieser Teil soll als optisch parametrischer Generator (OPG) betrachtet werden. Für die weitere Propagation dienen diese Strahlungsfelder gemeinsam als Seed für den parametrischen Vierwellenprozess und erfahren, wie in Abschnitt 5.2.4.2 dargestellt, exponentielle Verstärkung bis zu der maximalen Wechselwirkungslänge $L = 6.7 \text{ mm}$. Der Teil $L - l$ dient dabei als optisch parametrischen Verstärker (OPA). Zur Verdeutlichung ist das Modell in Abbildung 5.37 skizziert

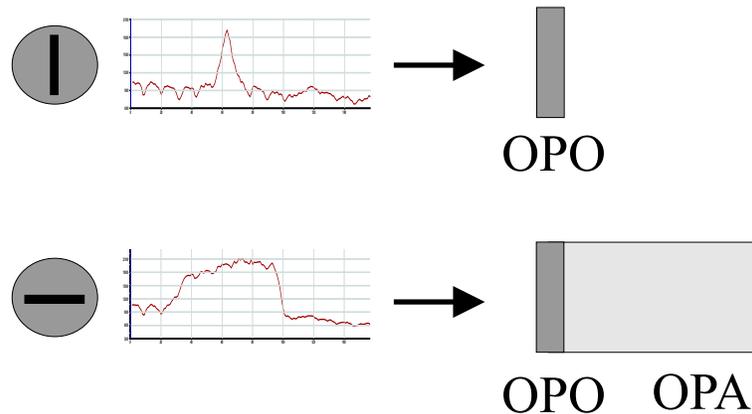


Abbildung 5.37: Prinzip einer einfachen Verstärkeranordnung für den VUV-Bereich.

Dies entspricht typischen Generator-Verstärker-Anordnungen, wie sie bei den bekannten $\chi^{(2)}$ -Prozessen in Kristallen angewendet werden, wenn in einem Durchlauf durch einen kurzen Kristall die parametrische Superfluoreszenz erzeugt, und in einem anderen nachverstärkt wird. Zwischen beiden Kristallen können sich zusätzlich frequenzselektive Elemente befinden, die eine Abstimmung der Ausgangswellenlänge ermöglichen. Im Gegensatz dazu wird hier das gesamte Spektrum weiterverwendet, da es in dieser Anordnung keine physikalische Trennung zwischen dem kurzen und dem langen Gasmedium gibt.

Mit diesem Modell wurden mit den in Abschnitt 5.2.4.1 gemessenen Signalstärken bei kurzer Medienlänge $S(l)$ und bei langer Medienlänge $S(L)$ die makroskopische Verstärkung

$$V = S(L)/S(l) \quad (5.16)$$

bestimmt. Die so erhaltenen Verstärkungen sind in Abbildung 5.38 in Abhängigkeit von der Pumplaserwellenlänge aufgetragen.

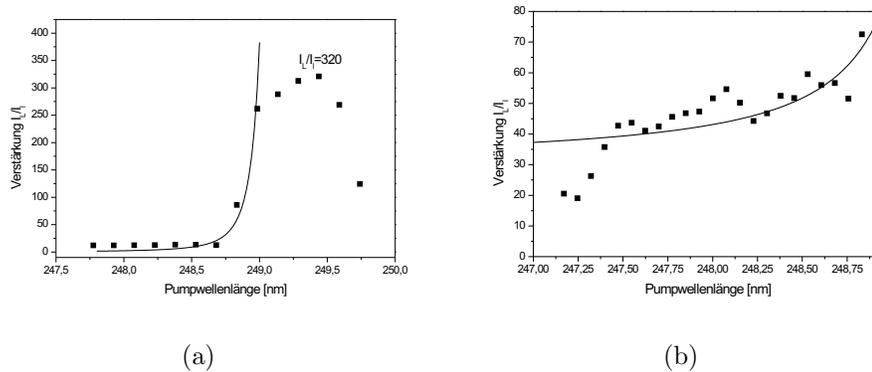


Abbildung 5.38: Makroskopische Verstärkung für einen Vordruck von (a) 160 mbar und (b) 900 mbar.

Die durchgezogenen Kurven stellen theoretisch berechnete Verstärkungen nach Gleichungen 5.16 und 2.29 für die bekannte Pumpintensität von $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ und Teilchendichten von $1.8 \times 10^{15} \text{ cm}^{-3}$ bei 160 mbar Vordruck (a) und $1 \times 10^{16} \text{ cm}^{-3}$ bei 900 mbar Vordruck (b).

Hierbei zeigt sich ab Wellenlängen oberhalb von 249 nm wiederum eine deutliche Abweichung von den theoretisch berechneten Werten, die auf den bereits erwähnten Besetzungstransfer bei sehr nahresonanter Anregung zurückzuführen ist. Die Kurven zeigen eine gute Übereinstimmung mit den gemessenen Verstärkungen. Es ergeben sich makroskopische Verstärkungen von $V = 80$ für den in den meisten Experimenten eingesetzten Vordruck von 900 mbar, bei dem die größten Signalstärken gemessen wurden. Für den wesentlich geringeren Vordruck von 160 mbar konnten sogar Verstärkungen bis zu $V = 320$ bestimmt werden, allerdings waren die Signalstärken hier deutlich geringer, verglichen mit 900 mbar Vordruck.

5.4.2 Getrennte OPG/OPA-Anordnung bei geseedetem Idlerfeld

Die Verwendung der DFDL-Strahlung bei Wellenlängen um 497 nm bietet zwar nur die Möglichkeit einer kleinen Verstärkung, allerdings besitzt dieser Prozess nach Abschnitt ?? eine nahezu kollineare Phasenanpassung. Damit ermöglicht sich ein einfacher Aufbau

einer Generator-Verstärker-Anordnung. Wie bereits vorher gezeigt, weisen die parametrischen Prozesse bei Pumpenergien von 4 mJ Maxima auf, wenn sich der Fokus vor bzw. hinter dem Medium befindet. Diese Tatsache kann ausgenutzt werden, zwei Düsen zu verwenden, die entsprechend ca. 2 cm vor und hinter dem Fokus platziert werden. Der Aufbau ist in Abbildung 5.39 dargestellt, der prinzipiell dem in Abschnitt 5.3 vorgestellten Kristall-OPG/OPA (Abbildung 5.24) entspricht.

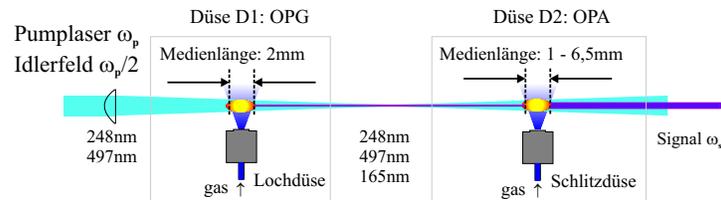


Abbildung 5.39: Zwei-Düsen-Aufbau zur parametrischen Verstärkung im VUV-Bereich.

Beide Düsen wurden in dem Experiment über jeweils einen Düsenkontroller angesteuert. Das Triggersignal wurde dabei auf beide Controller aufgeteilt, eine separate Optimierung der Öffnungszeiten war nicht notwendig. Die erste Düse D1 erzeugt dabei das Signalfeld aus einer Wechselwirkungslänge von etwa $L1 = 2 \text{ mm}$ heraus, welches anschließend in der Düse D2 bei variabler Wechselwirkungslänge $L2$ nachverstärkt wurde.

Wie in den vorangegangenen Experimenten gezeigt, erfolgt bei einer Erhöhung der Pulsenergie der Idlerstrahlung ein Übergang vom Regime der parametrischen Verstärkung in den Bereich der Frequenzmischung, in dem keine Verstärkung stattfindet. Dies kann für den Nachweis der exponentiellen Verstärkung in dem Prozess für kleine Idlerenergien ausgenutzt werden. Dazu wird das Ausgangssignal bei 165 nm bei folgendem Düsenbetrieb für jede Wechselwirkungslänge der Düse D2 gemessen:

- 1.) D1 offen, D2 geschlossen
- 2.) D1 geschlossen, D2 offen
- 3.) D1 und D2 offen

Diese Messungen wurden für Idlerenergien von 20 nJ und 50 μJ durchgeführt.

Für den Fall der hohen Pulsenergie ist keine Verstärkung zu erwarten, die Summe der Signale der Messungen 1.) und 2.) sollten daher mit der Messung 3.) übereinstimmen. Dies konnte im Experiment für Seed-Energien im Bereich von 26 μJ bis 40 μJ bestätigt werden, siehe Abbildung 5.40.

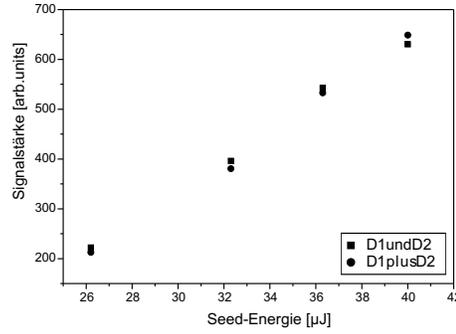


Abbildung 5.40: Energievariation bei hoher Seed-Energie.

Für die kleine Idlerenergie jedoch ergibt Messung 3.) mehr als die Summe der Messungen 1.) und 2.). Für Seed-Energien von 20 nJ wurden daher Längenvariationen durchgeführt. Die Ergebnisse der Längenvariation sind in Abbildung 5.41 dargestellt. Dabei konnte festgestellt werden, dass eine Verstärkung der in D1 erzeugten Strahlung in D2 stattfindet.

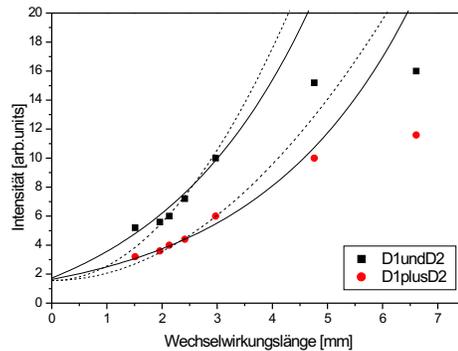


Abbildung 5.41: Längenvariation bei niedriger Seed-Energie (20 nJ). Die durchgezogenen Kurven sind berechnet für den Fall D1plusD2, Signale einzeln gemessen und addiert und D1undD2, beide Düsen sind gleichzeitig in Betrieb. Die gestrichelten Kurven stellen quadratische Fitkurven zu den jeweiligen Messreihen dar. Der Offset bei Länge 0 ist auf das in D1 erzeugte Signal zurückzuführen.

Die in Abbildung 5.41 gezeigten Kurven stellen Simulationen der Messungen für die Frequenzmischung (gestrichelt Linie, $S_{FM}(D1 + D2)$) und die Annahme parametrischer Verstärkung (durchgezogene Linie, $S_{PA}(D1 + D2)$) von Signal $S(D1)$ in der zweiten Düse

dar.

Für die theoretische Beschreibung wurde angenommen, dass ohne den Einfluss der parametrischen Verstärkung sich die Signale S von D1 und D2 lediglich addieren, also $S(D1 + D2) = S(D1) + S(D2)$. Für die messbaren Signalstärken gilt daher

$$S_{FM}(D1 + D2) \propto L1^2 + L2^2. \quad (5.17)$$

Dies ist der Fall für das Regime der Frequenzmischung (FM). Wenn das in D1 erzeugte Signal in D2 jedoch parametrische Verstärkung erfährt, ergibt sich die Signalstärke zu

$$S_{PA}(D1 + D2) \propto e^{2GL1} e^{2GL2}. \quad (5.18)$$

Die Anpassung der theoretischen Kurven führt hierbei zu einem Verstärkungskoeffizienten von $G = 1.8 \text{ cm}^{-1}$. Dieser Wert ist etwas höher, als der in Abschnitt 5.3.2 angegebene, was auf eine etwas höhere Pumpplaserenergie von 6 mJ zurückzuführen ist. In diesen Ergebnissen zeigt sich gut die Eignung des Vierwellenmischprozesses für die parametrische Verstärkung externer Signale im VUV-Bereich. Die maximale Verstärkung ist hier allerdings mit $S_{PA}/S_{FM} = 1.6$ sehr niedrig im Vergleich zu den Ergebnissen des vorangegangenen Abschnitts.

5.5 Verstärkungstransfer auf Summenfrequenzmischung bei 106 nm

Wie im Übersichtsspektrum (Abbildung. 5.11) zu erkennen, tritt neben dem oben behandelten Differenzprozess $\omega_s = 2 \cdot \omega_p - \omega_i$ auch der dazugehörige Summenprozess $\omega_s = 2 \cdot \omega_p + \omega_i$ bei 106 nm auf. Für den Summenprozess allein ist im Medium keine Verstärkung möglich. Es kann auch nur dann entstehen, wenn ein entsprechendes externes Feld injiziert wird. In diesem Fall bedeutet das, dass die Strahlung bei 106 nm nur über die Kopplung mit dem Differenzprozess entstehen kann, Abbildung 5.42.

Die nichtlineare Suszeptibilität, die zu diesem Prozess führt, ist in Abbildung 5.43 dargestellt.

Die Längenvariationen wurden bei einem etwas höheren Vordruck von 1200 mbar und einer Pumpulsenergie von 11 mJ durchgeführt. Zum direkten Vergleich wurde unter denselben Bedingungen die Signalintensität des Differenzprozesses bei 149 nm bestimmt.

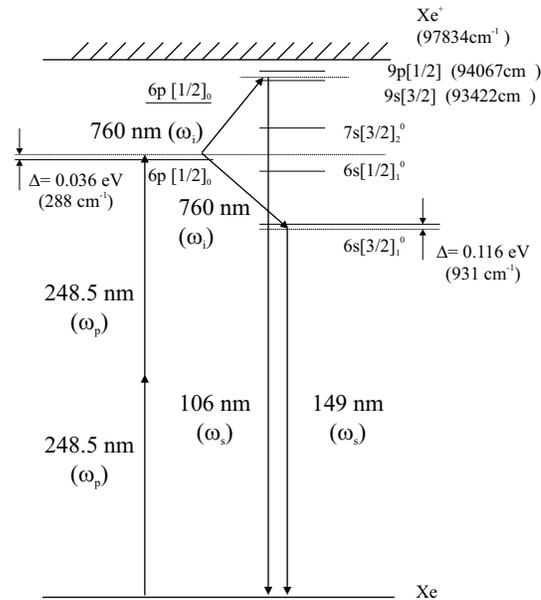


Abbildung 5.42: Schematische Darstellung des Verstärkungstrfers im Xenonsystem. Die Kopplung des Summen- an den Differenzfrequenzmischprozess erfolgt durch das gemeinsame Feld bei 760 nm (Koppelfeld).

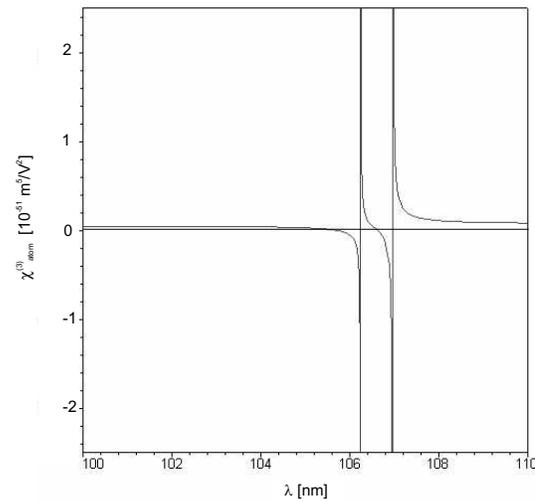


Abbildung 5.43: Nichtlineare Suszeptibilität für die Summenfrequenzmischung nach Abbildung 5.42.

Solange die Bedingung

$$P \cdot L < \frac{\pi}{2}$$

für den Propagationskoeffizienten P des Summenprozesses und die Wechselwirkungslänge L erfüllt ist, sollte das exponentielle Anwachsen des gemeinsamen Idlerfeldes auch zu einem exponentiellen Anwachsen des Summensignals führen.

Abbildung 5.44 zeigt die Ergebnisse der Messungen für Pumpwellenlängen von 248.5 nm bzw. 248.8 nm.

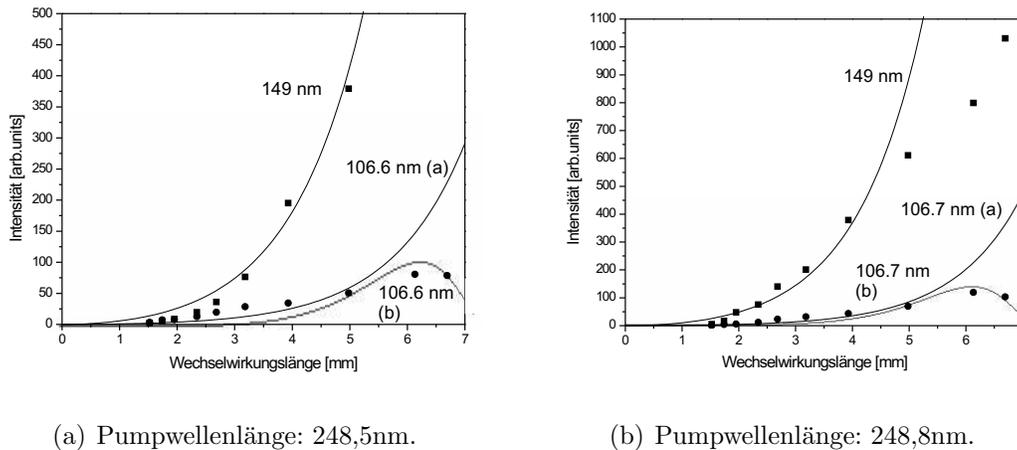


Abbildung 5.44: Wechselwirkungsvariationen bei einem Vordruck von 1200mbar: Differenzprozess (Quadrat) und Summenprozess (Kreise). Die Kurven (a) stellen einen exponentiellen fit dar, (b) nach Gleichung 2.46 berechnet für einen Verstärkungskoeffizienten $g = 4 \text{ cm}^{-1}$ und $P = 4 \text{ cm}^{-1}$.

Die absoluten Intensitäten der Signalverläufe von Summen- und Differenzprozess lassen sich aufgrund von unterschiedlichen Gitter- und Detektoreffizienzen für die jeweiligen Wellenlängen nicht miteinander vergleichen. Die Messpunkte des Signals bei 149 nm wurden mit einer \sinh^2 -Funktion approximiert und so der Verstärkungskoeffizient des Differenzprozesses bestimmt. Es ergaben sich hierbei Werte von 3.9 cm^{-1} bzw. 4.2 cm^{-1} . Diese sind kleiner als die vorher bestimmten Koeffizienten, was darauf zurückgeführt werden kann, dass die Fokusposition der Linse bei diesem Experiment näher an der Düse gelegen war, als es dem Optimum entspricht. Durch die hohe Intensität wurde ein großer Teil des Mediums ionisiert, und es ergab sich keine Vergleichbarkeit mit den

vorangegangenen Messungen zu dem selbststartenden Prozess.

Die Signale bei 106 nm zeigen zunächst einen Anstieg bis zu einer Wechselwirkungslänge von 5.9 mm (Pumpwellenlänge: 248.5 nm) bzw. 5.7 mm (Pumpwellenlänge: 248.8 nm). Bis zu diesen charakteristischen Längen lassen sich die Kurven ebenfalls mit einer \sinh^2 -Funktion und den entsprechenden Verstärkungskoeffizienten aus dem Differenzprozess beschreiben. Danach setzt ein Abfall der Signalintensität bei 106 nm ein. Dies entspricht dem Anfang einer durch Gleichung 2.40 beschriebenen Oszillation des Signalfeldes. Das Verhalten des Signalfeldes folgt demnach qualitativ Gleichung 2.46, und die vereinfachte Darstellung des Gain-Transfers von Differenz- auf Summenprozesse ergibt eine gute Beschreibung des Experimentes. Die charakteristischen Längen entsprechen daher den Kohärenzlängen des Summenfrequenzmischprozesses. Aus den experimentell bestimmten Werten lassen sich mit Gleichung 2.46 die Propagationskoeffizienten P für den Summenprozess errechnen. Es ergeben sich Werte von ca. $P = 4 \text{ cm}^{-1}$

Verwendet man die nichtlineare Suszeptibilität aus Anhang C, um den Kopplungskoeffizienten ρ gemäß Gleichung 2.42 zu bestimmen, ergibt sich für eine Teilchendichte von 10^{16} cm^{-3} und eine Intensität von 10^{13} W/cm^2 ein Wert von $\rho = 2 \text{ cm}^{-1}$. Die Annahme einer Intensität von 10^{13} W/cm^2 ergibt sich nach Kapitel 3.3, da im Vergleich zu den vorangegangenen Messungen mit einer höheren Pumpenergie gearbeitet wurde und der Fokus etwas näher an der Düse war, als in den vorher beschriebenen Experimenten.

Eine Aussage über die Phasenfehlanpassung ist schwierig, da nicht festgestellt werden kann, in welche Richtung die Strahlung des Summenprozesses propagiert. So könnte sie in alle möglichen Öffnungswinkel zwischen Pump- und Idlerstrahlung emittiert werden. Geht man jedoch davon aus, dass alle vorkommenden Wellenlängen fern ab von Resonanzen liegen, folgt Phasenanpassung, wenn sich die Wellen kollinear ausbreiten würden. Da aber die Idlerstrahlung unter einem kleinen Winkel aus dem Differenzprozess heraus entsteht, kann die Phasenfehlanpassung durch rein geometrische Überlegungen abgeschätzt werden. Für die kollineare Phasenfehlanpassung gilt $\Delta k/2\pi = 2/\lambda_p + \lambda_i - \lambda_s^{sum} = 0$. Dies führt zu einer Emissionswellenlänge der Signalwelle von 106.79 nm. Propagiert nun die Idlerstrahlung unter einem Winkel θ_i zur Pumpstrahlung, so lässt sich $\Delta k/2\pi = 2/\lambda_p + \lambda_i \sin(\theta_i) - \lambda_s^{sum}$ schreiben. Die daraus resultierenden Phasenfehlanpassungen sind in Abbildung 5.45 für Winkel bis 0.5° dargestellt.

Nach Gleichung 2.42 führt ein gemessener Wert von $P = 4 \text{ cm}^{-1}$ mit der berechneten Kopplungsgröße $\rho = 2 \text{ cm}^{-1}$ zu einer Phasenfehlanpassung von 3.4 cm^{-1} (nach Gleichung 2.42) und damit zu einem Öffnungswinkel der Idlerstrahlung von $\theta_i = 0.5^\circ$. Dies ist in

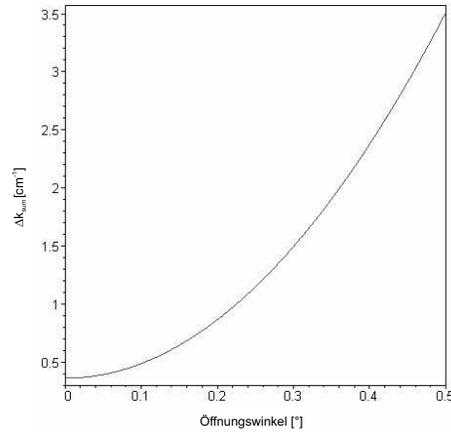


Abbildung 5.45: Berechneter Verlauf der Phasenfehlanspassung des Summenprozesses unter der Annahme, dass die Strahlung in Richtung der Pumpstrahlung propagiert.

guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen aus Abschnitt 5.2.1 und [Mossavi 1996], wobei für Xenondrücke von weniger als 20 *mbar* Öffnungswinkel von weniger als 0.5° festgestellt wurden. Dies entspricht etwa den Gegebenheiten, wie sie bei der Verwendung der gepulsten Düse bei dem Vordruck von 1200 *mbar* vorlagen.

Diese Messungen sind nur als erstes Indiz für die Übertragung der Verstärkung vom Differenz- auf den Summenprozess zu werten und bedürfen noch weiterer Untersuchung. Jedoch ist allein die Tatsache, dass der Summenprozess ohne zusätzlich injiziertes Idlerfeld überhaupt auftritt, ein deutliches Anzeichen für eine Kopplung der beiden Prozesse.

5.6 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurden parametrische Differenz- und Summenfrequenzmischprozesse nach einer Zweiphotonenanregung von Xenonatomen durch KrF-Kurzpulslaserstrahlung untersucht.

Nachdem in Abschnitt 5.1 die Prozessrelevanten Eigenschaften von Xenon aufgeführt wurden, wurden zunächst in Abschnitt 5.2.1 die in dem Differenzprozess entstehende parametrische Superfluoreszenz in einer statischen Gaszelle untersucht. Dabei wurde für die nachfolgenden Experimente der Druckbereich festgelegt, in dem der parametrische Vierwellenprozess über den Hyperramanprozess mit anschließender Relaxation in den Grundzustand dominiert. Über die spektrale Verteilung der parametrischen Emission

ist weiterhin eine Aussage über die Teilchendichte möglich. Diese Abhängigkeit kann dazu benutzt werden, die Teilchendichte auch bei der Verwendung gepulster Düsen zu bestimmen.

Die experimentellen Ergebnisse von Druck- und Längenabhängigkeiten der VUV-Signalstrahlung bei 149 nm sind in Abschnitt 5.2.2 dargestellt. Hierbei kam eine gepulste Düse variabler Wechselwirkungslänge zum Einsatz. Messungen mit einer variablen Pumpwellenlänge ergaben Verstärkungskoeffizienten bis zu 5.4 cm^{-1} . Dies zeigt, dass dieser Prozess geeignet erscheint, eine leistungsfähige Strahlungsquelle im VUV-Bereich zu realisieren. Allerdings könnte das konische Strahlprofil durch die nichtkollineare Phasen Anpassung nachteilig sein.

Der Seed mit Idlerstrahlung variabler Wellenlänge, dass sich der parametrische Prozess zur Erzeugung und Verstärkung im VUV-Spektralbereich zwischen 165 nm (Idlerwellenlänge 497 nm) und 149 nm eignet. Verstärkungskoeffizienten bis 3.4 cm^{-1} sind für Idlerwellenlängen um 700 nm möglich.

Die Möglichkeiten einer Verstärkung von Strahlung externer Quellen wurden in Abschnitt 5.4 behandelt. Ein Modellsystem basierend auf dem selbststartenden Prozess führte dabei auf eine makroskopische Verstärkung von 320.

Bei Verwendung der DFDL-Pulse um 497 nm als Seedquelle des parametrischen Prozesses konnte noch ein Verstärkungskoeffizient von 1.6 cm^{-1} bestimmt werden.

Diese Ergebnisse zeigen die Möglichkeiten, einen parametrischen Differenzfrequenzprozess zur Verstärkung im VUV-Bereich einzusetzen. Allerdings ist aufgrund der erforderlichen Resonanznähe die mögliche Verstärkungsbandbreite auf einen kleinen Wellenlängenbereich eingeschränkt.

Die beim selbststartenden Prozess auftretenden hohen Idlerintensitäten führten zur Summenfrequenzmischung mit der Pumpstrahlung, wobei Strahlung um 106 nm emittiert wurde. Das exponentielle Anwachsen des Idlerfeldes mit der Wechselwirkungslänge bedingt dabei auch ein exponentielles Anwachsen des Summenfrequenzfeldes und damit einen Verstärkungstransfer vom Differenzfrequenzmischprozess auf den Summenprozess in gleicher nichtlinearer Ordnung. Die experimentellen Resultate zeigen dabei eine gute Übereinstimmung mit dem theoretischen Modell dieses Mechanismus, der so das erste mal nachgewiesen werden konnte.

6 Perspektiven

Ausgehend von den in dieser Arbeit erzielten Ergebnissen und Erkenntnissen sollen in diesem Kapitel einige konkrete Systeme betrachtet werden, mit denen es möglich ist, effektiv Strahlung im VUV und XUV zu generieren und die Konversionseffizienzen weiter zu steigern.

6.1 Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen von 248.5 nm in Kapillaren

In den Experimenten zur effizienten Erzeugung der niedrigen Harmonischen von KrF-Kurzpuls laserstrahlung wurde die intensitätsbedingete Niveauverschiebung und ihre Auswirkung auf die Phasen Anpassung und die nichtlineare Polarisation untersucht. Eine einfache Möglichkeit, die Wechselwirkungslänge in diesen Prozessen weiter zu steigern und gleichzeitig eine hohe konstante Pumpintensität zu gewährleisten, ist die Ausnutzung der Strahlpropagation in Kapillaren.

Die geometrische Phasenfehlanpassung, die dabei verursacht wird ist

$$\Delta k_{geom} = \frac{\lambda_p}{4\pi a^2} \left(q u_p^2 - \frac{u_q^2}{q} \right). \quad (6.1)$$

Hier sind a der Radius der Kapillare und u_p, u_q die Modenkonstanten für die Pumpwelle der Frequenz λ_p und der erzeugten q -ten Harmonischen.

Die Intensität für die Erzeugung der dritten Harmonischen sollte analog zur Pumpintensität in den Experimenten in 4.3.1 und 4.3.2 zu $6.4 \times 10^{13} \text{ Wcm}^2$ gewählt werden.

Die Wahl eines optimalen Kapillarradius ist schwierig, da die Wellenleitereigenschaften und die Transmission der Grundwelle und der Harmonischen zu berücksichtigen sind. Als Beispiel kann von einer Kapillare mit $50 \mu\text{m}$ ausgegangen werden.

Bei diesem Radius kann die optimale Intensität erreicht werden, wenn eine Pump-pulsenergie von ca. 3 mJ in die Kapillaröffnung fokussiert wird.

Wird weiterhin angenommen, dass die Propagation beider Wellen in der Grundmode erfolgt, sind die Modenkonstanten $u_p = u_q = 2.405$. Damit ergibt sich nach Formel 6.1 eine Phasenfehlanpassung von $\Delta k_{geom} = 2.7 \text{ cm}^{-1}$. Unter diesen Bedingungen und $\Delta k_{disp,atom} = -1 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ kann eine phasenangepasste Erzeugung der dritten Harmonischen bei einer Teilchendichte von $2.7 \times 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ stattfinden.

Für die Erzeugung der fünften Harmonischen wird eine höhere Intensität von $5.2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^{-2}$ benötigt, siehe Kapitel 4.4.1. Wird in diesem Fall eine Kapillare mit einem kleineren Radius von $25 \text{ }\mu\text{m}$ gewählt, wird eine Pump-pulsenergie von etwa 3.5 mJ benötigt.

Für die Propagation und die Erzeugung der fünften Harmonischen in der Grundmode ergibt sich eine Phasenfehlanpassung von $\Delta k_{geom} = 18 \text{ cm}^{-1}$. Unter den selben Bedingungen wie in Abschnitt 4.4.1, also einer dispersiven Phasenfehlanpassung pro Ion von $\Delta k_{disp,ion} = -4 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ und einer elektronischen Phasenfehlanpassung von $\Delta k_{disp,e} = 2.8 \times 10^{-17} \text{ cm}^2$ kann $\Delta k = 0$ für eine Teilchendichte von $1.5 \times 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ erreicht werden.

6.2 Erzeugung der fünften Harmonische von 248 nm in Helium und Krypton - Channel closing

Ein wichtiger Punkt bei den Untersuchungen zur Harmonischenerzeugung war die Vermeidung der Reabsorption der generierten Strahlung, insbesondere durch Einphotonenionisation.

Die in Abschnitt 4 diskutierte Niveaushiftung führt aber auch zu einer Anhebung des Ionisationspotentials des nichtlinearen Mediums. Ohne diese Verschiebung liegt die Photonenenergie der fünften Harmonischen mit 24.95 eV knapp oberhalb der Ionisierungsenergie von Helium mit $E_{ion} = 24.58 \text{ eV}$. Dies entspricht einer Energiedifferenz von 0.37 eV . Für geringe Pumpintensitäten sollte daher die Erzeugung der fünften Harmonischen in diesem Medium einer starken Reabsorption unterliegen.

Ab einer Intensität von $6.7 \times 10^{13} \text{ Wcm}^2$ führt der AC-Stark-Shift zu einer Verschiebung des Ionisationspotentials um den Wert des ponderomotiven Potentials. Das bedeutet, dass die fünfte Harmonische nicht mehr durch Einphotonenionisation absorbiert werden kann. In diesem Fall spricht man von Channel-closing (Abbildung 6.1).

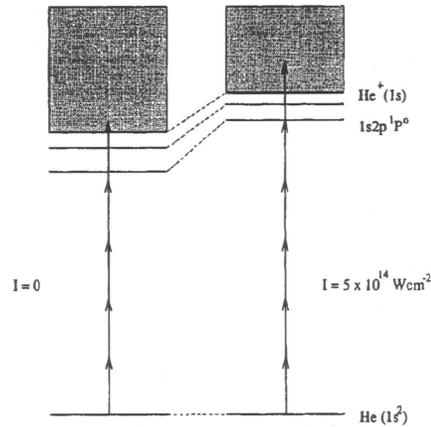


Abbildung 6.1: Channel-closing im neutralen Helium und nahresonante Anregung bei $5 \times 10^{14} \text{ Wcm}^2$, aus [D. H. Glass 2000].

Für den Konversionsprozess ergeben sich oberhalb dieses Intensitätswertes eine Vielzahl an Resonanzen mit hoch angeregten Zuständen des Heliums, die zu einer erhöhten Emission der fünften Harmonischen führen sollten. Allerdings wurde in [D. H. Glass 2000] gezeigt, dass dabei auch eine fünfphotonenresonante Sechspotonenionisation Auftreten kann, die sich nachteilig auswirken könnte (Abbildung 6.2(a)). Allerdings zeigt sich eine nennenswerte Ionisation erst bei $5 \times 10^{14} \text{ Wcm}^2$ durch den $1s2p$ -Zustand, siehe Abbildung 6.2(b), so dass mit Intensitäten bis $4 \times 10^{14} \text{ Wcm}^2$ gearbeitet werden kann.

Ein ähnliches Verhalten kann in einfach ionisiertem Krypton auftreten. Dort liegt die fünfte Harmonische der KrF-Strahlung dicht über dem Ionisationspotential zu Kr^{2+} (23.5 eV). Ab einer Intensität von $6.3 \times 10^{13} \text{ Wcm}^2$ kann hier ebenfalls ein Channel-closing zur nächsten Ionisationsstufe auftreten. Die Erzeugung der fünften Harmonischen kann hier auch wieder nahresonant mit hochangeregten Zuständen erfolgen.

In beiden Fällen ist wie bei der Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen im Argon bzw. Argonion Phasenanpassung möglich, wenn die Pumpintensität die entsprechenden Dispersionskurven so verschiebt, dass der dispersive Beitrag zum Brechungsindex negativ wird. Experimente müsste zeigen, ob sich mit diesem Schema eine höhere Effizienz der fünften Harmonischen ergibt, als für Argonionen als nichtlineares Medium.

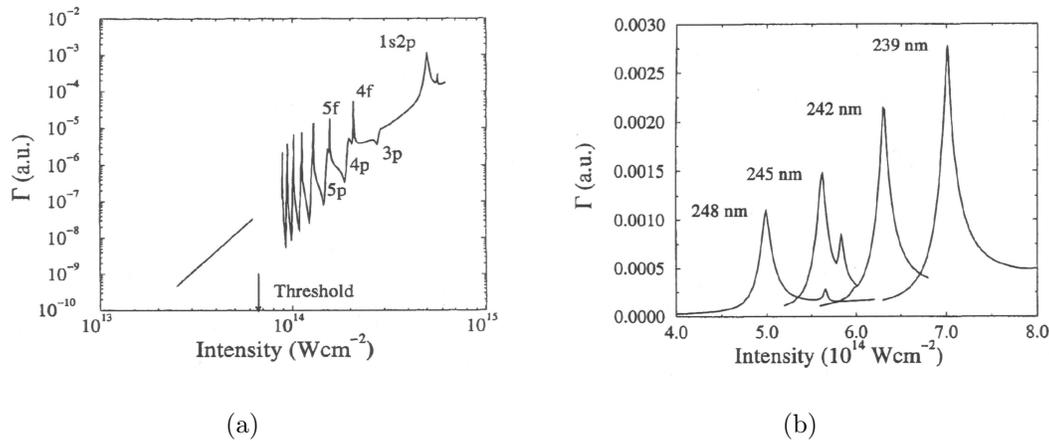


Abbildung 6.2: Ionisationsrate von Helium (a) im Bereich zwischen 10^{13} Wcm^2 und 10^{15} Wcm^2 , (b) um $6 \times 10^{15} \text{ Wcm}^2$ für verschiedene Pumpwellenlängen, aus [D. H. Glass 2000].

6.3 Nahresonante Erzeugung der siebten Harmonischen von 248.5 nm in Neon

Da die experimentellen Ergebnisse dieser Arbeit hinsichtlich der Konversionseffizienz recht vielversprechend sind, stellt sich die Frage, ob dieser Mechanismus auch auf die siebte Harmonische der KrF-Kurzpuls laserstrahlung übertragbar ist.

Ein günstiges System hierfür findet sich im einfach ionisierten Neon. Generell müssen für die Erzeugung der siebten Harmonischen hohe Intensitäten eingesetzt werden. Die Appearance-Intensität für Neonionen liegt bei einer Ionisationsenergie von Neon von 21.6 eV bei $8 \times 10^{14} \text{ Wcm}^2$, was eine Siebenphotonenanregung ermöglicht. Die weitere Ionisation zu Ne^{2+} erfolgt erst ab 40.96 eV , was einer Appearance-Intensität von rund $3 \times 10^{15} \text{ Wcm}^2$ entspricht. Dieser Prozess erfordert eine Neunphotonenionisation. Mit Pumpintensitäten um $1 \times 10^{15} \text{ Wcm}^2$ ist es daher möglich, die siebte Harmonische zu erzeugen und eine weitere Ionisation des Mediums zu vermeiden. Diese Intensität führt weiterhin zu einer ponderomotiven Verschiebung der Zustände um 5.7 eV , so dass Resonanz mit den $3p$ - und $3s$ - Zuständen möglich ist (Abbildung 6.3).

Wiederum sollte hier eine effiziente, phasenangepasste Erzeugung der siebten Harmonischen stattfinden. Die Wellenlänge der Harmonischen liegt mit 35.5 nm in einem Spektralbereich, in den Filter und Optiken existieren, was eine solche Strahlungsquelle

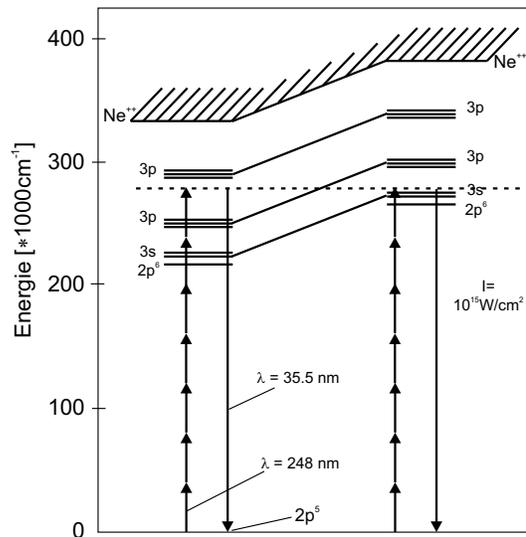


Abbildung 6.3: Channel-closing im Neonion und nahresonante Anregung bei einer Pumpintensität von $1 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$.

für Anwendungen interessant macht.

6.4 Verwendung von Titan-Saphir-Lasersystemen

Titan-Saphir-Lasersysteme sind heute nicht nur weit verbreitet, sondern bieten einige Vorteile gegenüber den Excimer-Kurzpulssystemen. Ein wichtiger Punkt dabei ist die kürzere Pulsdauer der Titan-Saphir-Systeme. Mit ihnen lassen sich leicht Pulsdauern von weniger als 10 fs realisieren. Durch eine Verkürzung der Pumpimpulsdauer kann der Ionisationsgrad des Mediums reduziert werden, und es ergibt sich die Perspektive, mit höheren Intensitäten zu arbeiten, ohne das Medium zu zerstören [Meyer 2000]. Die Verstärkungsbandbreite der Titan-Saphir-Laser ergibt zusätzlich die Möglichkeit, die Wellenlänge entsprechend der Resonanzen und der Pumpintensität abzustimmen.

Es bietet sich daher an, die Harmonischenerzeugung bei Verwendung beider Lasersysteme, dem KrF-Kurzpulslasersystem bei 248.5 nm und dem Titan-Saphir-Lasersystem zu vergleichen. Ein direkter Vergleich zwischen beiden Systemen kann erfolgen, wenn die Grundwelle des Titan-Saphir-Lasers auf 745.5 nm eingestellt wird. Hochleistungslasersysteme liefern ausreichend Energie, dass eine Frequenzverdreifung in Kristallen stattfinden kann, und Leistungsstarke UV-Pulse erzeugt werden können, die ihrerseits

zur Anregung nichtlinearer Prozesse genutzt werden können. Für eine Laserwellenlänge von 780 nm konnte in eigenen Experimenten für eine Pulsdauer von ca. 150 fs eine Konversionseffizienz von 0.1 in einem KDP-Kristall mit 2 mm Länge und Typ II-Phasen Anpassung bestimmt werden. Die Ausgangsenergie der dritten Harmonischen lagen dabei noch bei 8 mJ . Dies entspricht den Pumpenergien, die in dieser Arbeit im UV-Bereich eingesetzt wurden. Es bietet sich daher an, die Harmonischenerzeugung bei Verwendung beider Lasersysteme, dem KrF-Kurzpulslasersystem bei 248.5 nm und dem Titan-Saphir-Lasersystem zu vergleichen.

Ein weiterer Vergleich kann zwischen der dritten Harmonischen des Titan-Saphir-Lasers und der Grundwelle selbst erfolgen. Der Vorteil bei der Verwendung der dritten Harmonischen bestünde darin, für die Frequenzkonversion in den XUV-Bereich von einer kürzeren Wellenlänge auszugehen. Wie in Kapitel 4 beschrieben, kann hierbei durch die niedrige nichtlineare Ordnung, bei Ausnutzung von Resonanzen und Vermeidung von Reabsorption, eine Konversionseffizienz von 0.0025 für die UV-Strahlung in die fünfte Harmonische erwartet werden ($5(3\omega)$). Zusammen mit der Konversion von ca. 10% von der Grundwelle in die dritte Harmonische ($3(\omega)$) sollte sich so beispielsweise eine Gesamteffizienz von 2.5×10^{-4} von Titan-Saphir-Laserstrahlung bei 800 nm in die 15. Harmonische bei 53 nm ($5(3\omega) = 15\omega$) ergeben. Dies liegt etwa eine Größenordnung über bisherigen Resultaten für die Erzeugung von kohärenter Strahlung um 50 nm von kommerziellen Lasersystemen. Durch Verwendung von Kapillaren ist auch hier eine weitere Steigerung möglich, so dass sich bei der Verwendung von bereits kurzwelliger Pumpstrahlung eine insgesamt größere Effizienz ergeben kann. In diesem Vergleich kann auch der Stark-Shift genauer untersucht werden, der für die längere Pumpwellenlänge stärker ausgeprägt sein sollte.

6.5 Möglichkeiten parametrischer Verstärkung im XUV

Da mit steigender Prozessordnung die erreichbaren Verstärkungskoeffizienten abnehmen, könnte es schwierig werden die limitierende Absorption in einem parametrischen Prozess hoher Ordnung zu kompensieren. Hier bietet sich aber die in Abschnitt 5.5 und Anhang A diskutierte Prozesskopplung an.

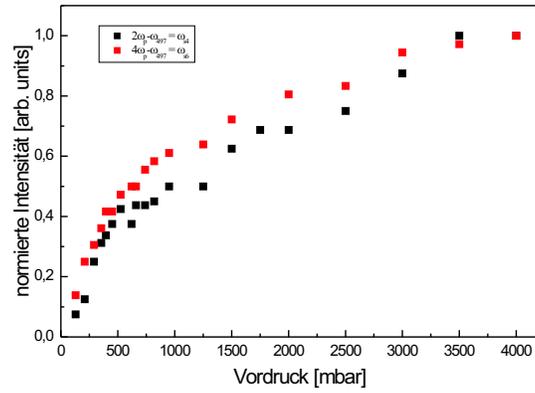
Der in Kapitel 5 untersuchte Vierwellenprozess kann z. B. an einen Sechwellenprozess mit dem selben Idlerfeld koppeln. Ausgehend von der selbststartenden Superfluoreszenz

mit dem Signalfeld bei 149 nm und dem Idlerfeld bei 760 nm könnte in einem korrespondierenden Sechswellenmischprozess eine Signalwelle bei 67.7 nm auftreten. Diese wurde in den Experimenten allerdings nicht beobachtet, was auf die starke nichtkollineare Phasenanpassung zurückzuführen ist.

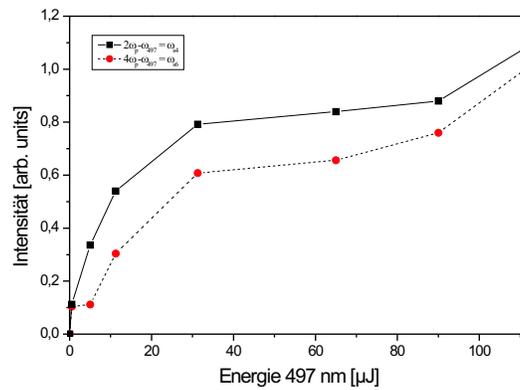
Anders sieht es bei dem geseedeten Vierwellenprozess $2\omega = \omega_i + \omega_{s4}$ aus. Mit einer Seedwellenlänge von 497 nm war kollineare Phasenanpassung möglich. Für diesen Fall konnte in Vorexperimenten der entsprechende Sechswellenprozess $4\omega = \omega_i + \omega_{s6}$ mit einer Signalwelle bei 71.1 nm beobachtet werden. Erste Untersuchungen der Druck- und Seedenergieabhängigkeit zeigen das selbe Verhalten für das Signalfeld des Vierwellenprozesses (165 nm) und des Sechswellenprozesses (71.1 nm). Für diese Messungen wurden Pumpenergien von 15 mJ und eine starke Fokussierung mit einer $f = 500\text{ mm}$ -Linse verwendet 6.4.

Die Ergebnisse können allerdings nur als erstes Indiz für einen Verstärkungstransfer von einem Prozess niedriger Ordnung auf einen Prozess höherer Ordnung gewertet werden, da aufgrund des kleinen konfokalen Parameters ($b = 1\text{ mm}$) keine Längenabhängigkeit bestimmt werden konnte. Es zeichnet sich aber ab, dass die erreichbaren Verstärkungswerte für den Vierwellenprozess deutlich über den in dieser Arbeit gemessenen Wert von 1.6 cm^{-1} liegen könnten. Um bei den hohen Pumpintensitäten eine zu starke Ionisation des nichtlinearen Mediums zu vermeiden, ist hier die Anwendung kürzerer Pumppulse vorteilhaft [Meyer 2000].

Ein in Anhang A diskutiertes Schema zu einer möglichen Verstärkung, und damit zur Steigerung der Konversionseffizienz von Harmonischen ist die selbstinduzierte Verstärkung. Um einen solchen Mechanismus experimentell nachzuweisen, kann zum Beispiel die nichtlineare Kopplung zwischen der dritten und der fünften Harmonischen der Grundwellen des Titan-Saphir-Laserstrahlung betrachtet werden. Als nichtlineares Medium hierfür käme Xenon in Frage, da dieses Medium eine große Polarisierbarkeit aufweist. Der Prozess $8\omega = 3\omega + 5\omega$ ist hierbei nah an der $5p-6p$ -Resonanz und ist durch eine große nichtlineare Suszeptibilität ausgezeichnet. Eine hinreichend großer Wechselwirkungslänge kann zum Beispiel unter Verwendung von Kapillaren erfolgen.



(a)



(b)

Abbildung 6.4: Erste Untersuchungen der gekoppelten Vier- und Sechswellenmischung in Xenon. Pumintensität $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (a) Druckabhängigkeit und (b) Abhängigkeit von der Seedenergie.

7 Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurden Frequenzkonversionsprozesse dritter und fünfter Ordnung ausgehend von einem KrF-Kurzpulslasersystem betrachtet. Die Experimente wurden in Hinblick auf grundlegende Abhängigkeiten der Prozesse von Phasenanpassung, Absorption, Teilchendichte und Wechselwirkungslänge durchgeführt. Das Ziel war die Optimierung der Parameter zur Steigerung der Konversionseffizienz und zur Realisierung leistungsstarker Strahlungsquellen unterhalb von 100 nm .

In Erweiterung zu vorangegangenen Arbeiten wurde die Erzeugung der dritten Harmonischen in Argon untersucht. Die Anregung führt zur Emission von leistungsstarker Kurzpulsstrahlung bei 82.8 nm . Das Konzept, das dabei zu einer Effizienzsteigerung führte, nämlich die Vermeidung von Reabsorption und Ausnutzung von Resonanzen und Phasenanpassung wurde anschliessend auf die Erzeugung der fünften Harmonischen bei 49.7 nm erweitert. Mit Xenon als nichtlinearem Medium wurde in einem Wellenlängenbereich von $149\text{ nm} - 165\text{ nm}$ parametrische Verstärkung bei Vierwellendifferenzfrequenzmischung demonstriert.

In den Experimenten zur Erzeugung der dritten Harmonischen wurde der Ionisationsmechanismus des Argongases diskutiert. Experimentelle und theoretische Untersuchungen ergaben eine Erklärung des Sättigungsverhaltens der dritten Harmonischen bei hohen Pumplaserintensitäten. Es wurde in Übereinstimmung mit den theoretischen Simulationen gezeigt, dass ab einer Intensität von $2.5 \times 10^{14}\text{ W/cm}^2$ von einer vollständigen Ionisations des Argon ausgegangen werden muss.

Für eine Optimierung der Erzeugung der dritten Harmonischen ist es notwendig, die Ionisation des nichtlinearen Mediums zu vermeiden. Experimentell wurde eine optimale Pumplaserintensität von $6.3 \times 10^{13}\text{ W/cm}^2$ bestimmt, bei der der Ionisationsgrad von Argon zu vernachlässigen ist.

Eine Erhöhung der Konversionseffizienz wurde durch eine Balance zwischen der durch die Fokussierung verursachten geometrischen und der atomaren dispersiven Phasenfehl-anpassung erreicht. Um den dispersiven Beitrag abzuschätzen, wurde in der Berech-

nung die Verschiebung der Niveaus des Argon durch den AC-Stark-Shift berücksichtigt. Die intensitätsbedingte Anhebung der Zustände um das ponderomotive Potential führte darüberhinaus auch zu einer Vergrößerung der nichtlinearen Suszeptibilität für diesen Prozess. Die Pumpintensität stellt damit einen Optimierungsparameter dar, mit der ein nahresonanter Prozess, sowie Phasenanpassung erzwungen werden kann. Längenvariationen zeigten eine phasenangepasste Erzeugung der dritten Harmonischen mit hoher Effizienz. Die Ausnutzung einer Wechselwirkungslänge von 6.7 mm und die Optimierung der Pumpintensität zu $6.4 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ergaben bei einer phasenangepassten und absorptionsfreien Erzeugung eine Ausgangsenergie der dritten Harmonischen bei 82.8 nm von $150 \text{ }\mu\text{J}$ bei einer Pumpenergie von 6 mJ . Dies entspricht einer Konversionseffizienz von 2.5% und ist eine der höchsten, die im XUV-Bereich gemessen wurde.

Der Stark-Shift liefert darüberhinaus eine Erklärung für die Abhängigkeit der Ausgangsenergie der dritten Harmonischen von der Eingangsenergie und -wellenlänge der Pumpstrahlung. Die theoretischen Simulationen berücksichtigten die spektrale Breite der Pumpstrahlung, die Änderung der Pumpenergie durch die begrenzte Verstärkungsbandbreite des KrF-Verstärkers und den zeitlichen Verlauf der Pumpstrahlung. Dabei zeigte sich, dass eine ponderomotive Niveaushiftung nicht zu vernachlässigen ist.

Diese Optimierungsstrategie wurde auf die Erzeugung der fünften Harmonischen übertragen. Hierbei erweisen sich Argonionen als nichtlineares Medium geeignet für eine nahresonante, phasenangepasste und absorptionsfreie Erzeugung der fünften Harmonischen. Aufgrund der höheren Prozessordnung wird eine höhere Pumpintensität von $5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ benötigt, wobei erst die ponderomotive Niveaushiftung zu einer nahresonanten Anregung führt. Das Medium ist bei dieser Intensität vollständig einfach ionisiert. Die ersten experimentellen Untersuchungen führten bei einer Optimierung der Teilchendichte zu einer phasenangepassten Erzeugung der fünften Harmonischen. Insgesamt konnte eine Ausgangsenergie von $15 \text{ }\mu\text{J}$ bei einer Pumpenergie von 6 mJ gemessen werden. Dies ist mit einer Effizienz von 0.25% eine der höchsten Effizienzen für die Konversion von Strahlung eines kommerziellen Kurzpulslasersystems in den XUV-Bereich bei 49.7 nm .

Der Einsatz von bereits existierenden KrF-Kurzpulslasersystemen mit Pulsenergien bis zu 100 mJ eröffnen dabei interessante Perspektiven. Für die Erzeugung der dritten und fünften Harmonischen lassen sie Pulsenergien von 2.5 mJ bei 82.8 nm und $250 \text{ }\mu\text{J}$ bei 49.7 nm erwarten, wodurch Anwendungen im Bereich der Materialbearbeitung möglich wären.

In weiteren Experimenten wurden die Möglichkeiten parametrischer Verstärkung un-

tersucht. Die nahresonante Zweiphotonenanregung von Xenon mit einem Femtosekundenlaser führt zu selbststartenden parametrischen Emissionen bei 760 nm (Idlerwelle) und 149 nm (Signalwelle) mit nichtkollinearer Phasenanpassung, gemäss dem Prozess $2\omega_p = \omega_i + \omega_s$. Dieser Prozess wurde als Modellsystem gewählt, um grundlegende Abhängigkeiten der parametrischen Verstärkung für das Signalfeld im VUV zu untersuchen. Es gelang ein experimenteller Nachweis des exponentiellen Längenverhaltens dieses parametrischen Prozesses, und damit der parametrischen Verstärkung von Strahlung im VUV-Bereich. Eine Optimierung des Prozesses konnte über die Einstellung der Pumplaserwellenlänge erreicht werden. Die Untersuchung des Längenverhaltes der parametrischen Vierwellenmischung ergab für eine Pumplaserwellenlänge von 249 nm eine maximale Verstärkung von 5.4 cm^{-1} für die Signalwellen bei 149 nm . In einem einfachen Modell einer Generator-Verstärker-Anordnung wurden makroskopische Verstärkungswerte von 320 nachgewiesen. Für einen Verstärker für externe Quellen stellt die selbststartende Emission allerdings ein großes Rauschen dar. Weiterhin problematisch ist die nichtkollineare Phasenanpassung, welche eine genaue Einstellung des Winkels zwischen der Signalstrahlung und der Pumpwelle erfordert und aufgrund des Walk-off zu einer begrenzten Wechselwirkungslänge führt.

Daher wurden die Verstärkungseigenschaften des Prozesses für andere Wellenlänge untersucht, wofür Idlerstrahlung mit Wellenlänge zwischen 800 nm und 497 nm eingestrahlt wurde. Hier konnte bei einer Idlerwellenlänge von 700 nm geringer Intensität noch ein Verstärkungskoeffizient von 3.4 cm^{-1} für das korrespondierende Signalfeld bei 151.4 nm im VUV nachgewiesen werden.

Ein erstes Indiz für einen Verstärkungstransfers ist der Summenfrequenzmischprozess $2\omega = \omega_s - \omega_i$ mit einer Signalwelle bei 106 nm , die zusammen mit der selbststartenden Emission bei 149 nm entsteht. Bei einer Variation der Wechselwirkungslänge wurde auch für dieses Feld ein exponentielles Anwachsen nachgewiesen. Damit konnte erstmals ein Verstärkungstransfers durch eine Prozesskopplung nachgewiesen werden. Um das Konzept in den XUV-Bereich zu übertragen, sind Prozesse höherer Ordnung notwendig, wozu weitere Untersuchungen erforderlich sind. Entsprechende Experimente, die den Verstärkungstransfer in den XUV-Bereich zeigen könnten, wurden in Kapitel 6 vorgeschlagen und theoretisch in Anhang A diskutiert.

Mit den in dieser Arbeit vorgestellten Möglichkeiten der effizienten Erzeugung von Harmonischen und den Konzepten zur parametrischen Verstärkung sollten sich in Zukunft einfache und kompakte Quellen kurzweiliger und leistungsstarker Strahlung reali-

sieren lassen. Die Bedeutung der parametrischen Verstärkung im kurzwelligen Spektralbereich ist dabei aber eher vorsichtig zu beurteilen. Um Aussagen zu treffen, inwiefern mit parametrischen Prozessen eine Effizienzsteigerung bei der Erzeugung von Strahlung im XUV Bereich erreicht werden kann, erfordert weitergehende Untersuchungen.

A Selbstinduzierte Verstärkung von Harmonischen

In Kapitel 2.1 wurde gezeigt, dass die Signalintensität von Harmonischen im günstigsten Fall, also bei perfekter Phasenanpassung und bei verschwindender Absorption, quadratisch mit der Medienlänge anwachsen können.

Eine Reabsorption der erzeugten Strahlung führt zu einer Sättigung und so zu einer Beschränkung der Konversionseffizienz. Diese zu umgehen ist möglich, wenn Verstärkungsprozesse in die Betrachtung mit eingeschlossen werden. In diesem Kapitel wird gezeigt, dass eine Verstärkung der Harmonischen im Gegensatz zu den Bereits untersuchten Differenzfrequenzmischprozessen auch dann möglich ist, wenn nur die Pumpwelle eingestrahlt wird.

Abbildung A.1 zeigt schematisch die Prozesse, die für die Erzeugung und Verstärkung von Harmonischen Verantwortlich sind. Hierbei werden verschiedene Kanäle, in denen dieselben Harmonischen auftreten berücksichtigt, wie es in 2.2 angedeutet wurde.

Die Prozesse (a) und (b) sind die gewöhnliche Erzeugungskanäle der niedrigen (ω_l) bzw. hohen (ω_s) Harmonischen. Der Prozess (c) stellt die nichtlineare Kopplung zwischen diesen Kanälen dar. Hierbei treten die Harmonischen selbst als Idler- und Signalstrahlung auf [Meyer u. a. 1999].

Zur Beschreibung wird wieder die slowly-varying-envelope- approximation benutzt.

$$E_p(z, t) = \frac{1}{2} \sum_q (A_p(z, t) e^{ik_p z - i\omega_p t} + c.c.) \quad (\text{A.1})$$

$$E_q(z, t) = \frac{1}{2} \sum_q (E_q(z, t) e^{ik_q z - i\omega_q t} + c.c.). \quad (\text{A.2})$$

Hierbei bezeichnet der Index p die Feldamplitude A , Wellenvektor k und Frequenz ω der Pumpstrahlung. Der Index q steht für die Harmonischen ($q = l, s$ ungerade). Die Propagation wird beschrieben durch die gekoppelten Differentialgleichungen

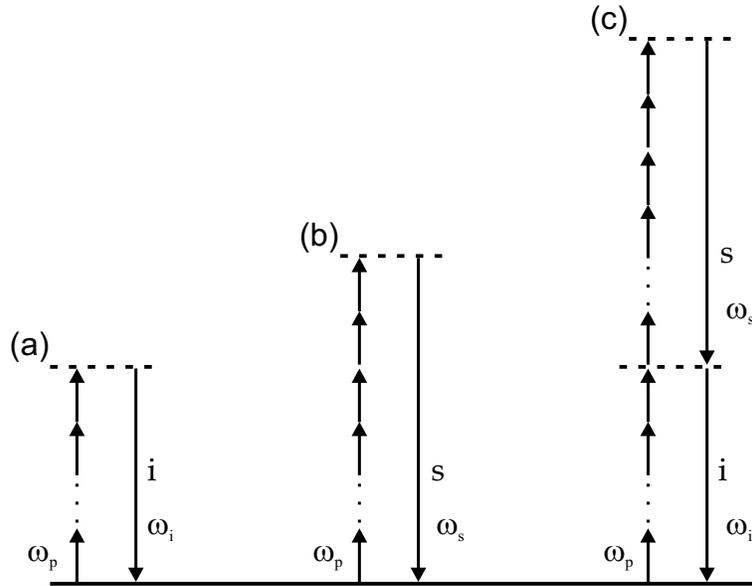


Abbildung A.1: Mechanismus der Kopplung von Harmonischen in einem parametrischen Prozess.

$$\frac{d}{dz}A_s + \frac{\alpha_s}{2}A_s = ig_s e^{-i\Delta k_s z} + i\gamma_s A_l^* e^{-i\Delta k z} \quad (\text{A.3})$$

$$\frac{d}{dz}A_l + \frac{\alpha_l}{2}A_l = ig_l e^{-i\Delta k_l z} + i\gamma_l A_s^* e^{-i\Delta k z} \quad (\text{A.4})$$

mit den Absorptionskoeffizienten der erzeugten Harmonischen. Die Phasenfehlanspassungen sind entsprechend der Kanäle (a), (b) und (c)

$$\Delta k_l = k_l - lk_p \quad , \quad (\text{a}) \quad (\text{A.5})$$

$$\Delta k_s = k_s - sk_p \quad , \quad (\text{b}) \quad (\text{A.6})$$

$$\Delta k = \Delta k_l + \Delta k_s \quad , \quad (\text{c}). \quad (\text{A.7})$$

Die Quellterme g_q und die Kopplungskoeffizienten sind über die Amplituden der entsprechenden nichtlinearen Dipolmomente bestimmt

$$d_q = d_q^{(0)} + d_q^{(1)} \quad (\text{A.8})$$

$$d(z, t) = \frac{1}{2} \sum_q (d_q e^{iq(k_p z - \omega_p t)} + c.c.). \quad (\text{A.9})$$

Der Anteil $d_q^{(0)}$ hängt dabei nur vom Pumpfeld ab, $d_q^{(1)}$ zusätzlich noch den erzeugten Feldamplituden gemäß

$$d_l^{(1)} = X(\omega_l) A_s^* \quad (\text{A.10})$$

$$d_s^{(1)} = X(\omega_s) A_l^*, \quad (\text{A.11})$$

mit den Kreuzpolarisationen $X(\omega_l)$ und $X(\omega_s)$. die Koeffizienten g_q und γ_q sind damit

$$g_q = \frac{2\pi\omega_q}{cn_q} N d_q^{(0)} \quad (\text{A.12})$$

$$\gamma_q = \frac{2\pi\omega_q}{cn_q} N X(\omega_q). \quad (\text{A.13})$$

N ist wieder die Teilchendichte und n_q die Brechungsindices der Harmonischen. In der Störungstheorie sind

$$N d_q^{(0)} = \frac{1}{2^{q-1}} \chi^{(q)}(\omega_q) A_p^q \quad (\text{A.14})$$

$$N X(\omega_q) = \frac{s+l+1}{2^{s+l}} \chi^{(s+l+1)}(\omega_q) A_p^{s+l}, \quad (\text{A.15})$$

wobei $\chi^{(q)}(\omega_q)$ und $\chi^{(s+l+1)}(\omega_q)$ die störungstheoretischen Suszeptibilitäten für die Prozesse (a)-(c) sind. Fern ab von Resonanzen sind die Suszeptibilitäten reel und $\chi^{(s+l+1)}(\omega_s) = \chi^{(s+l+1)}(\omega_l)$, und so gilt $\frac{\gamma_l n_l}{\omega_l} = \frac{\gamma_s n_s}{\omega_s}$. Da $\omega_s \gg \omega_l$ gilt $|\gamma_l| \ll |\gamma_s|$. Für die hohen Harmonischen müssten die nichtlinearen Dipolmomente jedoch direkt über Lösung der nichtlinearen Schrödingergleichung ausgerechnet werden. Daher sollen sie in dieser Betrachtung nur als freie Parameter verwendet werden.

Das Gleichungssystem A.3 kann mit dem Ansatz

$$A_l(z) = B_l(z)e^{-i\Delta k_l z} \quad (\text{A.16})$$

$$A_s(z) = B_s(z)e^{-i\Delta k_s z} \quad (\text{A.17})$$

für die Anfangsbedingungen $A_l = A_s = 0$ bei $z = 0$ gelöst werden. Dazu wird die zweite Gleichung in A.3 komplex-konjugiert und in die erste eingesetzt. So erhält man eine Differentialgleichung für die Amplitude des Signalfeldes A_s (äquivalent: eine Differentialgleichung für die komplex konjugierte Amplitude des Idlerfeldes A_l^*). Einsetzen von A.16 und anschließender Koeffizientenvergleich für die gegebenen Anfangsbedingungen liefert die Amplituden $A_s(z)$ und $A_l^*(z)$:

$$A_s(z) = F_s \left\{ e^{-i\Delta k_s z} - e^{-\frac{\alpha_s z}{2} + \beta z} \times \left[\cosh(Gz) - \left(\frac{\beta}{G} - \frac{i\gamma_s F_l}{G F_s} \right) \sinh(Gz) \right] \right\} \quad (\text{A.18})$$

$$A_l^*(z) = F_l \left\{ e^{-i\Delta k_l z} - e^{-\frac{\alpha_l z}{2} - \beta z} \times \left[\cosh(Gz) + \left(\frac{\beta}{G} - \frac{i\gamma_l^* F_s}{G F_l} \right) \sinh(Gz) \right] \right\} \quad (\text{A.19})$$

Dabei wurden die Abkürzungen

$$\beta = \frac{1}{2} \left(\frac{\alpha_s - \alpha_l}{2} - i\Delta k \right) = \frac{1}{2} (a_s - a_l^*) \quad (\text{A.20})$$

$$a_l = \frac{\alpha_l}{2} - i\Delta k_l \quad (\text{A.21})$$

$$a_s = \frac{\alpha_s}{2} - i\Delta k_s \quad (\text{A.22})$$

$$F_l = \frac{g_s \gamma_l^* - i g_l^* a_s}{a_l^* a_s - \gamma^2} \quad (\text{A.23})$$

$$F_s = \frac{g_l^* \gamma_s + i g_s a_l^*}{a_l^* a_s - \gamma^2} \quad (\text{A.24})$$

$$G = \sqrt{\beta^2 + \gamma^2} \quad (\text{A.25})$$

$$\gamma^2 = \gamma_l^* \gamma_s \quad (\text{A.26})$$

eingeführt.

Ohne eine Kopplung, wenn $\gamma_l = \gamma_s = 0$, verschwindet Kanal (c). In diesem Fall reduzieren sich die obigen Formel auf den Ausdruck für die gewöhnliche Harmonischen-

erzeugung. Mit $s = l = q$ erhält man so

$$A_s(z) = A_s^{harm}(z) = \frac{ig_s}{a_s} \left[e^{-i\Delta k_s z} - e^{\frac{\alpha_s z}{2}} \right]. \quad (\text{A.27})$$

Für hohe Harmonische ist $\alpha_s \neq 0$, und die maximale Intensität wird erreicht für $z \gg 2/\alpha_s$.

$$I_s^{max} = \frac{2\pi\omega_s |d_s^{NL}|^2}{cn_s \lambda_s^2 \sigma_s^2} \frac{1}{1 + \left(\frac{2\Delta k_s}{\alpha_s}\right)^2}. \quad (\text{A.28})$$

Dies ist äquivalent zu dem Ausdruck 2.18 in Kapitel 2.1. Zusätzlich ist hier noch der Effekt einer Phasenfehlانpassung berücksichtigt.

Für niedrige Harmonische, bei denen die Absorption vernachlässigt werden kann ($\alpha_l \rightarrow 0$), ergibt sich für die Intensität das bekannte Verhalten

$$I_l(z) = \frac{cn_l |g_l|^2 \sin^2\left(\frac{\Delta k_l z}{2}\right)}{2\pi \Delta k_l^2}, \quad (\text{A.29})$$

wobei die Intensität der Harmonischen quadratisch mit der Medienlänge ($I_l(z) \sim z^2$) anwächst, wenn der Prozess phasenangepasst ist ($\Delta k_l = 0$).

Für den Fall einer vorhandenen Prozesskopplung lässt sich die Diskussion dahingehend vereinfachen, dass eine Rückwirkung des Signalfeldes vernachlässigt wird. Dies wird ausgedrückt durch $\gamma_l \ll \gamma_s$. Für $\gamma_l \rightarrow 0$ ergibt sich dann

$$A_l(z) = A_l^{harm}(z) = \frac{ig_l}{a_l} e^{-i\Delta k_l z} \quad (\text{A.30})$$

$$A_s(z) = A_s^{harm}(z) + \frac{i\gamma_s g_l^*}{g_s(a_s - a_l)} A_s^{harm}(z) + \frac{i\gamma_s}{a_s - a_l} A_l^{harm}(z) e^{-i\Delta k z}. \quad (\text{A.31})$$

Dieser Ausdruck enthält zwei Terme, die proportional zum Kopplungskoeffizienten γ_s sind. Sie sind das Resultat der Prozesskopplung über Kanal (c). Hierbei ist besonders der dritte Term interessant, da er von der Amplitude des Idlerfeldes, d.h. der niedrigen Harmonischen abhängt. Unter der Voraussetzung, dass die Idlerstrahlung keine Absorption erfährt und der Erzeugungsprozess phasenangepasst ist, also $a_l \rightarrow 0$ angenommen werden kann, lässt sich die Amplitude des Signalfeldes mit Gleichung A.27 als

$$A_s(z) \simeq \left(\frac{ig_s}{a_s} - \frac{\gamma_s g_l^*}{a_s^2} + \frac{\gamma_s g_l^* z}{a_s} \right) e^{-i\Delta k_s z} \quad (\text{A.32})$$

schreiben. Hierbei wurde in der Näherung $z > z_1 = 4/\alpha_s$ verwendet. Der dritte Term in der Klammer wirkt sich aus, wenn $z > z_2 = |g_s/\gamma_s g_l^*|$. Ab dieser Stelle ist die Signalintensität durch das Idlerfeld bestimmt und wächst mit der Medienlänge. Hier wirkt sich der Erzeugungsprozess der niedrigen Harmonischen direkt auf die Signalstrahlung aus. Die Beschränkung der Intensität $I_s(z)$ durch die Absorption gilt nicht mehr.

Ein anderer wichtiger Fall tritt auf, wenn die Rückwirkung des Signalfeldes nicht mehr vernachlässigt werden kann, also $\gamma_l \neq 0$, aber beide Prozesse (a) und (b) phasenangepasst sind ($\Delta k_l = \Delta k_s = 0$)

$$A_s(z) = \frac{ig_s}{G} e^{-\frac{\alpha_s z}{4}} \sinh(Gz) - \frac{g_l^*}{\gamma_l^*} J(z) \quad (\text{A.33})$$

$$A_l^*(z) = -\frac{ig_l^*}{G} e^{-\frac{\alpha_s z}{4}} \sinh(Gz) + \frac{ig_l^* \alpha_s / 2 - g_s \gamma_l^*}{\gamma^2} J(z), \quad (\text{A.34})$$

wobei die Funktion $J(z)$ gegeben ist durch

$$J(z) = 1 - e^{-\frac{\alpha_s z}{4}} \left[\cosh(Gz) + \frac{\alpha_s}{4G} \sinh(Gz) \right]. \quad (\text{A.35})$$

Der Verstärkungskoeffizient G ist hier

$$G = \sqrt{\frac{\alpha_s^2}{16} + \gamma^2}. \quad (\text{A.36})$$

Wenn die Absorption groß ist gegen die Prozessverstärkung, also $\frac{\alpha_s}{4} \gg |\gamma|$, kann die Wurzel entwickelt werden. Dadurch bekommt man für G den Ausdruck

$$G = \frac{\alpha_s}{4} + \frac{2\gamma^2}{\alpha_s}. \quad (\text{A.37})$$

Man erkennt, dass aufgrund der nichtlinearen Kopplung zwischen den Prozessen die Feldamplituden ab $z > z_3 = \frac{\alpha_s}{2\gamma^2}$ exponentiell anwachsen.

Für die so definierten Längen z_1, z_2, z_3 gilt

$$z_1 < z_2 < z_3. \quad (\text{A.38})$$

Der Bereich $z < z_2$ entspricht der gewöhnlichen Harmonischenerzeugung. Die nicht-lineare Kopplung zwischen den Harmonischen kann in diesem Regime vernachlässigt werden.

Die Bereiche $z_2 < z < z_3$ und $z > z_3$ zeigen einen linearen bzw. exponentiellen Anstieg der Signalamplituden. Dies ist auf die Kopplung der Kanäle (a) und (b) über Kanal (c) zurückzuführen. Hierbei erfahren die erzeugten Harmonischen eine selbstinduzierte Verstärkung.

Das Verhalten für kurze Wechselwirkungslängen ist in Abbildung A.2 zu sehen, mit den charakteristischen Längen z_1 und z_2 .

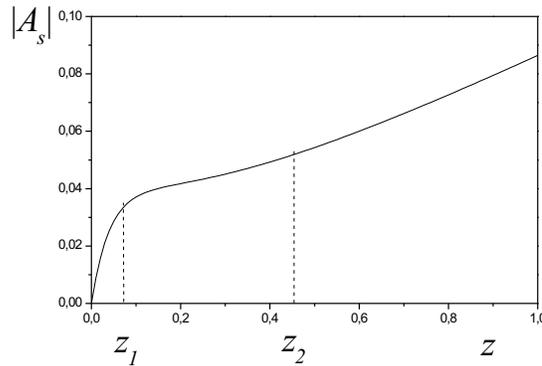


Abbildung A.2: Qualitative Abhängigkeit der Signalamplitude $|A_s|$ bei kurzer Medienlänge.

Abbildung A.3 zeigt die Signalamplitude für große Wechselwirkungslängen mit einem exponentiellen Anstieg für $z > z_3$. In dem Regime der selbstinduzierten Verstärkung wachsen die Felder mit der Medienlänge trotz der Absorption stark an.

Um einen solchen Mechanismus experimentell nachzuweisen, kann zum Beispiel die nichtlineare Kopplung zwischen der dritten und der fünften Harmonischen der Titan:Saphir-Laserstrahlung betrachtet werden. Als nichtlineares Medium hierfür käme Xenon in Frage, da dieses Medium eine große Polarisierbarkeit aufweist. Der Prozess $8\omega = 3\omega + 5\omega$ ist hierbei nah an der $5p - 6p$ -Resonanz und ist durch eine große nichtlineare Suszeptibilität ausgezeichnet. Eine hinreichend großer Wechselwirkungslänge kann zum Beispiel unter Verwendung von Kapillaren erfolgen.

Diese Ergebnisse sind in [C. Reinhardt 2000] veröffentlicht.

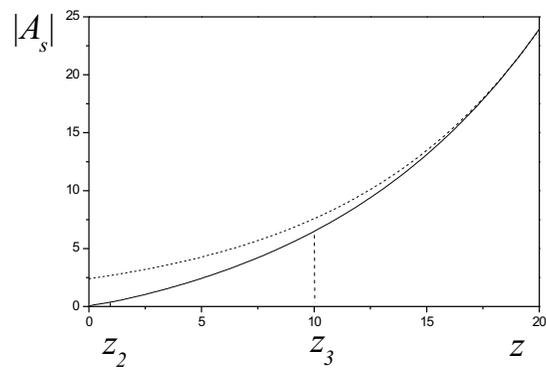


Abbildung A.3: Qualitatives Verhalten der Signalamplitude $|A_s|$ bei großer Medienlänge. In diesem Regime findet selbstinduzierte parametrische Verstärkung statt.

B Pulsdauer- und Bandbreite-Relationen

Im VUV- und XUV-Bereich ist es aufgrund fehlender nichtlinearer Korrelationstechniken nicht einfach möglich, direkt die Pulsdauer einer Harmonischen oder eines Mischsignals zu messen. Mit Streak-Kameras können zwar Auflösungen bis in den Subpicosekundenbereich erreicht werden, was aber für die Signale der in dieser Arbeit beschriebenen Experimente nicht ausreichend ist.

Daher soll eine Abschätzung der erreichbaren Pulsdauern und auch der möglichen spektralen Breite über bekannten Parameter der Pumpstrahlung am Beispiel der Harmonischerzeugung erfolgen. Zur Vereinfachung sein sowohl der zeitliche Intensitätsverlauf als auch die spektrale Verteilung als gaußförmig angenommen, d.h. für einen Puls der Dauer δt_ω bei der Frequenz ω gilt

$$I_\omega \sim e^{-4 \ln 2 \left(\frac{t^2}{t_\omega^2} \right)}. \quad (\text{B.1})$$

Für die spektrale Breite kann man weiterhin schreiben:

$$\frac{\delta \omega}{\omega} = \frac{\delta \nu}{\nu} = \frac{\delta \lambda}{\lambda}. \quad (\text{B.2})$$

Ist nun die Signalstärke der erzeugten q -ten Harmonischen proportional zu p -ten Potenz der Pumpstrahlung, also

$$I_{q\omega} \sim I_\omega^p \sim e^{-4 \ln 2 \left(\frac{t^2}{t_\omega^2} p \right)}, \quad (\text{B.3})$$

erhält man sofort einen Zusammenhang zwischen der Pulsdauer der Harmonischen und der Pumpstrahlung:

$$\delta t_{q\omega} = \frac{1}{p} \delta t_\omega. \quad (\text{B.4})$$

Im störungstheoretischen Grenzfall steigt die Signalintensität mit der Potenz der Prozessordnung und es ist dabei $p = q$.

Eine Aussage über die spektrale Breite der erzeugten Strahlung kann getroffen werden, wenn für die Pumpwelle und die Harmonische das gleiche Pulsdauer-Bandbreite-Produkt angenommen wird,

$$\delta t_\omega \delta \nu_\omega = \delta t_{q\omega} \delta \nu_{q\omega}, \quad (\text{B.5})$$

Teilt man diese Gleichung durch $\nu_{q\omega}$, erhält man unter Ausnutzung der Energieerhaltung für den betrachteten Prozess $\nu_{q\omega} = q\nu_\omega$

$$\delta t_\omega \frac{\delta \nu_\omega}{q\nu_\omega} = \delta t_{q\omega} \frac{\delta \nu_{q\omega}}{\nu_{q\omega}}. \quad (\text{B.6})$$

Mit B.2 und B.4 läßt sich dies umschreiben zu

$$\frac{1}{q} \frac{\delta \lambda_\omega}{\lambda_\omega} = \frac{1}{\sqrt{p}} \frac{\delta \lambda_{q\omega}}{\lambda_{q\omega}}. \quad (\text{B.7})$$

Zusammen mit $\lambda_{q\omega} = \frac{1}{q}\lambda_\omega$ ergibt sich für die spektrale Breite der erzeugten Strahlung bei bekannter Breite der Pumpstrahlung

$$\delta \lambda_{q\omega} = \frac{\sqrt{p}}{q^2} \delta \lambda_\omega. \quad (\text{B.8})$$

Für die dritte Harmonische erhält man so mit $p = q = 3$

$$\delta \lambda_{3\omega} = \frac{\sqrt{3}}{3^2} \delta \lambda_\omega, \quad (\text{B.9})$$

bzw. für die fünfte Harmonische mit $p = q = 5$

$$\delta \lambda_{5\omega} = \frac{\sqrt{5}}{5^2} \delta \lambda_\omega. \quad (\text{B.10})$$

C Berechnung nichtlinearer Suszeptibilitäten

Die Berechnung der nichtlinearen Suszeptibilitäten erfolgt über eine Störungsentwicklung der Schrödinger-Gleichung 2.6 oder der von-Neumann-Gleichung 2.7. Letztere kann dazu benutzt werden, resonante Anregungen unter Einbeziehung von Verbreiterungsprozessen (Stoßverbreiterung) der atomaren Resonanzen zu beschreiben. Da davon in dieser Arbeit kein gebrauch gemacht wird, soll im folgenden nur von der Schrödinger-Gleichung ausgegangen werden. Auf dieser Gleichung basierend wird eine graphische Methode benutzt, um die in den verschiedenen Prozessen auftretenden nichtlinearen Suszeptibilitäten zu berechnen. Der Einfachheit werden nur skalare Größen betrachtet.

Der Hamiltonoperator des Systems "Atom+Laserfeld" ist

$$H(t) = H_0 + V(t), \quad (\text{C.1})$$

mit dem Wechselwirkungsterm

$$V(t) \quad , \quad V(t) = 0 \quad \text{für } t < t_0 \quad (\text{C.2})$$

Die Zeitentwicklung im ungestörten Fall $t < t_0$ ist bestimmt durch die Schrödinger-Gleichung

$$i\hbar\partial_t|\psi^0, t \rangle = H_0|\psi^0, t \rangle, \quad (\text{C.3})$$

mit $|\psi, t \rangle = |\psi^0, t \rangle$ für $t \leq t_0$. Im Wechselwirkungsbild ist

$$|\psi, t \rangle_I = e^{-iH_0t/\hbar}|\psi, t \rangle, \quad (\text{C.4})$$

und

$$i\hbar\partial_t|\psi, t \rangle_I = V_I(t)|\psi, t \rangle_I, \quad (\text{C.5})$$

wobei der Wechselwirkungsoperator gegeben ist durch

$$V_I(t) = e^{iH_0t/\hbar}V(t)e^{-iH_0t/\hbar}. \quad (\text{C.6})$$

Die Integration von Gleichung C.9 gibt

$$|\psi, t \rangle_I = |\psi, t_0 \rangle + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt' V_I(t') |\psi, t' \rangle_I, \quad (\text{C.7})$$

woraus man durch Iteration die Neumann-Reihe erhält:

$$\begin{aligned} |\psi, t \rangle_I &= |\psi, t_0 \rangle \\ &+ \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt' V_I(t') |\psi, t_0 \rangle \\ &+ \frac{1}{(i\hbar)^2} \int_{t_0}^t dt' \int_{t_0}^{t'} dt'' V_I(t') V_I(t'') |\psi, t_0 \rangle \\ &+ \frac{1}{(i\hbar)^3} \int_{t_0}^t dt' \int_{t_0}^{t'} dt'' \int_{t_0}^{t''} dt''' V_I(t') V_I(t'') V_I(t''') |\psi, t_0 \rangle \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (\text{C.8})$$

Der Zeitentwicklungsoperator des System (von einem Zeitpunkt t_0 zu einem späteren Zeitpunkt $t > t_0$) ist

$$U(t, t_0) = T e^{\frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt' V_I(t')} |\psi, t' \rangle_I, \quad (\text{C.9})$$

oder nach der Entwicklung der e-Funktion

$$\begin{aligned} U(t, t_0) &= 1 \\ &+ \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt' V_I(t') \\ &+ \frac{1}{(i\hbar)^2} \int_{t_0}^t dt' \int_{t_0}^{t'} dt'' V_I(t') V_I(t'') \\ &+ \frac{1}{(i\hbar)^3} \int_{t_0}^t dt' \int_{t_0}^{t'} dt'' \int_{t_0}^{t''} dt''' V_I(t') V_I(t'') V_I(t''') \\ &+ \dots \end{aligned} \quad (\text{C.10})$$

Dabei gibt T die Zeitordnung vor. Das $n - te$ Glied U_n von U kann dann geschrieben werden als

$$U_n(t, t_0) = \frac{1}{(i\hbar)^n} \int_{t_0}^t dt' \dots \int_{t_0}^{t'^{(n-1)}} dt^{(n)} V_I(t') \dots V_I(t^{(n)}) \quad , \quad t \geq t' \geq t'' \dots \geq t^{(n)}. \quad (\text{C.11})$$

Der Erwartungswert des Zeitentwicklungsoperator zwischen einem Anfangszustand $|\psi_i \rangle = |i \rangle$ und einem Endzustand $|\psi_f \rangle = |f \rangle$ ist

$$\langle f | \psi, t \rangle = \langle f | U(t, t_0) | i \rangle e^{\frac{1}{i\hbar} E_i (t-t_0)} \langle f | U_I(t, t_0) | i \rangle, \quad (\text{C.12})$$

wobei E_i der Energieeigenwert des Zustandes $|i \rangle$ ist und $\langle f | U_I(t, t_0) | i \rangle$ als Propagator (Greensfunktion) des Systems bezeichnet wird.

Im ungestörten Fall ist der Propagator

$$\langle f | U_0(t, t_0) | i \rangle = e^{\frac{1}{i\hbar} E_i (t-t_0)} \delta_{fi} \quad (\text{C.13})$$

und wird als "bare" Propagator bezeichnet. Für ihn kann man als graphische Darstellung von C.13 einen Pfeil zwischen dem mit je einem Punkt gekennzeichneten Anfangs- ($|i \rangle$) und Endzustand ($|f \rangle$) zeichnen. Die Zeitachse zeigt dabei und in den folgenden Graphen immer nach oben.



Abbildung C.1: Graphische Darstellung des ungestörten Propagators $|i \rangle \rightarrow |f \rangle$ (Gleichung C.13).

Der gestörte (dressed) Propagator ist mit Gleichung C.9 bzw C.10

$$\langle f | U(t, t_0) | i \rangle = U_0 \sum_{n=0}^{\infty} \langle f | U_n(t, t_0) | i \rangle, \quad (\text{C.14})$$

mit $U_n(t, t_0)$ nach Gleichung C.11. Zusammen mit der Wechselwirkungsdarstellung der Operators $V_I = U_0^\dagger V U_0$ und dem ungestörten Zeitentwicklungsoperators $U_0 = e^{\frac{1}{i\hbar} E(t-t_0)}$ (E ist der Energieeigenwert des Zustandes, auf den U_0 wirkt) kann der Propagator n -ter Ordnung $\langle f|U_n(t, t_0)|i \rangle$ geschrieben werden als

$$\langle f|U_n(t, t_0)|i \rangle = e^{\frac{1}{i\hbar} E_i(t-t_0)} \frac{1}{(i\hbar)^n} \int_{t_0}^t dt' \dots \int_{t_0}^{t^{(n-1)}} dt^{(n)} \langle f|V_I(t') \dots V_I(t^{(n)})|i \rangle, \quad (\text{C.15})$$

oder

$$\begin{aligned} \langle f|U_n(t, t_0)|i \rangle &= e^{\frac{1}{i\hbar}(E_f t - E_i t)} \frac{1}{(i\hbar)^n} \int_{t_0}^t dt' \dots \int_{t_0}^{t^{(n-1)}} dt^{(n)} \\ &\quad \sum_{k,l,\dots,m} e^{i\omega_{fk}t'} V_{fk}(t') e^{i\omega_{kl}t''} V_{kl}(t'') \dots e^{i\omega_{mi}t^{(n)}} V_{mi}(t^{(n)}). \end{aligned} \quad (\text{C.16})$$

Dabei ist $\omega_{fi} = (E_f - E_i)/\hbar$ die Frequenz des Überganges $|i \rangle \rightarrow |f \rangle$ und $V_{fi}(t^{(n)}) = \langle f|V(t^{(n)})|i \rangle$ die Wechselwirkung mit dem Störpotential, das einen Zustand $|k \rangle$ vor der Wechselwirkung in einen Zustand $|l \rangle$ nach der Wechselwirkung überführt.

Graphisch kann der Propagator n -ter Ordnung dargestellt werden, wenn für jede Wechselwirkung $V_{kl}(t)$ ein Punkt oder Vertex gezeichnet wird und die Propagatoren $e^{i\omega_{kl}t} \delta_{kl}$ zwischen den einzelnen Vertices als Pfeile dargestellt werden. Dies ist in Abbildung C.2 für das Matrixelement $\langle f|U_2|i \rangle$ und $\langle f|U_n|i \rangle$ verdeutlicht.

Der gestörte Propagator kann so in eine Reihe entwickelt werden, wie in Abbildung C.3 dargestellt ist.

Damit ergibt sich ein eindeutiger Zusammenhang zwischen der graphischen Darstellung und der expliziten Berechnung. Für die Berechnung der Matrixelemente mit einem Laserfeld, genauer mit seinem elektrischen Anteil kann die Wechselwirkung spezifiziert werden durch

$$V(t) = -\mu F(t), \quad (\text{C.17})$$

wobei F das elektrische Feld repräsentiert, um eine Verwechslung mit den Energien E zu vermeiden. Das Feld F kann weiterhin in eine Fourier-Reihe nach einzelnen Frequenzkomponenten zerlegt werden

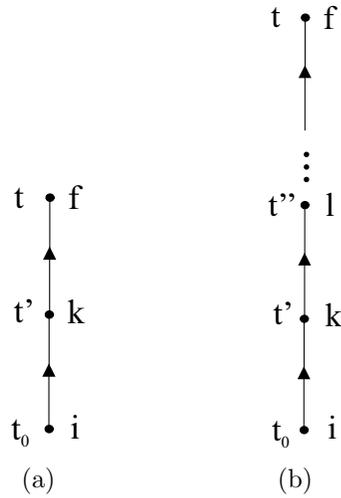


Abbildung C.2: Graphische Darstellung der Beiträge 2ter (a) und n-ter (b) Ordnung zum gestörten Propagators $|i\rangle \rightarrow |f\rangle$. (Gleichung C.16)

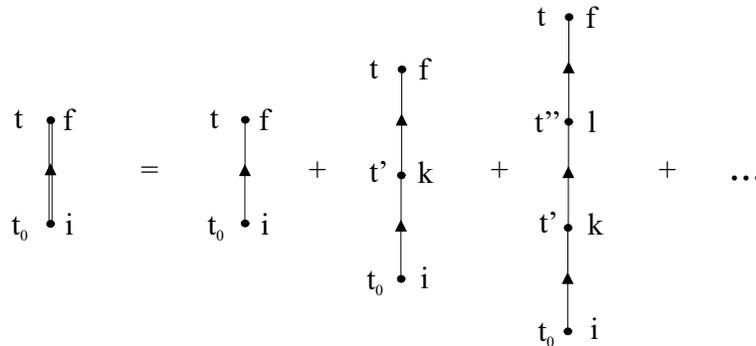


Abbildung C.3: Graphische Darstellung der Störungsreihe $|i\rangle \rightarrow |f\rangle$

$$F(t) = \sum_p (F(\omega_p)e^{i\omega_p t} + F^*(\omega_p)e^{-i\omega_p t}). \tag{C.18}$$

Damit lässt sich auch die Wechselwirkung mit mehreren Felder unterschiedlicher Frequenz (z. B. bei Summen- oder Differenzfrequenzmischung) darstellen. Die Gleichung C.16 wird damit zu

$$\begin{aligned}
 \langle f|U_n(t, t_0)|i \rangle &= e^{\frac{1}{i\hbar}(E_f t - E_i t)} \frac{1}{(i\hbar)^n} \int_{t_0}^t dt' \dots \int_{t_0}^{t'^{(n-1)}} dt^{(n)} \sum_{p,q..r} \sum_{k,l..m} \\
 &\quad e^{i\omega_{fk}t'} \mu_{fk} F(\omega_p) e^{i\omega_p t'} \quad e^{i\omega_{kl}t''} \mu_{kl} F(\omega_q) e^{i\omega_q t''} \\
 &\quad \dots \quad e^{i\omega_{mi}t^{(n)}} \mu_{mi} F(\omega_r) e^{i\omega_r t^{(n)}} + [\omega \rightarrow -\omega]. \quad (C.19)
 \end{aligned}$$

Der Erwartungswert des Dipoloperators $\langle f|\mu|i \rangle$ ergibt die Polarisation P . Mit

$$\begin{aligned}
 P(\omega) &= \sum_{p,q,\dots,r} \chi^{(1)} F(\omega_p) + \chi^{(2)} F(\omega_p) F(\omega_q) + \dots + \chi^{(n)} F(\omega_p) F(\omega_q) \dots F(\omega_r) \\
 &\quad + [Kombinationen \quad \omega \rightarrow -\omega] \quad (C.20)
 \end{aligned}$$

können so die Suszeptibilitäten n -ter Ordnung $\chi^{(n)}$ für einen Prozess, bei dem Frequenzen ω_1 bis ω_n eingestrahlt werden und ein Feld mit der Frequenz ω_m erzeugt wird geschrieben werden als

$$\begin{aligned}
 \chi^{(n)}(-\omega_m; \omega_1 \dots \omega_n) &= \frac{S_T}{\epsilon_0 n! \hbar^n} \sum_{g, b_1 \dots b_n} \rho(g) \\
 &\quad \frac{\langle g|\mu|b_1 \rangle \langle b_1|\mu|b_2 \rangle \dots \langle b_{n-1}|\mu|b_n \rangle}{(\Omega_{b_1 g} - \omega_1 \dots - \omega_n)(\Omega_{b_2 g} - \omega_2 \dots - \omega_n) \dots (\Omega_{b_n g} - \omega_n)} \quad (C.21)
 \end{aligned}$$

Mit den Übergangsfrequenzen $\Omega_{b_n g}$. Der Operator S_T erzeugt eine Summe über alle Permutationen der $n+1$ Felder und ρ_g gibt die relative Besetzung des Grundzustandes $|g \rangle$ in Bezug auf die angeregten Niveaus an. Für einen thermisch besetzten Grundzustand gilt $\rho = 1$. Die Summe ist dabei über alle Niveaus des Atoms zu erstrecken!

Graphisch ist der Summand in Abbildung C.4 dargestellt, siehe [D. C. Hanna 1979].

Dieses Diagramm kann wie folgt gelesen werden: Ausgehend vom Anfangszustand $|g \rangle$ erfolgt zunächst eine Wechselwirkung mit der Frequenzkomponente ω_n und ein Übergang zum Zustand $|b_n \rangle$. Der Vertex erhält dadurch den Faktor $\frac{1}{\hbar} \langle b_n|\mu|g \rangle$. Die anschließende Propagation erfolgt mit der Energiedifferenz $1/(\Omega_{b_n} - \omega_n)$. Am nächsten Vertex kommt es zur Wechselwirkung mit der Frequenzkomponente ω_{n-1} . Dieser bekommt den Faktor $\frac{1}{\hbar} \langle b_{n-1}|\mu|b_n \rangle$, und für die Propagation des Systems zu näch-

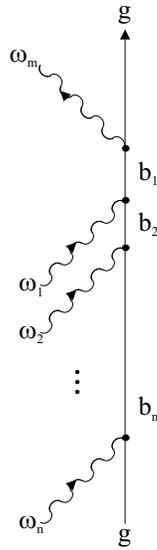


Abbildung C.4: Graphische Darstellung der Suszeptibilität n – ter Ordnung

sten Vertex $1/(\Omega_{b_{n-1}} - \omega_{n-1} - \omega_n)$, und so weiter, bis das System schließlich wieder im Grundzustand ist, was einen parametrischen Prozess auszeichnet.

Für die in dieser Arbeit auftretenden Prozesse sind die entsprechenden Diagramme und die daraus abgeleiteten Suszeptibilitäten in den folgenden Abschnitten aufgeführt.

C.1 Frequenzverdreifung

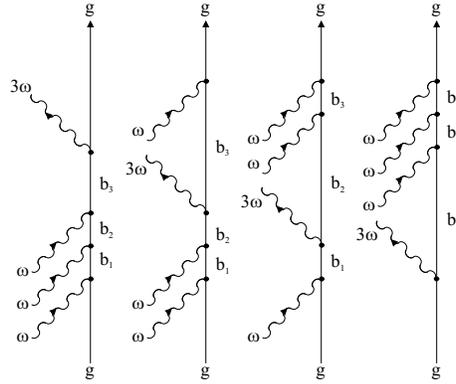


Abbildung C.5: Diagrammatische Darstellung der Erzeugung der dritten Harmonischen.

$$\begin{aligned}
 \chi^{(3)}(-3\omega, \omega, \omega, \omega) &= \frac{1}{3\varepsilon_0 \hbar^3} \sum_{b_1, b_2, b_3} \mu_{gb_1} \mu_{b_1 b_2} \mu_{b_2 b_3} \mu_{b_3 g} \quad (C.22) \\
 &\times \left[\frac{1}{(\Omega_{b_1 g} - 3\omega)(\Omega_{b_2 g} - 3\omega)(\Omega_{b_3 g} - \omega)} \right. \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_1 g} + \omega)(\Omega_{b_2 g} - 2\omega)(\Omega_{b_3 g} - \omega)} \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_1 g} + \omega)(\Omega_{b_2 g} + 2\omega)(\Omega_{b_3 g} - \omega)} \\
 &\left. + \frac{1}{(\Omega_{b_1 g} + \omega)(\Omega_{b_2 g} + 2\omega)(\Omega_{b_3 g} + 3\omega)} \right].
 \end{aligned}$$

C.2 Frequenzverfünffachung

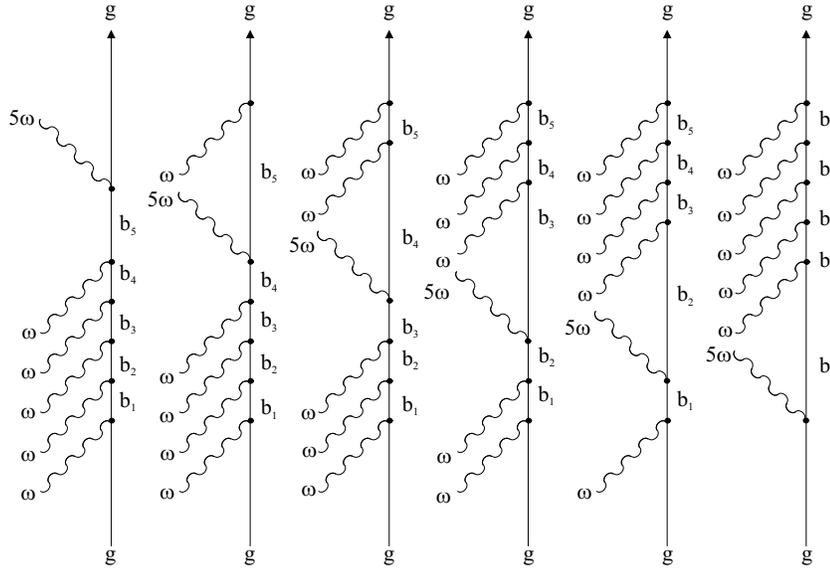


Abbildung C.6: Diagrammatische Darstellung der Erzeugung der fünften Harmonischen.

$$\begin{aligned}
 \chi^{(3)}(-5\omega, \omega, \omega, \omega, \omega, \omega) &= \frac{1}{5\varepsilon_0 \hbar^5} \sum_{b_1, b_2, b_3, b_4, b_5} \mu_{gb_1} \mu_{b_1 b_2} \mu_{b_2 b_3} \mu_{b_3 b_4} \mu_{b_4 b_5} \mu_{b_5 g} \quad (\text{C.23}) \\
 &\times \left[\frac{1}{(\Omega_{b_1 g} - 5\omega)(\Omega_{b_2 g} - 4\omega)(\Omega_{b_3 g} - 3\omega)(\Omega_{b_4 g} - 2\omega)(\Omega_{b_5 g} - \omega)} \right. \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_1 g} + \omega)(\Omega_{b_2 g} - 4\omega)(\Omega_{b_3 g} - 3\omega)(\Omega_{b_4 g} - 2\omega)(\Omega_{b_5 g} - \omega)} \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_1 g} + \omega)(\Omega_{b_2 g} + 2\omega)(\Omega_{b_3 g} - 3\omega)(\Omega_{b_4 g} - 2\omega)(\Omega_{b_5 g} - \omega)} \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_1 g} + \omega)(\Omega_{b_2 g} + 2\omega)(\Omega_{b_3 g} + 3\omega)(\Omega_{b_4 g} - 2\omega)(\Omega_{b_5 g} - \omega)} \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_1 g} + \omega)(\Omega_{b_2 g} + 2\omega)(\Omega_{b_3 g} + 3\omega)(\Omega_{b_4 g} + 4\omega)(\Omega_{b_5 g} - \omega)} \\
 &\left. + \frac{1}{(\Omega_{b_1 g} + \omega)(\Omega_{b_2 g} + 2\omega)(\Omega_{b_3 g} + 3\omega)(\Omega_{b_4 g} + 4\omega)(\Omega_{b_5 g} + 5\omega)} \right].
 \end{aligned}$$

C.3 Differenz- und Summenfrequenzmischung

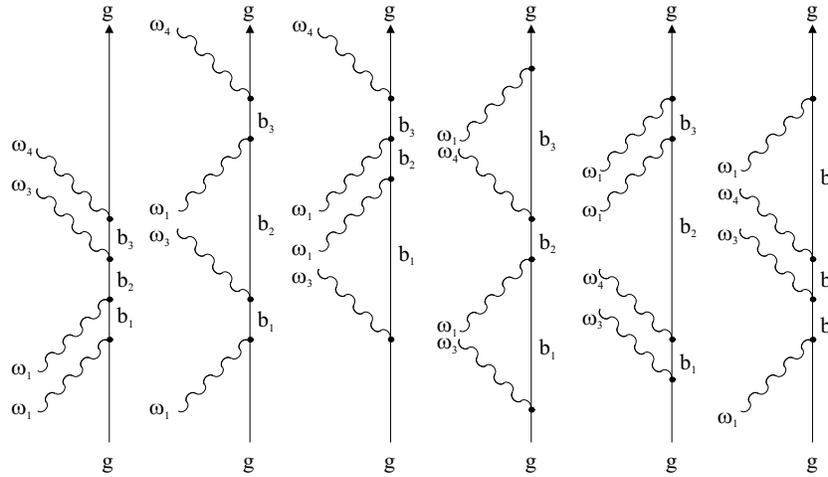


Abbildung C.7: Diagrammatische Darstellung der Differenz- und Summenfrequenzmischung ($\omega_3 \rightarrow -\omega_3$). Zusätzlich tauchen noch die Graphen mit $\omega_3 \leftrightarrow -\omega_4$ auf.

$$\begin{aligned}
 \chi^{(3)}(-\omega_4, \omega_1, \omega_1, -\omega_3) &= \frac{1}{3\varepsilon_0 \hbar^3} \sum_{b_1, b_2, b_3} \mu_{gb_1} \mu_{b_1 b_2} \mu_{b_2 b_3} \mu_{b_3 g} \quad (C.24) \\
 &\times \left[\frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} - \omega_4)(\Omega_{b_{2g}} - \omega_1 + \omega_3)(\Omega_{b_{3g}} + \omega_3)} + \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} - \omega_4)(\Omega_{b_{2g}} - 2\omega_1)(\Omega_{b_{3g}} - \omega_1)} \right. \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} - \omega_4)(\Omega_{b_{2g}} - \omega_1 + \omega_3)(\Omega_{b_{3g}} - \omega_1)} + \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} + \omega_1)(\Omega_{b_{2g}} - \omega_1 + \omega_3)(\Omega_{b_{3g}} + \omega_3)} \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} - \omega_3)(\Omega_{b_{2g}} - 2\omega_1)(\Omega_{b_{3g}} - \omega_1)} + \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} + \omega_1)(\Omega_{b_{2g}} - \omega_1 + \omega_3)(\Omega_{b_{3g}} - \omega_1)} \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} + \omega_1)(\Omega_{b_{2g}} + 2\omega_1)(\Omega_{b_{3g}} + \omega_3)} + \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} - \omega_3)(\Omega_{b_{2g}} + \omega_4 - \omega_1)(\Omega_{b_{3g}} - \omega_1)} \\
 &+ \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} + \omega_1)(\Omega_{b_{2g}} + \omega_4 - \omega_1)(\Omega_{b_{3g}} - \omega_1)} + \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} + \omega_1)(\Omega_{b_{2g}} + 2\omega_1)(\Omega_{b_{3g}} + \omega_4)} \\
 &\left. + \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} - \omega_3)(\Omega_{b_{2g}} + \omega_4 - \omega_1)(\Omega_{b_{3g}} + \omega_4)} + \frac{1}{(\Omega_{b_{1g}} + \omega_1)(\Omega_{b_{2g}} - \omega_1 + \omega_4)(\Omega_{b_{3g}} + \omega_4)} \right].
 \end{aligned}$$

Literaturverzeichnis

[filtertransmission] In: *www.llnl.gov*

[A. Bideau-Mehu 1981] A. BIDEAU-MEHU, R. Abjean A. Johannin-Gilles: Measurement of refractive indices of neon, argon, krypton, and xenon in the 253.7-140.4 nm wavelength range. Dispersion relations and estimated Oscillator strength of the resonance lines. In: *J. Quant. Spec. Radiat. Transfer* 25 (1981), S. 395

[A. M. Perelmov 1966] A. M. PERELMOV, M. V. T.: Ionization of atoms in an alternating electric field. In: *Sov. Phys. JETP* 23 (1966), S. 924

[A. V. Smith 1988] A. V. SMITH, G. R. H.: Optimization of two-photon-resonant four-wave mixing to 130.2 nm generation in mercury vapour. In: *J. Opt. Soc. Am B* 5 (1988), S. 1503

[B. Wellegehausen 1996a] B. WELLEGEHAUSEN, A. Egbert B. N. Chichkov-H. W.: In: *Appl. Phys. B* 63 (1996), S. 451

[B. Wellegehausen 1996b] B. WELLEGEHAUSEN, A. Egbert B. N. Chichkov-H. W.: Short-pulse high-intensity excimer lasers - A powerful tool for the generation of coherent VUV and XUV radiation. In: *Appl. Phys. B* 63 (1996), S. 451

[Bergmann und Schäfer 1993] BERGMANN, L. ; SCHÄFER, Cl.: *Lehrbuch der Experimentalphysik Band 3 Optik*. Walter de Gruyter, 1993

[Boyd 1992] BOYD, Robert W.: *Nonlinear optics*. Academic Press, Boston, 1992

[C. Dölle 2003] C. DÖLLE, P. Simon B. W.: Spectral phase matching for highly efficient frequency tripling of short-pulse KrF laser radiation in argon. In: *Appl. Phys B* 76 (2003), S. 891

- [C. Reinhardt 2000] C. REINHARDT, B. W.: Self-induced parametric amplification of high-order harmonics. In: *Opt. Lett.* 25 (2000), S. 1043
- [Castex 1981] CASTEX, M. C.: Experimental determination of the lowest excited Xe₂ molecular states from VUV absorption spectra. In: *Journal of Chemical Physics* 74 (1981), S. 759
- [Chang u. a. 1992] CHANG, W. F. ; COOPER, G. ; GUO, X. ; BURTON, G. R. ; BRION, C. E.: Absolute optical oscillator strengths for the electronic excitation of atoms at high resolution. III. The Photoabsorption of argon, krypton and xenon. In: *Physical Review A* 46 (1992), S. 149
- [Constant u. a. 1999] CONSTANT, E. ; GARZELLA, D. ; BREGER, P. ; MEVEL, E. ; DORROR, Ch. ; BLANC, C. le ; SALIN, F. ; AGOSTINI, P.: Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment. In: *Physical Review Letter* 82 (1999), S. 1668
- [Czarnetzki und Döbele 1991] CZARNETZKI, U. ; DÖBELE, H. F.: Generation of vacuum-ultraviolet radiation in H₂ by nonlinear optical processes near the EF- and B-state resonances. In: *Physical Review A* 44 (1991), Nr. 11, S. 7530
- [D. A. Kleinman 1966] D. A. KLEINMAN, R. C. M.: Dependence of second-harmonic generation on the position of the focus. In: *Physical Review* 148 (1966), S. 302
- [D. C. Hanna 1979] D. C. HANNA, D. C.: *Nonlinear Optics of Free Atoms and Molecules*. Springer Verlag, 1979
- [D. H. Glass 2000] D. H. GLASS, P. G. B.: Resonances in multiphoton ionization of helium at 248 nm. In: *Multiphoton Processes: ICOMP VIII*, Eds. L. F. DiMauro, R. R. Freeman, K. C. Kulander CP525 (2000), S. 211
- [D. Yoshitomi 2002] D. YOSHITOMI, T. Seikawa S. W.: Generation and focusing of submilliwatt-average-power 50 nm pulses by the fifth harmonic of a KrF laser. In: *Opt. Lett.* 27 (2002), S. 2170
- [Dölle Dissertation] DÖLLE, C.: *Frequenzverdreifachung von Subpikosekunden-KrF-Laserpulsen: Erzeugung und Charakterisierung leistungsstarker kohärenter Strahlung bei 82.2 nm*, Georg-August Universität zu Göttingen, 2003, Dissertation

- [Dölle u. a. 2002] DÖLLE, C. ; REINHARD, C. ; SIMON, P. ; WELLEGEHAUSEN, B.: Generation of 100 μ s pulses at 82.8nm by frequency tripling of sub-picosecond KrF laser radiation. In: *Applied Physics B* B75 (2002), S. 629
- [E. A. J. Marcatili 1964] E. A. J. MARCATILI, R. A. S.: Hollow metallic and dielectric waveguides for long distance optical transmission and lasers. In: *Bell System Tech. J.* 43 (1964), S. 1783
- [E. M. Gullikson 1996] E. M. GULLIKSON, L. R. Canfield R. E. W.: Stable silicon photodiodes for absolute energy measurements in the VUV and soft-x-ray regions. In: *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* 80 (1996), S. 313
- [E. S. Toma 1999] E. S. TOMA, A de Bohan H. G. M.: Resonance-enhanced high-harmonic generation. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys* 32 (1999), S. 5843
- [E. S. Toma 2000] E. S. TOMA, P. M. Paul P. Breger M. Cheret P. Agostini C. Le Blanc G. Mullot G. C.: Ponderomotive streaking of the ionization potential as a methode for measuring pulse durations in the XUV domain with fs resolution. In: *Physical Review A* 62 (2000), S. 061801(R)
- [Egbert 1999] EGBERT, A.: *Untersuchungen an laserproduzierten Plasmen zur Verwirklichung von Lasern im weichen Röntgenbereich*, Universität Hannover, Dissertation, 1999
- [Eichmann Dissertation] EICHMANN, H.: *Nichtlineare Optik mit einem Titan:Saphir-Hochleistungslaser - Experimente zur Erzeugung und Manipulation hoher Harmonischer*, Universität Hannover, 1996, Dissertation
- [Ferray u. a. 1988] FERRAY, M ; LT'HULLIER, A. ; LI, X. F. ; LOMPRES, L. A. ; MAINFRAY, G. ; MANUS, C.: Multiple-harmonic conversion of 1064nm radiation in rare gases. In: *Journal of Physics B* 21 (1988), S. L31
- [Feuerhake Dissertation] FEUERHAKE, M.: *Entwicklung spezieller Methoden für die Anwendung ultrakurzer UV-Laserpulse in der Materialforschung*, Georg-August Universität zu Göttingen, 1997, Dissertation
- [Frost 1994] FROST, U.: *Frequenzvervielfachung in laserproduzierten Plasmen*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1994

- [G. H. C. New 1967] G. H. C. NEW, J. F. W.: Optical third harmonic generation in gases. In: *Physical Review Letters* 19 (1967), S. 556
- [G. Hilber 1987] G. HILBER, R. W.: Broadly tunable vacuum-ultraviolet/extreme ultraviolet radiation generated by resonant third-order frequency conversion in krypton. In: *J. Opt. Soc. Am B* 4 (1987), S. 1753
- [G. V. Marr 1976] G. V. MARR, J. B. W.: Absolute photoionization cross-section tables for helium, neon, argon, and krypton in the VUV spectral regions. In: *Atomic Data Nucl. Data Tables* 18 (1976), S. 497
- [Giordmaine 1962] GIORDMAINE, J. A.: Mixing of light beams in crystals. In: *Physical Review Letters* 8 (1962), S. 19
- [Glownia u. a. 1994] GLOWNIA, J. H. ; GNASS, D. R. ; SOROKIN, P. P.: Observation of parametric amplification with a femtosecond vacuum-ultraviolet four-wave difference-frequency mixing source. In: *Journal of the optical society of Amerika B* 11 (1994), Nr. 12, S. 2427
- [H. Friedmann 1998] H. FRIEDMANN, A. D. Wilson-Gordon: Asymmetry in pulsed four-wave mixing. In: *Phys. Rev. A* 57 (1998), S. 4854
- [H. Xu 1992] H. XU, P. L.: In: *Physical Review A* 46 (1992), S. R2225
- [Hamamatsu Photonics K.K. 1999] Hamamatsu Photonics K.K. (Veranst.): *Hamamatsu Photomultiplier Tube R1259*. 1999
- [Hamamatsu Photonics K.K. 2002] Hamamatsu Photonics K.K. (Veranst.): *Hamamatsu Electron Multipliers*. 2002
- [Harris 1969] HARRIS, S. E.: Tunable optical parametric oscillators. In: *Proc IEEE* 57 (1969), S. 2096
- [J. A. Armstrong 1962] J. A. ARMSTRONG, J. Ducing P. S. P.: Interaction between light waves and a nonlinear dielectric. In: *Physical Review* 127 (1962), S. 1918
- [J. F. Hergott 2002] J. F. HERGOTT, H. Merdji C. Hubert Y. Mairesse E. Jean P. Breger P. Agostini B. Carre P. S.: Extreme-ultraviolet high-order harmonic pulses in the microjoule range. In: *Physical Review A* 66 (2002), S. 021801

- [J. F. Ward 1969] J. F. WARD, G. H. C. Y.: In: *Phys. Rev* 185 (1969), S. 57
- [J. H. Glowina 1993] J. H. GLOWNIA, M. Kaschke P. P. S.: Ultrafast pulse generation and spectroscopy. In: *Eds. T. R. Gosnell, A. J. Taylor Soc. Photo-Opt. Instr. Eng.* 1861 (1993), S. 176
- [J. J. Yeh 1985] J. J. YEH, I. L.: Atomic subshell photoionization cross section and asymmetry parameters: $1 < Z < 103$. In: *Atomic Data Nucl. Data Tables* 32 (1985), S. 1
- [J. Reintjes 1976] J. REINTJES, C. Y. She N. E. Karangelen R. C. Elton R. A. A.: Generation of coherent radiation at 53.2 nm by fifth harmonic conversion. In: *Physical Review Letters* 37 (1976), S. 1540
- [J. Reintjes 1977] J. REINTJES, R. C. Eckhardt N. E. Karangelen R. A. Andrews R. C. E.: Seventh harmonic conversion of mode-locked laser pulses to 38.0 nm. In: *Appl. Phys. Letters* 30 (1977), S. 480
- [Kleinman 1968] KLEINMAN, D. A.: Theory of optical parametric noise. In: *Physical Review* 174 (1968), S. 1027
- [Kneubühl und Sigrist 1995] KNEUBÜHL, Fritz K. ; SIGRIST, Markus W.: *Laser*. 4. Auflage. B. G. Teubner Stuttgart, 1995
- [L. Carrion 2000] L. CARRION, J. P. Girardeau-Montaut: Development of a simple model for optical parametric generation. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 17 (2000), S. 78
- [L. J. Zych 1978] L. J. ZYCH, J. F. Y.: In: *IEEE J. Quantum Electron.* QE-14 (1978), S. 147
- [Liu 1995] LIU, P.: *Erzeugung Leistungsstarker XUV-Strahlung durch Frequenzverdreifung von Kurzpulsstrahlung bei 248 nm*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1995
- [M. B. Gaarde 2001] M. B. GAARDE, K. J. S.: Enhancement of many high-order harmonics via a single multiphoton resonance. In: *Physical Review A* 64 (2001), S. 013820
- [M. L. Pons 1996] M. L. PONS, A. M.: Importance of population transfer in high-order harmonic-generation spectra. In: *Phys. Rev. A* 54 (1996), S. 3634

- [M. Plummer 2002] M. PLUMMER, C. J. N.: Resonant enhancement of harmonic generation in argon at 248 nm. In: *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys* 35 (2002), S. L51
- [McPherson u. a. 1987] MCPHERSON, A. ; GIBSON, G. ; JARA, H. ; JOHANN, U. ; LUK, T. S. ; MCINTYRE, I. A. ; BOYER, K. ; RHODES, C. K.: Studies of multiphoton production of vakuuum-ultraviolet radiation in the rare gases. In: *Journal of the Optical Society of Amerika B* 4 (1987), Nr. 4, S. 595
- [Meyer u. a. 1999] MEYER, S. ; CHICHKOV, B.N. ; WELLEGEHAUSEN, B.: High-order parametric amplifiers (HOPAs). In: *Journal of the optical society of Amerika B* 16 (1999), S. 1587
- [Meyer 2000] MEYER, Susanne: *PhasenangepaSSte Erzeugung hoher Harmonischer und parametrische Verstärkung*, Universität Hannover, Dissertation, 2000
- [Mills 1991] MILLS, D. L.: *Nonlinear Optics*. Springer Heidelberg, 1991
- [C. Figuera de Morisson Faria 2002] MORISSON FARIA, W. Becker J. M. R. C. Figuera de: Resonant enhancement of high-order harmonic generation. In: *Physical Review A* 65 (2002), S. 023404
- [Mossavi 1991] MOSSAVI, Kasem: *Zwei-Photonenanregung von Xenon durch einen KrF-Femtosekunden-Excimerlaser*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1991
- [Mossavi 1996] MOSSAVI, Kasem: *Nichtlineare Optik mit einem KrF-Femtosekundenlasersystem*, Universität Hannover, Dissertation, 1996
- [N. B. Delone 1991] N. B. DELONE, V. P. K.: Energy and angular electron spectra for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation. In: *J. Opt. Soc. Am B* 8 (1991), S. 1207
- [N. B. Delone 1999] N. B. DELONE, V. P. K.: *Multiphoton Processes in Atoms*. Springer Verlag, Berlin, 1999
- [Nolte 1995] NOLTE, Stefan: *Frequenzvervielfachung und Frequenzmischung bei hohen Laserintensitäten*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1995
- [O. Kittelmann 1996] O. KITTELMANN, A. Nazarkin G. Korn I. V. H.: Direct observation of coherent medium response under the condition of two-photon excitation of krypton by femtosecond uv-laser pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 76 (1996), S. 2682

- [P. A. Franken 1961] P. A. FRANKEN, C. W. Peters G. W.: Generation of optical Harmonics. In: *Physical Review Letters* 7 (1961), S. 118
- [P. D. Maker 1963] P. D. MAKER, C. M. S.: In Proceedings of the Third International Conference on Quantum Electronics, Paris. In: *Eds. P. Grivet, N. Bloembergen, Columbia University Press, New York* (1963)
- [P. D. Maker 1962] P. D. MAKER, M. Nisenoff C.M. S.: Effects of dispersion and focusing on the production of optical Harmonics. In: *Physical Review Letters* 8 (1962), S. 21
- [P. Mulser] P. MULSER, R. Sauerbrey B. W.: Ponderomotive Potential and Dynamical Stark Shift in Multiphoton Ionization. In: *preprint*
- [R. B. Miles 1973] R. B. MILES, S. E. H.: In: *IEEE J. Quantum Electronics* QE-9 (1973), S. 470
- [R. L. Byer 1968] R. L. BYER, S. E. H.: Power and bandwidth of spontaneous parametric emission. In: *Phys. Rev.* 168 (1968), S. 1064
- [R. Rosmann 1988] R. ROSMANN, K. Boyer H. Jara T.S. Luk I. A. McIntyre A. McPherson J. C. Solem C. K. R.: Fifth-harmonic production in neon and argon with picosecond 248 nm radiation. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 5 (1988), S. 1237
- [R. Taieb 2003] R. TAIEB, J. Wassaf A. M.: Roles of resonances in strong-field atomic phenomena. II. High-order harmonic generation. In: *Physical Review A* 68 (2003), S. 033403
- [Raizer 1966] RAIZER, Y. P.: Breakdown and heating of gases under the influence of a laser beam. In: *Sov. Phys. Usp* 8 (1966), S. 650
- [Raymond u. a. 1984] RAYMOND, T. D. ; BÖWERING, N. ; KUO, Chien-Yu ; KETO, J. W.: Two-Photon laser spectroscopy of xenon collision pairs. In: *Physical Review A* 29 (1984), Nr. 2, S. 721
- [Reinhardt u. a. 2004] REINHARDT, C. ; RÜHL, A. ; CHICHKOV, B. ; WELLEGEHAUSEN, B.: Parametric amplification and harmonic generation in the VUV and XUV. In: *Appl. Phys. B* 78 (2004), S. 841

- [Reintjes 1984] REINTJES, J. F.: *Nonlinear optical Parametric Processes in Liquids and Gases*. Academoc Press, London, 1984
- [Rhodes 1979] RHODES, C. K.: *Excimer Lasers, Topics in Applied Physics Vol. 30*. Springer Verlag, 1979
- [S. G. Preston 1996] S. G. PRESTON, M. Zepf W. J. Blyth C. G. Smith J. S. Wark M. H. Key K. Burnett M. Nakai D. Neely A. A. O.: High-order harmonics of 248.6 nm KrF laser from helium and neon ions. In: *Physical Review A* 53 (1996), S. R31
- [S. Kubodera 1993] S. KUBODERA, Y. Akiyama K. Midorikawa M. Obara H. Tashiro K. T.: High-order harmonic generation in laser produced ions. In: *Phys. Rev, A* 48 (1993), S. 4576
- [S. Meyer 2000] S. MEYER, B. Wellegehausen A. S.: Phase-matched high-order harmonic generation and parametric amplification. In: *Phys. Rev. A* 61 (2000), S. 063811
- [S. P. Le Blanc 1995] S. P. LE BLANC, R. S.: Generation of femtosecond vacuum-ultraviolet pulses. In: *Appl. Phys. B* 60 (1995), S. 151
- [Samson 1967] SAMSON, J. A. R.: *Techniques of vacuum ultraviolet spectroscopy*. John Wiley, 1967
- [Shen 1984] SHEN, Y. R.: *The principles of nonlinear optics*. Wiley and Sons, New York, 1984
- [Siegmann 1990] SIEGMANN, A. E.: New developements in laser resonators. In: *SPIE* 1224 (1990), S. 2
- [Smith 1985] SMITH, A. V.: Four-photon resonant third harmonic generation in Hg. In: *Optics Letters* 10 (1985), S. 341
- [Stöbel 1993] STÖSSEL, W.: *Fourieroptik: Eine Einführung*. Springer Verlag Berlin, 1993
- [Szatmari und Schäfer 1988] SZATMARI, S. ; SCHÄFER, F. P.: Simplified laser system for the generation of 60fs pulses at 248nm. In: *Optical Community* 68 (1988), Nr. 3, S. 196

- [Szatmari und Schäfer 1994] SZATMARI, S. ; SCHÄFER, F.P.: High brightness ultraviolet excimer lasers. In: *Applied Physics B* B58 (1994), Nr. 3, S. 211
- [Tang 1968] TANG, T. G. Giallorenzi C. L.: Quantum theory of spontaneous parametric scattering of intense light. In: *Physical Review* 166 (1968), S. 225
- [Tünnermann u. a. 1992] TÜNNERMANN, A. ; MOSSAVI, K. ; WELLEGEHAUSEN, B.: Nonlinear-optical processes in the near-resonant two-photon excitation of xenon by femtosecond KrF-excimer-laser pulses. In: *Physical Review A* 46 (1992), Nr. 5, S. 2707
- [V. Tosa 2003] V. TOSA, Y. Nabekawa K. M.: Generation of high-order Harmonics in a self-guided beam. In: *Physical Review A* 67 (2003), S. 063817
- [W. H. Louisell 1961] W. H. LOUISELL, A. E. S.: Quantum fluctuations and noise in parametric processes. I. In: *Phys. Rev.* 124 (1961), S. 1646
- [Wang 1965] WANG, C. C.: In: *Appl. Phys. Letters* 8 (1965), S. 169
- [Y. Hirakawa 1997] Y. HIRAKAWA, M. Meada K. M.: Coherent extreme-ultraviolet generation by frequency tripling of an ArF laser. In: *J. Opt. Soc. Am B* 14 (1997), S. 1029

Lebenslauf

Persönliche Daten

Carsten Reinhardt
geboren am 08.03.1972 in Gronau/Leine
Eltern: Kurt Reinhardt
Waldtraut Reinhardt, geb. Ryll

Schulbildung

1978 - 1982	Grundschule in Alfeld/Leine
1982 - 1984	Orientierungsstufe in Alfeld/Leine
1984 - 1988	Realschule Alfeld,
1988 - 1991	Gymnasium Alfeld, Abschluss: Abitur

Wehrdienst

10/1991-09/1992	Panzerartillerie Stadtoldendorf
-----------------	---------------------------------

Hochschulbildung

1992 - 1998	Studium der Physik an der Universität Hannover
03/1998	Abschluss des Studiums als Diplom-Physiker
04/1998 - 09/2000	Stipendiat im Graduiertenkolleg „Photonen, atomare Teilchen und deren Wechselwirkungen“ im Fachbereich Physik der Universität Hannover
10/2000 - 02/2004	Wissenschaftlicher Mitarbeiter im Institut für Quantenoptik der Universität Hannover
seit 07/2004	wissenschaftlicher Mitarbeiter am Laser Zentrum Hannover e.V.

Eigene Veröffentlichungen

B. N. Chichkov, A. Egbert, S. Meyer, C. Reinhardt, D. M. Simanovskii, B. Wellegehausen:
Coherent soft x-ray radiation with femtosecond lasers
Inst. Phys Conf. Ser. No 159, p 263, 1998

S. Meyer, C. Reinhardt, A. Egbert, C. Ziener, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen, F. Albert,
A. Carillon, P. Jaegle, A. Klisnick, J. C. Lagron, D. Ros, P. Zeitoun, G. Jamelot:
Investigations towards the realization of an innershell x-ray laser in Na
Inst. Phys Conf. Ser. No 159, p 313, 1998

C. Reinhardt, M. Born, A. Egbert, B. N. Chichkov, G. Veres, B. Wellegehausen:
Soft x-ray lasing with lithium ions?
J. Phys. IV France 11, Pr2-201, 2001

C. Dölle, C. Reinhardt, P. Simon, B. Wellegehausen:
Generation of 100 μJ pulses at 82.8 nm by frequency tripling
of sub-picosecond KrF laser radiation
Appl. Phys. B 75, p 629, 2003

C. Dölle, C. Reinhardt, P. Simon, B. Wellegehausen:
Spectral phase matching for highly efficient frequency tripling
of short-pulse KrF laser radiation in Argon
Appl. Phys. B 76, p 891, 2003

C. Reinhardt, A. Rühl, B. N. Chichkov, B. Wellegehausen:
Parametric amplification and harmonic generation in the VUV and XUV
Appl. Phys. B 78, p 841, 2004

Danksagung

Die Arbeit wurde auf Anregung von Herrn Prof. Dr. Bernd Wellegehausen und Herrn Prof. Dr. Boris Chichkov am Institut für Quantenoptik der Universität Hannover angefertigt. Teilergebnisse wurde bereits vor der Fertigstellung der Arbeit veröffentlicht ([Dölle u. a. 2002], [C. Dölle 2003], [C. Reinhardt 2000], [Reinhardt u. a. 2004]).

Herrn Prof. Dr. E. Tiemann, Herrn Prof. Dr. W. Ertmer und Herrn Prof. Dr. B. Wellegehausen danke ich für die Möglichkeit, diese Arbeit am Institut für Quantenoptik durchgeführt haben zu können.

Und ein ganz besonderes, persönliches Dankeschön geht an...

...Prof. Dr. Bernd Wellegehausen für die Betreuung dieser Arbeit, die zahlreichen Anregungen, die interessanten Diskussionen und alles, was ich in der Zeit von ihm lernen konnte.

...Prof. Dr. Boris Chichkov für die theoretisch fruchtbaren Gespräche, das Interesse an der Arbeit, auch nachdem er das Institut verlassen hatte und die vielen Ideen und die weitere Perspektiven.

...Dr. M. Klug für viele hilfreiche Gespräche.

...meinen ehemaligen Diplomanden Dipl. Phys. Axel Rühl für das perfekte Gelingen der Experimente (...eine handvoll Stabilität ersetzt einen Sack Schrauben!). Auf daß es immer weiter geht!

...meine ehemalige Diplomandin Dipl. Phys. Marina Tomachpolskaja für ihre hervorragende Arbeit.

...alle Mitarbeiter der Arbeitsgruppe "Kurzweilige Laser". In erster Instanz stehen für das gute Arbeitsklima gerade: Dr. S. Meyer, Dr. A. Egbert, Dr. U. Hinze, Dr. H. Eichmann, Dipl. Phys. M. Born, Dipl. Phys. L. Meier, Dipl. Phys. B. Mader, Dipl. Phys. K. Schulze, Dipl. Phys. M. D. Timu, Dipl. Phys. S. Vagt, Dipl. Phys. L. Koch, Dipl. Phys. S. Passinger, Dipl. Phys. C. Marina.

Sollte ich jemanden vergessen haben, so hat er sich schon selbst gedankt. Es gibt Sachen,

die relativieren sich mit der Zeit, und man lernt, wie Dinge zu interpretieren sind.

...meine Freunde. (Miles and more ...)

...DIE Werkstatt: Leo "V2A" Heidekrüger, Friedel "mikro" Witzlau, Matthias "CNC" Scholz und Rolf "darf's auch ein Loch mehr sein" Dohm, sowie alle AZUBI's.

...Dr. Rudi Gaul und alle anderen guten Geister im Haus.

...Susanne.

...meinen Vater.

...meine Mutter. Ich hoffe, daß Du Deinen Frieden gefunden hast (†10.03.2000).

Hiermit versichere ich, die vorliegende Arbeit mit den angegebenen Hilfsmitteln selbstständig angefertigt zu haben.

Hannover im April 2005