Einfluss der relativistischen Plasmadynamik auf die zeitlich-spektrale Struktur von Oberflächenharmonischen

Inaugural-Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades der Mathematisch-Naturwissenschaftichen Fakultät der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

Chainsif Ginn

HEINRICH HEINE UNIVERSITÄT DÜSSELDORF

vorgelegt von: Michael Behmke aus Putzig, Polen

Düsseldorf, Juni 2011

Aus dem Institut für Laser- und Plasmaphysik der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

Gedruckt mit der Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

Referent: Prof. Dr. Georg Pretzler Koreferent: Prof. Dr. Alexander Pukhov

Tag der mündlichen Prüfung: 30.06.2011

III

 \mathbf{IV}

Zusammenfassung

Die Erzeugung von Oberflächenharmonischen an überdichten Plasmaoberflächen ist eine vielversprechende Möglichkeit zur Herstellung von energiereichen Attosekundenpulsen. Dabei wird beim Auftreffen eines intensiven Laserpulses auf eine Festkörperoberfläche eine dünne Plasmaschicht erzeugt. Nichtlineare Oszillationen an der Vakuum-Plasma-Grenzfläche führen zur Emission von extrem kurzen XUV-Pulsen.

In dieser Arbeit wird die zeitlich-spektrale Struktur von Attosekundenpulszügen im relativistischen Regime untersucht. Dafür wurde zunächst die zeitliche Kohärenz von Oberflächenharmonischen mit einem interferometrischen Aufbau gemessen. Der Vergleich mit einer Autokorrelation zweiter Ordnung zeigt, dass der emittierte XUV-Pulszug bedeutend länger ist als die Kohärenzzeit. Die Kombination aus beiden Messungen liefert den Nachweis, dass die zeitliche Phase von Oberflächenharmonischen nicht konstant ist.

Weitergehend wird in dieser Arbeit gezeigt, dass man die zeitliche Phase des Attosekundenpulszuges im relativistischen Bereich entscheidend durch die Steuerung der Vorplasmabedingungen verändern kann. Dafür wurde die Bildung des Vorplasmas durch Variation des Kontrastes gesteuert, indem ein Plasmaspiegel mit unterschiedlichen Targets verwendet wurde. Auf diese Weise konnte der ursprüngliche Kontrast schrittweise um drei Größenordnungen verbessert und damit die Skalenlänge des Plasmas gezielt beeinflusst werden. Abhängig vom Kontrast zeigen die aufgenommenen Spektren deutliche Unterschiede in Bezug auf die Einhüllende und die Struktur der Harmonischen. Diese Beobachtung wird durch ein Modell erklärt und mit PIC-Simulationen untermauert. Demnach führt die Eindrückung der Plasmaoberfläche zu einem ungleichen Abstand der einzelnen Attosekundenpulsen und dadurch zu einer modulierten Struktur und einem Chirp der Harmonischen. Die positive Chirp relativistischer Harmonischer wurde auf diese Weise erstmals experimentell nachgewiesen.

Die Modulationen enthalten Informationen über die Bewegung der Oberfläche und bieten so die Möglichkeit zur Diagnostik der Plasmadynamik. Zudem erlaubt die gute Übereinstimmung zwischen Experiment und Simulation Rückschlüsse auf den Pulsverlauf der emittierten Strahlung. Es zeigt sich dabei, dass die Skalenlänge einen starken Einfluss auf den zeitlichen Feldverlauf einzelner XUV-Pulse hat. Die präsentierte Arbeit stellt einen Schritt zur praktischen Kontrolle der spektralen und zeitlichen Eigenschaften von Attosekundenpulszügen im relativistischen Regime dar.

VI

Abstract

High Harmonic Generation from overdense plasma surfaces (SHHG) is a promising way to get high-energy attosecond pulses. In this scheme an intense ultrashort laser hits a solid surface and a thin plasma is generated. Non-linear oscillations at the vacuum-plasmainterface lead to the emission of extremely short XUV-pulses.

This thesis provides an investigation of the spectral and temporal properties of attosecond pulse trains in the relativistic regime. First, the temporal coherence of surface harmonics has been measured with an interferometric setup. A comparison with a 2nd order autocorrelation measurement shows that the XUV-pulse train is significantly longer than the coherence time. The combination of both methods proofs that the temporal phase of surface harmonics is not flat.

Going one step further it was demonstrated that the temporal phase of attosecond pulse trains can be controlled on a subfemtosecond scale by variation of the preplasma conditions. In order to change the preplasma formation we modified the contrast of the laser pulse by using the plasma mirror with different target surfaces. This method enables a systematic stepwise improvement of the original contrast up to three orders of magnitude and therefore a variation of the preplasma scale length. Depending on the contrast the recorded spectra show significant differences in shape and envelope. This observation can be explained by an analytical model, substantiated by numerical simulations. According to this analysis, the modulations in the spectrum are caused by the cycle-averaged motion of the electron plasma surface during the laser impact. It is leading to an unequal spacing between the single spikes in the attosecond pulse train, which is equivalent to a harmonic chirp. The work provides the first experimental evidence for such a positive chirp of relativistic harmonics.

The modulations contain information on the cycle-averaged motion of the plasma surface on femtosecond timescale and can be used to diagnose the surface motion. In addition, the good agreement between the experiment and the simulation allows the inference on the temporal shape of the emitted radiation. This shows that the scale length has a huge impact on the individual attosecond pulses. In case of a moderate scale length it is leading to half-cycle pulses with intrinsic attosecond pulse duration. The study is a step towards controlling the spectral and temporal properties of attosecond pulse trains through carefully engineered interaction conditions.

VIII

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung

2	Las	er und	Oberflächenplasmen - eine Einführung	7			
	2.1	Grund	lagen der Laser-Plasma-Wechselwirkung	8			
		2.1.1	Freie Elektronen im relativistischen Laserfeld	8			
		2.1.2	Ionisationsprozesse	11			
		2.1.3	Licht und Plasma	14			
		2.1.4	Lasererzeugte Festkörperplasmen	16			
			2.1.4.1 Plasma-Expansion	16			
			2.1.4.2 Absorption von Licht an der Plasmaoberfläche	18			
			2.1.4.3 Resümee	22			
	2.2	Erzeug	gung extrem kurzer XUV-Pulse von Oberflächenplasmen	22			
		2.2.1	Coherent Wake Emission	23			
		2.2.2	Relativistische Oberflächenharmonische $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	28			
3	Laserquelle 3'						
	3.1	Lasers	ystem	38			
	3.2	Kontro	olle des Kontrastes mit einem Plasmaspiegel	41			
4	Vor	plasma	a-Abhängigkeit der SHHG	45			
	4.1	Experi	iment	46			
		4.1.1	Steuerung des Vorplasmas	48			
		4.1.2	Optische Justage und Fokusdiagnostik	49			
		4.1.3	Spektrometer	52			
	4.2	Aufgei	hoommene Spektren	55			

3

INHALTSVERZEICHNIS

4.3 Relativistischer Chirp der Harmonischen							
		4.3.1 Spektrale Feinstruktur	61				
		4.3.2 Experimenteller Nachweis	66				
		4.3.3 Zeitlicher Verlauf der Attosekundenpulszüge	71				
	4.4	Perspektiven	72				
5	Zeitliche Kohärenz von Oberflächenharmonischen						
	5.1	Interferometrische Messung der zeitlichen Kohärenz	77				
	5.2	Experimentelle Ergebnisse	80				
		5.2.1 Bedingungen	80				
		5.2.2 Räumliche Strukturen	81				
		5.2.3 Zeitliche Kohärenz	82				
	5.3	Kohärenzzeit versus Pulszugdauer	86				
	5.4	Perspektive	90				
6	Zus	Jusammenfassung					
A	Charakterisierung des Spektrometers						
	A.1	Spektrale Effizienz des Spektrometers	95				
	A.2	Spektrale Kalibrierung	99				
\mathbf{Li}^{\prime}	Literaturverzeichnis 10						

2

Kapitel 1

Einleitung

Durch die Verwendung von Zeitlupenkameras werden bei Sportereignissen Bewegungen sichtbar gemacht, die dem menschlichen Auge ansonsten verborgen blieben. Der Aufprall eines Fußballs dauert zum Beispiel weniger als eine Hundertstel Sekunde und kann deshalb vom Menschen nicht im Detail wahrgenommen werden, weil der Seheindruck nur schrittweise in der fünffachen Zeit verarbeitet wird [111]. Die umfassende Dynamik kann erst sichtbar gemacht werden, wenn die Detektions-Zeitauflösung kürzer als der relevante Prozess ist. Ähnlich verhält es sich bei der Visualisierung der Dynamik von atomaren Prozessen, die allerdings um das Billionenfache schneller ablaufen und deshalb nur mit Hilfe von extrem kurzen elektromagnetischen Pulsen zeitaufgelöst untersucht werden können. So kann man beispielsweise den Entstehungsprozess von chemischen Bindungen anhand von kurzen Laserpulsen, die eine Dauer von wenigen Femtosekunden (1 fs $= 10^{-15}$ s) haben, zeitlich auflösen [123]. Für die Untersuchung der Elektronendynamik im Orbit von Atomen benötigt man sogar Lichtpulse mit einer Dauer von einigen Attosekunden $(1 \text{ as } = 10^{-18} \text{ s})$. Derart kurze Pulse kann man mit konventionellen Lasern nicht erzeugen, da die Periodendauer des sichtbaren Lichtes mit einigen Femtosekunden zu lang ist. Notwendig sind hier deshalb Pulse im XUV-Spektralbereich.

Kurzpulslaser dienen jedoch als Basis für die Erzeugung von Attosekundenpulsen, indem man ihre nichtlineare Wechselwirkung mit Materie als Zwischenschritt ausnutzt [61]. Üblicherweise wird die Wechselwirkung eines Laserpulses moderater Intensität mit Edelgasatomen verwendet. Dabei werden die Elektronen durch das elektrische Feld des Lasers vom Atom entfernt und im Laserfeld beschleunigt. Bei der Rückkehr zum Mutteratom geben die Elektronen die im Feld gewonnene Energie in Form hochfrequenter Strahlung ab. Da dieser Prozess nicht zufällig, sondern in Phase mit dem treibenden Laser geschieht, kann sich die emittierte Strahlung kohärent überlagern. Dabei werden Vielfache der Laserfrequenz erzeugt, die im Zeitbereich aus Attosekundenpulsen bestehen [1, 47, 79]. Die Weiterentwicklung dieser Methode hat dazu geführt, dass es aktuell möglich ist, einzelne Strahlungspulse mit einer Dauer von 80 as zu erzeugen [97, 44]. Unter Verwendung von "Gas-Harmonischen" ist es inzwischen gelungen, die Elektronendynamik innerhalb von Atomen [30, 116] und Festkörpern [21] in ersten Experimenten zeitaufgelöst zu untersuchen. Trotz bahnbrechender Ergebnisse für das Verständnis der Dynamik auf atomarer Ebene besitzen diese Gas-Harmonischen den entscheidenden Nachteil, dass ihre Pulsenergie stark beschränkt ist. Der Erzeugungsprozess bricht bei größeren Laserintensitäten ($I \gtrsim 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$) zusammen, da die Materie dann zu schnell vom Laserfeld ionisiert wird, woraufhin die nötige Phasenanpassung dann nicht mehr möglich ist und der Prozess zum Erliegen kommt [92, 25, 102].

Diese Beschränkung kann man überwinden, indem man bereits ionisierte Materie zur Erzeugung der Attosekundenpulse verwendet und so die Wechselwirkung eines hochintensiven Laserpulses mit einer überdichten Plasmaschicht ausnutzt (siehe Abb.: 1.0.1). Dabei werden durch das elektromagnetische Feld des Laserpulses kollektive, nichtlineare Oszillationen an der Vakuum-Plasma-Grenzschicht angeregt. Diese finden in Phase mit dem treibenden Laser statt und führen zur zeitlich begrenzten Emission von hohen Frequenzkomponenten. Im Spektrum sind aufgrund der zyklischen Wiederholung und kohärenten Überlagerung wiederum Vielfache der Laserfrequenz zu sehen. Man spricht dabei von der Oberflächenharmonischen-Erzeugung oder der Surface High Harmonic Generation (SHHG).

Die erste experimentelle Beobachtung von Oberflächenharmonischen geht bis in die 80er Jahre zurück [18, 19]. Seitdem wurden diese Harmonischen in diversen Experimenten mit unterschiedlichen Lasersystemen erzeugt [119, 60, 104, 107, 84]. Allerdings wurde dabei die maximale Frequenz der Harmonischen durch die Elektronendichte des Plasmas begrenzt, so dass diese nur bedingt für die Erzeugung von Attosekundenpulsen verwendet werden können. Die Oberflächenharmonischen sind indes verstärkt in den Fokus des Interesses gerückt, seit die Herstellung relativistischer Intensitäten ($I > 10^{18} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$) durch technische Fortschritte praktikabel wurde und die effektive Erzeugung von Attosekundenpulsen im relativistischen Regime in Simulationen vorhergesagt werden konnte [8, 39, 38, 112].

Die Frequenzlimitierung wird überwunden, indem die Elektronen an der Plasmaoberfläche durch das Laserfeld auf relativistische Geschwindigkeiten beschleunigt werden. Eine anschauliche Beschreibung des Erzeugungsprozesses liefert die Reflektion des Laserpulses an einer Vakuum-Plasma-Grenzschicht, die mit relativistischen Geschwindigkeiten oszil-



Abbildung 1.0.1: Die Erzeugung extrem kurzer XUV-Pulsen von Festkörperoberflächen findet in zwei Schritten statt. Zunächst wird durch die ansteigende Flanke des Laserpulses eine Plasmaschicht erzeugt. Anschließend werden durch das elektrische Feld des Hauptpulses an der Plasmaoberfläche kollektive Oszillationen angeregt. Diese sind an die Phase des Lasers gekoppelt und führen zur zeitlich begrenzten Emission hoher Frequenzen. Durch Herausfiltern der hochfrequenten Anteile erhält man einen Zug aus extrem kurzen XUV-Pulsen.

liert. Üblicherweise wird dieses Modell als *Relativistic Oscillating Mirror (ROM)* bezeichnet [16, 65, 9]. Nach diesem Modell skaliert die Einhüllende des Spektrums und die maximale Frequenz stark mit der Intensität des Lasers. Aus der Skalierung ergibt sich die Möglichkeit der Erzeugung von extrem kurzen und intensiven Pulsen [43]. Nach der ersten experimentellen Beobachtung relativistischer Hamonischer [77] wurden die theoretischen Aussagen zur Skalierung der Einhüllenden und der maximalen Frequenz in weitergehenden Messungen bestätigt [34, 32]. Damit ist - zumindest im Prinzip - das Tor zur Erzeugung intensiver as-Pulse geöffnet worden.

Die vorliegende Arbeit liefert neue Erkenntnisse auf diesem zukunftsträchtigen Gebiet, indem gezeigt wird, dass man durch gezielte Veränderung der experimentellen Bedingungen die Erzeugung der emittierten Strahlung effektiv steuern kann. Durch die Kombination eines 100 TW Lasersystems mit einem Plasmaspiegel zur Kontrastverbesserung konnte der Einfluss der Vorplasmabedingungen auf die Erzeugung von relativistischen Oberflächenharmonischen untersucht werden. Die aufgenommenen Spektren zeigen dabei eine deutliche Abhängigkeit vom Laserkontrast bzw. Vorplasma. Durch Interpretation der aufgenommenen Spektren zeigt sich eine starke Abhängigkeit der zeitlichen Phase des Attosekundenpulzu-

KAPITEL 1. EINLEITUNG

ges vom Plasmagradienten. Damit ordnet sich diese Arbeit in eine Reihe von Messungen ein, in denen die zeitliche Phase von Attosekundenpulsen experimentell untersucht wurde [26, 117, 83]. Erstmals werden hier jedoch diese Zusammenhänge in dem vielversprechenden Regime von relativistischen Harmonischen thematisiert.

Kapitelübersicht

Das zweite Kapitel beinhaltet eine Einführung in die grundlegenden Prozesse, die bei der Erzeugung von Oberflächenharmonischen eine Rolle spielen. Ausgehend von der Bewegung eines einzelnen Elektrons im elektrischen Feld des Lasers werden hier die wichtigsten Parameter in der Laser-Plasma-Physik vorgestellt. Im Anschluß wird die Erzeugung von Oberflächenplasmen und ihre Wechselwirkung mit Licht beschrieben. Darauf aufbauend folgt die Erläuterung der wichtigsten Erzeugungmechanismen von Oberflächenharmonischen.

Die Beschreibung des Lasersystems ist Gegenstand des dritten Kapitels. Hier werden die fundamentalen Grundlagen der *Chirped Pulse Amplification (CPA)* anhand des ARCTURUS-Lasersystems dargestellt und gezeigt, wie man Pulse mit relativistischen Intensitäten erzeugen kann. Zudem wird die Funktionsweise eines Plasmaspiegels als ultraschneller Schalter zur Kontrastverbesserung erläutert.

Im vierten Kapitel werden die experimentellen Ergebnisse präsentiert, die mit dem ARCTURUS-Laser in Kombination mit den Plasmaspiegel erzielt wurden. Dabei wird zunächst die Steuerung des Vorplasmas mit dem Plasmaspiegel und deren Auswirkung auf die spektrale Struktur der Oberflächenharmonischen betrachtet. Diese experimentellen Beobachtungen werden durch ein Modell erklärt und mit numerischen Simulationen untermauert. Es stellt sich in der Konsequenz heraus, dass die Harmonischen im relativistischen Regime durch das Eindrücken der Plasmaoberfläche gechirpt werden. Abschließend wird die gute Übereinstimmung mit den Simulationen verwendet, um den Einfluss des Vorplasmas auf den zeitlichen Verlauf einzelner Attosekundenpulse aufzuzeigen.

Die experimentellen Ergebnisse im fünften Kapitel belegen ebenfalls, dass Oberflächenharmonische gechirpt sind. Hier wird die Messung der Kohärenzzeit von Oberflächenharmonischen am ATLAS-Lasersystem in München vorgestellt. Die Kohärenzzeiten der Harmonischen sind wesentlich kürzer sind als die Pulsdauer des XUV-Pulszuges, die unter vergleichbaren Bedingungen mit einem XUV-Volumenautokorrelator gemessen wurde [75]. Diese Untersuchungen lassen die Schlussfolgerung zu, dass der Unterschied durch den Chirp der Harmonischen zu erklären ist.

Kapitel 2

Laser und Oberflächenplasmen - eine Einführung

Die Erzeugung von extrem kurzen Pulsen bei der Wechselwirkung eines intensiven Laserpulses mit Festkörperoberflächen kann in zwei Phasen eingeteilt werden. Zuerst wird die Oberfläche von der ansteigenden Flanke des Laserpulses ionisiert; es entsteht eine Plasmaschicht. Im zweiten Schritt werden durch den nachfolgenden Hauptpuls nichtlineare Oszillationen an der Oberfläche der Plasmaschicht angeregt. Diese sind kürzer als die Periodendauer des treibenden Laserpulses und führen zur zeitlich begrenzten Emission von hohen Frequenzanteilen, die bis in den weichen Röntgenbereich reichen können. Durch Herausfiltern der höherfrequenten Anteile erhält man extrem kurze XUV-Pulse, die sich in spekulare Richtung ausbreiten. Da diese Prozesse periodisch durch den Laser getrieben werden, entsteht eine Folge von Attosekundenpulsen, die im Frequenzbereich aus Vielfachen der Fundamentalen besteht.

Die theoretischen Grundlagen zur Erzeugung von extrem kurzen Pulsen von Plasmaoberflächen sind Gegenstand dieses Kapitels. Im ersten Abschnitt wird auf die Eigenschaften von intensiven Laserpulsen, deren Wechselwirkung mit Materie und die wichtigsten Parameter von laserproduzierten überdichten Oberflächenplasmen eingegangen. Anschließend werden im zweiten Abschnitt Erzeugungsprozesse von extrem kurzen XUV Pulsen für unterschiedliche Intensitätsregimes (relativistisch und nicht relativistisch) erklärt. Da der Schwerpunkt dieser Arbeit auf den experimentellen Ergebnissen liegt, wird in der ganzen Arbeit das SI-Einheitensystem verwendet.

2.1 Grundlagen der Laser-Plasma-Wechselwirkung

In diesem Abschnitt werden die wichtigsten Größen und Prozesse erläutert, die bei der Wechselwirkung von intensiven Laserpulsen mit überdichtem Plasma relevant sind. Angefangen mit der Darstellung des Laserfeldes durch das Vektorpotential wird anschließend die Bewegung eines Elektrons im Laserfeld beschrieben. Danach werden die Ionisationsprozesse erläutert, die zur Bildung des Oberflächenplasmas führen. In der Folge werden die wichtigsten Parameter dieser überdichten Festkörperplasmen vorgestellt. Den Abschluss bildet die Darstellung der grundlegenden Absorptionsprozesse. Dabei liegt das Augenmerk auf den kollektiven Prozessen, da diese die Grundlage für die Erzeugung von Oberflächenharmonischen bilden.

2.1.1 Freie Elektronen im relativistischen Laserfeld

Bei der Wechselwirkung von Laserpulsen mit dem Plasma spielen die Elektronen eine zentrale Rolle, da sie ihrer geringen Masse wegen schneller auf die Kraft des elektromagnetischen Feldes reagieren als die um vier Größenordnungen schwereren Ionen. Bevor wir uns den Eigenschaften des Plasmas zuwenden, wird hier zur Einführung elementarer Aussagen und Parameter die Bewegung eines einzelnen Elektrons im Laserfeld betrachtet. Dafür ist es im Rahmen der Laserplasmaphysik sinnvoll, das elektromagnetische Feld mit Hilfe des Vektorpotentials **A** und des Skalarpotentials Φ auszudrücken. Die Vakuum-Maxwell-Gleichungen für die magnetische Flussdichte **B** und das elektrische Feld **E** sind damit durch

$$\mathbf{B} = \nabla \times \mathbf{A} \quad \text{und} \quad \mathbf{E} = -\frac{\partial}{\partial t}\mathbf{A} - \Phi \tag{2.1.1}$$

gegeben [52]. Unter der Verwendung der Lorentz-Eichung

$$\nabla \mathbf{A} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial}{\partial t} \Phi = 0 \tag{2.1.2}$$

kann aus den Gleichungen 2.1.1 die inhomogene Wellengleichung für das Vektorpotential

$$\Box \mathbf{A} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{A} - \nabla^2 \mathbf{A} = \mu_0 \mathbf{j}$$
(2.1.3)

bestimmt werden. Dabei ist c die Vakuumlichtgeschwindigkeit, μ_0 die magnetische Feldkonstante und **j** die Stromdichte. Bei der Ausbreitung im Vakuum gibt es keine Ströme $(\mathbf{j} = 0)$, statische elektrische Felder oder freie Ladungen und Gleichung 2.1.3 geht in eine homogene Wellengleichung über. Im einfachsten Fall lässt sich die Gleichung durch

$$\mathbf{A} = \mathbf{e}_y A_0 \cos(\omega t - kx + \phi) \tag{2.1.4}$$

lösen. Es handelt sich dabei um eine linear polarisierte Welle mit der Frequenz ω , die sich mit einer Wellenzahl k und der Phase ϕ in Richtung \mathbf{e}_x ausbreitet. Die jeweilige magnetische Flussdichte **B** sowie das elektrische Feld **E** lassen sich dann nach den Gleichungen 2.1.1 bestimmen:

$$\mathbf{B} = \mathbf{e}_z B_0 \sin(\omega t - kx + \phi), \quad \mathbf{E} = \mathbf{e}_y E_0 \sin(\omega t - kx + \phi). \tag{2.1.5}$$

Das Verhältnis zwischen den Amplituden lässt sich ebenfalls aus den Gleichungen 2.1.1 berechnen und ist durch

$$A_0 \,\omega \,=\, E_0 \,=\, c \,B_0 \tag{2.1.6}$$

gegeben.

Mit Hochintensitäts-Lasern werden heutzutage elektrische Feldstärken erzeugt, die ausreichen, um Elektronen auf relativistische Geschwindigkeiten zu beschleunigen. Die Bewegung eines Elektrons mit der Ruhemasse m_e und der Ladung q = -e im elektromagnetischen Feld wird in diesem Fall durch die relativistische Lorentzkraft

$$\mathbf{F}_{L} = \frac{\partial \mathbf{p}}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial t} \left(\gamma m_{e} \mathbf{v} \right) = -e \left(\mathbf{E} + \mathbf{v} \times \mathbf{B} \right), \qquad (2.1.7)$$

beschrieben. Dabei ist der relativistische Impuls \mathbf{p} durch die Geschwindigkeit des Elektrons \mathbf{v} und den Lorentzfaktor $\gamma = (1-v^2/c^2)^{-1/2}$ gegeben. Aufgrund des Amplitudenverhältnisses aus Gleichung 2.1.6 wird die Bewegung des Elektrons durch das stärkere elektrische Feld dominiert. Sobald die Geschwindigkeit des Elektrons annährend die Lichtgeschwindigkeit c erreicht, ist die $\mathbf{v} \times \mathbf{B}$ Komponente nicht mehr zu vernachlässigen und das Elektron bewegt sich zusätzlich zur Schwingungsrichtung des elektrischen Feldes auch in Ausbreitungsrichtung des Lasers. Für die einfache monochromatische linear polarisierte elektrons analytisch berechnen [41]. Die Lösung ist in Abbildung 2.1.1 grafisch dargestellt. Das Elektron (blau) schwingt im elektrischen Feld (rot) und wird durch die Kraftkomponente des magnetischen Feldes (grün) in Ausbreitungsrichtung des Laser beschleunigt. Im mitbewegten



Abbildung 2.1.1: Bewegung eines Elektrons (blau) in einem linear polarisierten elektromagnetischen Feld. (a) Im Laborsystem schwingt das Elektron in y-Richtung mit der Amplitude y_{osc} und bewegt sich gleichzeitig in x-Richtung. (b) Im mitbewegten System follgt das Elektron in der x-y-Ebene einer Bahn, die einer Acht ähnelt.

System vollführt das Elektron eine Bewegung, die einer Acht ähnelt. Die maximale Oszillationsgeschwindigkeit v_{osc} und die Auslenkung des Elektrons y_{osc} lassen sich für den nichtrelativistischen Fall ($\gamma = 1$ und $\mathbf{v} \times \mathbf{B} = 0$) unter Verwendung von Gleichung 2.1.5 und Gleichung 2.1.7 nach

$$v_{osc} = \frac{e E_0}{m_e \omega}, \qquad \qquad y_{osc} = \frac{e E_0}{m_e \omega^2}$$
(2.1.8)

berechnen. Für den relativistischen Fall ist die Lösung für die Auslenkung y_{osc} richtig, während man für v_{osc} eine weitere Korrektur einführen muss [13].

Im Rahmen der Hochintensitäts-Laserphysik erlaubt die Geschwindigkeit der Elektronen eine Einordnung der Amplitude des Laserfeldes. Dafür verwendet man das normierte Vektorpotential

$$a_0 = \frac{eA_0}{m_e c} = \frac{eE_0}{m_e c\omega} \stackrel{\circ}{=} \frac{v_{osc}}{c}, \qquad (2.1.9)$$

welches im nichtrelativistischen Fall dem Verhältnis aus der Oszillationsgeschwindigkeit eines Elektrons und der Lichtgeschwindigkeit entspricht [54]. Es kann unter Verwendung der Beziehung $I = c\varepsilon_0 E_0^2/2$ durch die Wellenlänge λ und die Intensität I ausgedrückt werden und durch Einsetzen der Werte für die physikalischen Konstanten nach

$$a_0 = \sqrt{\frac{I \lambda^2}{1.37 \cdot 10^{18} \,\mathrm{W} \,\mathrm{cm}^{-2} \,\mu \mathrm{m}^2}}$$
(2.1.10)

berechnet werden [52, 62]. Damit kann man die Intensität eines Laserpulses wie folgt einteilen: $a_0 < 1$ nichtrelativistisch, $a_0 \simeq 1$ relativistisch und $a_0 \gg 1$ ultrarelativistisch. Bei typischen Wellenlängen von 800 nm reichen Intensitäten von $I > 10^{18} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ aus, um die Elektronen auf relativistische Geschwindigkeiten zu beschleunigen. In dem in Kapitel 4 beschriebenen Experiment ist das maximale $a_0 \simeq 8$ und klar im relativistischen Bereich.

Bis hierhin wurde die Bewegung eines einzelnen Elektrons in einer ebenen elektromagnetischen Welle betrachtet. In der Realität muss man allerdings einen zeitlich und räumlich begrenzten Laserpuls betrachten. Die Bewegung ist dann viel komplexer und in der Regel nur noch numerisch zu berechnen. Das Problem kann jedoch vereinfacht werden, indem man die Bewegung über einen Laserzyklus mittelt. Die Wirkung auf das Elektron kann dann durch die ponderomotorische Kraft

$$F_P(\mathbf{r},t) = -\frac{e^2}{\overline{\gamma} 2 m_e c \varepsilon_0 \omega^2} \nabla [I(\mathbf{r},t)]$$
(2.1.11)

beschrieben werden [85], welche das zeitliche Mittel der relativistischen Lorentzkraft darstellt. Hierbei ist $\overline{\gamma} = \sqrt{1 + a_0^2/2}$ der zeitlich gemittelte relativistische Lorentzfaktor [54, 41]. Die ponderomotorische Kraft ist demnach proportional zum negativen Gradienten der Intensität des Lasers. Dies führt dazu, dass Elektronen im Mittel vom Laserpuls weggedrückt beziehungsweise vor ihm hergeschoben werden. Richtet man den Blick von einem Elektron auf eine Vielzahl an Elektronen der Dichte n_e , so ist die ponderomotorische Kraftdichte als $f_p = n_e F_P$ definiert. Daraus lässt sich berechnen, dass der durch das Licht verursachte Druck P_L proportional zur Intensität ist,

$$f_p = n_e F_P = -\nabla P_L \Rightarrow P_L = \frac{n_e e^2}{2m_e c\varepsilon_0 \omega^2} I. \qquad (2.1.12)$$

Für Festkörperplasmen mit Dichten von $n_e \simeq 10^{23} \,\mathrm{cm}^{-3}$ ergeben sich im Fokus von hochintensiven Laserpulsen bei einer Intensität von $I = 10^{18} \,\mathrm{W} \,\mathrm{cm}^{-2}$ extreme Drücke von etwa $10^{15} \,\mathrm{N/m^2}$ oder $10^{10} \,\mathrm{bar}$.

2.1.2 Ionisationsprozesse

Die beschriebene Wirkung des Laserpulses trifft nur auf freie Elektronen, d.h. Elektronen, deren Bindung an Atome, Moleküle oder Festkörper aufgehoben wurde, zu. Mit etwa 1.5 eV ist die Photonenenergie des nahinfraroten Laserlichtes kleiner als die Ionisierungsenergie E_{ion} der meisten Elemente und reicht somit nicht aus, um Atome oder Moleküle durch einfache Photoionisation zu ionisieren. Bei der Wechselwirkung von hochintensiven Laserpulsen mit der Festkörperoberfläche führen deshalb andere Ionisationsprozesse zur Bildung eines Plasmas.

Man unterscheidet bei der Ionisation an Festkörperoberflächen grundsätzlich zwischen der Ionisation durch das Laserfeld und die anschließende Stoßionisation durch die frei gewordenen Elektronen. Bei der Ionisation durch das Laserfeld differenziert man mit zunehmender Intensität zwei Prozesse, die Multiphotonenabsorption [17] und die Tunnelionisation [7]. Bei der Multiphotonenabsorption zeigen störungstheoretische Berechnungen, dass die Wahrscheinlichkeit für die gleichzeitige Absorption von mehreren Photonen $\Gamma_N \propto I^N$ von der Intensität abhängt und mit der Anzahl der Photonen N skaliert [41]. Auch wenn die Wahrscheinlichkeit, mehrere Photonen gleichzeitig zu absorbieren, mit der Anzahl Nabnimmt, sorgt die starke Abhängigkeit von der Intensität dafür, dass Ionisation stattfindet, sobald die Intensität einen Genzwert von etwa $10^{12} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ übersteigt. Es gilt dabei die folgende Energieerhaltungsgleichung:

$$\varepsilon_{el}^{kin} = N \cdot h\nu - E_{ion}. \tag{2.1.13}$$

Die kinetische Energie des ionisierten Elektrons ε_{el}^{kin} wird durch die Anzahl N und die Energie $h\nu$ der absorbierten Photonen bestimmt. Sobald die absorbierte Energie größer ist als die Ionisierungsenergie, kann das Elektron die Bindung an das Atompotential verlassen (siehe Abb.: 2.1.2 (a)).

Mit steigender Intensität wird die Verformung des Atompotentials durch das elektrische Feld des Lasers so groß, dass der störungstheoretische Ansatz der Multiphotonenabsorption seine Gültigkeit verliert. Die Ionisation wird dann durch die Tunnelionisation dominiert. Der Übergang zwischen beiden Ionisationsmechanismen findet statt, wenn der sogenannte Keldysh-Parameter

$$\gamma_K = \frac{4\pi}{\lambda} \sqrt{\frac{\varepsilon_0 m_e c^3}{e^2} \frac{E_{ion}}{I}}$$
(2.1.14)

ungefähr gleich eins ist [41, 59]. Für $\gamma_K < 1$ dominiert die Tunnelionisation. Sie setzt je nach Element bei Intensitäten von etwa $10^{15}..10^{14} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ ein und lässt sich durch das in Abbildung 2.1.2 (b) dargestellte Modell beschreiben. Das ursprüngliche elektrische Potential des Atoms wird durch das elektrische Potential des Laserfeldes beeinflusst. In der quasistatischen Näherung, in der der Laserzyklus viel länger ist als die Umlaufzeit eines Elektrons



Abbildung 2.1.2: Ionisationsrozesse im Laserfeld. (a) Ab Intensitäten von etwa $10^{12} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ setzt die Ionisation durch die Multiphotonenabsorption ein. (b) Ab Intensitäten von etwa $10^{14} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ wird das Potential des Atoms durch das elektrische Feld des Lasers soweit verformt, dass die Elektronen durch den Potentialwall tunneln können und das Atom auf diesem Weg ionisiert wird.

um das Atom, kann die Wirkung des elektrischen Feldes als konstant angenommen werden. Das daraus resultierende Potential lässt sich dann durch

$$V(x) = -\frac{Ze^2}{4\pi\varepsilon_0} \cdot \frac{1}{x} - eEx \qquad (2.1.15)$$

beschreiben. Es besteht dann eine gewisse Wahrscheinlichkeit, dass das Elektron (grün) durch die Potentialbarriere (blau) tunneln kann. Die entsprechenden Ionisationsraten für wasserstoffartige Atome wurden zuerst von Keldysh berechnet [59]. Für die Beschreibung komplexer Atome und Ionen wurde die Theorie auf komplexere Atome erweitert [2, 80]. Bei der Verwendung von hochintensiven Laserpulsen (mit maximalen Intensitäten von $10^{20} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$) beginnt die Ionisation mit der Multiphotonenabsorption, wird dann aber schon bei der ansteigenden Flanke des Laserpulses durch die Tunnelionisation abgelöst.

Es bildet sich an der Festkörperoberfläche ein dichtes Plasma, in dem die Anzahl der Teilchenstöße nicht mehr zu vernachlässigen ist. Dabei treffen energiereiche Elektronen aus dem Plasma auf Atome und Ionen und ionisieren diese durch Stoßionisation [68, 69]. Die Ionisationsrate der Stoßionisation hängt von der Dichte sowie der Geschwindigkeit der Elektronen ab und spielt gerade bei dichten lasererzeugten Plasmen eine wichtige Rolle [96]. Sowohl die thermischen als auch die laserbeschleunigten Elektronen tragen zur Stoßionisation bei. Beide Ionisationsraten hängen von der Intensität des Lasers ab und klingen nach Erreichen eines Maximums mit der steigenden Intensität ab [22].

Grundsätzlich kann man sich den Ablauf der Ionisation bei der Wechselwirkung eines hochintensiven Laserpulses mit einem Festkörpertarget wie folgt vorstellen: Zunächst wird die Materie durch das starke Feld des Lasers ionisiert (Multiphotonenabsorption und Tunnelionisation). Sobald ausreichend energiereiche Elektronen im Leitungsband vorhanden sind, setzt die Stoßionisation ein. Diese hat ein lawinenartiges Ionisieren der Oberfläche zur Folge.

Licht und Plasma 2.1.3

Sobald der Laserpuls das Targetmaterial mit der ansteigenden Flanke ionisiert hat, bewegt er sich im Plasma. In diesem Fall darf die Stromdichte j auf der rechten Seite von Gleichung 2.1.3 nicht mehr vernachlässigt werden. Die Elektronen stellen wegen ihrer kleineren Masse die freien Ladungen im Plasma dar. Die Stromdichte

$$\mathbf{j} = e \, n_e \, \mathbf{v}_e \tag{2.1.16}$$

ist deshalb durch die Geschwindigkeit \mathbf{v}_e und Dichte n_e der Elektronen gegeben. Die Geschwindigkeit der Elektronen im Plasma wird durch die Lorentzkraft des elektromagnetischen Laserfeldes bestimmt. Dabei kann im nichtrelativistischen Fall die Massenzunahme und die Komponente des magnetischen Feldes in Gleichung 2.1.7 vernachlässigt werden. Stattdessen müssen Stöße, die zur Abbremsung der Elektronen führen, berücksichtigt werden. Die Bewegungsgleichung ist dann durch

$$m_e \frac{\partial \mathbf{v}_e}{\partial t} = -e E - m_e \nu_{ei} \mathbf{v}_e \qquad (2.1.17)$$

gegeben. Hier repräsentiert ν_{ei} die Stoßfrequenz und ist somit ein Maß dafür, in wieweit die Beschleunigung des Elektrons durch Stöße abgeschwächt wird. Die Gleichung 2.1.17 lässt sich lösen, indem man das monochromatische elektrische Feld aus Gleichung 2.1.5 in der komplexen Notation einsetzt [41]. Lösung für die Geschwindigkeit der Elektronen ist

$$\mathbf{v}_e = -\frac{i}{\omega + i\nu_{ei}} \cdot \frac{e}{m_e} \mathbf{E} = \frac{1}{\omega + i\nu_{ei}} \cdot \frac{e\omega}{m_e} \mathbf{A}.$$
 (2.1.18)

Für die Beschreibung im Vektorpotential wurde der Zusammenhang $\mathbf{E} = i\omega \mathbf{A}$ verwendet. Durch Einsetzen der Geschwindigkeit in Gleichung 2.1.16 erhält man die Stromdichte der rechten Seite von Gleichung 2.1.3. Diese Wellengleichung lässt sich unter Verwendung des komplexen Lösungsansatzes ($\nabla \rightarrow ik$ und $\partial/\partial t \rightarrow i\omega$) zu

$$\left(\frac{\omega^2}{c^2} - k^2\right) \mathbf{A} = \frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e \left(1 + i \left(\nu_{ei}/\omega\right)\right)} \mathbf{A}$$
(2.1.19)

umschreiben. Dabei kann man die rechte Seite durch Einführung der Plasmafrequenz

$$\omega_p = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\varepsilon_0 m_e}} \simeq 5.6 \cdot 10^4 \sqrt{n_e [\text{cm}^{-3}]} \,\text{s}^{-1}$$
(2.1.20)

vereinfachen. Aus ihr ergibt sich die allgemeine Dispersionsbeziehung für die Ausbreitung von elektromagnetischen Wellen im Plasma, die durch

$$k^{2} = \frac{\omega^{2}}{c^{2}} \left[1 - \frac{\omega_{p}^{2}}{\omega \left(1 + i\nu_{ei}^{\star}\right)} \right].$$
(2.1.21)

gegeben ist. Hierbei ist $\nu_{ei}^{\star} = \nu_{ei}/\omega$ die normalisierte Kollisionsfrequenz. Betrachtet man den Spezialfall der Ausbreitung in einem kollisionsfreien Plasma ($\nu_{ei} = 0$), so ist die Dispersionsrelation durch $\omega^2 = \omega_p^2 + c^2 k^2$ gegeben. Daraus lassen sich wichtige Schlüsse für die Ausbreitung eines elektromagnetischen Feldes im Plasma ziehen. Für Frequenzen, die kleiner sind als die Plasmafrequenz ($\omega < \omega_p$), ist die Wellenzahl k reell und die Welle kann sich im Plasma ausbreiten. Für größere Frequenzen ($\omega > \omega_p$) ist die Wellenzahl imaginär, die elektromagnetische Welle kann sich nicht mehr ausbreiten und sie klingt exponentiell ab. Dabei fällt die Amplitude der sogenannten evaneszenten Welle in einer Skintiefe von

$$l_s \approx \frac{c}{\omega_p} \tag{2.1.22}$$

auf den 1/e-fachen Wert ab. Aus der Plasmafrequenz kann somit die Elektronendichte berechnet werden, ab der eine elektromagnetische Welle der Frequenz ω nicht mehr im Plasma propagiert. Dieser Grenzwert wird als kritische Dichte

$$n_{cr} = \frac{\varepsilon_0 m_e \omega^2}{e^2} \simeq \frac{1, 1 \cdot 10^{21}}{(\lambda [\mu m])^2} \,\mathrm{cm}^{-3}$$
(2.1.23)

bezeichnet und spielt besonders bei der Wechselwirkung von hochintensiven Laserpulsen mit Festkörperoberflächen eine wichtige Rolle.

Lasererzeugte Festkörperplasmen 2.1.4

Beim Auftreffen eines hochintensiven Laserpulses auf der Festkörperoberfläche führen schon die starken elektrischen Felder der ansteigenden Flanke zur Ionisation der Oberfläche (siehe Abschnitt 2.1.2). Der Laserpuls kann anschließend durch den unterkritischen Teil des Plasmas propagieren. An der kritischen Dichte wird dann ein Teil des Laserlichtes absorbiert und das Plasma so aufgeheizt. Der thermische Druck des Plasmas sorgt gleichzeitig dafür, dass das Plasma in Richtung des Vakuums expandiert. Bei der Bildung des Vorplasmas laufen die relevanten Prozesse gleichzeitig und gekoppelt ab, so dass eine exakte Beschreibung schwierig ist. Deshalb wird für die Bestimung der Plasmaparameter bei der Bildung des Vorplasmas der MULTI-fs Code verwendet [86]. Damit werden die makroskopischen Parameter wie Dichte, Temperatur, Druck u.s.w. mit hydrodynamischen Methoden numerisch berechnet.

In diesem Abschnitt werden deshalb zunächst die Expansion des Plasmas und anschließend die entscheidenden Absorptionsmechanismen getrennt voneinander präsentiert. Basierend auf diesen Grundlagen wird ein qualitativer Gesamtüberblick über die Bildung des Vorplasmas im Hinblick auf die Erzeugung von Oberflächenharmonischen vorgestellt.

2.1.4.1**Plasma-Expansion**

Durch Ionisation der Oberflächenmaterie bildet sich ein Plasma mit einer Elektronendichte von $n_e = Z^{\star} \cdot n_i$, welche durch die Dichte der Ionen n_i und deren Ionisierungsgrad Z^{\star} gegeben ist. Der thermische Druck innerhalb des Plasmas sorgt dann für eine Expansion in Richtung des Vakuums. Die Schallgeschwindigkeit der Plasmaionen

$$c_s = \left(\frac{Z^{\star} k_B T_e}{m_i}\right)^{1/2} \cong 3, 1 \cdot 10^5 \left(\frac{T_e}{\text{keV}}\right)^{1/2} \left(\frac{Z^{\star}}{A}\right)^{1/2} \frac{\text{m}}{\text{s}}$$
(2.1.24)

stellt dabei eine Näherung an die Geschwindigkeit der Expansion dar [22, 41]. Hier ist T_e die Temperatur der Elektronen, m_i die Masse der Ionen, k_B die Boltzmann-Konstante und A die Ordnungszahl. Für den vereinfachten Fall einer ebenen Plasmaoberfläche mit einer isothermen Elektronenverteilung läßt sich der exakte zeitliche Verlauf der Elektronendichte analytisch berechnen. Die ursprüngliche Elektronendichte an der Grenzfläche n_0



Abbildung 2.1.3: Schematische Darstellung zur Entstehung der Vorplasmaschicht. (a) Während der größte Teil der Energie am Übergang zur kritischen Dichte absorbiert wird, kann der Laserpuls durch das unterdichte Plasma propagieren. (b) Hydrodynamische Berechnungen zeigen die Dichte und Temperatur der Elektronen eines Oberflächenplasmas, das nach dem Eintreffen eines Vorpulses (Intensität, $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$) 30 ps lang expandiert ist. Dabei sind die charakteristischen Eigenschaften von lasererzeugten Vorplasmen zu erkennen: die kalten Elektronen bilden das überkritische Plasma, während sich die heißen Elektronen weit in Richtung Vakuum bewegen und das koronale Plasma bilden.

breitet sich dabei mit Schallgeschwindigkeit in Richtung des Vakuums aus und die zeitliche Elektronendichteverteilung ist durch

$$n_e(z,t) = n_0 \cdot \exp\left(-\frac{z}{c_s t}\right) \tag{2.1.25}$$

gegeben [62]. Für die Einordung des Plasmagradienten ist es sinnvoll die Skalenlänge L des Plasmas einzuführen. Sie ist für einen bestimmten Punkt z' als

$$L(z') = n_e(z') \left| \frac{\partial n_e(z')}{\partial z} \right|^{-1}$$
(2.1.26)

definiert [22]. Im speziellen Fall der isothermen Expansion aus Gleichung 2.1.25 ist die Skalenlänge an allen Punkten z' gleich $L_{iso}(z') = c_s t$ und nimmt zudem linear mit der Zeit zu.

Der isotherme Fall stellt eine starke Vereinfachung der Realität dar, da gerade lasererzeugte Plasmen eine zeit- und ortsabhängige Temperaturverteilung besitzen. Dennoch

17

kann man die Elektronenverteilung in ausgewählten räumlichen Abschnitten durch einen exponentiellen Verlauf approximieren. In Abbildung 2.1.3 (b) sieht man das Resultat einer hydrodynamischen Simulation, bei der das Plasma nach der Wechselwirkung mit einem Vorpuls 30 ps lang expandiert ist. Es ist dabei eine typische Charakteristik von Oberflächenplasmen zu erkennen: die kalten bzw. langsamen Elektronen bilden das überdichte Plasma, während die heißen bzw. schnellen Elektronen ins Vakuum vordringen und das unterdichte Plasma bilden.

Beim Verlauf aus Abbildung 2.1.3 (b) handelt es sich nur um eine Ausbreitung in Richtung des Vakuums. Bei der Bildung des Vorplasmas muss für hochintensive Laserpulse der Lichtdruck P_L aus Gleichung 2.1.12 berücksichtigt werden. Dieser führt ab bestimmen Intensitäten zum Eindrücken des Plasmas und zur Aufsteilung des Gradienten. Man spricht deshalb auch vom *ponderomotive steepening*. Der Effekt setzt ein, sobald der Lichtdruck größer als der thermische Druck $P_{th} = n_e k_B T_e$ ist [67]. Unter Verwendung von Gleichung 2.1.12 kann man abschätzen, dass der Effekt für Festkörperplasmen bei einer Intensität von $I \gtrsim 10^{15} \,\mathrm{W\,cm^{-2}}$ einsetzt. Diverse Pump-Probe-Experimente mit intensiven Kurzpulslasern haben bestätigt, dass diese Abschätzung plausibel ist [73, 67, 55, 98]. Das Wechselspiel aus thermischer Expansion und dem Eindücken durch den Lichtdruck führt dabei zu relativ komplexen Elektronendichteverläufen.

Trotzdem wird für die Skalenlänge eines lasererzeugten Oberflächenplasmas üblicherweise nur ein Wert angegeben. Man wählt dafür in der Regel den Wert an der kritischen Dichte $(L(z_{cr}) \text{ mit } n_e(z_{cr}) = n_{cr})$, da der Laser nur bis zu dieser Elektronendichte propagieren kann. In diesem Bereich findet deshalb der entscheidende Teil der Laser-Plasma-Wechselwirkung statt. Wie im folgenden Unterabschnitt gezeigt wird, spielen dabei die Absorptionsprozesse beim Aufheizen des Plasmas und der Erzeugung der Oberflächenharmonischen eine wichtige Rolle.

2.1.4.2 Absorption von Licht an der Plasmaoberfläche

Der größte Teil des Laserlichts wird durch den Transfer von Energie des elektromagnetischen Feldes in das Festkörperplasma absorbiert. Dabei unterscheidet man zwei unterschiedliche Regimes. Bei längeren Pulsen mit moderaten Intensitäten wird die Absorption vorwiegend durch Stoßprozesse bestimmt [27, 62]. Für hochintensive Pulse werden Stöße zunehmend unwahrscheinlich und die Absorption wird dann von kollektiven Effekten dominiert, bei denen Kollisionen keine Rolle mehr spielen. Abhängig von den Vorplasmabedingungen werden in diesem Regime unterschiedliche Prozesse identifiziert. Dabei führen die Resonanzabsorption [74, 62], der Brunel-Effekt oder das Vakuumheizen [15, 40], das $\vec{j} \times \vec{B}$ -Heizen [63, 122] und andere Oberflächeneffekte [89] zur Kopplung von Laserenergie in das Plasma. In diesem Abschnitt werden die wichtigsten Prozesse eingeführt und deren Bedeutung bei der Erzeugung von Oberflächenharmonischen herausgestellt.

Stöße stellen einen fundamentalen physikalischen Prozess dar, der zum irreversiblen Energietransfer zwischen zwei Teilchen führt. Im Rahmen der Laser-Plasma-Wechselwirkung nehmen die Elektronen bei der Beschleunigung im Laserfeld Energie auf, die sie dann durch Stöße an die Ionen im Plasma weitergeben. In einem heißen Plasma kann die Kollisionsfrequenz zwischen den Elektronen und den schwereren Ionen ν_{ei} nach der Spitzer-Harm Formel

$$\nu_{ei} = \frac{4\sqrt{2\pi}}{3} \cdot \frac{Zn_e e^4}{(4\pi\varepsilon_0)^2 \sqrt{m_e} (k_B T_e)^{3/2}} \cdot \ln\Lambda$$
(2.1.27)

berechnet werden [62, 54]. Dabei ist Z die Ladung der Ionen, m_e die Masse der Elektronen, k_B die Boltzmann-Konstante und T_e die Temperatur der Elektronen. Der Coulomb-Logarithmus ist durch $\ln \Lambda = (12 \pi \lambda_D^3 n_e/Z)$ gegeben. Mit der Debey-Länge λ_D wird das Potential einer Ladung beschrieben, die durch frei bewegliche Ladungen abgeschirmt wird. Dabei gibt $\lambda_D = \sqrt{(\varepsilon_0 k_B T_e)/(n_e e^2)}$ die Distanz an, in der das elektrostatische Feld auf den 1/e-fachen Wert abgefallen ist. Für lasererzeugte Festkörperplasmen liegt $\ln \Lambda$ im Bereich von 5 bis 10.

Die Auswirkung der Stöße auf die Ausbreitung des Lasers wird in Unterabschnitt 2.1.3 beschrieben. Unter Verwendung der Dispersionsrelation aus Gleichung 2.1.19 lässt sich der Anteil der absorbierten Energie für den schrägen Einfall eines Laser auf ein exponentielles Plasmaprofil ausrechnen, indem man die Helmholtz-Gleichungen numerisch löst [62, 41]. Die Absorption hängt dabei von der Skalenlänge L, dem Einfallwinkel θ und der Polarisation ab. Im Falle einer stufenförmigen und homogenen Vakuum-Plasma-Grenzfläche $(L/\lambda = 0)$ stimmt die Lösung mit den Fresnel-Gleichungen überein [41, 14]. Daraus ergibt sich für den senkrechten Einfall eines s-polarisieren Laserpulses auf ein Plasma der Dichte $n_e = 100 n_{cr}$ eine Reflektion von etwa 70 %.

Für niedrige Intensitäten $I \leq 10^{14} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ werden die experimentellen Messungen der Absorption ausreichend durch die Kollisionen beschrieben. Bei größeren Intensitäten erreichen die Elektronen Oszillationsgeschwindigkeiten v_{osc} , die mit den thermischen Geschwindigkeiten $v_{th} = \sqrt{kT_e/m_e}$ vergleichbar sind. Die Oszillationsenergie kann berücksichtigt werden, indem man eine effektive Temperatur $T_{eff} \propto v_{osc}^2 + v_{th}^2$ definiert [121]. Nach Gleichung 2.1.27 nimmt die Kollisionsfrequenz $\nu_{ei} \propto T_{eff}^{-3/2}$ mit der Temperatur ab und die Absorption durch Stöße wird immer ineffektiver. Die Beschreibung der Absorption und des damit gekoppelten Heizens des Plasmas durch Stöße ist somit nur bei der ansteigenden Flanke des Laserpulses zutreffend.

Kollektive Absorptionsprozesse gewinnen ihrerseits an Relevanz, so bald Intensitäten von $I \gtrsim 10^{15} \,\mathrm{W\,cm^{-2}}$ übertroffen werden. Sie spielen damit gerade bei der Wechselwirkung von hochintensiven Laserpulsen mit einer Festkörperoberfläche eine entscheidende Rolle. Die Erzeugung von extrem kurzen XUV-Pulsen ist dabei gerade für den schrägen Einfall von ppolarisierten Laserpulsen am effektivsten [5, 65, 109]. In diesem Fall liegt eine Komponente des elektrischen Feldes E_x normal zur Plasmaoberfläche und erlaubt deshalb eine besonders gute Kopplung zwischen Laserfeld und Plasma (siehe Abb.: 2.1.4 (a)). Je nach Skalenlänge können dabei zwei wichtige Prozesse unterschieden werden, die Resonanzabsorption und die Brunel-Absorption.

Für ausgedehnte Plasmen mit einer großen Skalenlänge ist die sehr gut dokumentierte Resonanzabsorption dominant [42, 62]. Dabei wird ein Teil der Laserenergie in elektrostatische Energie umgewandelt. Normalerweise würde das elektrische Feld beim schrägen Einfall nur bis zur effektiven Dichte von $n_{eff} = n_{cr} \cos^2 \theta$ vordringen [41]. Die normale Komponente des elektrischen Feldes E_x kann jedoch bis zur kritischen Dichte n_{cr} tunneln und dort resonant Plasmawellen anregen (siehe Abb.: 2.1.4 (b)). Die maximale Absorption hängt für eine gegebene Skalenlänge von der Intensität und dem Einfallwinkel ab. Für einen senkrechten Einfall ist der Anteil der Resonanzabsorption zu vernachlässigen, da die senkrechte Komponente des Feldes verschwindet. Beim streifenden Einfall ist die Distanz zwischen n_{eff} und n_{cr} so groß, dass das treibende Feld sehr klein wird und die Resonanzabsorption ebenfalls keine Rolle spielt [37].

Sobald die Oszillationsamplitude x_{osc} im elektrischen Feld größer ist als die Skalenlänge des Vorplasmas, wird die Absorption von einem anderen Prozess dominiert. Dieser Absorptionsmechanismus wurde zuerst von Brunel analysiert und wird deshalb üblicherweise als Brunel-Absorption bezeichnet wird [15]. Dabei werden thermische Elektronen, die sich an der Grenzfläche befinden, durch das elektrische Feld aus dem Plasma ins Vakuum gezogen. Sobald das elektrische Feld seine Richtung wechselt, werden die Elektronen wieder ins Plasma beschleunigt. Da das elektrische Feld des Lasers nur bis in die Skintiefe des Plasmas l_s eindringen kann (siehe Abschnitt 2.1.3), können die Elektronen sich dem Einfluss des elek-



Abbildung 2.1.4: Kollektive Absorptionsprozesse. (a) Bei schrägem Einfall eines ppolarisierten kurzen Laserpulses unterscheidet man je nach Skalenlänge zwischen zwei Absorptionsmechanismen, Resonanz- und Brunel-Absorption. (b) Für ausgedehnte Plasmen ist die resonante Anregung von Plasmawellen an der kritischen Dichte n_{cr} für den Energietransfer vom Laser in das Plasma verantwortlich. Bei kleinen Plasmagradienten ist die Oszillationsamplitude der Elektronen an der Grenzfläche x_{osc} größer als die Skalenlänge L. Die Elektronen nehmen dann beim Aufenthalt im Vakuum Energie auf, die sie bei der Rückkehr durch Stöße an das Plasma abgeben.

trischen Feldes entziehen und tief in das überkritische Plasma eindringen. Auf diesem Weg transportieren die Elektronen Energie, die sie bei ihrer Exkursion im Vakuum gewonnen haben, ins Plasma. Deshalb wird dieser Absorptionsprozess auch oft als Vakuum-Heizen bezeichnet [40].

Durch Vergleich der Oszillationsamplitude x_{osc} mit der Skalenlänge L lässt sich zuordnen, welcher der beiden Prozesse dominiert. Dabei kann man in grober Näherung die Oszillationsamplitude eines einzelnen Elektrons im elektrischen Feld aus Gleichung 2.1.8 verwenden. Demnach ist das Verhältnis zur Wellenlänge des Lasers als $x_{osc}/\lambda_0 \simeq a_0/2\pi$ gegeben. Bei der Wechselwirkung von hochintensiven Pulsen ($a_0 \gtrsim 1$) mit einer Festkörperoberfläche ist in der Regel die Brunel-Absorption dominant, da der Lichtdruck des Pulses das expendierte Vorplasma in den Festkörper hineindrückt und das Plasma aufsteilt (siehe Unterabschnitt 2.1.4.1). Betrachtet man zum Beispiel die präsentierten Experimente ($a_0 \gtrsim 5$), hat man es mit dem Brunel-Mechanismus zu tun, sobald die Skalenlänge $L \lesssim 5/6 \cdot \lambda_0$ ist. Unter den experimentellen Bedingung erhält man aus hydrodynamischen Simulationen eine Skalenlänge von $L \lesssim \lambda_0/3$. Dieser Wert ist kleiner, so dass der Brunel-Mechanismus bei den präsentierten Experimenten dominiert.

2.1.4.3 Resümee

Zusammenfassend kann man die Bildung des Vorplasmas bei hochintensiven Laserpulsen qualitativ wie folgt beschreiben: das Podest des Laserpulses ionisiert die Festkörperoberfläche zunächst durch Multiphotonenabsorption und Tunnelionisation. Sobald die ersten Atome ionisiert sind, werden die resultierenden Elektronen im elektrischen Feld beschleunigt. Diese Elektronen heizen durch Stöße das Plasma weiter an und erzeugen gleichzeitig durch Stoßionisation weitere "freie" Elektronen. Die Effekte verstärken sich beiderseits, so dass die Oberfläche lawinenartig ionisiert und das Plasma extrem schnell aufgeheizt wird. Unterdessen expandiert das aufgeheizte Plasma, wobei die heißen Elektronen ein koronales Plasma bilden. Der folgende Hauptpuls propagiert durch dieses unterdichte Plasma bis zur kritischen Dichte. Der Lichtdruck presst die Plasmaoberfläche an der kritischen Dichte ein. Nun ist die Intensität so groß, dass die Stoßprozesse unwahrscheinlicher werden. Die Wechselwirkung wird dann von den kollektiven Prozessen dominiert. Wegen der Aufsteilung der Elektronendichte durch den Lichtdruck ist die Wahrscheinlichkeit groß, das die Brunel-Absorption die kollektive Dynamik dominiert. Während des Maximums der Intensität bildet die kollektive Elektronendynamik an der Vakuum-Plasma-Grenzfläche die Grundlage für die Erzeugung von Oberflächenharmonischen. Nachdem der Laserpuls reflektiert ist, lässt der Lichtdruck wieder nach und das Plasma expandiert wieder in Richtung Vakuum. Nach einigen Pikosekunden ist das Plasma wieder abgekühlt und es bildet sich auf der Oberfläche ein irreversibler Schaden.

2.2 Erzeugung extrem kurzer XUV-Pulse von Oberflächenplasmen

In diesem Abschnitt richtet sich der Blick auf die kollektiven Prozesse, die vom elektromagnetischen Feld des Hauptpulses im Vorplasma verursacht werden und letztendlich zur Emission von extrem kurzen XUV-Pulsen führen. Dabei werden an der Vakuum-Plasma-Grenzfläche nichtlineare Elektronenoszillationen angeregt, die kürzer als die Periondendauer des Lasers sind und zur Abstrahlung von extrem kurzen elektromagnetischen Pulsen führen können. Jeder dieser Pulse besitzt ein kontinuierliches Spektrum, das unter Umständen weit in dem XUV-Bereich reichen kann. Da die Elektronendynamik zyklisch der Phase des Lasers folgt, sieht man im Spektrum Vielfache des treibenden Laserpulses. Man spricht deshalb von Oberflächenharmonischen. Neben den experimentellen Untersuchungen liefern gerade die numerischen Simulationen mit *Particle In Cell (PIC)* Codes einen tieferen Einblick in die dynamischen Prozesse, die bei der Erzeugung von Oberflächenharmonischen ablaufen. Die Grundidee besteht darin, eine diskrete Anzahl von realen Teilchen zu einem Makro- oder Quasi-Teilchen fester Masse und Ladung zusammenzufassen. Durch Lösung der Maxwell-Gleichungen und Bewegungsgleichung wird die Dynamik der Makro-Partikel im Laserfeld numerisch berechnet [41]. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die PIC-Simualtionen von Daniel an der Brügge mit dem Virtual Laser Plasma Lab (VLPL) durchgeführt [82].

Auf der Basis von PIC-Simulationen und Experimenten unterscheidet man bei der Erzeugung von Oberflächenharmonischen mit kurzen $\tau < 100$ fs und intensiven Laserpulsen $I \gtrsim 10^{15} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ nach derzeitigem Kenntnisstand zwischen zwei Erzeugungsprozessen. Im nichtrelativistischen Fall ($a_0 \lesssim 1$) werden die höherfrequenten Anteile durch Elektronendichteschwingungen im Gradienten der Plasmaschicht emittiert, die im "Kielwasser" der Brunel-Elektronen angeregt werden. Dieser Prozess wird deshalb als *Coherent Wake Emis*sion (*CWE*) bezeichnet [84]. Im relativistischen Fall ($a_0 \gtrsim 1$) wird die Erzeugung von Elektronen dominiert, die im Laserfeld an der Grenzfläche mit relativistischen Geschwindigkeiten oszillieren [9, 65, 16, 106]. Im Zwischenbereich kann es zur Koexistenz beider Erzeugungsprozesse kommen [84]. Im Folgenden werden beide Effekte und die zugrundeliegenden Modelle getrennt voneinander vorgestellt.

2.2.1 Coherent Wake Emission

Bei moderaten Intensitäten $(a_0 < 1)$ und kurzen Pulsen $\tau < 100$ fs werden die experimentell beobachteten Oberflächenharmonischen durch den CWE-Effekt erklärt [84, 110]. In diesem Abschnitt werden nur die Grundlagen und charakteristischen Eigenschaften der CWE der Vollständigkeit halber erläutert, da die präsentierten Experimente bei relativistischen Intensitäten durchgeführt wurden. Eine ausführliche Beschreibung des Effektes lässt sich in Thaury et. al. [109] finden.

Die Erzeugung von Oberflächenharmonischen durch den CWE-Prozess lässt sich in zwei Schritte einteilen: die Anregung von Plasmawellen durch Brunel-Elektronen und deren kohärente Abstrahlung von XUV-Pulsen. Die Anregung der Plasmawellen ist in Abbildung 2.2.1 schematisch für einen Laserzyklus dargestellt. Zunächst werden die Elektronen an der Vakuum-Plasma-Grenzfläche von der ansteigenden Flanke des elektrischen Feldes ins Vakuum gezogen. Das durch die Ladungstrennung verursachte statische Feld beginnt,



Abbildung 2.2.1: Anregung von Plasmawellen durch Brunel-Elektronen. a) Das elektrische Feld des Lasers zieht die Elektronen von der Grenzfläche ins Vakuum. b) Anschließend werden die Elektronen vom invertierten Feld ins Plasma gedrückt. c) Das Laserfeld verliert seine Wirkung, sobald die Elektronen ins überkritische Plasma eindringen. Die Elektronen können nun tief ins Plasma eindringen und erzeugen in ihrem "Kielwasser" Plasmawellen.

die Elektronen in das Plasma zurückzuziehen. Sobald das elektrische Feld des Lasers sein Vorzeichen ändert, bewegen sich alle Elektronen in Richtung der Grenzfläche. Ab der Skintiefe wird das Laserfeld abgeschirmt und verliert damit seine Wirkung auf die Elektronen. Diese bewegen sich dann mit der Geschwindigkeit, die sie im Vakuum gewonnen haben, tief ins Plasma hinein.

Die Geschwindigkeitsverteilung beim Eintritt ins Plasma hat prinzipiell die folgende Systematik: Elektronen, die früh ins Plasma zurückkehren, haben kleinere Geschwindigkeiten und Elektronen, die später ins Plasma eintreten, haben während ihres Aufenthaltes im Vakuum mehr Energie aufgenommen und deshalb höhere Geschwindigkeiten. Die Trajektorien der Elektronen kreuzen sich innerhalb der Plasmaschicht und führen zur Bildung von Elektronenpaketen. Dabei hängt die Anzahl der Elektronen und die Geschwindigkeit des Paketes von der Intensität des treibenden Lasers ab.

Das Elektronenpaket trifft etwa senkrecht auf die Plasmaoberfläche und kann in einer vereinfachten Näherung und im eindimensionalen Fall als Punktladung angesehen werden, die sich mit der Geschwindigkeit v_p in x-Richtung bewegt. Auf ihrem Weg werden im "Kielwasser" der Punktladung Plasmawellen mit der Frequenz ω_p angeregt [105, 84]. Das elektrische Feld hinter der Punktladung lässt sich im nichtrelativistischen Fall mit Hilfe der Elektronen-Fluid-Gleichung, der Kontinuitätsgleichung und der Maxwell-Gleichungen analytisch zu $E = -N e/\epsilon_0 \cos(\omega_p (t - t_0))$ berechnen. Dabei ist N die Anzahl der Ladungen im Elektronenpaket und t_0 der Zeitpunkt, in dem das Feld angeregt wird. In Dimensionen setzt sich der Anregungszeitpunkt aus zwei Komponenten $t_0 = t_1 + t_2$ zusammen (siehe Abb.: 2.2.2 (a)): der Zeit, die der Laser braucht um die Grenzfläche zu erreichen $t_1 = \frac{y}{c} \sin \theta$ und der Propagationszeit der Elektronen im Plasma $t_2 = x/v_p$. Ausgehend von einem exponentiellen Dichteverlauf $n_e(x) = n_0 \exp(x/L)$ ist die Plasmafrequenz nach Gleichung 2.1.20 proportional zu $\omega_p(x) \propto \exp(x/2L)$. In Abbildung 2.2.2 (b) ist das elektrische Feld, das in der Bugwelle der Elektronen (schwarz) angeregt wird, als Falschfarbendarstellung abgebildet.

Die angeregte Welle kann Licht abstrahlen, wenn das Plasma in tangentialer Richtung schwingt. Bei der Propagation eines Elektronenpaketes durch ein homogenes Plasma werden nur longitudinale Plasmawellen angeregt und deshalb kein Licht emittiert. Beim Durchlaufen eines inhomogenen Plasmas bekommt eine ursprünglich longitudinale Welle eine transversale Komponente und kann deshalb Licht emittieren. Dabei entspricht die maximale Frequenz der emittierten Strahlung

$$\omega_{max} = \omega_p^{max} = \omega_0 \sqrt{\frac{n_0}{n_{cr}}}$$
(2.2.1)

der maximalen Plasmafrequenz ω_p^{max} und ist somit durch die Elektronendichte des Festkörpersplasmas n_0 gegeben. Im Experiment wurde Quarzglas mit einer Elektronendichte von $n_0 \simeq 7 \cdot 10^{23} \,\mathrm{cm}^{-3}$ als Target verwendet. Damit ist die Dichte 400 mal größer als die kritische Dichte n_{cr} für 800 nm und die maximale Frequenz der emittierten Strahlung $\omega_{max} \simeq 20 \,\omega_0$. Im Experiment wurde diese Abhängigkeit von der Festkörperelektronendichte durch die maximal zu beobachtende Harmonische nachgewiesen.

Aus dieser experimentellen Beobachtung und den PIC-Simulationen lässt sich schlussfolgern, dass die Abstrahlung auf eine kurze Zeit während eines Laserzyklus begrenzt ist und durch die periodische Erzeugung als Harmonische sichtbar wird. Eine Erklärung der zeitlich begrenzten Emission kann aus Überlegungen zur Phasenanpassung hergeleitet werden [84]. Die Phase der Plasmawelle ist dabei durch $\phi(x, y, t) = \omega_p(x) (t - t_0)$ gegeben. Für das oben beschriebene exponentielle Plasmaprofil ergibt sich der folgende Wellenzahlvektor

$$\mathbf{k}_p = -\nabla\phi = -\nabla\left[e^{x/2L}\left(t - \frac{y}{x}\sin\theta - \frac{x}{v_p}\right)\right] = \omega_p(x)\cdot\left(\begin{array}{c}-\frac{1}{2L}\left(t - t_0\right) + \frac{1}{v_p}\\\frac{\sin\theta}{c}\end{array}\right).$$
 (2.2.2)



Abbildung 2.2.2: Plasmawellen und die Abstrahlung von XUV-Pulsen. (a) Die Brunel-Elektronen erreichen zum Zeitpunkt $t_0 = t_1 + t_2$ den Ort (x, y) in der Plasmaschicht. (b) In der Falschfarbendarstellung sieht man das elektrische Feld der Plasmawelle, das durch die Elektronen (schwarz) angeregt wird. Die gelbe Linie markiert die Zeitpunkte, in denen sich die Plasmawelle nur entlang der y-Achse ausbreitet $(k_x = 0)$. (c) Eine PIC-Simulation zeigt, dass hohe Frequenzkomponenten (grün: B_z für $7\omega_0 < \omega > 13\omega_0$) des XUV-Pulses zu diesen Zeitpunkten abgestrahlt werden [84].

Die Schwingungsrichtung der Welle ändert sich demnach in der Zeit. Zu den Zeitpunkten $t = \frac{2L}{v_p} + t_0$ verschwindet die *x*-Komponente des Vektors und die Welle schwingt nur in tangentialer Richtung. Die *y*-Komponente entspricht zu diesem Zeitpunkt genau dem Wellenvektor einer umkehrenden Lichtwelle der Frequenz ω_p , die den Dichtegradienten im Winkel θ verlässt [62, 48]. In Abbildung 2.2.2 (b) ist das Elektronenpaket als schwarzer Strich eingezeichnet. Die unterschiedlichen Frequenzen $\omega_p(x)$ werden in den entsprechenden Tiefen der Plamaschicht mit einer Verzögerung von $2L/v_p$ (gelbe Linie) abgestrahlt. In Abbildung 2.2.2 (c) ist das Resultat einer PIC-Simulation mit den Simulationsbedingungen (Feldstärke $a_0 = 0,07$, Einfallwinkel $\theta = 45^\circ$, Skalenlänge $L = \lambda_0/40$) dargestellt. Man sieht, dass pro Laserzyklus ein kurzer XUV-Puls (grün; B_z für $7\omega_0 < \omega > 13\omega_0$) aus dem Dichtegradienten emittiert wird. Eine genauere Untersuchung des Erzeugungsprozesses auf Grundlage der transversalen Ströme führt zu ähnlichen Ergebnissen [109].

Ohne zu sehr ins Detail zu gehen, sind im Folgenden die charakteristischen Eigenschaften der *Coherent Wake Emission* aufgeführt. Die optimale Skalenlänge für den Erzeugungsprozess liegt im Bereich von Bereich $L \simeq \lambda/100..\lambda/10$. Dabei ist ein minimaler Gradient notwendig, damit sich überhaupt Plasmawellen ausbilden können. Für ausge-

27



Abbildung 2.2.3: Spektrale Phase von CWE-Harmonischen. (a-c) Die unterschiedliche Emissionstiefe führt zum sogenannten Attochirp. (a) Dabei werden die verschiedenen Frequenzkomponenten bei unterschiedlichen Elektronendichten n_e und damit Tiefen Δx erzeugt. (b) Der resultierende Laufzeitunterschied im Zeitbereich verursacht eine Verlängerung der einzelnen Pulse. (c) Im Spektrum macht sich der Effekt durch eine leichte Veränderung der Einhüllenden bemerkbar. (d-f) Die Exkursionszeiten der Brunel-Elektronen führen zum negativen Chirp der Harmonischen. (d) Die Rückkehrzeit der Brunel-Elektronen hängt von der instantanen Intensität des Lasers ab. (e) Dies führt zu ungleichen zeitlichen Abständen zwischen den emittierten XUV-Pulsen. (f) Dieser Effekt hat im Spektrum eine Verbreiterung der Harmonischen-Linien zur Folge.

dehnte Vorplasmen ist stattdessen die zeitliche Entwicklung des Wellenvektors \mathbf{k}_p zu langsam für die Emission innerhalb eines Laserzyklus. Der Effekt setzt bei Intensitäten von $I \simeq 10^{15} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ ein und die Umwandlungseffizienz hängt bei moderaten Intensitäten $(a_0 = 0, 02..0, 2)$ linear von der Intensität des treibenden Lasers ab. Der optimale Einfallwinkel lässt sich einfach abschätzen, wenn man das elektrische Feld entlang der Normalen betrachtet. Beim schrägen Einfall ist die Intensität proportional zu $\cos \theta$ und dementsprechend das elektrische Feld $E \propto \sqrt{\cos \theta}$. Die x-Komponente des elektrischen Feldes ist dann $E_x = E_0 \sin \theta \propto \sin \theta \sqrt{\cos \theta}$. Daraus ergibt sich ein optimaler Winkel von $\theta \simeq 55^{\circ}$. Diese einfache Abschätzung wurde durch PIC-Simulationen bestätigt [109].

Im Rahmen der Erzeugung von CWE-Harmonischen gibt es zwei Effekte, die einen

Einfluss auf die zeitliche Phase der Harmonischen haben (siehe Abb.: 2.2.3). Die unterschiedliche Erzeugungstiefe führt dazu, dass die hohen Frequenzen später erzeugt werden und zudem noch länger brauchen, bis sie aus dem Plasma propagieren. Deshalb ist jeder einzelne XUV-Puls positiv gechirpt. Man spricht vom sogenannten Attochirp. Diese Terminologie wird auch bei den Gas-Harmonischen verwendet, bei denen ähnliche Effekte zu beobachten sind [117]. Der Attochirp führt dazu, dass die einzelnen Pulse länger sind als das Fourierlimit. Zudem beobachtet man noch einen Harmonischen-Chirp beim CWE-Prozess [83], der dadurch erklärt wird, dass die Aufenthaltszeit der Elektronen im Vakuum von der Intensität abhängt. Das führt dazu, dass der Abstand der emittierten Pulse nicht äquidistant ist. Man spricht vom "unequal spacing", das zu einem negativen Chirp innerhalb der Harmonischen führt. Im Spektrum ist es durch Verbreiterung der Spektrallinien zu beobachten [49].

Aufgrund der Beschränkung der maximale Frequenz durch die Elektronendichte und dem intrinsischen Attochirp ist der CWE-Prozess für die Erzeugung von Attosekundenpulsen nicht optimal geeignet. Die oben genannten Einschränkungen werden im relativistischen Fall aufgehoben, so dass dieses Regime für die Erzeugung von extrem kurzen XUV-Pulsen bevorzugt wird.

2.2.2 Relativistische Oberflächenharmonische

Die Bewegung der Elektronen im Laserfeld wird relativistisch, sobald Feldstärken von $a_0 > 1$ erreicht werden (siehe Abschnitt 2.1.1). Als Folge dessen wird die Erzeugung der XUV-Pulse durch relativistische Effekte dominiert. Die Bestimmung der Elektronendynamik ist dabei schwierig und analytisch nur näherungsweise möglich [65]. Eine tiefere Einsicht in die Prozesse liefert die Verwendung von PIC-Simulationen. Diese haben gezeigt, dass es bei der Wechselwirkung von hochintensiven Laserpulsen mit einer Plasmaoberfläche möglich ist, Attosekundenpulse zu erzeugen [16, 39, 65, 43, 9, 105, 35, 84]. Den ersten experimentellen Beweis für die Erzeugung von Attosekundenpulsen an Plasmaoberflächen haben XUV-Autokorrelationsmessungen geliefert [75].

Die einfachste Beschreibung der Harmonischenerzeugung geht davon aus, dass der Laserpuls an einer Vakuum-Plasma-Grenzschicht, die mit relativistischen Geschwindigkeiten schwingt, reflektiert wird [16, 65, 112]. Durch diese Erklärung wurde der Begriff des *Relativistic Oscillating Mirror (ROM)* geprägt. Dieses einfache Modell wurde im Laufe der Zeit immer weiter verfeinert und ausgebaut. Eine grundlegende Erweiterung des Modells
bildet der Ansatz von Baeva, Gordienko und Pukhov [9], nach dem universelle spektrale Eigenschaften für den normalen Einfall auf ein stufenförmiges Plasma bei ultrarelativistischen Intensitäten bestimmt werden können. Aus PIC-Simulationen wird aber deutlich, dass für realistische Bedingungen (schräger Einfall, ausgedehntes Vorplasma) die Ausgangsbedingung des ROM-Modells nicht erfüllt wird. Für diese Fälle lässt sich die Erzeugung der Harmonischen besser als Abstrahlung von Elektronen interpretieren, die gemeinsam vom Laserfeld aus der Plasma-Grenzschicht herausgerissen und anschließend umgelenkt werden. Diese Elektronenpakete strahlen bei der Beschleunigung ein breitbandiges Spektrum ab, man spricht deshalb auch von *Coherent Synchrotron Emission (CSE)* [5].

In diesem Abschnitt wird wegen des intuitiven Ansatzes zunächst das ROM-Modell eingeführt und die charakteristischen spektralen Eigenschaften vorgestellt. Anschließend werden die Grenzen dieser Beschreibung aufgezeigt und die Erzeugung der Harmonischen durch die Kohärente Synchrotron Strahlung von Elektronenpaketen kurz präsentiert. Zur besseren Einordnung werden die Abhängigkeiten von Intensität, Einfallwinkel und Skalenlänge bei realistischen Bedingungen abschließend vorgestellt.

Relativistisch oszillierender Spiegel

Die Beschreibung der Erzeugung von Harmonischen durch das ROM-Modell basiert, wie der Name sagt, auf der Reflektion an einer Oberfläche, die mit relativistischer Geschwindigkeit oszilliert. Hierbei wird angenommen, dass sich die Vakuum-Plasma-Grenzschicht als Ganzes bewegt und der einfallende Laser an dieser Grenzschicht reflektiert wird. Das einfallende elektrische Feld wird dabei zum Zeitpunkt t' an der Position $X_m(t')$ reflektiert, so dass der Beobachter die Welle aufgrund der Laufzeit zum Zeitpunkt $t = t' + X_m(t')/c$ sieht (siehe Abb.: 2.2.4 (a)). Das einfallende Feld hat den Beobachter bereits zum Zeitpunkt $t' - X_m(t')/c$ passiert. Unter Berücksichtigung des Phasensprungs bei der Reflektion besteht zwischen den beiden Feldern der folgende Zusammenhang

$$E_i(t' - X_m(t')/c) + E_r(t' + X_m(t')/c) = 0.$$
(2.2.3)

Diese Gleichung bildet die Basis für die Beschreibung der Erzeugung von Oberflächenharmonischen durch das ROM-Modell. Durch Vorgabe der Bewegung der Oberfläche lässt sich mit Hilfe dieser Gleichung das reflektierte Feld berechnen.

Zur Veranschaulichung des Modells wird hier die Berechnug von E_r für den senkrechten Einfall eines Lasers vorgestellt. Für diesen Fall kann man näherungsweise annehmen,



Abbildung 2.2.4: Prinzip des relativistisch oszillierenden Spiegels. (a) Das einfallende elektrische Feld E_i wird zur Zeit t' an einer Vakuum-Plasma-Grenzschicht reflektiert, so dass der Beobachter das Feld zum Zeitpunkt $t = t' + X_m(t')/c$ sieht. (b) Durch die Oszillation der Grenzfläche sind im reflektierten elektrischen Feld (rot) Modulationen zu sehen. (c) Das entsprechende Spektrum besteht aus Vielfachen der Grundfrequenz n, deren Intensität mit dem Potenzgesetz $I_n \propto \omega^{-8/3}$ abfällt. Zudem werden Harmonische generiert, die größer sind als die maximale Frequenz ω , die man bei der Reflektion an einem gleichmäßig bewegten Spiegel erwarten würde.

dass die Bewegung hauptsächlich durch die ponderomotorische Kraft bestimmt wird. Die Schwingung der Oberfläche kann dann durch $X_m = A_m \cos^2(\omega_0 t')$ beschrieben werden. Zur Abschätzung der Amplitude wird die maximale Geschwindigkeit durch die Lichtgeschwindigkeit ausgedrückt: $\dot{X}_m/c = A_m \omega_0/c$. Unter Verwendung des relativistischen Lorentzfaktors $\gamma = (1 - (\dot{x}/c)^2)^{-1/2}$ kann man die Amplitude im Laserfeld a_0 berechnen, wenn man zusätzlich noch die Beziehung $\gamma_{max} \simeq \sqrt{1 + a_0^2}$ verwendet [112]. Die Bewegung der Oberfläche kann somit näherungsweise durch

$$X_m(t') = \frac{c}{\omega_0} \frac{a_0}{\sqrt{1+a_0^2}} \cos^2\left(\omega_0 t'\right)$$
(2.2.4)

beschrieben werden. Die Oberfläche schwingt in diesem Fall mit der doppelten Laserfrequenz.

Für die Berechnung des reflektierten Feldes kann man Gleichung 2.2.3 umstellen und die Beziehung zwischen Beobachtungszeitpunkt und Reflektionszeitpunkt ($t = t' - X_m/c$)

30

einsetzen. Das reflektierte elektrische Feld kann dann mit

$$E_r(t) = -E_i\left(t - \frac{2X_m}{c}\right) = E_0(t)\sin\left[\omega_0\left(t - 2\frac{X_m(t')}{c}\right)\right]$$
(2.2.5)

berechnet werden. Für das einfallende Feld wurde dabei der Verlauf $E_i = -E_0(t) \sin(\omega_0 t)$ angenommen. Hierbei ist $E_0(t)$ die Einhüllende des Laserpulses. Die Bewegung der Oberfläche $X_m(t')$ führt grundsätzlich zu einer Beinflussung der Phase des reflektierten Feldes, während die Einhüllende $E_0(t)$ unverändert bleibt. Im Spektrum drückt sich diese Phasenmodulation in der Erzeugung von hohen Frequenzkomponenten aus.

In Abbildung 2.2.4 (b, c) sieht man das Ergebnis der Berechnung für einen Laser mit einem normierten Vektorpotential von $a_0 = 10$ und einer Einhüllenden $E_0(t) =$ $E_0 \exp \left| - \left(t/2T_0 \right)^2 \right|$. Das reflektierte Feld kann man bestimmen, indem man die implizite Gleichung 2.2.5 numerisch löst. Es ist zu sehen, dass die Phase der einfallende Welle (blau) durch die Reflektion an der oszillierenden Oberfläche moduliert wird (siehe Abb.: 2.2.4 (b)). Durch Fouriertransformation des reflektierten elektrischen Feldes erhält man das resultierende Spektrum (siehe Abb.: 2.2.4 (c)). Im Spektrum sind nur ungerade Harmonische der Laserfrequenz zu sehen, da die Bewegung der Oberfläche mit der doppelten Frequenz abläuft. Die Intensität der Harmonischen n folgt einem Potenzgesetz $I_n \propto (\omega_n/\omega_0)^{-q}$ mit einem Skalierungs-Exponent von q = 8/3 (blaue Linie).

Der spektrale Verlauf und die verhältnismäßig hohen Harmonischen werden im Rahmen einer allgemeiner gefassten Form des ROM-Modells von Baeva, Gordienko und Pukhov erklärt [9]. Ausgehend von Gleichung 2.2.3 wird durch diese Analyse gezeigt, dass die spektralen Eigenschaften der Oberflächenharmonischen im ultrarelativistischen Bereich $(a_0 \gg 1)$ nicht von der exakten Bewegung der reflektierenden Oberfläche abhängen. Das resultierende Spektrum kann durch die Anwendung der Methode der stationären Phase bestimmt werden. Es zeigt sich dabei, dass die Harmonischen emittiert werden, wenn der Lorentz-Faktor der Oberflächenbewegung ein Maximum aufweist. Diese γ -Spikes enstehen, wenn sich die Geschwindigkeit der Oberfläche der Lichtgeschwindigkeit annähert $(X_m \simeq c)$. Der spektrale Verlauf wird nur durch Bewegung der Oberfläche in diesem Zeitbereich bestimmt. Aus der analytischen Betrachtung ergeben sich die folgenden universelle Abhängigkeiten für die Intensität I_n und die cut-off Frequenz ω_{co} der Oberflächenharmonischen:

$$I_n \propto \left(\frac{\omega_n}{\omega_0}\right)^{-8/3}$$
 und $\omega_{co} \propto \omega_0 \gamma_{max}^3$. (2.2.6)



Abbildung 2.2.5: Relativistisch oszillierender Spiegel in PIC-Simulationen. (a) In der Falschfarbendarstellung der Elektronendichte (rot-schwarz) ist die geschlossene Bewegung der Oberflächenelektronen zu sehen. Die blauen Linien kennzeichnen die hohen Frequenzkomponenten des tangentialen Magnetfeldes (B_z für $\omega > 4 \omega_0$), die während eines kurzen Zeitraumes bei der Bewegung der Oberfläche in Richtung des Beobachters entstehen. (b) Die Harmonischen werden emittiert, wenn der transversale Strom (rot-blau) seine Richtung ändert. Es wurden die folgenden Simulationsparameter verwendet: $a_0 = 10$, senkrechter Einfall $\theta = 0$ und eine stufenförmige Plasmakante mit $n_e = 30 n_{cr}$.

Die Intensität der Harmonischen nimmt dabei potentiell mit der Frequenz ab und geht bei der cut-off Frequenz in einen exponentiellen Abfall über. Der Spezialfall aus Abbildung 2.2.4 (c) stimmt mit diesen allgemeinen Aussagen überein. Die universalen spektralen Eigenschaften wurden im Experiment mit vergleichsweise langen Pulsen ($\tau = 600$ fs) und ultrarelativistischen Intensitäten ($a_0 \simeq 10$) am VULCAN-Laser bestätigt [32, 34].

Durch den relativistischen Doppler-Effekt würde man bei der Reflektion an einem gleichförmig bewegten Spiegel maximal eine Frequenz von $\omega = \omega_0 (1 + \beta)/(1 - \beta) \simeq \omega_0 4 \gamma^2$ erwarten [36, 112]. Im Spektrum sind jedoch noch weit darüber hinaus Harmonische zu erkennen. Die Abweichung ist dadurch zu erklären, dass die reflektierende Oberfläche oszilliert und die hohen Frequenzen nur zu einem bestimmten Zeitpunkt emittiert werden [50]. Eine genauere Analyse zeigt, dass die Dauer der γ -Spikes und damit auch die Dauer der Emission hochfrequenter Spektralanteile durch $\Delta t_{\gamma} \simeq (a_0 \omega_0)^{-1}$ gegeben ist [9].

Die scharfe zeitliche Begrenzung der Emission der hohen Frequenzkomponenten kann man auch in numerischen Simulationen beobachten. In Abbildung 2.2.5 sind die Ergebnisse einer eindimensionalen PIC-Simulation für den senkrechten Einfall eines Laserpulses $(a_0 = 10)$ auf eine stufenförmige Vakuum-Plasma-Grenzfläche dargestellt. Die Falschfarbendarstellung der Elektronendichte in Abbildung 2.2.5 (a) zeigt die geschlossene Bewegung der Elektronen in Richtung des Beobachters. Durch Überlagerung mit den "Äquipotentiallinien" der hochfrequenten Anteile des tangentialen magnetischen Feldes (B_z für $\omega > 4 \omega_0$, blaue Linien) wird deutlich, dass die hohen Harmonischen in einem kurzem Zeitraum periodisch erzeugt werden. Im entsprechenden Spektrum werden die Vorhersagen aus Gleichung 2.2.6 bestätigt.

In Abbildung 2.2.5 (b) ist zusätzlich die entsprechende transversale Stromdichte \mathbf{j}_t als Falschfarbendarstellung (blau-rot) dargestellt. Damit soll hier aufgezeigt werden, dass die Ströme nach Gleichung 2.1.3 den Ursprung der elektromagnetischen Felder bilden. Die hohen Frequenzanteile (B_z für $\omega > 4\omega_0$, schwarze Linien) werden abgestrahlt, wenn der transversale Strom seine Richtung ändert. Zu diesem Zeitpunkt ist die zeitliche Änderung des erzeugten elektrischen Feldes maximal. Die schnelle zeitliche Änderung führt nach der Fouriertransformation zu den hohen Frequenzanteilen. Eine genauere Analyse bezüglich der transversalen Ströme bei der Erzeugung von relativistischen Harmonischen findet man in [109].

Die Vorhersagen des ROM-Modells lassen sich für die Beschreibung der Erzeugung von Oberflächenharmonischen bei sehr hohen Intensitäten $a_0 \gg 1$, dem senkrechten Einfall und einer stufenförmigen Vakuum-Plasma-Grenzfläche verwenden [5].

Kohärente Synchrotron Emission der Elektronenpakete

Die oben genannten Voraussetzungen lassen sich im Experiment allerdings nur schwer realisieren, da man zum Schutz des Lasersystems vor Rückreflexen einen schrägen Einfall wählt und der Kontrast derzeitiger Lasersysteme in der Regel nicht ausreicht, um eine Wechselwirkung mit einem stufenförmigen Plasma zu ermöglichen. Für realistische Bedingungen mit einem schrägen Einfall und ausgedehntem Vorplasma sieht man in den PIC-Simulationen nicht die Bewegung der gesamten Vakuum-Plasma-Grenzschicht, wie sie in Abbildung 2.2.5 näherungsweise zu sehen ist. Man erkennt vielmehr, dass die Elektronen an der Plasmaoberfläche komplizierte Trajektorien aufweisen.

Der Unterschied in der Plasmabewegung ist sehr deutlich in PIC-Simulationen zu sehen, wenn man für den gleichen Laserpuls ($a_0 = 60$) den Einfallwinkel θ oder die Vorplasmabedingungen ändert (siehe Abb.: 2.2.6). Bei einem senkrechten Einfall ($\theta = 0$) und einer stufenförmigen Plasmakante mit einer Elektronendichte von $N_e = 250 n_{cr}$ sieht man eine Bewegung der gesamten Oberfläche, bei der die ursprüngliche Stufe nur leicht deformiert



Abbildung 2.2.6: Vergleich zwischen ROM-Modell und der Coherent Synchrotron Emission. (a) Beim normalen Einfall eines Lasers ($a_0 = 60$) auf eine stufenförmige Vakuum-Plasma-Grenzfläche bewegt sich fast die gesamte Oberfläche in Richtung des Beobachters. (b) Für den schrägen Einfall auf ein ausgedehntes Vorplasma kann die Bildung von sehr dichten und extrem kurzen Elektronenpaketen beobachtet werden (siehe Einschub). Die zusammenhängende Bewegung des Elektronenpaketes führt zur Emission von Synchrotronstrahlung [5].

wird (siehe Abb.: 2.2.6 (a)). Für diesen Fall ist die Ausgangbedingung des ROM-Modells relativ gut erfüllt und das entsprechende Spektrum kann daher durch das Potenzgesetz mit q = 8/3 angenähert werden (siehe Abb.: 1 (a, b) in Referenz [5]). Es sind hingegen signifikante Änderungen zu beobachten, wenn man den Einfallwinkel ($\theta = 63^{\circ}$) und die Vorplasmabedingungen ($L = \lambda_0/3$ und $N_e = 95 n_{cr}$) ändert (siehe Abb.: 2.2.6 (b)). Es bildet sich ein sehr dichtes auf einige Nanometer begrenztes Elektronenpaket, welches die hohen Frequenzkomponenten emittiert, wenn die Elektronen ihre Richtung ändern. Für diesen Fall ist die Ausgangsbedingung des ROM-Modells verletzt und das resultierende Spektrum kann auch nicht mehr durch das Potenzgesetz mit q = 8/3 angenähert werden (siehe Abb.: 1 (a, b) in Referenz [5]).

Zudem beobachtet man in PIC-Simulationen eine Verletzung der Ausgangsbedingung des ROM-Modells aus Gleichung 2.2.3, da die maximale Amplitude des reflektierten elektrischen Feldes max (E_r) oft größer als die des einfallenden Lasers max (E_i) ist [5, 109]. In diesem Fall trifft die Beschreibung durch den relativistisch oszillierenden Spiegel nicht mehr zu, da es sich nicht mehr um eine reine Phasenmodulation handelt. Für einen schrägen Einfall und ausgedehnte Vorplasmen lässt sich der Erzeugungsprozess oft besser als die Emission von Synchrotronstrahlung durch Elektronenpakete erklären, die sich an der Plasmaoberfläche bilden und im Laserfeld beschleunigt werden. Dieser Prozess wird deshalb coherent synchrotron emission (CSE) genannt [5]. Das abgestrahlte Feld lässt sich dabei in einer Dimension analytisch berechen, indem man die Stromverteilung des Elektronenpaketes als $j(t,x) = j(t) f [x - x_{el}(t)]$ beschreibt. Während die Form des Pulses f(x) gleich bleibt, ändern sich der Strom j(t) und die Position des Elektronenpaketes $x_{el}(t)$ mit der Zeit. Das resultierende Spektrum erhält man wieder durch die Anwendung der mathematischen Methode der stationären Phase [3]. Die Spektren zeigen dabei je nach Bewegung des Elektronenpaketes einen langsameren Abfall als beim ROM-Modell.

Im Rahmen numerischer Untersuchungen hat sich gezeigt, dass man die Eigenschaften der emittierten Strahlung durch Veränderung der Vorplasmabedingungen, des Einfallwinkels und der Laserintensität signifikant steuern kann. Dabei liefert eine ausführliche Parametervariation unter derzeit im Experiment zugänglichen Bedingungen die folgenden Ergebnisse [109]:

- Intensitätsabhängigkeit: Für einen Einfallwinkel von $\theta = 45^{\circ}$ und eine relativ steile Plasmakante ($L = \lambda_0/20$) sieht man, dass die Intensität der einzelnen Harmonischen und die maximale Frequenz mit zunehmender Laserintensität ansteigt. Ab Laserintensitäten von $I \lambda_0^2 \simeq 3 \cdot 10^{21} \,\mathrm{W \, cm^{-2} \, \mu m^2}$ erreicht das Spektrum der Oberflächenharmonischen den ultrarelativistischen Grenzfall mit q = 8/3.
- Vorplasma-Abhängigkeit: Bei einem Einfallwinkel von $\theta = 45^{\circ}$ und einer moderaten Intensität von $I \lambda_0^2 = 2 \cdot 10^{19} \,\mathrm{W \, cm^{-2} \, \mu m^2}$ ist eine deutliche Abhängigkeit der Erzeugungseffizienz von der Skalenlänge zu beobachten. Die Erzeugung hoher Harmonischer wird mit größer werdender Skalenlänge immer effizienter und erreicht bei $L = \lambda_0/5$ ihr Maximum. Dies lässt sich anschaulich durch die elektrostatische Rückstellkraft der Plasma-Ionen erklären, die mit zunehmender Elektronendichte immer größer wird. Die Beschleunigung der Elektronen durch das Laserfeld wird so abgebremst und der maximale relativistische γ -Faktor reduziert.
- Winkelabhängigkeit: Für eine Skalenlänge von $L = \lambda_0/20$ und eine effektive Intensität von $I \lambda_0^2 = 2 (\cos \theta / \cos 45^\circ) \cdot 10^{19} \,\mathrm{W \, cm^{-2} \, \mu m^2}$ zeigt sich, dass der optimale Winkel für die effiziente Erzeugung von relativistischen Oberflächenharmonischen $\theta \simeq 55^\circ$ ist. Dieser Winkel entspricht auch dem optimalen Wert für die Erzeugung der CWE-Harmonischen (siehe Abschnitt 2.2.1). Anhand dessen wird deutlich, dass

beide Prozesse durch die Bildung von Elektronenpaketen durch den Brunel-Prozess bestimmt werden.

Es hat sich zudem im Rahmen der Beschreibung des Emissionsprozesses durch die *Coherent Synchrotron Emission* gezeigt, dass man durch Variation der Skalenlänge und der Intensität des Lasers den zeitlichen Verlauf der emittierten Attosekundenpulse entscheidend beeinflussen kann [5].

Im Rahmen dieser Arbeit wird der Einfluss der Vorplasmabedingungen auf den Erzeugungsprozess im relativistischen Regime experimentell untersucht. Dabei liegt das Augenmerk auf der Beobachtung der spektralen Struktur von Oberflächenharmonischen und deren Zusammenhang mit dem zeitlichen Verlauf des XUV-Pulszuges.

Kapitel 3

Laserquelle

Die Erzeugung extrem kurzer XUV-Pulse aus relativistischen Plasmen erfordert die Verwendung einer Laserquelle, die in der Lage ist, entsprechende Intensitäten mit ausreichendem Kontrast zu liefern. Um derartige Intensitäten zu erreichen, verwendet man derzeit üblicherweise die CPA-Technik (*chirped pulse amplification technique*) zur stufenweisen Verstärkung von kurzen Laserpulsen [101]. Bei dieser Technologie führt allerdings die verstärkte spontane Emission (*ASE, amplified spontaneous emission*) und die unkompensierte spektrale Phase zu einem zusätzlichen Untergrund und einer Abweichungen vom gewünschten Gaußschen Puls. Zusätzlich können durch die nicht perfekte Extinktion bei der Verwendung von Pockelszellen und Polarisatoren Vorpulse entstehen. Im Bereich der relativistischen Intensitäten bedeutet dies, dass schon die ASE ausreicht, um ein Vorplasma zu erzeugen und somit die Wechselwirkung mit dem Hauptpuls unter Umständen zu stören. Es hat sich gezeigt, dass die Vorplasmabedingungen insbesondere bei der Erzeugung von Oberflächenharmonischen eine entscheidende Rolle spielen [103, 109].

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels wird die CPA-Technik am Beispiel des ARCTURUS-Lasersystems erläutert. Mit diesem typischen CPA-System werden 100 TW Pulse mit einer Dauer von unter 30 fs erzeugt. Als Verstärkungsmedium wird Titan:Saphir verwendet. Der ARCTURUS-Laser unterscheidet sich im Wesentlichen nur durch Pulsdauer sowie Pulsenergie von den anderen Lasersystemen, die während der hier präsentierten Dissertation verwendet wurden. Die kontrollierte Unterdrückung des Untergrundes und eventuell auftretender Vorpulse ist Gegenstand des zweiten Abschnittes. Darin wird zunächst die Funktionsweise eines Plasmaspiegels erläutert und anschließend die technische Realisierung und Charakterisierung des verwendeten Einweg-Plasmaspiegels dargestellt [88].

3.1 Lasersystem

Durch die Entwicklung der CPA-Technik ist man seit einigen Jahren in der Lage, kurze Laserpulse auf relativistische Intensitäten zu verstärken. Dabei darf die Intensität:

$$I = \frac{E}{A\tau} \tag{3.1.1}$$

die Zerstörschwelle des verwendeten Materials nicht überschreiten. Um dies zu gewährleisten, muss bei der steigenden Energie E während der Verstärkung die Pulsdauer τ und die Querschnittsfläche A des Laserpulses entsprechend angepasst werden. Bei der CPA-Technik wird hierfür das in Abbildung 3.1.1 (a) dargestellte Prinzip verwendet. Zunächst wird ein ursprünglich kurzer Puls gestreckt, indem unterschiedliche Frequenzkomponenten verschiedene optische Wege laufen. Der gechirpte Puls passiert anschließend eine Verstärkerstufe in der er auf die gewünschte Energie verstärkt wird. Durch Kompensation der eingeführten Laufzeitunterschiede der Frequenzkomponenten wird der gechirpte Puls anschließend auf die ursprüngliche Länge komprimiert. Um die Zerstörschwelle der optischen Komponenten nicht zu überschreiten, muss auch der Durchmesser des Laserstrahls entsprechend vergrößert werden. Die Realisierung dieses Konzeptes hat es ermöglicht, energiereiche kurze Pulse zu erzeugen



Abbildung 3.1.1: Verstärkung mit der CPA-Technik. (a) Bei der CPA-Technik wird ein ursprünglich kurzer Puls zunächst gestreckt, anschließend verstärkt und zum Schluß wieder komprimiert. (b) Durch diese Technik ist es gelungen, die maximale Lichtintensität auf über $10^{18} \,\mathrm{W} \,\mathrm{cm}^{-2}$ zu steigern und damit das Feld der relativistischen Optik zu erreichen.



Abbildung 3.1.2: Schematische Darstellung des ARCTURUS-Lasersystems. Ausgehend vom Oszillator werden die Laserpulse mit einer Energie von 4,8 nJ unter Verwendung der CPA-Technik auf 1,8 J verstärkt. Gleichzeitig wird der Durchmesser des Strahls stufenweise von einigen Millimetern auf 8 cm vergrößert.

und damit die maximalen Intensitäten in den letzten 15 Jahren exponentiell zu steigern (siehe Abb.: 3.1.1 (b)).

Das ARCTURUS-Lasersystem am Institut für Laser- und Plasmaphysik der Heinrich-Heine-Universität basiert auf der zuvor beschriebenen CPA-Technik, bei der Titan:Saphir (Ti:Sa oder Ti⁺³:Al₂O₃) als aktives Medium verwendet wird. Zu Beginn liefert ein Ti:Sa-Oszillator (Femto Source Synergy, Femtolasers) Pulse mit einer Dauer von 23 fs und einer Energie von 4-5 nJ. Das Spektrum ist mit einer Bandbreite von 90 nm um die Zentralwellenlänge von 800 nm zentriert. Mit einer als Puls-Picker fungierenden Pockelszelle wird die ursprüngliche Repetitionsrate von 76 MHz auf die maximale Repetitionsrate des Systems von 10 Hz reduziert und in ein Booster-Modul eingekoppelt. Dort durchläuft der Puls einen Multipass-Verstärker in Kombination mit einem sättigbaren Absorber [51], um den durch die spontan verstärkte Emission verursachten Untergrund zu reduzieren und damit den Kontrast zu verbessern. Zur die weiteren Verstärkung werden die Pulse mit einem Öffner-Gitterstrecker zeitlich gestreckt [23]. Das von A. Öffner entwickelte Strecker-Konzept weist

KAPITEL 3. LASERQUELLE

	JETI	ARCTURUS	ATLAS
Standort	FSU Jena	HHU Düsseldorf	MPQ Garching
Energie vor Kompression / J	1.2	3	1.3
Pulsdauer / fs	80	28	45
Kontrast ASE	$8 \cdot 10^{-9}$	$3 \cdot 10^{-8}$	$1 \cdot 10^{-8}$
Vorpuls	10^{-5} bei -32,5 ps		

Tabelle 3.1: Zusammenfassende Auflistung der Parameter von den Lasersystemen, die im Rahmen dieser Arbeit verwendet wurden.

hier einen Streckungsfaktor von 9.5 ps/nm auf und streckt den Puls mit einer Bandbreite von 90 nm auf eine Pulsdauer von 850 ps.

Vor der Verstärkung durchläuft der Puls noch einen programmierbaren akusto-optischen Modulator (DAZZLER, Fastlight). Mit diesem Gerät kann die spektrale Phase des Laserpulses kontrolliert und damit die Gruppengeschwindigkeitsdispersion beim Durchgang durch das Lasersystem vorkompensiert werden [57]. Zur Verbreiterung des Spektrums durch Kompensation des gain narrowing wird zusätzlich ein programmierbarer akusto-optischer Verstärkungs-Kontrollfilter (MAZZLER, Amplitude Technologies) in den nachgelagerten regenerativen Verstärker eingesetzt. Die Kombination aus diesen beiden Elementen erlaubt die Optimierung der spektralen Breite und Phase des Laserpulses.

Im Anschluss wird der Puls stufenweise verstärkt. Der regenerative Verstärker besteht aus einem Resonator und Pockelszellen, die den Puls in den Resonator einkoppeln und nach Erreichen der maximalen Energie von etwa 0,5 mJ wieder auskoppeln. Außerdem wird durch den Resonator die Mode des Laserstrahls festgelegt. Wie bei allen verwendeten Verstärkern wird auch hier ein frequenzverdoppelter Neodym:YAG Festkörperlaser mit einer Zentralwellenlänge von 532 nm zum Pumpen des Ti:Sa Kristalls eingesetzt. Daraufhin passiert der Puls drei weitere Multi-Pass Verstärker und erreicht den Kompressor mit einer Energie von etwa 3 J. Zwischendurch wird der Durchmesser mit mehreren Teleskopen stufenweise auf 8 cm vergrößert. Der Ti:Sa Kristall des Hauptverstärkers ist zusätzlich kyrogen gekühlt, um die Bildung einer thermischen Linse zu unterdrücken.

Abschließend werden die frequenzabhängigen Laufzeitunterschiede des gechirpten Pulses durch einen Gitterkompressor kompensiert. Die Pulslänge wird dabei von 820ps auf 28 fs reduziert. Die Intensität des Pulses liegt dann im Bereich von 10^{12} W cm⁻² und reicht damit aus, um nichtlineare Prozesse (Ionisation und optischer Kerr-Effekt) in der Luft auszulösen, die zur Verformung des räumlichen und zeitlichen Strahlprofils führen. Die Kompression sowie die weitere Propagation des Laserpulses findet deshalb in einem Hochvakuum von 10^{-5} mbar statt. Der Kompressor besitzt eine Effizienz von ca. 60 %, so dass Pulse mit einer Energie von 1,8 J in die Beamline eingekoppelt und zur Experimentierkammer geführt werden.

Das ARCTURUS-Lasersystem steht als CPA-System mit Ti:Sa als aktivem Medium exemplarisch für alle Laser, die bei den hier präsentierten Experimenten verwendet wurden. Sowohl der am Institut für Optik- und Quantenelektronik stehende JETI (Jenaer Titan:Saphir Laser) als auch der am Max-Planck-Institut für Quantenoptik befindliche AT-LAS (Advanced Titanium:Sapphire Laser) basieren auf dem gleichen Konzept und unterscheiden sich im Wesentlichen durch unterschiedliche Pulsdauer und Energie. In Tabelle 3.1 sind die Parameter der verwendeten Lasersysteme zusammenfassend aufgelistet.

3.2 Kontrolle des Kontrastes mit einem Plasmaspiegel

Die Lasersysteme basieren alle auf der CPA-Technik und besitzen zusätzlich zum Hauptpuls einen ausgedehnten Untergrund und gegebenenfalls Vor- und Nachpulse. Bei relativistischen Intensitäten des Hauptpulses kann dabei der Untergrund ausreichen, um ein Vorplasma zu zünden, das entscheidenden Einfluss auf die Laser-Plasma-Wechselwirkung hat (siehe Kapitel 2.2). Zur Einordnung wurde der Begriff des Kontrastes eingeführt, der hier im Folgenden als Verhältnis zwischen der jeweiligen Intensität I(t) und der Spitzenintensität I_{max} definiert ist,

$$K(t) = \frac{I(t)}{I_{max}}.$$
 (3.2.1)

Für die Abweichung vom idealen femtosekunden Gauß-Puls gibt es je nach Zeitbereich unterschiedliche Gründe. Die Verstärkung der spontanen Emission setzt ein, sobald das aktive Medium gepumpt wird und dauert an, bis die Fluoreszenzzeit vorbei ist. Abhängig von der Kleinsignal-Verstärkung, dem Raumwinkel sowie der Fluoreszenzzeit sorgt die ASE für einen langsam variierenden Untergrund mit typischen Kontrastwerten von $K_{ASE} \cong 10^{-9}..10^{-7}$ im Zeitbereich von einigen hundert Pikosekunden. Eine nicht vollständige Kompensation der spektralen Phase verursacht eine kontinuierliche Verschlechterung des Kontrastes in Pikosekunden um den Hauptpuls. Zusätzlich können bei der Verstärkung Vor- und Nachpulse entstehen, die Kontrastwerte von $K_{VP} \cong 10^{-6}..10^{-4}$ haben können und 10 Nano- bis einige Pikosekunden um den Hauptpuls auftreten. Gründe dafür sind gegebenenfalls die nicht perfekte Extinktion beim Auskoppeln des Laserpulses mit einer Pockelszelle oder die Reflexion des Hauptpulses an unterschiedlichen Oberflächen. Alle drei Effekte können in einer Autokorrelationsspur der dritten Ordnung des JETI Lasers beobachtet werden (siehe Abb.: 3.2.2 (b)).

Zur Verbesserung des Pulskontrastes gibt es verschiedene Ansätze. Beispielsweise kann man die Dauer des ASE Untergrundes mit ultraschnellen Pockelszellen auf etwa 300 ps minimieren [56]. Auch die Verwendung von nichtlinearen Effekten, wie der Erzeugung der zweiten Harmonischen [71] oder die Verwendung der *Cross Polarized Wave (XPW)* Methode [24], ermöglichen die Verbesserung des Kontrastes.

In dieser Arbeit wurde zur Verbesserung des Kontrastes die Plasmaspiegel-Technik verwendet. Diese Methode wurde zuerst von Kapteyn et. al. [58] verwendet und fortlaufend verbessert und charakterisiert [29, 33]. Das Prinzip des Plasmaspiegels ist denkbar einfach: Der Laserpuls wird leicht auf eine Oberfläche fokussiert, so dass die Intensität des Untergrundes nicht ausreicht, um ein Plasma zu zünden: der Untergrund wird also transmittiert. Sobald die Intensität die Zerstörungschwelle von etwa $3 \cdot 10^{13}$ W cm⁻² übersteigt, wird die Oberfläche instantan ionisiert und der folgende Hauptpuls an der kritischen Dichte der Plasmaoberfläche reflektiert (siehe Abb.: 3.2.1 (a)). Der Plasmaspiegel fungiert somit als sub-Pikosekunden Schalter, der den Untergrund und mögliche Vorpulse vom Hauptpuls trennt. Die Kontrastverbesserung

$$\Delta K = \frac{R_{Plasma}}{R_T} \tag{3.2.2}$$

ist demnach als Verhältnis von der Reflektivität des Plasmas R_{Plasma} zur ursprünglichen Reflektivität des Plasmaspiegeltargets R_T gegeben [110]. Da die Reflektivität des Plasmas unabhängig von der Targetoberfläche ist, kann man die Kontrastverbesserung durch Variation der Reflektivität der Targetoberfläche kontrollieren.

Für die Realisierung des Plasmaspiegels wurde der in Abbildung 3.2.1 (b) skizzierte Einweg-Aufbau verwendet. Der Plasmaspiegel wurde von C. Rödel (Institut für Optik und Quantenelektronik, FSU Jena) aufgebaut und zwischenzeitlich im ARCTURUS-Lasersystem zwischen Kompressor und Experimentierkammer in die Beamline eingebaut [87, 88]. Bei diesem Plasmaspiegel wird der Strahl zunächst von einem Umlenkspiegel auf eine dielektrisch beschichtete off-axis Parabel (Space Optics Research Labs) mit einer Brennweite von 1,52 m gelenkt. Damit wird der Puls auf die Oberfläche des Plasmaspiegeltargets zu einem Durchmesser von 300 µm fokussiert. Die durchschnittliche Intensität auf der Oberfläche bewegt



Abbildung 3.2.1: Funktionsprinzip des Plasmaspiegels. (a) Die Intensität des Vorpulses reicht nicht aus, um ein Plasma an der Oberfläche des Targets zu erzeugen und der Untergrund wird transmittiert. Erst die Intensität der ansteigenden Flanke reicht aus, um ein Plasma zu zünden, das den Hauptpuls wie ein Spiegel reflektiert. (b) Für die beschriebenen Experimente wurde ein Einweg-Plasmaspiegel in die Beamline eingesetzt.

sich im Bereich von $10^{16} \,\mathrm{W\,cm^{-2}}$ und reicht somit aus, um auf der Oberfläche ein Plasma zu zünden. Anschließend wird der reflektierte Hauptpuls von einer baugleichen off-axis Parabel kollimiert und mit einem Umlenkspiegel zur Experimentierkammer geführt. Der Plasmaspiegelhalter befindet sich auf einer Positionierungseinheit, die mit 1 cm/s in der Ebene bewegt werden kann und deshalb mit einer Laserrepetitionsrate von bis zu 10 Hz betrieben werden.

Um die höchste Reflektivität des Plasmaspiegels zu erreichen, sollte ein zu starkes Aufheizen des Plasmas vermieden werden. Die Polarisationsebene des Lasers ist in der Beamline horizontal, so dass alle Optiken in p-Polarisation benutzt werden. Mit einem kleinen Einfallwinkel von 2° werden deshalb Absorptionsmechanismen wie Resonanzabsorption und Brunel-Heizen auf ein Minimum reduziert (siehe Kapitel 2.1.4.2). Trotzdem führt das Heizen des Plasmas in dem evaneszent abfallenden Feld innerhalb der Skintiefe der Plasmaflanke zu Verlusten bei der Reflektion des Lasers [90]. Die Untersuchung des Plasmaspiegels am JETI Laser hat gezeigt, dass die Reflektivität des Plasmas mit zunehmender Durchschnitts-intensität ansteigt und mit ca. 80 % bei einer Durchschnittsintensität von $2 \cdot 10^{16}$ W cm⁻² ihr Maximum erreicht (siehe Abb.: 3.2.2 (a)). Bei höheren Intensitäten nimmt die Reflektivität des Spiegels wieder ab, da ab diesem Wert die Erzeugung der zweiten Harmonischen immer effektiver wird [49]. Außerdem expandiert das Plasma schneller und die räumliche Phase des Pulses wird so stark verändert, dass die Fokussierbarkeit des reflektierten Pulses



Abbildung 3.2.2: Die Reflektivität des Plasmaspiegels hängt von der Intensität auf dem Target ab und erreicht mit 80 % ihr Maximum bei ca. $2 \cdot 10^{16} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ (a). Die Kontrastverbesserung wurde mit einem Autokorrelator 3. Ordnung gemessen. Unter Verwendung einer Antireflexschicht als Target lässt sich eine Verbesserung von drei Größenordnungen erreichen.

beeinträchtigt wird. Die Durchschnittsintensität wird durch Verfahren des Targets entlang der z-Achse auf einen Wert von etwa $10^{16} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ eingestellt.

Zur Charakterisierung der Kontrastverbesserung wurde die Autokorrelationsspur mit einem Autokorrelator 3. Ordnung (Sequoia, Amplitude Technologies) am JETI-Laser aufgenommen (siehe Abb.: 3.2.2 (b)). Im Sequoia wird die zweite Harmonische und die Fundamentale in einem Kristall überlagert [91]. Durch den Einsatz von Graufiltern in Kombination mit einem Photoelektronenvervielfacher lässt sich ein Operationsbereich von ca. elf Größenordnungen erreichen. Die aufgenommenen Autokorrelationsspuren bestätigen den Zusammenhang aus Gleichung 3.2.2. Es zeigt sich, dass die Verwendung einer Antireflexbeschichtung mit einer Reflektivität von 0,1~% zu einer Kontrastverbesserung um einen Faktor 1000 führt. Weitere Messungen mit anderen Plasmaspiegeltargets unterschiedlicher Reflektivität zeigen, bis hin zu wenigen ps vor dem Hauptpuls, ebenfalls die erwartete Kontrastverbesserung [87, 88]. Der Kontrast gleicht sich danach an den ursprünglichen Kontrast des Lasers an, weil die Zerstörschwelle des Materials überschritten und das Plasma gezündet wird. Um den Kontrast auch wenige Pikosekunden vor dem Hauptpuls zu verbessern, muss die spektrale Phase des Lasers optimiert werden. Der Plasmaspiegel eignet sich somit gut zur Unterdrückung des ASE Untergrundes sowie von Vorpulsen und wurde deshalb auch im Rahmen dieser Arbeit zur Optimierung des Kontrastes verwendet.

Kapitel 4

Vorplasma-Abhängigkeit der SHHG

Das Vorplasma spielt bei der Erzeugung von Oberflächenharmonischen aus relativistischen Festkörperplasmen (Suface High Harmonic Generation, SHHG) eine entscheidende Rolle. Ein Hauptziel dieser Arbeit ist die Quantifizierung des Einflusses für die relativistische SHHG und die Auffindung von Parametern zur Optimierung der Emission. Im Zuge der Untersuchung wurde das ARCTURUS-Lasersystem in Kombination mit dem Jenaer Plasmaspiegel für die Experimente verwendet. Das Vorplasma wurde hierbei durch die stufenweise Verbesserung des Kontrastes unter Verwendung unterschiedlicher Plasmaspiegeltargets gesteuert. Die Auswirkung auf die Erzeugung von Oberflächenharmonischen wurde anschließend mit einem abbildenden XUV-Spektrometer untersucht.

Im ersten Abschnitt dieses Kapitels werden der experimentelle Aufbau und die experimentellen Ergebnisse vorgestellt. Angefangen bei der Steuerung des Vorplasmas mit dem Plasmaspiegel werden sukzessive die einzelnen Komponenten sowie die Justage-Prozeduren beschrieben. Anschließend werden die experimentellen Beobachtungen vorgestellt. Hierbei zeigten sich für verschiedene Vorplasmaeinstellungen erhebliche Unterschiede in der Feinstruktur der harmonischen Linien. Durch Auswertung der Spektren und Vergleich mit Simulationen in Konbination mit einem analytischen Modell wird dieser Effekt im zweiten Abschnitt erklärt. Es zeigt sich dabei, dass man vom Spektrum auf die zeitliche Struktur des Attosekundenpulszuges und damit auf die Bewegung der Plasmaoberfläche schließen kann. Im letzten Abschnitt werden Möglichkeiten vorgestellt, wie man die Eigenschaften der emittierten Strahlung in Zukunft effektiv steuern kann.

4.1 Experiment

Die in diesem Kapitel vorgestellten experimentellen Untersuchungen wurden alle am ARC-TURUS Lasersystem durchgeführt. Dafür wurde der in Abbildung 4.1.1 (a) skizzierte Versuchsaufbau verwendet. Nach der Komprimierung wurde die räumliche Phase des Lasers mit einem adaptiven Spiegel verbessert. Durch Verformung der Oberfläche eines dielektrischen Spiegels mit Piezzoelementen wurden Störungen der räumlichen Phase ausgeglichen [113] und mit Hilfe eines Shack-Hartmann-Sensors kontrolliert [100]. Zur Steuerung des Kontrastes wurde der in Kapitel 3.2 beschriebene Plasmaspiegel in die Beamline eingesetzt. Durch die Verwendung unterschiedlich beschichteter Plasmaspiegeltargets konnte der Kontrast stufenweise geregelt werden. Anschließend wurde der Laserpuls über dielektrische Spiegel in die achteckige Experimentierkammer geführt. Hier wurde der Strahl mit einer f/2 off-axis Parabel auf eine FWHM-Größe von etwa 5 μ m² fokussiert. Die emittierte XUV-Strahlung wurde in spekulare Richtung emittiert und mit einem abbildenden Spektrometer [53] untersucht.

Zur Justage des Aufbaus wurden unterschiedliche Komponenten verwendet: Die Verkippung des Plasmaspiegels wurde mit einem Helium:Neon Justagelaser überprüft und gegebenenfalls korrigiert. Für die Untersuchung des Fokus wurde dessen Intensitätsprofil mit einem Mikroskop-Objektiv auf einer CCD-Kamera abgebildet und ausgewertet. Im Vorfeld der Messung wurde der Aufbau in der Experimentierkammer ebenfalls mit einem He:Ne Justagelaser eingerichtet. Zur Positionierung des Targets entlang der Laserausbreitungsrichtung wurde eine "Retro-Diagnostik" in Kombination mit einem Dosimeter verwendet.

Plasmaspiegel und Experimentierkammer wurden aus Gründen des Strahlenschutzes in einem Strahlenschutzraum untergebracht. Die Experimente werden von außen gesteuert, da das Betreten des Raumes während der Laserbetriebes verboten ist. In Abbildung 4.1.1 (b) ist ein Foto des experimentellen Aufbaus im Strahlen-Bunker des ILPP dargestellt.

In diesem Abschnitt werden die einzelnen Komponenten des Aufbaus angefangen von der Vorplasma-Steuerung bis zum Spektrometer sukzessive vorgestellt.



Abbildung 4.1.1: Übersichtsdarstellung des experimentellen Aufbaus: (a) Zur Kontrolle des Kontrastes passiert der komprimierte Laserpuls einen Einweg-Plasmaspiegel. In der Experimentierkammer wird der Laser mit einer f/2 off-axis Parabel auf ein Quarz-Target fokussiert. Die emittierten XUV-Pulse werden von einem abbildenden Spektrometer detektiert. (b) Laboransicht zum Zeitpunkt des Experimentes.



Abbildung 4.1.2: Kontrolle des Vorplasmas. (a) Der Plasmaspiegel ermöglicht eine stufenweise Verbesserung des ursprünglichen Kontrastes (schwarze Linie; Autokorrelation 3. Ordnung). Mit einem BK7-Substrat als Plasmaspiegeltarget lässt sich der Kontrast um Faktor 20 (blaue Linie, berechnet) und mit einer Antireflexbeschichtung um Faktor 750 (blaugrüne Linie, berechnet) verbessern. (b) Als Folge dessen wird die Elektronendichte beim Eintreffen des Hauptpulses immer steiler.

4.1.1 Steuerung des Vorplasmas

Die theoretische Untersuchung der Oberflächenharmonischen-Erzeugung hat gezeigt, dass die Form des Vorplasmas den Prozess entscheidend beeinflusst (siehe Abschnitt 2.2). Durch kontrolliertes Heizen des Targets kann die Expansion bzw. die Form des Vorplasmas vor der eigentlichen Wechselwirkung mit dem Hauptpuls gesteuert werden. Zur Erzeugung eines definierten Vorplasmas steuert man in der Regel den Zeitabstand zwischen einem definierten Vorpuls und dem nachfolgenden Hauptpuls, da die Skalenlänge näherungsweise von der Expansionszeit abhängt (siehe Gleichung 2.1.26). Für die technische Realisierung kann man mit einem Beamsplitter einen Vorpuls abspalten und mit einer Delayline einen bestimmten Zeitabstand einstellen [70]. Ebenfalls möglich ist eine definierte Änderung der spektralen Phase mit einem DAZZLER, die im Zeitbereich zu einem Vorpuls führen kann [118]. Beide Techniken sind jedoch nur praktikabel, wenn der ursprüngliche Laserpuls bereits ausreichenden Kontrast besitzt, um Beeinträchtigungen der Wechselwirkung durch den Untergrund des Hauptpulses zu vermeiden.

Der ursprüngliche Kontrast des ARCTURUS-Lasersystems führt zu einer Skalenlänge von $L \simeq 850$ nm (siehe rote Linie in Abb.: 4.1.2). Bei einem derart flachem Vorplasma ist nicht mehr mit einer kontrollierten Anregung von Oberflächenharmonischen zu rechnen. Deshalb wurde der in Kapitel 3.2 vorgestellte Einweg-Plasmaspiegel in die Beamline eingesetzt. Der Kontrast wurde dabei durch Verwendung von Plasmaspiegeltargets mit unterschiedlicher Reflektivität geregelt. Bei diesem Experiment wurden zwei unterschiedliche Plasmaspiegeltargets verwendet, ein unbeschichtetes BK7-Glassubstrat mit einer Reflektivität von $R_{BK7} = 4\%$ und eine Multilayer-Antireflexbeschichtung mit einer Reflektivität von $R_{AR} \simeq 0, 1\%$. Nach Gleichung 3.2.2 führen diese Oberflächen zu einer Verbesserung des ursprünglichen ASE Kontrastes von $K_0^{ASE} = 3 \cdot 10^{-8}$ auf einen Wert von $K_{BK7}^{ASE} \simeq 1, 5 \cdot 10^{-9}$ mit dem BK7-Target und auf einen Wert von $K_{AR}^{ASE} \simeq 3, 5 \cdot 10^{-11}$ mit der Antireflexbeschichtung (siehe Abb.: 4.1.2 (a)). Der Plasmaspiegel ermöglicht damit eine Kontrastverbesserung um etwa drei Größenordnungen.

Die Auswirkung der Kontrastverbesserung auf die Bildung des Vorplasmas kann man mit dem MULTI-fs Programm [86] numerisch abschätzen. Dabei handelt es sich um ein Programm, das die Entwicklung von makroskopischen Plasmaeigenschaften bei der Wechselwirkung von Laserpulsen mit Materie mit Methoden der Plasma-Hydrodynamik berechnen kann. Verwendet man für den eintreffenden Laserpuls den in Abbildung 4.1.2 (a) dargestellten Kontrastverlauf als Eingabeparameter, so berechnet MULTI-fs unter anderem die Elektronendichte zum Zeitpunkt der Ankunft des Hauptpulses. Wie man in Abbildung 4.1.2 (b) sieht, hat die Kontrastverbesserung einen großen Einfluss auf die Expansion des Plasmas. Es entsteht ein doppelexponentieller Dichteverlauf, der auf unterschiedliche Elektronentemperaturen zwischen unter- und überkritischem Bereich zurückzuführen ist. An der kritischen Dichte ändert sich in diesem Fall die ursprüngliche Skalenlänge von $L_0 = 840$ nm über $L_{BK7} = 310$ nm für das BK7-Substrat bis hin zu $L_{AR} = 60$ nm für den besten Kontrast mit Antireflexbeschichtung als Plasmaspiegeltarget.

Diese Werte stellen eine Abschätzung für die Skalenlänge dar, da man je nach Kontrastverlauf und angenommener maximaler Intensität unterschiedliche Resultate für die Skalenlänge erhält. Eine Variation der Parameter zeigt, dass die Skalenlänge für den mittleren Kontrast im Bereich von $L_{BK7} = 200...400$ nm und für den hohen Kontrast im Bereich von $L_{AR} = 50...90$ nm liegt. Diese Werte wurden im Rahmen einer Absorptionsmessung, die unter gleichen Bedingungen durchgeführt wurde, verifiziert.

4.1.2 Optische Justage und Fokusdiagnostik

Die Justage des experimentellen Aufbaus und die Charakterisierung des Fokus wird in diesem Abschnitt schrittweise vorgestellt. Der Aufbau wurde im Vorfeld optisch mit Hilfe des



Abbildung 4.1.3: Justage der Targetposition. (a) Im ersten Schritt wird die Targetposition optisch mit Hilfe des vom Target zurückgestreuten Lichtes justiert. (b) Zur feineren Justage wird das Target in die Position mit der maximalen Strahlendosis gefahren. Diese wird mit einem Dosimeter gemessen und erlaubt eine Positionierungsgenauigkeit von wenigen Mikrometern.

zweiten He:Ne Justagelasers positioniert. Der He:Ne Justagelaser II hatte in der Kammer denselben Strahlengang wie der Ti:Sa Laser und wurde deshalb verwendet, um die Parabel sowie das Target richtig zu positionieren. Dabei lief der Strahl horizontal durch die Kammer und wurde im Zentrum fokussiert. Außerdem wurde mit dem Laser die Verkippung des Targets so eingestellt, dass der spekulare Reflex von der Oberfläche in die Apertur des Spektrometers fiel.

Um die maximale Intensität für die Erzeugung relativistischer Oberflächenharmonischen zu gewährleisten, wurde die Targetoberfläche genau im Fokus des Ti:Sa Lasers positioniert. Für die erste Justage wurde die in Abbildung 4.1.3 (a) dargestellte Retro-Optik verwendet [72]. Dabei wird das Streulicht vom speziell aufgerauten Teil der Targetoberfläche durch die Parabel kollimiert und läuft auf dem Weg des Lasers zurück. Am dielektrischen Umlenkspiegel in Topf 1 wird ein Bruchteil des Lichtes (0,1 %) transmittiert. Dieses passiert dann den dahinterliegenden Beamsplitter und wird anschließend mit einer Linse auf eine CCD-Kamera fokussiert (siehe zusätzlich Abb.: 4.1.1 (a)). Die Aufnahme des gestreuten Lasers ist am kleinsten, wenn sich die Targetoberfläche im Fokus befindet. Durch den äußeren Druck verzieht sich die Beamline ein wenig beim Evakuieren der Experimentierkammer, so dass diese Retro-Diagnose im Vakuum nochmals wiederholt werden musste. Die Positio-



Abbildung 4.1.4: Charakterisierung des Fokusses. (a) Die Fokusebene wird mit einem Mikroskopobjektiv abgebildet und mit einer CCD-Kamera aufgenommen. (b) Innerhalb des FWHM-Radius von 1,2 µm befinden sich 25 % der Energie. Die durchschnittliche Intensität in diesem Bereich beträgt somit $1, 4 \cdot 10^{20}$ W cm⁻².

nierung mit der Retro-Diagnostik hat eine Genauigkeit von etwa 100 µm und ist bei einer Rayleighlänge von etwa 15-20 µm nicht exakt genug. Deshalb wurde während des Experimentes bei voller Energie die Strahlendosis pro Schuss mit einem Dosimeter (RAMION, ROTEM) gemessen. Trägt man die Dosis pro Schuss über die Targetposition auf, so lässt sich die Fokusposition auf wenige Mikrometer bestimmen (siehe Abb.: 4.1.3(b)). Bei voller Energie können nichtlineare Effekte auftreten, die die Lage des Fokusses verschieben. Es sind vor allem die Bildung einer thermischen Linse im letzten Verstärker oder die Reflektion an der gekrümmten Plasmaoberfläche im Plasmaspiegel, die zu Veränderungen führen. Weil die Messung bei voller Energie durchgeführt wird, ist diese Methode unabhängig von diesen Effekten.

Zur Bestimmung der Intensität wurde zunächst die Form des Fokusses festgestellt, indem man die Fokusebene mit einem Mikroskopobjektiv (Mitutoyo, M Plan Abo 10x) auf einer CCD-Kamera vergrößert abgebildet hat. Dafür wurde der Justage-Modus mit einer Energie von 20 µJ verwendet. In Abbildung 4.1.4 (a) ist die typische Struktur des Fokusses zu sehen. Für die weitere Auswertung wird zunächst das radiale Profil um das Maximum $\Phi(r)$ bestimmt (schwarze Punkte in Abb.: 4.1.4 (b)). Es ähnelt einem Airy-Muster, das sich theoretisch beim Fokussieren eines Flat-Top-Laserprofils ergeben sollte. Die zentrale Region kann durch eine Gaußsche Glockenkurve mit einem FWHM-Radius von $w_{\frac{1}{2}} = 1,19\,\mu\text{m}$ gefittet werden. Damit hat der Fokus eine FWHM-Fläche von $A_{\frac{1}{2}} = 4,5 \,\mu\text{m}^2$. Der q-Faktor

$$q(r) = \frac{\int_0^r \Phi(r) \, 2\pi \, r \, dr}{\int_0^\infty \Phi(r) \, 2\pi \, r \, dr} \tag{4.1.1}$$

gibt den Anteil der Energie an, die durch den Radius r eingekreist wird. In Abbildung 4.1.4 (b) ist q(r) durch blaue Punkte dargestellt. Man sieht, dass sich innerhalb des Radis $w_{\frac{1}{2}}$ etwa 25 % der Energie befinden. Im Experiment wurde die gesamte Energie für jeden Schuss aufgezeichnet, indem man die transmittierte Energie an Topf 1 gemessen hat (siehe Abb.: 4.1.1). Dieser Messkopf wurde im Vorfeld der Messung mit einem thermischen Energiemesskopf innerhalb der Kammer kreuzkalibriert. Während der Messung ist so eine Energie von $E \simeq 700 \,\mathrm{mJ}$ mit einer Schwankung um 5 % gemessen worden. Damit lässt sich die mittlere Intensität innerhalb des FWHM-Radius nach

$$I_{\frac{1}{2}} = \frac{q(w_{\frac{1}{2}})E}{A_{\frac{1}{2}}\tau} = \frac{0,25\cdot0,7J}{4,5\mu^2\cdot28fs} = 1,38\cdot10^{20} W \,\mathrm{cm}^{-2}$$
(4.1.2)

berechen. Dabei ist τ die Pulsdauer des Laserpulses.

Man muss allerdings noch berücksichtigen, dass die Targetoberfläche in einem Einfallwinkel von 45° getroffen wird. Die effektive Intensität auf dem Target ist deshalb um den Faktor $\sqrt{2}$ kleiner. Es ergegibt sich damit folgende effektive Intensität:

$$I_{\frac{1}{2}}^{eff} = 9,87 \cdot 10^{19} \, W \, \mathrm{cm}^{-2}. \tag{4.1.3}$$

Auf der Targetoberfläche werden Intensitäten mit einem entsprechenden maximalen normalisierten Vektorpotential von $a_0 \approx 7$ erzeugt. Man befindet sich somit eindeutig im relativistischen Regime und kann also davon ausgehen, dass die Erzeugung der XUV-Strahlung durch relativistische Prozesse dominiert wird.

4.1.3 Spektrometer

Zur Detektion der emittierten XUV-Strahlung wurde ein abbildendes Spektrometer verwendent, das bis auf einige kleine Modifikationen auf dem Aufbau von Jasny et. al. basiert [53]. Dabei wird die XUV-Quelle mit einem Toroidspiegel durch ein Transmissionsgitter auf die XUV-Kamera Eins zu Eins abgebildet (siehe Abb.: 4.1.5). Zudem wird keine Spalt- oder Lochblende benötigt, weil die Quellgröße ohnehin schon kleiner als 15 µm ist.



Abbildung 4.1.5: Zur Detektion der Oberflächenharmonischen wurde ein abbildendes Spektrometer verwendet. Die in spekulare Richtung emittierte XUV-Strahlung wurde mit einem nickelbeschichteten Toroidspiegel Eins zu Eins auf die Oberfläche einer CCD-Kamera abgebildet. Es wurde ein Transmissionsgitter (1000 Linien/mm) zur Aufspaltung der spektralen Komponenten verwendet. Für die Abschirmung der Fundamentalen wurden zwei 200 nm dicke Aluminiumfilter verwendet.

Der nickelbeschichtete Spiegel besteht aus einer doppelt gekrümmten Oberfläche mit den Krümmungsradien $R_1 = 24, 1 \text{ mm}$ sowie $R_2 = 5375, 3 \text{ mm}$ und besitzt eine effektiv verwendete Fläche von $20 \times 81 \text{ mm}$. Er wurde in der Mitte in einem Einfallwinkel von 3° und einem Abstand von d = 360 mm getroffen. Der Spiegel wurde aufgrund der Konstruktion nicht komplett ausgeleuchtet, so dass im Experiment ein Raumwinkel von $\Omega \simeq 4 \cdot 10^{-4} \text{ sr}$ abgebildet wurde. Zur Aufspaltung der spektralen Komponenten wurde ein Transmissionsgitter mit 1000 Linien/mm in einem Abstand von 260 mm vor der Kamera positioniert. Die spektral aufgespaltete XUV-Strahlung wurde anschließend auf die $6,35 \times 25,4 \text{ mm}$ große Chip-Oberfläche der CCD-Kamera (DO420-BN, Andor Technology) fokussiert. Es wurden zwei 200 nm dicke Aluminiumfolien mit einem Durchmesser von 10 mm zur Abschirmung der intensiven Infrarotstrahlung des Lasers verwendet. Außerdem konnte die nullte Ordnung mit einem Kupferkeil zustäzlich abgeblockt werden.

Toroid, Gitter und Kamera sind starr miteinander auf einer Linie verbunden. Der gesamte Aufbau befindet sich in einem Gehäuse, das mit einem Balg an die Targetkammer angeschlossen ist und durch Mikrometerschrauben im Raum bewegt werden kann. Für die Justage wurde das Aluminiumfilter aus dem Strahlengang gefahren und der abgeschwächte Laser auf die Targetoberfläche fokussiert. Das reflektierte Licht ist mit dem Toroidspiegel auf die Kamera abbgebildet worden und der gesamte Aufbau wurde so lange verfahren, bis



Abbildung 4.1.6: Spektrale Effizienz des Spektrometers. (a) Die spektrale Effizienz setzt sich aus der Reflektivität des Nickelspiegels, der Transmission von zwei 200 nm dicken Aluminiumfiltern, der Quanteneffizienz der Kamera und der Effizienz des Transmissionsgitters zusammen. (b) Der spektrale Beobachtungsbereich reicht demnach von 17,1 nm bis etwa 80 nm.

die Abbildung des Fokus die minimale Größe von 2-3 Pixeln erreicht hatte. In diesem Fall liegt der Fokus des Spektrometers im Quellpunkt der XUV-Strahlung. Die Auflösung des Spektrometers ist maßgeblich duch die Fokusgröße definiert. Die Kalibrierung des Spektrometers zeigt eine Steigung von $\frac{\Delta\lambda}{\Delta Pixel} = 0,093 \,\mathrm{nm/Pixel}$ und somit eine Auflösung von etwa $\Delta\lambda \simeq 0,23 \,\mathrm{nm}$ (siehe Anhang A). Mit dem verwendeten Transmissionsgitter kann man damit prinzipiell noch halbzahlig Harmonische zwischen der 41. und 42. Harmonischen ($\Delta\lambda_{41} = \lambda_{41} - \lambda_{42} = 0,46 \,\mathrm{nm}$) auflösen. Um höhere Harmonische auflösen zu können, muss das Gitter durch ein anderes Transmissionsgitter mit einer kleineren Gitterkonstante ausgetauscht werden. Die Verzerrung durch die Bildfeldwölbung auf der ebenen Fläche des Kamerachips ist kleiner als ein Pixel und kann deshalb außer Betracht gelassen werden [48].

Um die Anzahl der detektierten Photonen bestimmen zu könnnen, wurde im Rahmen dieser Arbeit die spektrale Effizienz des Spektrometers mit Hilfe von Gas-Harmonischen bestimmt. In Anhang A wird die separate Kalibrierung der einzelnen Komponenten beschrieben. Dabei zeigt ein Vergleich der gemessenen Transmission mit Tabellenwerten [46], dass die 200 nm dicken Aluminiumfolien von beiden Seiten mit etwa 10 nm dicken Aluminiumoxidschichten überzogen sind. Die entsprechende Transmission ist in Abbildung 4.1.6 (a) als schwarze Kurve zu sehen. Der nickelbeschichtete Toroidspiegel hat in einem Einfallwinkel von 3° eine r.m.s-Rauigkeit von 5 nm und demnach eine Reflektivität von etwa 80 %. Für die Quanteneffizienz der XUV-Kamera werden die Herstellerangaben verwendet. Im Wellenlängenbereich von 20 bis 40 nm werden vom Gitter 5 % des einfallenden Lichtes in die erste Ordnung gebeugt. Die Gesamteffizienz wird durch Multiplikation der Einzeleffizienzen bestimmt und hängt hauptsächlich von der Transmission der Al-Folie ab (siehe Abbildung 4.1.6 (b)). Der beobachtbare Spektralbereich wird zudem durch den Rand der Kamera beschränkt und reicht von der Aluminium L-Kante bei 17,1 nm bis etwa 56 nm.

4.2 Aufgenommene Spektren

In Abbildung 4.2.1 (a) sind exemplarisch die unbearbeiteten Aufnahmen der beiden Kontrasteinstellungen und des Untergrundes dargestellt. Aus diesen Aufnahmen lassen sich die zeitlich integrierten Spektren der emittierten Strahlung extrahieren.

Für die spektrale Kalibrierung werden für alle Aufnahmen die markante erste Ordnung der Aluminium L-Kante bei 17,1 nm sowie die schwächere dritte Ordnung der Aluminium L-Kante bei 53,1 nm verwendet. Dies ist notwendig, weil innerhalb des Bereichs keine charakteristischen Linien zu erkennen sind und es möglich ist, dass die Harmonischen Doppler verschoben sind. Im spektralen Bereich zwischen den beiden Kanten kann der Beitrag der zweiten Beugungsordnung des Gitters vernachlässigt werden, da dieser um eine Größenordnung kleiner ist (absolute Effizienz des Gitters in dem betrachteten Spektralbereich: 4,5 % für die erste, 0,037 % für die zweite und 0,44 % für die dritte Ordnung). Außerdem sind höher frequente Beiträge ($\lambda < 17, 1 \text{ nm}$) der 3. Ordnung so schwach, dass sie ebenfalls vernachlässigt werden können.

Innerhalb des Spektralbereiches von 17,1 bis 53,1 nm lässt sich somit die spektrale Energieverteilung ohne weitere Korrekturen nur durch die Berücksichtigung der spektralen Effizienz des Spektrometers bestimmen. Dafür wird durch vertikales Aufsummieren der Pixelwerte aus der Kameraaufnahme die Anzahl der detektierten Counts N_c pro Pixel in Dispersionsrichtung ermittelt. Im Vorfeld muss allerdings der durch den Dunkelstrom verursachte Untergrund abgezogen werden. Das Ergebnis der Summation für die Beispielspektren der beiden Kontrasteinstellungen ist in Abbildung 4.2.1 (b) zu sehen. Für die Berechnug der detektierten Energie ist es notwendig, die Energie zu kennen, die benötigt wird, um einen Count zu registrieren: $\varepsilon = \text{Gain} \cdot E_{e^-e^+} = 3, 2 \cdot 3, 65 \text{ eV} = 12, 775 \frac{\text{eV}}{\text{Count}}$. Dabei ist der Gain bei der verwendeten Ausleseeinstellung durch den Hersteller gegeben und $E_{e^-e^+}$ die Energie, die benötigt wird, um im Halbleitermaterial ein Elektron-Loch-Paar zu erzeugen [20].



Abbildung 4.2.1: Rohdaten des Spektrometers. (a) In den zeitlich integrierten Aufnahmen der XUV-Kamera sind relativistische Harmonische über dem CWE cut-off zu sehen. (b) Zwischen den unterschiedlichen Vorplasmaeinstellungen zeigen sich erhebliche Unterschiede in der Struktur und der Einhüllenden der harmonischen Linien.

Demnach ist die Energie ΔE pro Wellenlängenbereich $\Delta \lambda$ durch

$$\frac{\Delta E}{\Delta \lambda} = \varepsilon N \frac{1}{\Delta \lambda} = \frac{N_c}{\eta} \frac{12,775 \,\mathrm{eV}}{0,0932 \,\mathrm{nm}} = \frac{N_c}{\eta} \cdot 2, 2 \cdot 10^{-17} \,\frac{\mathrm{J}}{\mathrm{nm}} \tag{4.2.1}$$

gegeben. Hierbei muss allerdings noch die spektrale Effizienz des Spektrometers η berücksichtigt und die Anzahl von detektierten Counts entsprechend $N = N_c/\eta$ korrigiert werden. Außerdem muss die spektrale Breite eines Pixels als $\Delta \lambda = 0,093$ nm berücksichtigt werden. Für die Umrechnung in die Frequenz wird die bekannten Beziehung $c = \nu \cdot \lambda$ verwendet. Der Frequenzbereich, auf dem sich die Energie verteilt, ändert sich somit mit der Wellenlänge $\Delta v = \frac{c}{\lambda^2} \Delta \lambda$. Die Energie pro Frequenzbereich $\Delta \nu$ ist damit durch

$$\frac{\Delta E}{\Delta \nu} = \frac{\lambda^2}{c} \frac{\Delta E}{\Delta \lambda} = \lambda^2 \frac{N_c}{\eta} 7, 3 \cdot 10^{-17} \frac{\mathrm{J}}{\mathrm{m}^2 \,\mathrm{Hz}} = \lambda^2 \frac{N_c}{\eta} 2, 74 \cdot 10^{-12} \frac{1}{\mathrm{nm}^2} \frac{\mathrm{nJ}}{0, 1 \cdot \nu_0} \quad (4.2.2)$$

gegeben. Aus der Spektrometereffizienz η in Abbildung 4.1.6 (b) und der Anzahl der detektierten Counts N_c in Abbildung 4.2.1 (b) lässt sich damit die spektrale Energieverteilung berechnen. In Abbildung 4.2.2 (a) sind die resultierenden Energien dargestellt, die in einem Raumwinkel von $\Omega \simeq 0,4 \,\mathrm{msr}$ für die Beispielspektren gemessen wurden.



Abbildung 4.2.2: Spektrale Energieverteilung. (a) Während man bei hohem Kontrast (AR-Beschichtung) scharfe Linien sieht, sind die Harmonischen bei mittlerem Kontrast (BK7-Substrat) breiter, rotverschoben und moduliert. (b) Die Mittelwerte mehrerer Spektren zeigen, dass höhere Ordnungen bei mittlerem Kontrast um ein Vielfaches besser erzeugt werden.

Der Untergrund wurde bei einer leichten Dejustage des Aufbaus aufgenommen. Grundsätzlich kann es sich dabei um Schwarzkörperstrahlung des Plasmas und eventuell vorhandene charakteristische Linienstrahlung von Ionenübergängen handeln, die in den gesamten Halbraum abgestrahlt werden [6]. Im beobachteten Spektralbereich sind keine signifikanten charakteristischen Linien zu erkennen und die spektrale Energieverteilung ist für den betrachteten Spektralbereich mit einem Wert von 0,4 $\frac{nJ}{0,1\nu_0\cdot 0,4msr}$ annähernd konstant (siehe Abb.: 4.2.2 (a)). Dieser Wert kann überprüft werden, indem man die Schwarzkörperstrahlung mit realistischen Annahmen abschätzt. Im thermischen Gleichgewicht strahlt ein Plasma der Fläche $A_q~=~50\,\mu\mathrm{m}^2$ mit einer Elektronentemperatur von $T_e~=~2\,\mathrm{keV}$ in einem Zeitraum von 20 ps im Bereich der 20. Harmonischen ($\nu = 20 \nu_0$) in den Raumwinkel $\Omega = 4 \cdot 10^{-4}$ sr eine Energie von $\Delta E/\Delta \nu \simeq 5 \simeq 10^{-25}$ J/Hz ab. Dieser Wert ist vergleichbar mit dem Untergrund, der im Experiment für diesen Raumwinkel gemessen wurde $(\Delta E/\Delta \lambda \simeq 10^{-23} \,\mathrm{J/Hz})$. Für ein lasererzeugtes Plasma ist die Übereinstimmung ausreichend, da man im Experiment - weder zeitlich noch räumlich - von einem thermischen Gleichgewicht ausgehen kann (siehe Abschnitt 2.1.4). Das beobachtete Plasmaleuchten wird demnach als Schwarzkörperstrahlung durch die heißen Elektronen erzeugt, wobei der beobachtete XUV-Bereich im niederfrequenten Teil des Planckschen Strahlungsspektrums liegt. Allerdings kann der Beitrag des Untergrundes von Schuss zu Schuss erheblich schwanken und während der Messung der Harmonischen nicht gleichzeitig detektiert werden.

Die Oberflächenharmonischen weisen in der spektralen Energieverteilung - je nach Kontrasteinstellung - erhebliche Unterschiede auf (siehe Abb.: 4.2.2 (a)). Diese Unterschiede sind keine Einzelfälle, sondern zeigen sich auch, wenn man mehrere Spektren bei dem jeweiligen Kontrast mittelt und einen konstanten Untergrund abzieht (siehe Abb.: 4.2.2 (b)). Grundsätzlich sind dabei die folgenden charakteristischen Eigenschaften zu beobachten:

- Bei einem hohen Kontrast (blau) und einer Skalenlänge von $L \leq \lambda/8$ sieht man scharfe Linien, die genau auf den Vielfachen der Laserfrequenz ν_0 liegen. Die spektrale Struktur weist keine großen Schwankungen auf und ist von Schuss zu Schuss relativ stabil. Allerdings sind die Harmonischen nur bis etwa zur 33. Ordnung zu erkennen und gehen dann im Rauschen unter.
- Bei einem mittleren Kontrast (rot) und einer Skalenlänge von $L \ge \lambda/4$ sind die Harmonischen breiter und rotveschoben. Außerdem sind übergeordnete periodische Modulationen im Spektrum zu erkennen. Diese Modulationen fluktuieren stark und reagieren empfindlich auf kleinste Änderungen der Laserparameter. Zudem werden die hohen Harmonischen bis zur Auflösungsgrenze des Spektrometers detektiert.

Die Unterschiede in der spektralen Struktur werden in Abschnitt 4.3 genau erläutert.

Vorher werden hier einige grundlegende Überlegungen zur Effizienz des Erzeugungsprozesses vorgestellt, da die Kenntnis der Umwandlungseffizienz der Laserenergie in Oberflächenharmonische für zukünftige Anwendung und für den Vergleich mit der Theorie von Interesse ist. Dafür wird zunächst die detektierte Energie pro Harmonische durch Summation über den entsprechenden Spektralbereich in Abbildung 4.2.2 (a) bestimmt. Die entsprechenden Energien sind für die 18te und 25te Harmonische (H18 und H25) in Tabelle 4.1 aufgelistet und bewegen sich im Bereich von mehreren nJ pro Harmonische.

Für die Abschätzung der theoretisch zu erwartenden Energie E_{th} muss die Absorption α berücksichtigen. Wenn man von universellen Skalierungsgesetz der ROM-Theorie ausgeht (siehe Gleichung 2.2.6), kann man die Energie der Harmonischen n nach

$$E_{th} \simeq E_F (1-\alpha) n^{-8/3}$$
 (4.2.3)

abschätzen. Hierbei ist E_F die Energie, die in Oberflächenharmonische umgesetzt wird. Für den Fokus in Abbildung 4.1.4 befinden sich etwa 45 % der Energie im $1/e^2$ -Radius

Energie in $\frac{\mu J}{\text{Schuß}}$	gemessen	abgeschätzt			theoretisch
Divergenzwinkel	θ_S	θ_{min}	θ_{PIC}	θ_L	$\theta = \pi$
H18 - AR	0,017	0,03	0,07	9,75	80
H18 - BK7	0,036	0,06	0,14	20,4	80
H24 - AR	0,010	0,01	0,04	$5,\!67$	33
H24 - BK7	0,031	0,03	0,12	17,6	33

Tabelle 4.1: Abschätzung der gesamten Energie, die pro Schuss und Harmonische abgestrahlt wird. Der begrenzte Öffnungswinkel des Spektrometers führt dazu, dass nicht der gesamte abgestrahlte Kegel detektiert wird. Zur besseren Einordnung sind die Energien für unterschiedliche Abstrahlwinkel abgeschätzt worden. Dabei ist θ_{min} der minimale- , θ_{PIC} der simulierte- und θ_L der Laserdivergenzwinkel. Zum Vergleich ist die theoretisch zu erwartende Energie nach Gleichung 4.2.3 eingetragen.

der Energieverteilung. Es ist also gerechtfertigt, einen Wert von $E_F \simeq 0,3 \,\mathrm{J}$ für die Energie zu verwenden, die in Harmonische umgesetzt wird. Für die Absorption ist ein Wert von $\alpha \simeq 0,4$ realistisch. Aus diesen Annahmen ergeben sich die theoretisch abgestrahlten Energien aus Tabelle 4.1. Sie sind um etwa 3 Größenordnungen größer als die tatsächlich gemessenen Energien. Ein Grund hierfür kann sein, dass der Kegel der emittierten Strahlung größer ist als der Öffnungswinkel des Spektrometers ($\theta_S \simeq 22 \,\mathrm{mrad}$). Der Divergenzwinkel wurde hier nicht gemessen und kann deshalb nur geschätzt werden. Um den Effekt zu erfassen, sind in Tabelle 4.1 die Energien aufgelistet, die man bei unterschiedlichen Divergenzwinkeln der emittierten Strahlung erwarten würde. Hierbei ist θ_L der Divergenzwinkel des Lasers, θ_{PIC} die simulierte Divergenz und $\theta_{min} = \theta_L/n$ der beugungsbegrenzte minimale Divergenzwinkel. Es zeigt sich, dass die Energien kleiner sind als erwartet.

Die Angabe der Effizienz kann aufgrund der unbekannten Divergenz der Strahlung nur eine Abschätzung sein. Eine angemessene Abschätzung erhält man, wenn man für den Divergenzwinkel den simulierten Wert von $\theta_{PIC} \simeq 45 \,\mathrm{mrad}$ einsetzt. Ähnliche Divergenzwinkel wurden auch in einem anderen Experiment unter ähnlichen Bedingungen gemessen [31]. Die Effizienz wird hier als $\eta = E(\theta_{PIC})/E_F$ angenommen und ist damit durch

$$\eta_{AR}(\text{H18}) \simeq 2,3 \pm 1,6 \cdot 10^{-7}, \quad \eta_{BK7}(\text{H18}) = 4,7 \pm 3,3 \cdot 10^{-7}$$

 $\eta_{AR}(\text{H25}) \simeq 1,3 \pm 0,9 \cdot 10^{-7}, \quad \eta_{BK7}(\text{H25}) = 4,0 \pm 1,96 \cdot 10^{-7}$

gegeben. Der Fehler kommt dabei durch die Kalibrierung der spektralen Effizienz des Spektrometers zustande. Grundsätzlich ist eine Aussage zur Effizienz der Erzeugung und der Vergleich mit der Theorie nicht möglich, ohne die Divergenz der Strahlung tatsächlich zu kennen. Die angegebenen Werte sind somit nur als grobe Näherung aufzufassen. Für eine genauere Aussage zur Effizienz wäre es nötig, die Divergenz der emittierten Strahlung zu messen und die spektrale Effizienz des Spektrometers genauer zu bestimmen.

Ein relativer Unterschied zwischen den beiden Kontrasteinstellungen ist bei den Effizienzen und Abbildung 4.2.2 dennoch zu sehen. Man kann somit sagen, dass die Erzeugung von hohen Harmonischen im mit einem moderat ausgedehnten Vorplasma ($L_{BK7} =$ 200..400 nm) effektiver ist als mit einem steilen Vorplasma ($L_{AR} = 50..90$ nm). Die Unterschiede in den spektralen Modulationen sind im betrachteten Spektralbereich besser zu messen und werden im folgenden Kapitel ausführlich erläutert.

4.3 Relativistischer Chirp der Harmonischen

In diesem Abschnitt wird der Unterschied zwischen der Spektrallinienstruktur beider Vorplasmaeinstellungen erklärt. Dafür ist es nötig, den Blick von der Erzeugung eines einzelnen Attosekundenpulses auf die Wechselwirkung des Oberflächenplasmas während eines kompletten Laserpulses zu richten. Wie in Abschnitt 2.1.4 dargelegt, führt der Lichtdruck bei hochintensiven Laserpulsen zum Eindrücken der Plasmaoberfläche [73, 67, 55, 98]. Zur schnellen Oszillation innerhalb eines Laserzyklusses kommt zusätzlich noch die über den Zyklus gemittelte Bewegung der Plasmaoberfläche hinzu. Diese wird von der ansteigenden Flanke des Laserpulses in das Plasma gedrückt. Sobald das Maximum des Lasers reflektiert wird, ist der thermische Druck des Plasmas wieder größer als der Lichtdruck und die Oberfläche bewegt sich wieder in Richtung Vakuum. In diesem Abschnitt wird die Mittelung über einen Zyklus als mittlere Bewegung bezeichnet.

Die mittlere Bewegung der Plasmaoberfläche während eines Laserpulses wird durch die Falschfarbendarstellung des simulierten transversalen Magnetfeldes B_z in Abbildung 4.3.1 (a) veranschaulicht. Dabei ist die zeitliche Entwicklung der gemittelten Position der kritischen Dichte als gestrichelte Linie für die Wechselwirkung eines normal einfallenden Gaußschen Pulses ($a_0 = 10$, $\tau = 5T_0$) mit einem stufenförmigen Plasmaprofil dargestellt (1D PIC-Simulation). Wegen der Dopplerverschiebung werden die emittierten Harmonischen während der ansteigenden Flanke (Bewegung in Richtung des Festkörpers) rot und während der abfallenden Flanke (Bewegung in Richtung Vakuum) blau verschoben. Die Auswirkung auf das zeitabhängige Spektrum ist im entsprechenden Spektrogramm des reflektierten Lichtes zu sehen. Es zeigt sich, dass die instantane Frequenz $\omega_n(t)$ der Harmonischen n annähernd



Abbildung 4.3.1: Plasmaoberflächendynamik und Harmonischer-Chirp. (a) Durch die Darstellung der transversalen Magnetfeldkomponente B_z wird die Bewegung der Plasmaoberfläche erkennbar. (b) Im dazugehörigen Spektrogramm wird deutlich, dass die Zentralfrequenz der emittierten Harmonischen aufgrund des Doppler-Effektes mit der Zeit ansteigt. Die dargestellten Diagramme sind Resultate einer PIC-Simulation, bei der ein Gaußscher Puls mit einer Dauer von $\tau = 5T_0$ und einer Feldstärke von $a_0 = 10$ senkrecht auf eine steile Plasmakante der Dichte $n_e = 20 n_{cr}$ trifft.

linear mit der Zeit ansteigt. Diese Näherung ist plausibel, da der Hauptanteil der Harmonischen bei der maximalen Intensität emittiert wird und die mittlere Geschwindigkeit der Oberfläche in diesem Bereich linear von der Zeit abhängt. Die instantane Frequenz ist dann

$$\omega_n(t) = n\,\omega_0\,\left(1 + \frac{v(t)}{c}\right) \simeq n\,\omega_0\,\left(1 + \frac{\alpha t}{c}\right) \Rightarrow \frac{d\omega_n}{dt} = \frac{n\,\omega_0\,\alpha}{c}.$$
(4.3.1)

Hier können relativistische Effekte bei der Berechnung der Dopplerverschiebung vernachlässigt werden, da die mittlere Geschwindigkeit der Plasmaoberfläche viel kleiner ist als die Lichtgeschwindigkeit. Aufgrung der Eindrückung der Oberfläche besitzen die relativistischen Harmonischen einen positiven Chirp (rot vor blau) der mit der Harmonischen Ordnung n zunimmt. Im Gegensatz dazu beobachtet man bei den CWE-Harmonischen bei moderaten Intensitäten einen negativen Harmonischen-Chirp (siehe Abschnitt 2.2.1).

4.3.1 Spektrale Feinstruktur

Die zeitliche Änderung der Frequenz der emittierten Harmonischen wirkt sich auf das Spektrum aus und lässt sich dementsprechend mit einem Spektrometer messen. Um die Auswirkung auf das Spektrum zu berechnen, ist es sinnvoll, die emittierte Strahlung im Zeitbereich zu betrachten. In diesem Bereich setzt sich die detektierte XUV-Strahlung aus einer Folge von Attosekundenpulsen zusammen, die zum Zeitpunkt t_k detektiert werden und die gleiche Form f(t) haben. Das elektrische Feld lässt sich dann durch

$$E(t) = \sum_{k} E_k f(t - t_k)$$
 (4.3.2)

beschreiben. Dabei ist E_k^2 die absolute Intensität der Pulse und ändert sich deshalb mit der Intensität des treibenden Lasers. Das entsprechende Spektrum lässt sich als Absolutquadrat der Fourier Transformation von Gleichung 4.3.2 nach

$$I(\omega) = |\tilde{f}(\omega)|^2 \underbrace{\left|\sum_{k} E_k e^{-i\omega t_k}\right|^2}_{J(\omega)}$$
(4.3.3)

berechnen. Hiebei ist $\tilde{f}(\omega)$ die Fourier-Transformation der Form der einzelnen Attosekundenpulse f(t). Das Betragsquadrat $\left|\tilde{f}(\omega)\right|^2$ entspricht der Einhüllenden der emittierten Harmonischen und kann durch ein Potenzgesetz angenähert werden (siehe Kapitel 2.2.2). Durch $J(\omega)$ wird die Form der Spektrallinien beschrieben. Aus dem detektierten Spektrum lassen sich somit durch die Betrachtung der Einhüllenden Informationen über die Dynamik während eines Laserzyzklusses gewinnen. Die Feinstruktur des Spektrums liefert Informationen über die Stärke der einzelnen Attosekundenpulse und deren Detektionszeit und ist somit von Prozessen bestimmt, die sich langsam mit der Einhüllenden des Laserpulses ändern.

In diesem Abschnitt liegt der Schwerpunkt auf der durch $J(\omega)$ beschriebenen Struktur der Harmonischen. Diese wird neben der Intensität E_k^2 vor allem durch die Detektionszeitpunkte t_k der Pulse bestimmt (siehe Gleichung 4.3.3). Zur Vereinfachung des Problems kann man vorerst davon ausgehen, dass alle XUV-Pulse zur selben Phase des Lasers emittiert werden. Ohne Eindrücken der Oberfläche erhielte man also für jeden Zyklus k einen Puls, der sich zu einem Pulszug $t_k = k T_0$ mit äqidistanten Abständen zusammen setzte. Duch die mittlere Bewegung der Plasmaoberfläche $x_p(t)$ müssen der treibende Laser und die emittierte Strahlung einen zusätzlichen Weg zurücklegen, der sich als Delay bemerkbar macht.

Darauf beruhend kann man ein Modell aufstellen, dass die Verzögerung durch das Eindrücken der Oberfläche berücksichtigt. In Abbildung 4.3.2 (a) ist die Geometrie veran-



Abbildung 4.3.2: Relativistischer Chirp der Harmonischen im analytischen Modell. (a) Die Bewegung der Plasmaoberfläche x_p kann durch eine Parabel angenähert werden. (b) Der resultierende ungleiche Abstand der detektierten Pulse führt je nach Ausprägung der Eindrückung zur Verbreiterung oder sogar Modulation der Harmonischen. (c) Duch das Einführen einer asymmetrischen Erzeugung der XUV-Pulse (k = -m - n..m - n) erhält man zusätzlich eine Verschiebung der Zentralfrequenz ω_c der Harmonischen.

schaulicht. Der Ursprung liegt hier bei der maximalen Eindrückung und k kennzeichnet den jeweiligen Zyklus im Bereich k = -m..m um das Intensitätsmaximum. Wie man in Abbildung 4.3.1 sieht, kann die Position der Plasmaoberfläche im Bereich der größten Intensität als Parabel angenommen werden $x_p(t) = \alpha_1 t^2 \cong \alpha_1 (kT_0)^2$. Die Ränder müssen nicht berücksichtigt werden, da der Hauptanteil der Strahlung um das Maximum erzeugt wird. Für die einzelnen Zyklen ist die Geschwindigkeit der Oberfläche demnach $v_p(kT) = 2 \alpha_1 kT_0$. Definiert man die Geschwindigkeit an den Rändern der Parabel als $v_p(mT_0) \equiv \beta_m c$, so kann man daraus α_1 bestimmen. Die Position der Oberfläche ist damit durch $x_p(kT_0) = \beta_m cT_0 k^2/(2m)$ gegeben. Da die Geschwindigkeit $v_p(t)$ viel kleiner ist als die Lichtgeschwindigkeit c, kann man damit die Detektionszeitpunkte nach

$$t_k = k T_0 - \frac{2 x (k T_0)}{c} = T_0 \cdot \left(k - \frac{\beta_m}{m} k^2\right)$$
(4.3.4)

berechnen. Der Parameter β_m gibt dabei die Geschwindigkeit der Oberfläche am Rand des Modells in Einheiten der Lichtgeschwindigkeit an. Durch geeignete Wahl der Grenzen kann dieser auch als maximale mittlere Geschwindigkeit der Oberfläche verstanden werden.

Die Auswirkung des ungleichen zeitlichen Abstandes zwischen den Pulsen auf das Spektrum lässt sich durch Einsetzen der Detektionszeiten t_k in Gleichung 4.3.3 berechnen. In Abbildung 4.3.2 (b) sieht man die spektrale Struktur der zwanzigsten Harmonischen für unterschiedliche maximale mittlere Geschwindigkeiten β_m . Dabei wird angenommen, dass die Pulse symmetrisch um die maximale Eindrückung (k = -m..m, mit m = 20) abgestrahlt wurden. Man sieht mit steigender Geschwindigkeit β_m eine symmetrische Verbreiterung der Harmonischen. Die spektrale Breite $\Delta \omega$ nimmt aufgrund der Dopplerverschiebung linear mit der mittleren Geschwindigkeit der Plasmaoberfläche zu. Mit steigender Geschwindigkeit erkennt man zusätzlich innerhalb der Harmonischen stärker werdende Modulationen. Für die 20. Harmonische wird diese ab einer Geschwindigkeit von $\beta_m = 0,002$ als lokales Minimum im Zentrum erkennbar (blaue Linie in Abb.: 4.3.2 (b)). Diese Modulationen fallen je nach Hamonischer unterschiedlich stark aus und können im Einzelfall berechnet werden.

Die symmetrische Verbreiterung der Harmonischen basiert auf der symmetrischen Eindrückung der Plasmaoberfläche. Dieser ideale Fall tritt zum Beispiel bei senkrechtem Einfall des Lasers auf eine steile Plasma-Vakuum-Grenzfläche auf (siehe PIC-Simulation in Abbildung 4.3.1 (a)). Für den schrägen Einfall auf einen ausgedehnten Plasmagradienten beobachtet man in PIC-Simulationen eine asymmetrische Eindrückung der Plasmaoberfläche (siehe Abb.: 4.3.4). Diese Asymmetrie kann im Modell berücksichtigt werden, indem man den Bereich der ausgewählten Zyklen um n veschiebt: k = -m - n..m - n. Die Auswirkung dieser Verschiebung kann man am Beispiel der zwanzigsten Harmonischen in Abbildung 4.3.2 (c) sehen. Die Zentralfrequenz der Harmonischen ω_c nimmt mit Zunahme der Asymmetrie m/n immer weiter ab, weil duch die Verschiebung um n der rotverschobene Anteil immer größer wird. Durch die Doppler-Verschiebung wird dieser Effekt mit steigender mittlerer Geschwindigkeit β_m zudem verstärkt. Die Verschiebung der Zentralfrequenz ist für alle Harmonischen des Spektrums gleich und ändert nichts an der spektralen Breite.

Periodische Modulationen

Richtet man den Blick von der einzelnen Harmonischen auf das gesamte Spektrum, so lässt sich zusätzlich zur Verbreiterung und Verschiebung der einzelnen Harmonischen ein anderer Effekt beobachten. Bei ausreichender maximaler mittlerer Geschwindigkeit β_m lassen sich im gesamten Spektrum übergordnete periodische Modulationen feststellen. In Abbildung 4.3.3 (a) ist beispielsweis die Feinstruktur $J(\omega)$ für einen symmetrisch abgestrahlten Pulszug (m = 20, n = 0) mit $\beta_m = 0,0083$ zu sehen. Dabei sieht man eine Modulation


Abbildung 4.3.3: Periodische Modulationen im Modell. (a) Mit zunehmender mittlerer Geschwindigkeit der Plasmaoberfläche β_m lassen sich im gesamten Spektrum periodische Modulationen mit der Frequenz Ω beobachten. (b) Die Frequenz der Modulationen Ω nimmt mit steigendem β_m ab. Die Spektren sind zusätzlich durch Faltung mit einer Gauß-Funktion der Breite $\Delta \omega = 0, 1 \cdot \omega_0$ geglättet.

mit einem Minimum bei einer Frequenz von $\Omega \simeq 32 \cdot \omega_0$. Vergrößert man die maximale mittlere Geschwindigkeit β_m , so beobachtet man, dass die Frequenz Ω immer kleiner wird und im selben Frequenzbereich mehrere Modulationsminima sichtbar werden. Eine genauere Analyse des Effektes zeigt, dass die Frequenz der periodischen Modulationen durch

$$\Omega \approx \frac{\omega_0}{4\beta_m} \tag{4.3.5}$$

gegeben ist [3]. Neben den periodischen Minima kann man im Modell noch zwei Besonderheiten registrieren. In den Spektren aus Abbildung 4.3.3 beobachtet man zwischen den Minima bei der Frequenz $\omega = n\Omega$ abwechselnd ganzzahlige Harmonische für $\omega \in \{0..\Omega, 2\Omega..3\Omega, ...\}$ und halbzahlige Harmonische für $\omega \in \{\Omega..2\Omega, 3\Omega..4\Omega, ...\}$. Zudem sieht man, dass die Frequenzbreite zwischen den periodischen Modulationen Ω stetig zunimmt.

Der relativistische Chirp der Harmonischen wirkt sich also im Spektralbereich als Verbreiterung und Verschiebung von Linien aus. Desweiteren kann man bei einer schnellen Eindrückung damit rechnen, dass im gesamten Spektralbereich ausgeprägte periodische Modulationen zu sehen sind.

4.3.2 Experimenteller Nachweis

Die gemessenen Spektren aus Abbildung 4.2.1 weisen bei mittlerem Kontrast mit BK7-Substrat als Plasmaspiegeltarget Modulationen auf, die im Folgenden in Bezug auf den oben beschriebenen relativistischen Chirp der Harmonischen untersucht werden. Dafür werden die experimentell aufgezeichneten Spektren mit 1D PIC-Simulationen verglichen und mit Hilfe des analytischen Modells aus Abschnitt 4.3.1 erklärt.

Zunächst lassen sich durch die Auswertung von PIC-Simulationen wertvolle Informationen über die Plasmadynamik während der Wechselwirkung mit dem Laserpuls gewinnen. Die Simulationen wurden von Daniel an der Brügge mit einer dimensionalen Version des VLPL Codes (Virtual Laser Plasma Laboratory, [82]) mit einer Ortsauflösung $\lambda/1000$, 100 Makropartikeln pro Zelle und ortsfesten Ionen durchgeführt. Die Simulationsparameter wurden dabei so gewählt, dass sie den experimentellen Bedingungen entsprechen. Der Laserpuls trifft in beiden Fällen in einem Einfallwinkel von $\theta = 45^{\circ}$ auf die Targetoberfläche und hat im zeitlichen Verlauf die Form einer Gaußschen Glockenkurve ($a_0 = a_0^{max} \exp(-t^2/\tau^2)$). Hierbei ist $a_0^{max} = 8$ das maximale normierte Vektorpotential und $\tau = 10 T_0$ die Pulsdauer. Für die unterschiedlichen Plasmaspiegelkonfigurationen ergeben sich nach den hydrodynamischen Berechnungen in Abschnitt 4.1.1 verschiedene Vorplasmagradienten. Diese wurden berücksichtigt, indem für die Elektronendichteverteilungen doppelt exponentielle Funktionen (blaue Linie) an die hydrodynamische Berechnung (schwarz gestrichelt) angenähert wurden (siehe Abb.: 4.3.1 (a-b)).

Das Ergebnis der PIC-Simulationen für beide Kontrasteinstellungen ist in Abbildung 4.3.4 (cd) als Falschfarbendarstellung des transversalen Magnetfeldes B_z zu sehen. Im Fall des hohen Kontrastes (antireflexbeschichtetes Plasmaspiegeltarget) und der damit verbundenensteilen Plasmakante sieht man nur eine geringe Eindrückung der Plasmaoberfläche (siehe Abb.: 4.3.4 (a, c)). Für den mittleren Kontrast (BK7-Substrat als Plasmaspiegeltarget) ergibt sich ein ausgedehntes Vorplasma, in dem ein weitaus tieferes Eindringen des Laserpulses in Richtung Target zu erkennen ist (siehe Abb.: 4.3.4 (b, d)). Die Oberfläche wird während der ansteigenden Flanke des Laserpulses durch den Lichtdruck des Lasers eingedrückt. Anschließend bewegt sich die Oberfläche durch den elektrostatischen Druck des Plasmas in Richtung Vakuum.



Abbildung 4.3.4: Plasmadynamik im Experiment. (a-b) Für die Anpassung der PIC-Simulation an das Experiment (MULTI-fs Berechnung, schwarz gestrichelt) wurde der Dichteverlauf durch eine doppelt exponentielle Funktion (blau) angenähert. Die Dichte ist hier in den Einheiten des Simulationssystems angegeben. (c-d) Die Falschfarbendarstellung des magnetischen Feldes B_z veranschaulicht die Bewegung der Plasmaoberfläche während der Wechselwirkung mit dem kompletten Laserpuls. (c) Für den steilen Vorplasmagradienten mit dem hohen Kontrast (AR-Beschichtung als Plasmaspiegeltarget) ist nur eine minimale Eindrückung der Oberfläche zu beobachten. (d) Beim ausgedehnten Plasma (BK7-Substrat als Plasmaspiegeltarget) erkennt man eine ausgeprägte Eindrückung. In der eingesetzten Vergrößerung des Hauptinteraktionsbereiches sieht man die entsprechende Näherung für x_p als gestrichelte Linie.

Die Bewegung der Plasmaoberfläche um das Maximum der Laserintensität hat für die Erzeugung der Harmonischen die größte Relevanz, da in diesem Zeitraum der Hauptanteil der Strahlung generiert wird. Dieser Bereich $(t = 30 T_0..45 T_0)$ ist für beide Fälle als Vergrößerung in Abbildung 4.3.4 eingesetzt und die jeweilige mittlere Plasmabewegung x_p als gestrichelte Linie eingezeichnet. Daraus lassen sich die entsprechenden maximalen mittleren Geschwindigkeiten β_m für das analytische Modell aus Abschnitt 4.3.1 grafisch bestimmen. In diesem Fall wurde ein symmetrischer Bereich um das Maximum mit m = 7und n = 0 gewählt. Die maximale mittlere Geschwindigkeit ist demnach für den hohen Kontrast $\beta_m^{AR} \simeq 0,0028$ und für den mittleren Kontrast $\beta_m^{BK7} \simeq 0,011$.

Aus diesen Werten kann man mit Gleichung 4.3.4 die Detektionszeitpunkte berechnen und anschließend unter Verwendung von Gleichung 4.3.3 die entsprechenden detektieren Spektren semi-analytisch bestimmen. Dabei wird für spektrale Einhüllende das universelle Potenzgesetz $\left| \tilde{f}(\omega) \right|^2 = \omega^{-8/3}$ für relativistische Harmonische aus Abschnitt 2.2.2 verwendet. Außerdem wird das Spektrum zusätzlich mit einer Gaußschen Glockenkurve der Breite $\Delta \omega = 0.1 \omega_0$ gefaltet, um die spektrale Auflösung des Spektrometers zu berücksichtigen.

Durch das Einsetzen der Simulationsergebnisse in das analytische Modell erhält man eine Verknüpfung zum Experiment. Trotz der Einfachheit des analytischen Ansatzes zeigt sich in Abbildung 4.3.5 eine gute Übereinstimmung zwischen den experimentellen Daten, der PIC-Simulation und den semi-analytisch berechneten Spektren. Dabei sieht man für den hohen Kontrast und damit den steilen Plasmagradienten sowohl in der PIC-Simulation als auch in der analytischen Berechnung scharfe harmonische Linien, wie sie auch im Experiment zu beobachten waren(siehe Abb.: 4.3.5 (a,c und e)). Für das ausgedehnte Vorplasma mit dem mittleren Kontrast sind die Modulationen aus den experimentellen Daten auch in der PIC-Simulation und im Modell zu erkennen (siehe Abb.: 4.3.5 (b,d und f)). Wegen der geringen Anzahl an freien Parametern und der vorliegenden Übereinstimmung zwischen den drei Ansätzen kann man davon ausgehen, dass die Feinstruktur der harmonischen Linien in den aufgenommenen Spektren auf den relativistischen Chirp der Harmonischen zurückzuführen ist.

Aus der Feinstruktur der Harmonischen kann man, wie in Abschnitt 4.3.1 beschrieben, Informationen über die mittlere Plasmadynamik gewinnen. Für das Spektrum mit dem hohen Kontrast sind im gesamten Spektralbreich keine ausgeprägten Modulationen zu sehen. Deshalb ist $\Omega_{AR} > 45 \omega_0$ und nach Gleichung 4.3.5 die Geschwindigkeit auf jeden Fall kleiner als $0,005 \cdot c$. Betrachtet man die spektrale Verbreiterung der Linien



Abbildung 4.3.5: Vergleich zwischen Experiment, PIC-Simulation und Modell. (a, c & e) Bei hohem Kontrast sind in allen drei Fällen scharfe Spektrallinien auf Vielfachen der Laserfrequenz ω_0 zu sehen. (b, d & f) Währenddessen erkennt man bei mittlerem Kontrast in der PIC-Simulation und dem analytischen Modell eine komplexe spektrale Struktur, die mit dem experimentellen Befund vergleichbar ist.

etwas genauer, so lässt sich der Wert weiter einschränken. Dafür kann man die 27. Harmonische verwenden, da sie sich noch deutlich vom Rauschen abhebt. Sie hat eine gemessene Frequenzbreite von $\Delta \omega_{H27} = 0,21 \pm 0,05 \omega_0$. Aus dem analytischen Modell (Gleichung 4.3.2 und Gleichung 4.3.4) erhält für $\beta_m = 0,003$ eine spektrale Breite von $\Delta \omega_{H27}(\beta_m = 0,003) = 0,244 \omega_0$. Da die gemessene Linienbreite schmaler ist, kann man davon ausgehen, dass die maximale Geschwindigkeit β_m^{AR} kleiner als $0,003 \cdot c$ ist. Eine genauere Aussage bezüglich der Geschwindigkeit der Oberfläche ist aus dem Spektrum nicht zu gewinnen, da die Auflösung des Spektrometers nicht ausreicht.

Für den mittleren Kontrast erlauben die ausgeprägten Modulationen im Spektrum eine etwas genauere Einordnung der maximalen Geschwindigkeit der Plasmaoberfläche. Aus der theoretischen Betrachtung in Abschnitt 4.3.1 wird deutlich, dass man entsprechend der maximalen Geschwindigkeit der Plasmaoberfläche eine periodische Modulation mit der Frequenz Ω erwarten kann. Die periodischen Modulationen zeigen sich durch einen Übergang von immer breiter werdenden Linien in ein quasi kontinuierliches Spektrum im Bereich $\omega \leq \Omega$ und darauf hin wieder schärfer werdenden Linien für $\omega \geq \Omega$. Zudem ist im theoretischen Modell ein Übergang von ganzzahligen zu halbzahligen Harmonischen zu erwarten (siehe Abb.: 4.3.3). Dieser Übergang ist in dem abgebildeten experimentell bestimmten Spektrum bei einer Frequenz von $\Omega \simeq 27 \omega_0$ zu erkennen (siehe Abb.: 4.3.5 (b)). Das entsprechende semi-analytische Spektrum weist diesen Übergang bei der selben Frequenz auf, wenn man die Detektionszeiten aus der simulierten Plasmadynamik einsetzt. Die Konsistenz zwischen Experiment, PIC-Simulation und analytischen Modell lässt darauf schließen, dass sich die Oberfläche im Fall des dargestellten Spektrums mit der maximalen mittleren Geschwindigkeit $\beta_m \simeq \omega_0/(4\Omega) \simeq 0,01$ bewegt.

In Experiment sieht man bei mittlerem Kontrast in jedem aufgenommenen Spektrum Modulationen und Unregelmäßigkeiten. Jedoch ist die überlagerte periodische Modulation der Frequenz Ω nicht immer in dem beobachteten Spektralbereich zu identifizieren. Für die Abschätzung der maximalen Oberflächengeschwindigkeit reicht es allerdings aus, sich nur die Feinstruktur einzelner Linien anzuschauen. Betrachtet man hierfür die 20te Harmonische, so sieht man in allen Spektren Feinstrukturen, die mit einer spektralen Auflösung von $\Delta \omega = 0, 1 \omega_0$, ohne weiteres zu erkennen sind. Durch den Vergleich mit Abbildung 4.3.2 (a) kann man qualitativ abschätzen, dass sich die Oberfläche in allen BK7-Spektren mit einer Geschwindigkeit bewegt, die größer als $\beta_m \gtrsim 0,06$ ist.

Die gemessenen Fluktuation der Modulationen ist für den Fall des mittleren Kontrastes auch in den PIC-Simulationen zu beobachten, wenn man die Eingabeparameter im realistischen Rahmen verändert. Dabei beobachtet man ähnlich modulierte Spektren, wenn man die Skalenlänge im Bereich L = 200..400 nm und das maximale normierte Vektorpotential um 10 % variiert. Der Effekt hängt für ausgedehnte Spektren stark von der jeweiligen Skalenlänge und der Intensität der Laserpulse ab und fluktuiert entsprechend von Schuss zu Schuss. Für den hohen Kontrast sind sowohl im Experiment als auch bei den PIC-Simulationen derartige Fluktuationen nicht zu beobachten.

Durch Analyse der Feinstruktur der emittierten Spektren lässt sich also die Eindrückung der Plasmaoberfläche während der Wechselwirkung mit dem Laserpuls qualitativ bestimmen. Gleichzeitig ist die Eindrückung von der Skalenlänge abhängig, so dass die Form der Harmonischen ein Maß für die Skalenlänge des Vorplasmas ist.



Abbildung 4.3.6: PIC-Simulationen zeigen im Zeitbereich für die unterschiedlichen Kontrasteinstellungen deutliche Unterschiede zwischen den abgestrahlten ungefilterten elektrischen Nahfeldern. Für den mittleren Kontrast sind, selbst ohne Filterung der hohen Harmonischen, Attosekundenpulse zu sehen (rot), deren maximale Amplitude die des treibenden Laserpulses (grün) übersteigen.

4.3.3 Zeitlicher Verlauf der Attosekundenpulszüge

Die gute Übereinstimmung zwischen dem Experiment und den PIC-Simulationen erlaubt es, aus den PIC-Simulationen Informationen zu gewinnen, die experimentell überhaupt nicht oder nur schwer zugänglich sind. In diesem Abschnitt wird dabei das Augenmerk auf die zeitliche Entwicklung der emittierten Strahlung gelegt. Das Ergebnis der PIC-Simulation ist in Abbildung 4.3.6 als ungefiltertes elektrisches Feld in der Nähe des Targets zu sehen. Dabei erkennt man zwischen den beiden Kontrasteinstellungen beziehungsweise Vorplasmagradienten einen erheblichen Unterschied.

Im Fall des hohen Kontrastes (blau) überschreitet das elektrische Feld der emittierten Strahlung das maximale elektrische Feld des treibenden Laserpulses (grün gestrichelt) nur in geringem Maße. Daraus lässt sich schließen, dass es sich in diesem Fall eher um eine Phasenmodulation im Sinne des ROM-Modells handelt (siehe Abschnitt 2.2.2). Das entsprechende Spektrum ist in Abbildung 4.3.5 (c) zu sehen. Die höchsten Frequenzkomponenten werden dabei in den Zeitbereichen erzeugt, in denen sich das elektrische Feld am schnellsten ändert (blaue Pfeile, in Abb.: 4.3.6), so dass die Abstrahlung der hohen Frequenzkomponenten auf einen Bruchteil der Periodendauer des Lasers T_0 begrenzt ist. Durch das Herausfiltern der hohen Frequenzkomponenten erhält man im elektrischen Feld einen Zug aus Attosekundenpulsen. Ein Vergleich dieser Emissionszeitpunkte (blaue Pfeile) mit den Rasterlinien in Abbildung 4.3.6 zeigt, dass die Pulse nahezu periodisch abgestrahlt werden.

Für den mittleren Kontrast (rot) ist diese Periodizität nicht genau vorhanden. Vergleicht man die Zeitpunkte der Attosekundenpulse (negative Maxima) mit den Rasterlinien, so kann man bei genauem Hinschauen eine Änderung des Abstandes zwischen den Zeitpunkten beobachten. Diese Abstände entsprechen gerade den unterschiedlichen Detektionszeiten t_k aus Gleichung 4.3.4 und werden durch das Eindrücken der Plasmaoberfläche verursacht.

Zudem sieht man, dass die Amplitude des Feldes etwa doppelt so groß ist wie das maximale Feld des treibenden Lasers (grün-gestrichelt). Dadurch wird die Ausgangsbedingung des ROM-Modells (Gleichung 2.2.3) verletzt. Die Charakteristik ist vielmehr mit der Beschreibung durch die *Coherent Synchrotron Emission* zu vergleichen, die von D. an der Brügge in [5] beschrieben wird (siehe Abbschnitt 2.2.2). Zudem ist eine starke Asymmetrie zu beobachten, die sich als Ausschlag in eine Richtung bemerkbar macht. Diese Pulse werden pro Zyklus einmal emittiert und haben theoretisch selbst ungefiltert eine Länge von etwa 100 as. Im Zeitbereich können also gut definierte Attosekundenpulse existieren, obwohl man ein unregelmäßiges und moduliertes Spektrum aufzeichnet.

Damit liefert das Experiment in Kombination mit den Simulationen den indirekten Beweis, dass man durch Manipulation des Vorplasmas die Eigenschaften der emittierten Strahlung maßgeblich verändern kann. Zudem liefert die gute Übereinstimmung zwischen PIC-Simulation und Experiment den ersten experimentellen Hinweis auf die Erzeugung von XUV-Strahlung durch den CSE-Prozess.

4.4 Perspektiven

Die präsentierte Kombination aus Experiment und Simulation hat gezeigt, dass die Eindrückung der Oberfläche und der zeitliche Verlauf von Attosekundenpulsen von den Vorplasmabedingungen abhängen. Dabei ist die Veränderung des Vorplasmas durch die Auswahl des Plasmaspiegeltargets zwar ausreichend, um grundlegende Tendenzen aufzuzeigen, jedoch nur bedingt geeignet für eine kontrollierte und kontinuierliche Steuerung der Vorplasmas.

Ein möglicher Aufbau zur kontinuierlichen Steuerung der Skalenlänge ist in Abbildung 4.4.1 (a) dargestellt. Voraussetzung für das Funktionieren des Aufbaus ist allerdings ein Laserpuls mit einem exzellenten Kontrast. Zur Kontrastverbesserung können im Vorfeld die in Abschnitt 3.2 vorgestellten Techniken verwendet werden. Der Laserpuls wird



Abbildung 4.4.1: Steuerung der Skalenlänge des Plasmas und deren Auswirkung auf die Pulsform. (a) Der Abstand zwischen Vor- und Hauptpuls lässt sich mit Hilfe einer Verzögerungsstrecke gezielt steuern und damit die Skalenlänge kontinuierlich verändern. (b) Die Form der emittierten Pulse kann damit beeinflusst werden. Für die Laserparameter des ARCTURUS-Lasersystems lässt sich die Verstärkung $\eta = \max(E_r^2)/\max(E_i^2)$ und Kompression $\Gamma = T_0/2\pi \cdot \tau$ theoretisch im oben dargestellten Rahmen verändern.

anschließend mit einem Strahlteiler aufgeteilt und mit Hilfe einer Verzögerungsstrecke so umgelenkt, dass der schwächere Vorpuls mit einem definierten zeitlichen Abstand vor dem Hauptpuls auf dem Target eintrifft. Durch die stufenlose Steuerung des Pulsabstandes $\Delta \tau$ lässt sich die Skalenlänge nach Abschnitt 2.1.4.1 kontinuierlich einstellen.

In Abbildung 4.4.1 (b) sind die Ergebnisse einer Skalenlängen-Variation mit den Parametern des ARCTURUS-Lasersystems bei einem Einfallwinkel von $\theta = 45$ präsentiert. Hierbei ist die Intensitätsverstärkung $\eta = \max(E_r^2)/\max(E_i^2)$ das Verhältnis zwischen dem maximalen einfallenden elektrischen Feld E_i^2 und dem maximalen reflektierten elektrischen Feld E_r^2 . Die Länge der ungefilterten Attosekundenpulse τ wird dabei durch den Kompressionsfaktor $\Gamma = T_0/2\pi \cdot \tau$ angegeben. Die Simulation zeigt, dass die intensivsten und kürzesten Pulse im Bereich von $L \simeq 0, 2..0, 3\lambda_0$ erzeugt werden. Dies entspricht in etwa dem Gradienten, der im Experiment durch die Verwendung des BK7-Substrates als Plasmaspiegeltarget erzielt wurde (siehe Abschnitt 4.1.2). Dennoch ermöglicht die kontinuierliche Steuerung der Skalenlänge in Zukunft eine gezieltere Steuerung des zeitlichen Verlaufs der XUV-Pulse. Zusätzlich kann man bei gegebener Laserintensität den Einfallwinkel θ zur Optimierung der Pulse verwenden.

Die präsentierten Experimente haben zudem gezeigt, dass man die Eindrückung der

Plasmaoberfläche während der Wechselwirkung mit dem Laserpuls beeinflussen kann. Dadurch lässt sich, wie in Abschnitt 4.3 gezeigt, der Abstand der einzelnen Attosekundenpulse steuern. Die zeitabhängige Eindrückung der Plasmaoberfläche im 1D Simulationssystem, wie sie z.B. in Abbildung 4.3.4 zu sehen ist, führt im Laborsystem zu einer konkaven Krümmung der Emissionsfläche, welche zur Fokussierung der emittierten XUV-Strahlung führt. Dieser Effekt wurde bereits für steile Plasmagradienten theoretisch untersucht [4, 3] und für die Begründung gemessener Divergenzen verwendet [31]. Im Fokus der konkaven Oberflächen können unter idealen Voraussetzungen theoretisch extrem hohe Intensitäten erzeugt werden [43]. Durch Einstellung der Skalenlänge lässt sich die Krümmung der Oberfläche und damit der Abstand des Fokuspunktes zur Oberfläche verändern. Die entsprechenden Krümmungsradien lassen sich unter Verwendung des analytischen Modells aus Abschnitt 4.3.1 nach

$$R = \frac{m \lambda_0 \sin^2 \theta}{\beta_m} \tag{4.4.1}$$

berechnen. Mit den entsprechenden Werten für β_m und m ergibt sich für den hohen Kontrast eine Brennweite von $f_{AR} \simeq 559 \,\mu\text{m}$ und für den mittleren Kontrast $\beta_{BK7} \simeq 139 \,\mu\text{m}$. Die Lage des Brennpunktes ist damit in gewisser Weise steuerbar.

Für viele Anwendungen werden einzelne Attosekundenpulse mit entsprechend hoher Intensität benötigt. Allerdings liefern Ti:Sa-Laser minimale Pulslängen von ca. 25 fs und erzeugen damit bei der Wechselwirkung mit der Plasmaoberfläche immer eine Folge aus Pulsen. Für die Erzeugung von einzelnen Pulsen könnte eine Technik verwendet werden, die bereits erfolgreich bei Gas-Harmonischen angewendet wurde [115, 97]. Mit Hilfe des sogenannten Polarization-Gatings lassen sich theoretisch auch von der Plasmaoberfläche einzelne Attosekundenpulse erzeugen [8, 93].

Bei einer optimalen Einstellung für die Pulsform kann es allerdings dazu kommen, dass der Brennpunkt nicht weit genug vom Target entfernt ist um die hohen Intensitäten in diesem Punkt experimentell zugänglich zu machen. Diese Hürde kann man überwinden, indem man ausnutzt, dass die Eindrückung der Oberfläche neben der Skalenlänge ebenfalls von der Intensität des Lasers abhängt. Durch die entsprechende Einstellung des Intensitätsprofiles im Fokus kann der Brennpunkt selbst bei ausgedehntem Plasma verschoben werden. Für den idealen Fall einer steilen Plasmakante ist der Einfluss einer Supergauß-Intensitätsverteilung numerisch untersucht worden [4]. Experimentell lässt sich die Intensitätsverteilung im Fokus durch die Verwendung eines adaptiven Spiegels verändern [113].

Durch Kombination des zeitlich optimierten Pulses (Skalenlänge und Winkel) mit dem

Polarization-Gating ist es in Zukunft denkbar, auch ohne Filterung einzelne Attosekundenpulse zu erzeugen. Mit Hilfe einer einstellbaren Intensitätsverteilung kann zudem die Krümmung gesteuert werden und die Pulse in praktikabler Entfernung vor dem Target fokussiert werden. Die gezielte Steuerung der Laserparameter erlaubt eine Optimierung der abgestrahlten Attosekundenpulse und Anpassung auf die jeweilige Anwendung. Die präsentierten experimentellen Ergebnisse weisen dabei den Weg zur besseren Kontrolle des Erzeugungsprozesses.

Kapitel 5

Zeitliche Kohärenz von Oberflächenharmonischen

Die Kohärenz ist eine wichtige Eigenschaft von Strahlungsquellen und für die Anwendung in der Interferometrie oder Spektroskopie von entscheidender Bedeutung. Zudem erlaubt die Messung der Kohärenz grundlegende Schlussfolgerungen über die ablaufenden Erzeugungsprozesse. Wegen der kurzen Wellenlänge und der starken Absorption bei der Propagation durch Materie ist die Messung der Kohärenzeigenschaften im XUV-Bereich mit technischen Schwierigkeiten verbunden. Eine Einführung in die grundlegenden Methoden ist im Attwood [6] zu finden.

Aufgrund der einfacheren Erzeugung und längeren Präsenz wurden die Kohärenzeigenschaften von Gasharmonischen bereits vor einigen Jahren untersucht. Für die Messung der räumlichen Kohärenz wurde dabei der Youngsche-Doppelspalt [28] oder der Fresnelschen-Spiegel [64] verwendet. Die zeitliche Kohärenz wurde mit einem hochauflösenden Spektrometer gemessen [95]. Die interferometrische Messung der zeitlichen Kohärenz, auf Grundlage des Michelson-Interferometers, gestaltet sich wegen der Ineffizienz der Strahlteiler als schwierig. Deshalb wurden stattdessen zwei treibende Laserpulse im Gas-Jet zeitlich versetzt überlagert und die Interferenz der erzeugten Harmonischen direkt gemessen [12]. Dabei muss man allerdings davon ausgehen, dass beide Pulse praktisch identisch sind. Grundsätzlich können ähnliche Verfahren zur Untersuchung von Oberflächenharmonischen verwendet werden. Zum Beispiel wurde auf ähnliche Weise die gegenseitige Kohärenz von drei Quellpunkten auf einer Oberfläche untersucht [108]. Damit konnten Rückschlüsse auf die gegenseitige Kohärenz der Strahlungsquellen gezogen werden. In diesem Kapitel wird die interferometrische Messung der zeitlichen Kohärenz von Oberflächenharmonischen vorgestellt, bei der ebenfalls ein Verfahren angewendet wird, das bereits erfolgreich von D. Hemmers an Gas-Harmonischen angewendet wurde [45]. Es ermöglicht die gleichzeitige Messung der zeitlichen Kohärenz von harmonischen Linien in einem breiten spektralen Bereich ohne aufwändigen Einsatz von optischen Elementen. Die Ergebnisse der Anwendung dieses Interferometers am ATLAS-Lasersystem werden im Anschluss vorgestellt. Unter ähnlichen Bedingungen wurde die Pulsdauer des XUV-Pulszuges mit einem Volumen-Autokorrelator gemessen [75]. Ein Vergleich zwischen beiden Messungen zeigt einen Unterschied zwischen der Kohärenzzeit und der Dauer des XUV-Pulszuges, der auf eine nicht konstante Phase der emittierten Strahlung zurückzuführen ist [50].

5.1 Interferometrische Messung der zeitlichen Kohärenz

Die Kohärenz einer Strahlungsquelle beschreibt die Fähigkeit der emittierten Felder zur Interferenz. Zur Beschreibung der Kohärenz einer Welle wird im Allgemeinen die normalisierte Kreuzkorrelationsfunktion

$$g_{12}(\tau) = \frac{\langle E(\mathbf{r}_1, t+\tau) E(\mathbf{r}_2, t) \rangle}{\sqrt{I(\mathbf{r}_1) I(\mathbf{r}_2)}} \stackrel{\frown}{=} \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}}$$
(5.1.1)

verwendet [6]. Der Wert $g_{12}(\tau)$ gibt dabei den Kohärenzgrad der Welle zwischen den Positionen \mathbf{r}_1 und \mathbf{r}_2 bei einem Zeitunterschied von τ an. Die Kreuzkorrelationsfunktion wird durch die eckigen Klammern $\langle \rangle$ dargestellt und bildet das zeitlich Mittel über eine Periode. Im Experiment ist der Kohärenzgrad als Ausprägung der Interferenzstrukturen zu beobachten, wobei I_{max} die Intensität des Maximums und I_{min} die Intensität des Minimus der Interferenzstruktur ist [94, 14]. Die Funktion $g_{12}(\tau)$ kann somit nur Werte zwischen 0 und 1 annehmen. Möchte man allerdings nur die zeitliche Kohärenz messen, so verwendet man die selbe Position ($\mathbf{r}_1 = \mathbf{r}_2$) mit einem definierten Laufzeitunterschied zum Detektor. Ist die aufgenommene normierte Kreuzkorrelationsfunktion $g_{11}(\tau)$ mit wachsendem τ monoton abfallend, so ist die Kohärenzzeit τ_c als die Zeit definiert, in der die Funktion auf die Hälfte abfällt $[g(\tau = \tau_c) = \frac{1}{2}g(\tau = 0)]$. Mit Hilfe der Lichtgeschwindigkeit c ist zudem die Kohärenzlänge als $l_c = c \tau_c$ gegeben. Aus der Unschärferelation ergibt sich eine Verknüpfung zwischen der Kohärenzzeit τ_c und der spektralen Bandbreite $\Delta \nu$. Für den speziellen Fall eines Gaußschen Pulses ist die Relation durch $\Delta \nu \cdot \tau_c = \frac{2 \ln 2}{\pi}$ gegeben.

Dieser Zusammenhang ermöglicht die Bestimmung der Kohärenzzeit durch Messung der

spektralen Breite mit einem hochauflösenden Spektrometer. In der Praxis kann es aber gerade bei der Verwendung von abbildenden Spektrometern durch die aufwändige optische Justage zu Problemen kommen. Dabei hängt die Auflösung von der Justage ab und kann sich entsprechend ändern oder ist unbekannt. Die Verwendung von interferometrischen Verfahren kann deshalb unter Umständen von Vorteil sein.

Im Folgenden wird ein Verfahren zur interferometrischen Messung der zeitlichen Kohärenz vorgestellt, das ohne aufwändig Justage und "transmittive" Optik auskommt. Der experimentelle Aufbau ist in Abbildung 5.1.1 dargestellt. Dieser Aufbau basiert auf einer Doppellochblende, wie sie normalerweise zur Bestimmung der räumlichen Kohärenz verwendet wird [94]. Die verwendeten Löcher haben einen Durchmesser von $d = 60 \,\mu\text{m}$ und einen Abstand von $D = 100 \,\mu\text{m}$. Jedes dieser Löcher erzeugt auf einem Schirm im Fernfeld eine rotationssymmetrische Airy-Scheibe, deren erstes Minimum einen Radius von $r = 1, 22 \cdot L \cdot \frac{\lambda}{d}$ hat. Hierbei ist L die Distanz zwischen Loch und Schirm, λ die Wellenlänge des Lichtes und d der Durchmesser des Lochs. Zur Vereinfachung kann der innere Teil der Airy-Scheibe durch eine Gaußsche Glockenkurve mit einer Breite von $w_n = 0,687 \, r_n$ angenähert werden. Die Größe der einzelnen Strukturen hängt von der Wellenlänge ab und ist somit für jede Harmonische n anders.

Der Abstand zwischen den beiden Airy-Scheiben kann nach $\Delta x = D \left(1 + \frac{L}{l}\right)$ berechnet werden. Diese Beziehung lässt sich mit dem Strahlensatz herleiten. Dabei geht man davon aus, dass beide Strahlen im Fokus starten und die Löcher nach der Distanz l passieren. Die Verlängerung der Linien führt zu den Positionen der Intensitätsmaxima der Airy-Scheiben auf dem Schirm. Der Abstand Δx hängt nur von der Geometrie und nicht von der Wellenlänge beziehungsweise von der Harmonischen ab. Bei geeigneter Wahl der Geometrie überlappen die beiden Intensitätsverteilungen. Im Überlappungsbereich sieht man entsprechend dem Kohärenzgrad der Lichtquelle Interferenzstrukturen unterschiedlicher Ausprägungen. Die vollständige räumliche Kohärenz zwischen beiden Strahlen ($g_{12}(0) \leq 1$) ist eine Voraussetzung für die Messung der zeitlichen Kohärenz.

Durch die Positionierung eines Transmissionsgitters hinter der Doppellochblende kann man die Interferenzstruktur zusätzlich spektral aufspalten. In der ersten Beugungsordnung ist es dann möglich, einen Laufzeitunterschied zwischen den beiden interferierenden Strahlen einzuführen. Der Laufzeitunterschied für die unterschiedlichen Harmonischen Δs_n lässt sich aus der Draufsicht in Abbildung 5.1.1 (b) herleiten und hängt entsprechend von der effektiven Distanz zwischen den beiden Löchern D_e und dem Beugungswinkel γ_n ab. Für



Abbildung 5.1.1: Aufbau zur Messung der zeitlichen Kohärenz. (a) Die emittierte XUV-Strahlung trifft nach der Distanz l auf die rotierbaren Doppellöcher. Durch das folgende Gitter werden die Frequenzkomponenten spektral aufgeteilt und die Interferenzen für mehrere Harmonische sichtbar. (b) In der ersten Beugungsordnung kann man den Laufzeitunterschied Δs zwischen den beiden Strahlen durch Drehung der Doppellöcher um den Winkel β variieren. Aus der Ausprägung der Interferenzstrukturen lässt sich die Kohärenz bestimmen.

die erste Beugungsordung ist der Unterschied durch

$$\Delta s_n = D_e \cdot \sin \gamma_n = D \sin \beta \cdot \sin \gamma_n = D \lambda_n N \sin \beta \tag{5.1.2}$$

gegeben. Hierbei ist β der Rotationswinkel der Doppellöcher zur Ausrichtung der Gitterstäbe und N die Gitterstrichdichte (hier 2000 Linien/mm). Demnach kann der Laufzeitunterschied durch Rotation der Doppellöcher verändert werden. Im Falle, dass die Verbindungslinie der beiden Löcher parallel zu den Gitterstäben verläuft ($\beta = 0$), ergibt sich kein Unterschied. Der maximale Wert ist bei einem Winkel von $\beta = 90^{\circ}$ erreicht und führt bei dem hier verwendeten Aufbau zu $\Delta s = 200 \cdot \lambda_n$. Für die nullte Beugungsordnung ist keine Abhängigkeit vom Rotationswinkel zu erwarten.

Im Überlappungsbereich sieht man periodische Strukturen, die von der Wellenlänge λ_n

und dem Winkel zwischen den beiden interferierenden Wellenfronten α_n abhängig sind. Dabei ist der Abstand zwischen zwei Minima durch $k_n = \frac{\lambda_n}{\alpha_n}$ gegeben [94]. Die Wellenlänge hat einen Einfluss auf den Interferenzwinkel α_n , da jede Wellenlänge in einen anderen Winkel $\gamma_n = \arcsin(N \lambda_n)$ gebeugt wird. Bei der gegebenen Konfiguration lassen sich die Winkel nach

$$\alpha_n = \arctan\left(\frac{D\cos\gamma_n}{L - \frac{D_e}{2}\sin\gamma_n}\right)$$
(5.1.3)

berechnen. Für die nullte Beugungsordnung ($\gamma_n = 0$) haben die einzelnen Harmonischen n zwischen den Minima der Interferenzstrukturen ein Abstand von $k_n = \lambda_n \frac{L}{D}$. Für den verwendeten Aufbau und die 14te Harmonische ergibt sich damit ein Abstand von 0,35 mm.

Die Ausprägung der Minima ist ein Maßstab für die Kohärenz der Strahlung. Durch Drehung der Doppellöcher verändert man den Weg der Laufwegdifferenz Δs_n beziehungsweise die Laufzeitdifferenz τ_n beider Strahlen. Die Bestimmung der normierten Kreuzkorrelationsfunktion ist das Ziel des Experimentes. Im folgenden Abschnitt werden die experimentellen Bedingungen, die Auswertung und das Ergebnis der Anwendung des Verfahrens vorgestellt.

5.2 Experimentelle Ergebnisse

5.2.1 Bedingungen

Das oben beschriebene Interferometer wurde im Rahmen einer Kooperation mit dem Max-Planck-Institut für Quantenoptik am ATLAS-Lasersystem eingesetzt. Dieser Laser liefert Laserpulse mit einer Dauer von 45 fs und einer Energie von 600 mJ auf dem Target. Die Pulse werden mit einer off-axis Parabel (Brennweite 160 mm) auf Intensitäten von 10^{19} W cm⁻² fokussiert. Dabei werden im Fokus maximale Feldstärken von $a_0 \simeq 4$ erreicht. Bei dem beschriebenen Experiment wurde ein Quarz-Substrat als Target verwendet und in einem Einfallwinkel von 45° getroffen. Die emittierte XUV-Strahlung propagiert in spekulare Richtung und trifft nach einer Distanz von l = 30, 3 cm auf den Doppellochaufbau. Zur Aufnahme der Interferenzstrukturen wurde in einem Abstand von L = 60, 8 cm eine Detektionseinheit verwendet, die aus einer CsI-beschichteten Micro-Channel-Plate (MCP) mit angeschlossener CCD-Kamera zusammengesetzt ist. Dabei wird jedes einzelne XUV-Photon zunächst in einer Phosphorschicht in sichtbares Licht umgewandelt, welches wiederum duch den Photoeffekt Elektronen freisetzt. Diese werden anschließend in einer Micro-Chanel-Plate vervielfacht und mit der CCD-Kamera aufgenommen. Die große Anzahl der Elektronen führt dazu, dass die räumliche Auflösung der Kamera abnimmt. Für die verwendete Detektionseinheit wurde die Auflösung durch Faltung einer Ein-Photonen-Aufnahme vorgenommen. Hierbei hat sich gezeigt, dass ein XUV-Photon im Mittel ein Signal mit einer 1/e-Breite von 3,2 Pixeln auf der Kamera erzeugt. Der eigentliche CCD-Chip hat 1024×1024 Pixel mit einer Größe von 25 µm. Auf dem Chip konnten so die Harmonischen von der 11. und 16. Ordnung gleichzeitig beobachtet werden.

Durch Verfahren des Targets entlang der z-Achse wurde die Position gefunden, in der die Harmonischen am stärksten erzeugt wurden. Als Filter wurden zwei Aluminiumfolien mit einer Dicke von 200 nm verwendet. Der Aufbau wurde zudem so konzipiert, dass man die rotierbare Doppellochblende durch einen einfachen Schlitz ersetzen konnte. Dies hat die Untersuchung der räumlichen Strukturen in einer Dimension und die Vermessung der zeitlichen Kohärenz ermöglicht, ohne die Experimentierkammer belüften zu müssen. Im Folgenden werden die experimentellen Ergebnisse, die mit beiden Konfigurationen erzielt wurden, vorgestellt.

5.2.2 Räumliche Strukturen

Zur Vermessung der räumlichen Verteilung der emittierten Strahlung wurde an der Stelle, an der sich die Doppellöcher befinden, ein Spalt mit einer Breite von 0,5 mm parallel zu den Gitterlinien eingesetzt. Damit ist es möglich, die räumliche Verteilung der emittierten Strahlung in einer Dimension zu messen, während man in Dispersionsrichtung das Spektrum mit den Harmonischen beobachtet. In Abbidung 5.2.1 (a) sieht man exemplarische Aufnahmen der räumlichen Strukturen, die im Einzelschuss-Modus aufgenommen wurden. Die Häufigkeitsverteilung der Strukturgröße zeigt, dass diese im Mittel eine FWHM-Breite von 4, $23 \pm 1,5$ mm besitzen (siehe Abb.: 5.2.1 (b)). Damit ist sichergestellt, dass die Doppellöcher mit einem Abstand von 100 µm gleichmäßig ausgeleuchtet werden. Man kann also davon ausgehen, dass die beiden Strahlen räumlich kohärent sind.

Zudem erlauben die räumlichen Strukturen Rückschlüsse auf die Größe der Quelle. Da wir die emittierte Strahlung im Fernfeld betrachten, kann die Propagation im freien Raum in folgender Weise als Fouriertransformation angesehen werden; $h(x) = \mathcal{F}\left(\frac{x}{\lambda L}\right)$. Wobei h(x) das beobachtete Feld und \mathcal{F} die Fouriertransformation der Quellfunktion f(x)ist [94]. Die kleinsten Strukturen im beobachteten Feld liefern somit Informationen über die großen Strukturen der Quelle. Aufgrund der mittleren Strukturgröße von 4,2 mm nach einer Propagation von 91 cm kann man daraus schliessen, dass die Quelle in etwa 4,5 µm



Abbildung 5.2.1: Räumliche Strukturen innerhalb der Harmonischen. (a) Die Aufnahmen eines nichtabbildenden Spektrometers zeigen die räumliche Verteilung der ermittierten Harmonischen in einer räumlichen Dimension. (b) Eine statistische Auswertung der Strukturgröße zeigt, dass diese im Mittel eine Breite von $4, 23 \pm 1, 5 \text{ mm}$ (FWHM) haben.

groß ist. In diesem Radius wurden im Experiment ca. 70 % der Energie deponiert [76].

5.2.3 Zeitliche Kohärenz

Für die Messung der zeitlichen Kohärenz wurde der Doppellochblenden-Aufbau vor das Transmissionsgitter gefahren (siehe Abb.: 5.1.1 (a)). Die aufgenommenen Interferenzstrukturen der 14. Harmonischen sind in Abbildung 5.2.2 (a) zu sehen. Dafür wurden 400 Schuss mit 10 Hz, der maximalen Repetitionsrate des Lasersystems, akkumuliert. Die aufgenommenen Interferenzmuster zeigen eine eindeutige Abhängigkeit vom Rotationswinkel β und verschwimmen mit zunehmendem Laufwegunterschied. Anhand dieser Strukturen lässt sich zunächst der Kohärenzgrad in Abhängigkeit von der Laufzeitdifferenz $g_{11}(\tau)$ beziehungsweise von der Laufwegdifferenz $g_{11}(\Delta s_n)$ ermitteln. Daraus lässt sich die Kohärenzzeit nach der Definition in Abschnitt 5.1 berechnen.

Für die Auswertung wurde für alle sichtbaren Harmonischen n ein Line-out senkrecht zu dem Interferenzmuster erstellt. Exemplarisch sieht man in Abbildung 5.2.2 (b) das Line-out der 14. Harmonischen bei einem Rotationswinkel von $\beta = 3, 4^{\circ}$ als schwarze Punkte. Für die Bestimmung der Kohärenzgrade kann man dann die eindimensionale Interferenzgleichung für teilkohärente Wellen verwenden [94]. Sie ist in unserem Fall durch



Abbildung 5.2.2: Interferenzstrukturen zur Bestimmung der Kohärenzzeit. (a) Die Ausprägung der Interferenzstrukturen ändert sich mit dem Rotationswinkel der Doppellochblenden β . Durch die Drehung wird der Laufzeitunterschied zwischen den beiden Strahlen eingestellt. (b) Zur Auswertung des Kohärenzgrades wird an das Line-out (schwarze Punkte) die Gleichung 5.2.3 gefittet. Hierbei ist der einzige freie Parameter der normalisierte Kreuzkorrelationsfaktor.

$$I_n(x,\Delta s_n) = I_{1,n} + I_{2,n} + 2\sqrt{I_{1,n}I_{2,n}} |g_{11}(\Delta s_n)| \cos\left(\frac{2\pi}{k_n}x\right)$$
(5.2.1)

gegeben. Hiebei ist $g_{11}(\Delta s_n)$ der ensprechende Kohärenzgrad und k_n der Abstand der Minima in den Interferenzmustern. Die Zentren der Intensitätsverteilungen beider Strahlen lassen sich durch Gaußsche Glockenkurven der Form

$$I_{i,n} = I_{i,n}^{0} \exp\left[-2\left(\frac{x \pm \Delta x/2}{w_n}\right)^2\right]$$
(5.2.2)

beschreiben. Der Abstand zwischen beiden Verteilungen ist durch Δx gegeben. Durch den Index n wird berücksichtigt, dass die Breite der Strukturen w_n , die zentrale Intensität $I_{i,n}^0$ und der Abstand der Minima k_n von der jeweiligen Harmonischen abhängen. Für die Bestimmung des Kohärenzgrades wurden die Gleichungen 5.2.1 und 5.2.2 an die gemessene Kurve gefittet. Dafür wurden die Parameter k_n , w_n und $x_i = \pm \Delta x/2$ im Vorfeld für die jeweiligen Wellenlängen festgelegt. Als freie Parameter wurden der Korrelationsgrad $g_{11}(\Delta s_n)$ und die Spitzenintensität $I_{i,n}^0$ verwendet. Das Ergebnis des Fits für die 14. Harmonische ist



Abbildung 5.2.3: Auswertung der Interferenzstrukturen. (a-e) Aus den Interferenzstrukturen lassen sich die Kohärenzgrade g_{11} für die unterschiedlichen Winkelstellungen berechnen. Durch den Fit einer Gaußschen Glockenkurve (rote Linie) an die Messpunkte erhält man die Funktion $g_{11}(\Delta s)$ zur Bestimmung der Kohärenzlänge l_c . (f) Für die Berücksichtigung der räumlichen Auflösung des MCP-Detektors müssen die einzelnen Werte für g_{11} korrigiert werden.

in Abbildung 5.2.2 (b) als rote Linie zu sehen. Für die genaue Bestimmung des Kohärenzgrades muss allerdings noch die räumliche Auflösung der Detektionseinheit berücksichtigt werden. Die begrenzte Auflösung führt dazu, dass die Interferenzstrukturen weniger ausgeprägt sind. In Abbildung 5.2.3 (f) ist der Zusammenhang zwischen dem Korrelationsgrad für die gefaltete Interferenzstruktur und dem tatsächlich vorhandenen Korrelationsgrad dargestellt. Die numerischen Berechnungen zeigen einen linearen Zusammenhang zwischen beiden Werten. Während man für den Fit aus Abbildung 5.2.2 (b) einen Wert von $g_{11} = 0, 64$ erhält, ergibt die Korrektur einen tatsächlich vorhandenen Wert von $g_{11} = 1, 02$. Diese Auswertungsmethode wurde mit der entsprechenden Korrektur auf alle sichtbaren Harmonischen und Winkelstellungen angewendet. Das Ergebnis ist in Abbildung 5.2.4 (a-e) in Form von schwarzen Punkten dargestellt. Die angegebenen Fehlerbalken repräsentieren den entsprechenden numerischen Fehler der Fit-Prozedur.

Es zeigt sich, dass die Messwerte durch Gaußsche Glockenkurven angefittet werden kön-



Abbildung 5.2.4: Die Kohärenzzeiten der Oberflächenharmonischen. Aus den Kohärenzlängen in Abbildung 5.2.3 lassen sich die unkorrigierten Werte bestimmen (rote Punkte). Die Korrektur mit Gleichung 5.2.3 führt dann zu den tatsächlich vorhandenen Kohärenzzeiten (blaue Dreiecke). Diese Daten stimmen sehr gut mit den Werten überein, die man durch den numerischen Fit der gesamten zweidimensionalen Struktur mit Hilfe eines Simplex-Verfahrens erhält (schwarze Vierecke).

nen (siehe rote Linien in Abb.: 5.2.3). Die gefitteten Kurven werden zur Bestimmung der Kohärenzlänge beziehungsweise Kohärenzzeit verwendet. Dabei ist es physikalisch plausibel, die Glockenkurven um $\Delta s = 0$ zu zentrieren. Die FWHM-Breite der Glockenkurve entspricht dann der doppelte Kohärenzlänge. Die dazugehörigen Kohärenzzeiten der Harmonischen sind in Abbildung 5.2.4 als rote Punkte eingezeichnet.

Durch das Transmissionsgitter werden die spektralen Anteile in Dispersionsrichtung aufgefächert. Dies führt zum einen dazu, dass die einzelnen Harmonischen von einander getrennt werden und die jeweiligen Interferenzstrukturen sichtbar werden. Zudem werden die Harmonischen selber natürlich auch in Dispersionsrichtung aufgespaltet. In Folge dessen wird an jeder Stelle auf dem Detektor die spektrale Breite kleiner. Man misst mit diesem Verfahren also scheinbar eine größere Kohärenzlänge. Aus den hergeleiteten scheinbaren Werten l_c^a lassen sich die tatsächlich vorhandenen Kohärenzlängen nach

$$l_{c} = l_{c}^{a} \sqrt{1 - \left(\frac{2\ln 2}{\pi} N d \frac{\lambda_{0}}{l_{c}^{a}}\right)^{2}}$$
(5.2.3)

berechnen. Die genaue Herleitung dieses Zusammenhanges findet man in [45]. In Abbildung 5.2.4 sieht man die korrigierten Werte für die Kohärenzzeit als blaue Dreiecke. Der eingezeichnete Fehler entspricht der Unsicherheit beim Fit an die Gaußsche Glockenkurve und liegt im Bereich von 10-15 %. Diese Messwerte stimmen mit den Werten überein, die man aus einer unabhängigen numerischen Auswertung von D. Hemmers erhält. Dabei wurden die syntetischen Interferogramme basierend auf dem Huygensschen-Prinzip mit der Kohärenzzeit als freien Parameter berechnet und mit Hilfe des Downhill-Simplex-Verfahrens an die gemessenen Strukturen angefittet. Beide voneinander unabhängig durchgeführten Auswertungen zeigen, dass die Kohärenzzeiten der Harmonischen im Bereich von 13-18 fs liegen und damit weitaus kürzer als der treibende Laserpuls sind.

5.3 Kohärenzzeit versus Pulszugdauer

Die oben beschriebene interferometrische Bestimmung der Kohärenzzeit entspricht einer Autokorrelation erster Ordnung. Als solche hängt sie nicht von der spektralen Phase ab und liefert deshalb keine Aussage zum Chirp. Man erhält durch diese Messung lediglich die kürzestmögliche Pulsdauer [81]. Für die Abschätzung der Dauer des emittierten XUV-Pulszuges ist hingegen eine Autokorrelation zweiter Ordnung nötig. Dafür wird der Strahl in zwei Bündel aufgeteilt und in einem nichtlinearen Medium überlagert. Im sichtbaren Bereich verwendet man dafür zum Beispiel die Erzeugung der zweiten Harmonischen in nichtlinearen Kristallen. Für den Wellenlängenbereich der XUV-Strahlung hat es sich gezeigt, dass man die nichtlineare Zwei-Photonen-Ionisation von Helium als nichtlinearen Prozess ausnutzen kann [78]. Helium besitzt ein Ionisationspotential von 24,6 eV und kann nur von Photonen zwischen der 8. bis zur 15. Harmonischen durch Zwei-Photonen-Absorption ionisiert werden. In diesem Wellenlängenbereich reicht die Energie eines einzelnen Photons nicht aus, um Helium zu ionisieren. Dieser nichtlineare Effekt wurde im Volumen-Autokorrelator am MPQ ausgenutzt, um den zeitlichen Verlauf der XUV-Pulszüge von Oberflächenplasmen zu vermessen [75]. Das Experiment wurde von Nomura et. al. unter vergleichbaren Bedingungen wie bei der Kohärenzzeit-Messung durchgeführt und bietet somit die Möglichkeit zum Vergleich beider Größen.

Die experimentelle Realisierung des Aufbaus ist in Abbildung 5.3.1 dargestellt und vergleichbar mit dem Aufbau in [114]. Zur Erzeugung der Oberflächenharmonischen wurde ebenfalls das ATLAS-Lasersystem (Pulsdauer $\tau = 45$ fs, Energie $E \simeq 600$ mJ, Repetitionsrate $f_{rep} = 10$ Hz) verwendet. Die emittierte XUV-Strahlung wird dabei mit einer kleinen off-axis Parabel abgegriffen und kollimiert. Der Strahl wird anschliessend auf einen gespaltenen sphärischen Goldspiegel gelenkt und in einem Helium-Gas-Strahl fokussiert. Durch



Abbildung 5.3.1: Die Dauer des XUV-Pulszuges wurde unter vergleichbaren Bedingungen mit einem Volumen-Autokorrelator gemessen. Für die Autokorrelation zweiter Ordnung wird die Zwei-Photonen-Absorption von Helium verwendet. Dabei wird der Laufzeitunterschied zwischen beiden Strahlen mit einem gespalteten sphärischen Spiegel eingestellt. Das Ionensignal wird mit einem Flugzeitspektrometer als Verhältnis zwischen Masse und Ladung der Ionen gemessen [75].

Verfahren einer Spiegelhälfte wird der für die Autokorrelation benötigte Laufzeitunterschied zwischen beiden Teilstrahlen aufgeprägt. Wenn zwei XUV-Photonen auf ein Helium-Atom treffen, besteht die Wahrscheinlichkeit, dass es zur Absorption von zwei Photonen kommt. Die resultierenden He⁺-Ionen werden anschließend von einem Flugzeitspektrometer detektiert.

Anhand der Flugzeit der Ionen kann man das Verhältnis zwischen Masse m und Ladung Z bestimmen (siehe Einschub in Abbildung 5.3.1). Zum Signal der He⁺-Ionen kommen noch Ionen (H₂O⁺ und N₂⁺) hinzu, die durch Ein-Photonen-Absorption angeregt wurden. Aus der Dominanz der Ein-Photonen-Absorption ergibt sich eine strenge Vorgabe für die Wahl des Frequenzbereiches zur Ausnutzung der Zwei-Photonen-Absorption als nichtlineares Medium. Für die exakte Begrenzung des Frequenzbereiches wurde deshalb eine Indium-Folie als Filter und eine polierte Kunststoff-Scheibe (PMMA, Polymethylmethacrylat) als Target verwendet [50].

Für die Bestimmung des Zeitverlaufs der emittierten Strahlung wurde die Autokorrelationsspur zweiter Ordnung mit zwei Schrittweiten aufgezeichnet. Die genaue Auswertung der Spur zeigt, dass der XUV-Pulszug eine Dauer von $\tau_{XUV} = 44 \pm 20$ fs hat [76, 75]. Damit entspricht die Dauer des XUV-Pulszuges in etwa der Dauer des treibenden Laserpulses. Die feine Abtastung hat zum ersten Mal gezeigt, dass pro Laserzyklus ein XUV-Puls von der Plasmaoberfläche abgestrahlt wird und im betrachteten Frequenzbereich (H8 bis H14) eine Pulsdauer von $0, 9 \pm 0, 4$ fs hat.

Ein Vergleich zwischen der Messung der Autokorrelation erster und zweiter Ordnung zeigt einen signifikanten Unterschied zwischen beiden Ergebnissen. Die Kohärenzzeit der emittierten Strahlung ist in diesem Frequenzbereich in etwa $\tau_c \simeq 14$ fs, während der XUV-Pulszug mit $\tau_{XUV} \simeq 44$ fs (FWHM) bedeutend länger ist. Dieser Unterschied lässt sich nur damit erklären, dass die Phase der emittierten Harmonischen nicht konstant ist. Die Harmonischen sind demnach gechirpt. In der ersten Näherung ist der Chirp linear und die Frequenz ändert sich linear mit der Zeit. Für einen Gaußschen Puls der Einhüllenden $E = E_0 \exp \left[-(t/\tau)^2\right]$ kann die instantane Frequenz als $\nu_i = \nu_0 + (a/\pi\tau^2) \cdot t$ aufgeschrieben werden. Hierbei ist τ die bandbreiten-begrenzte Pulsdauer und *a* der dimensionslose Chirp-Parameter. Der Chirp-Parameter hängt von der zweiten Ableitung der zeitlichen Phase φ'' ab und ist hier als $a = 1/2 \varphi'' \tau^2$ definiert [94]. Für a > 0 spricht man von einem positiven Chirp und für a < 0 von einem negativen Chirp. Zwischen der ungechirpten Pulsdauer τ_c und der gechirpten Pulsdauer τ_{XUV} besteht dann folgender Zusammenhang

$$\tau_{XUV} = \tau_c \sqrt{1 + a^2}. \tag{5.3.1}$$

Setzt man in diese Gleichung die Messwerte ein, ergibt sich für den Chirp-Parameter ein Wert von $a \simeq \pm 3$. Aus den Ergebnissen dieser Messung kann also nicht gesagt werden, ob es sich hierbei um einen positiven oder negativen Chirp handelt.

Die Untersuchung der Feinstruktur von Spektrallinien in Abschnitt 4.3.1 lässt den Schluss zu, dass die Ursache für den Chirp der Harmonischen im ungleichen Abstand der emittierten XUV-Pulse liegt. Dafür kommen bei den Oberflächenharmonischen zwei Effekte in Frage. Bei den CWE-Harmonischen kann der ungleiche Abstand der emittierten XUV-Pulse durch intensitätsabhängige Aufenthaltsdauer der Brunel-Elektronen im Vakuum erklärt werden (siehe Abschnitt 2.2.1). Im relativistischen Fall ist das Eindrücken der Plasmaoberfläche und der damit verbundene Laufzeitunterschied für den Harmonischen-Chirp verantwortlich (siehe Abschnitt 4.3).

In der Dissertation von R. Hörlein wird davon ausgegangen, dass die Harmonischen vorwiegend durch den CWE-Prozess erzeugt werden [50]. Hierbei wurde der ungleiche Pulsabstand mit einem Modell für die Aufenthaltsdauer der Brunel-Elektronen im Vakuum erklärt. Der resultierende Harmonischen-Chirp führt zur Verbreiterung der Spektrallinien.



Abbildung 5.3.2: Spektralbreiten in Experiment und PIC-Simulation. Die gemessenen Spektralbreiten werden in der Simulation bei einer Skalenlänge von $L \simeq \lambda_0/20$ beobachtet. In der Simulation ist der positive Chirp der relativistischen Harmonischen für die Verbreiterung der Linien mit steigender Skalenlänge verantwortlich. (Simulationsparameter: Strahldurchmesser $w_0 = 2,0 \,\mu\text{m}$, Einfallwinkel $\theta = 45^\circ$, Pulsdauer $\tau = 45$ fs, Laserwellenlänge $\lambda = 790 \,\text{nm}$, normalisiertes Vektorpotential $a_0 = 4,3$)

Die modellierten Spektralbreiten der Harmonischen ($\Delta\omega/\omega \simeq 0, 15$) entsprechen dabei in etwa der Kohärenzzeit-Messung ($\Delta\omega/\omega \simeq 0, 10$), während man bei gleichen Pulsabständen eine kleinere Bandbreite erwarten würde ($\Delta\omega/\omega \simeq 0, 03$). Diese Aussage stützt sich auf die Messung der maximal erzeugten Harmonischen. Bei der Verwendung eines Quarz-Targets wurde maximal die 18. Harmonische gemessen, während bei einem Kunststoff-Target maximal die 14. Harmonische gemessen werden konnte. Beide Frequenzen entsprechen der Plasmafrequenz bei der Festkörperelektronendichte und sind damit durch den cut-off des CWE-Prozesses (siehe Gleichung 2.2.1) zu vergleichen.

Die zugrunde liegenden Messungen wurden bei Feldstärken von $a_0 \simeq 4$ gemacht. Dabei lassen zweidimensionale PIC-Simulationen den Schluss zu, dass hauptsächlich relativistische Prozesse zur Erzeugung beitragen. Dabei wurden die Simulationsparameter an das Experiment angepasst (Strahldurchmesser: $w_0 = 2,0 \,\mu\text{m}$, Einfallwinkel: $\theta = 45^\circ$, Pulsdauer: $\tau = 45$ fs, Laserwellenlänge: $\lambda = 790$ nm, normalisiertes Vektorpotential: $a_0 = 4,3$). Zudem wurden für das Vorplasma unterschiedliche Skalenlängen von $L = \lambda/40..\lambda/10$ mit einer Festkörperelektronendichte von $n_e = 305 n_{cr}$ verwendet. Die Auswertung der Simulationen zeigt dabei nicht nur, dass die XUV-Pulse hauptsächlich durch die relativistischen Effekte erzeugt werden, sie liefert zudem eine sehr gute Übereinstimmung mit den gemessen Werten. Der erzeugte XUV-Puls ist mit $\tau_{XUV} = 37$ fs in etwa so lang wie der treibende Laserpuls und im Bereich der Pulszugdauermessung mit dem Volumenautokorrelator $\tau \simeq 44 \pm 20$ fs. Zudem sind die einzelnen XUV-Pulse in etwa 0,8 fs lang, wenn man nur den transmittierten Frequenzbereich des Indium Filters (H8-H13) betrachtet. Dies stimmt ebenfalls gut mit der Volumenautokorrelation überein, bei der mit der feinen Abtastung Pulslängen von 0,9 \pm 0,4 fs gemessen wurden. Vor Allem erhält man in etwa die gemessenen Kohärenzzeiten, wenn man in der Simulation eine Skalenlänge von $L = \lambda/20$ verwendet (siehe Abb.: 5.3.2). Die Kohärenzzeiten bzw. Spektralbreiten variieren dabei mit der Skalenlänge und können in der Simulation mit dem positiven relativistischen Chirp der Harmonischen durch die Eindrückung der Plasmaoberfläche erklärt werden.

Die Erklärung durch den relativistischen Chirp weist in den meisten Punkten eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment auf. Zumal man auch davon ausgehen kann, dass bei einem $a_0 \simeq 4$ relativistische Effekte dominieren. Allerdings ist die Abhängigkeit der maximalen Harmonischen von der Dichte des Targets ein starkes Indiz für den CWE-Prozess. Aus den bisherigen experimentellen Beobachtungen und Auswertungen ist eine definitive Aussage nicht möglich. Für eine endgültige Klärung, welcher Effekt für den gemessenen Chirp verantwortlich ist, müssen weitere Messungen abgewartet werden.

5.4 Perspektive

Wie die Betrachtung im letzten Abschnitt zeigt, kann man aus den Messdaten und den Simulationen nicht bestimmen, welcher Effekt für den Chirp der Harmonischen verantwortlich ist. Zur Klärung, ob es sich dabei um den Harmonischen-Chirp des CWE-Prozesses oder den relativistischen Chirp durch die Eindrückung der Plasmaoberfläche handelt, müsste man die Kohärenzmessung wiederholen und gleichzeitig den Chirp des treibenden Lasers kontrolliert verändern. Da beide Prozesse einen unterschiedlichen Harmonischen-Chirp (CWE - negativ, ROM - positiv) aufweisen, sollte man dadurch einen von beiden kompensieren und so die Kohärenzzeit vergrößern bzw. die spektrale Breite verkleinern.

Für die Bestimmung der Kohärenzzeit kann man dabei eine Erweiterung des Aufbaus mit der Doppellochblende vor dem Transmissionsgitter verwenden. Dabei kann das Drehen der Winkelstellung β zur Einstellung des Wegunterschiedes Δs vermieden werden, indem man die unterschiedlichen Winkel direkt in eine Blende mit mehreren Löchern implementiert. Ein Beispiel für eine solche Multi-Pinhole-Blende ist in Abbildung 5.4.1 (a) zu



Abbildung 5.4.1: Multi-Lochblenden-Aufbau. (a) Mikroskop-Aufnahme einer Multi-Lochblende. Durch die geeignete Anordnung mehrerer Lochblenden ist es möglich, mehrere Winkel beziehungsweise Laufwegunterschiede gleichzeitig zu messen. (b) Im Fernfeld entsteht dann eine komplexe Interferenzstruktur, in der die Ausprägung der Minima mit ansteigendem Gangunterschied abnimmt. Die exakte Auswertung ist hier nur noch numerisch möglich.

sehen. Die unterschiedlichen Winkel werden dabei durch die halbkreisförmige Anordnung der einzelnen Löcher realisiert. Im Überlapp-Bereich benachbarter Löcher entstehen Interferenzstrukturen, deren Ausprägung ein Maß für die Kohärenz zwischen beiden Löchern ist. Durch die gleichzeitige Messung mehrerer Winkelstellungen kann man die vollständige Kreuzkorrelationsfunktion $g_{11}(\Delta s)$ mit einem Aufbau messen.

In Abbildung 5.4.1 (b) ist die resultierende Interferenzstruktur der Multi-Pinhole-Blende aus Abbildung 5.4.1 (a) für die 20. Harmonische dargestellt. Die simulierte Intensitätverteilung hat eine deutlich kompliziertere Struktur als bei den Doppellochblenden. Für die quantitative Auswertung ist es deshalb nötig, die gesamte zweidimensionale Verteilung numerisch auszuwerten. Grundsätzlich stellt der Multi-Lochblenden-Aufbau eine erhebliche Verbesserung dar, da man die gesamte Information zur zeitlichen Kohärenz mit einer Aufnahme einsammelt. Die Verwendung von interferometrischen Methoden stellt damit eine praktische Möglichkeit zur Untersuchung von Oberflächenharmonischen dar.

Kapitel 6

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die zeitlich-spektrale Struktur von relativistischen Oberflächenharmonischen erstmals experimentell untersucht. Dabei wurde zudem gezeigt, dass man durch kontrollierte Veränderung experimeteller Parameter diese Eigenschaften der emittierten Strahlung gezielt beeinflussen kann.

Zunächst wurden die Kohärenzeigenschaften von Oberflächenharmonischen am ATLAS-Lasersystem (Max-Planck-Institut für Quantenoptik, München) vermessen. Dazu wurden die räumlichen Strukturen in einer Dimension untersucht und anschließend die zeitliche Kohärenz mit einem XUV-Interferometer (Autokorrelation 1. Ordnung) bestimmt. Für die 12. bis 16. Harmonische wurden dabei Kohärenzzeiten von $\tau_c = 13..18$ fs gemessen. Die Dauer des XUV-Pulszuges $\tau_{XUV} = 40 \pm 20$ fs wurde im Vorfeld mit einem Volumenautokorrelator (Autokorrelation 2. Ordnung) bestimmt. Der Unterschied zwischen diesen beiden Werten liefert den Nachweis, dass die Oberflächenharmonischen gechirpt sind.

Weitergehend konnte am ARCTURUS-Lasersystem (Institut für Laser- und Plasmaphysik, HHU Düsseldorf) erstmals nachgewiesen werden, dass man den Chirp von relativistischen Harmonischen durch Steuerung der Vorplasmabedingungen effektiv steuern kann. Dafür wurde der ursprüngliche Kontrast des Lasersystems $K_0 \simeq 3 \cdot 10^{-8}$ unter Verwendung eines Einweg-Plasmaspiegels verbessert [88]. Durch den Gebrauch von Plasmaspiegeltargets mit unterschiedlicher Reflektivität konnte der Kontrast stufenweise reguliert werden. Mit einem Glassubstrat wurde ein mittlerer Kontrast von $K_{BK7} \simeq 1, 5 \cdot 10^{-9}$ und mit einer antireflexbeschichteten Oberfläche ein hoher Kontrast von $K_{AR} \simeq 3, 5 \cdot 10^{-11}$ eingestellt. Die Steuerung des Kontrastes ermöglicht die Kontrolle der Skalenlänge des Vorplasmas in einem gewissen Rahmen. Dabei haben hydrodynamische Simulationen gezeigt, dass man im Experiment Skalenlängen im Bereich von $L_{BK7} = 200..400 \text{ nm}$ für den mittleren Kontrast und L = 50..90 nm für den hohen Kontrast erwarten kann.

Im Experiment wurden mit diesen Skalenlängen und maximalen Inensitäten von $I_0 \simeq 1, 4 \cdot 10^{20} \,\mathrm{W\,cm^{-2}}$ relativistische Oberflächenharmonische erzeugt. Die Untersuchung der emittierten Strahlung erfolgte durch ein abbildendes Spektrometer, dessen Komponenten im Rahmen dieser Arbeit mit Hilfe von Gas-Harmonischen kalibriert wurden. Im zugänglichen Spektralbereich (17, 1..51, 3 nm) zeigte sich im Experiment eine starke Abhängigkeit von der Skalenlänge; bei hohem Kontrast sind scharfe Harmonische zu sehen, während die Harmonischen bei mittlerem Kontrast starke Modulationen aufweisen. Zudem werden höhere Harmonische bei mittlerem Kontrast effektiver erzeugt.

Die experimentellen Beobachtung wurden in Zusammenarbeit mit A. Pukhov und D. an der Brügge (Institut für Theoretische Physik, HHU Düsseldorf) mit einem analytischen Modell erklärt und mit PIC-Simulationen untermauert. Dabei stellte sich heraus, dass die Eindrückung der Vakuum-Plasma-Grenzfläche durch den Lichtdruck des Laserpulses für die Modulation der Spektren verantwortlich ist. Beim Eindrücken bewegt sich die emittierende Oberfläche vom Beobachter weg - die Harmonischen werden durch den Doppler-Effekt rotverschoben. Anschließend bewegt sich die Oberfläche zurück - die Harmonischen werden blauverschoben. Dieser Effekt führt zur Verbreiterung und bei stärkerer Ausprägung zur Modulation der Harmonischen. Die Messungen liefern den ersten experimentellen Nachweis des postiven Chirps von relativistischen Harmonischen.

Die spektralen Eigenschaften sind somit ein Maß für die Schnelligkeit der Eindrückung der Plasmagrenzfläche und können deshalb zur Diagnose relativistischer Plasmen verwendet werden. Durch Auswertung der aufgenommenen Spektren zeigt sich, dass die Oberfläche bei hohem Kontrast maximal eine Geschwindigkeit von $v_{AR} \leq 0,003 \cdot c$ erreicht. Bei mittlerem Kontrast ist die maximale Geschwindigkeit mit $v_{BK7} \geq 0,006 \cdot c$ mindestens doppelt so schnell.

Die gute Übereinstimmung der Experimente mit den PIC-Simulationen lässt außerdem Rückschlüsse auf den zeitlichen Verlauf der emittierten Strahlung zu. Für den Fall eines steilen Plasmagradienten erzeugt man im Wesentlichen eine Phasenmodulation des einfallenden Laserfeldes, aus der man erst duch Filterung Attosekundepulse erhalten kann. Bei mittlerem Kontrast werden im emittierten Feld Attosekundenpulse vorausgesagt, die ohne Filterung der hohen Frequenzkomponenten eine Dauer von etwa 100 as haben und nur in eine Richtung ausschlagen. Desweiteren ist die Feldamplitude dieser Pulses doppelt so groß wie das maximale Feld des treibenden Laserpulses. Damit liefert die Kombination aus Experiment und Simulation einen Hinweis darauf, dass man durch Steuerung des Vorplasmas die Form der Attosekundenpulse im Zeitbereich stark beeinflussen kann. Teilbereiche der Arbeit wurden bereits im PRL veröffentlicht [11].

Mit der Kontrolle der Wechselwirkung durch die gezielte Wahl der experimentellen Parameter kann man in Zukunft die spektralen und zeitlichen Eigenschaften der emittierten Strahlung steuern und je nach Anwendung anpassen. Mit der präsentierten Arbeit wurde ein erster Schritt in diese Richtung gemacht und ein möglicher Weg aufgezeigt.

Anhang A

Charakterisierung des Spektrometers

A.1 Spektrale Effizienz des Spektrometers

Zur Bestimmung der spektralen Energieverteilung der Oberflächenharmonischen in Abschnitt 4.2 muss man die spektrale Effizienz η des Spektrometers kennen. Dafür wurden dessen einzelne Komponenten mit Hilfe von Gas-Harmonischen vermessen. Für die Erzeugung von Gas-Harmonischen wird am ILPP ein kommerzielles GW-Lasersystem (Femtopower, Femtolasers GmbH) verwendet. Dieser Ti:Sa Laser basiert auf der CPA Technologie und liefert Pulse mit unter 10 fs, die in der Experimentierkammer mit 300 µJ ankommen und auf Intensitäten von etwa $10^{16} \,\mathrm{W \, cm^{-2}}$ im Argon-Gasjet fokussiert werden. Bei diesen Intensitäten werden die Argon Atome ionisiert, gewinnen im Laserfeld Energie und geben diese bei der Rekombination mit dem Mutteratom wieder ab. Pro Laserzyklus entstehen dabei zwei extrem kurze XUV-Pulse und damit im Frequenzraum ungerade Harmonische [26]. Diese werden nach dem Passieren eines Aluminiumfilters als XUV-Quelle verwendet. Das entsprechende Spektrum ist als blaue Linie in Abbildung A.1.1 (a) zu sehen.

Für die Bestimmung der Transmission der im Experiment verwendeten 200 nm dicken Aluminiumfolien wird das Referenzspektrum der Gas-Harmonischen mit dem durch die Folie transmittierten Spektrum verglichen (siehe Abb.: A.1.1 (a)). Die Messwerte der einzelnen Harmonischen (blaue Kreuze) weichen dabei erheblich von der theoretisch zu erwartenden Transmission durch 200 nm Aluminium (blaugrün) ab (siehe Abb.: A.1.1 (b)). Diese Abweichung kann durch die Oxidation der Folie erklärt werden, da die Werte sehr gut an eine Folie der gleichen Dicke mit einem Aluminium-zu-Sauerstoff-Verhältnis von 1:9 passen. Durch die Lagerung der Folien an der Luft entsteht an der Oberfläche eine Aluminiumoxidschicht



Abbildung A.1.1: Transmission der Aluminiumfolie. (a) Die Transmission wird bestimmt indem man das Referenzsignal (blau) mit dem transmittierten Signal (schwarz) vergleicht. (b) Es zeigt sich, dass die gemessenen Werte (blaue Kreuze) vom theoretischen Wert (blaugrün) abweichen und stattdessen durch die Oxidation der Oberfläche erklärt werden können.

 (Al_2O_3) . Aus dem experimentell bestimmten Al:O Verhältnis $N_{Al} = V \cdot N_O = 9 N_O$ und der Dicke der Folie D = 200 nm lässt sich die Dicke der beiden Oberflächenschichten mit

$$X_o = D \frac{\varrho_{Al}}{m_{Al}} \left(\frac{\varrho_{AlO}}{\overline{m}} \left(V \frac{6}{5} - \frac{4}{5} \right) + 2 \frac{\varrho_{Al}}{m_{Al}} \right)^{-1}$$
(A.1.1)

berechnen. Dabei ist ρ_{Al} die Dichte von Aluminium, ρ_{AlO} die Dichte von Aluminiumoxid, m_{Al} die Masse eines Al Atoms und \overline{m} die mittlere Masse von Aluminiumoxid. Das Einsetzen der Werte ergibt eine Oberflächendicke von jeweils $X_0 \simeq 10$ nm auf beiden Seiten der Folie. Für die Bestimmung der Gesamteffizienz des Spektrometers wird für die Transmission der Aluminiumfolie T_{Al} der theoretische Tabellenwert für ein 400 nm dickes Al₉O verwendet (siehe Abb.: 4.1.6 (a)).

Die Reflektion des Toroidspiegels wurde ebenfalls mit den Gas-Harmonischen vermessen. Dafür wurde die in Abbildung A.1.2 (a) dargestellte Anordnung verwendet. Zuerst wird die XUV-Strahlung an einem Transmissionsgitter (1000 Linien/mm) in ihre spektralen Komponenten aufgespalten. Die 1. Beugungsordnung wird dann als Referenz verwendet. Die -1. Beugungsordnung wird hingegen am nickelbeschichtenten Toroidspiegel unter einem Einfallwinkel von 3° reflektiert. Aus dem Verhältnis zwischen Referenz und reflektiertem Signal ergeben sich für die Reflektion Werte im Bereich von ca. 80% (siehe Abb.: A.1.2 (b)). Die Reflektion ist etwas kleiner als die theoretischen Tabellenwerte bei 3° Einfallwinkel und



Abbildung A.1.2: Reflektion des Toroidspiegels. (a) Bei der Bestimmung der Reflektion dient die 1. Beugungsordnung als Referenz, während die -1. Beugungsordnung unter 3° an der Nickelschicht reflektiert wird. (b) Dabei ergeben sich Reflektionswerte (türkise Kreuze) von etwa 80 %. Diese entsprechen theoretischen Reflektion an einer Nickelschicht mit einer r.m.s Rauigkeit von 5 nm.

einer idealen Oberfläche (blaue Punkte). Ein plausibler Grund für die minimale Abweichung kann die Rauigkeit der Spiegeloberfläche sein. Es zeigt sich, dass die Werte relativ gut durch eine Nickelschicht mit einer realistischen r.m.s. Rauigkeit von 5 nm angenähert werden können. Für die Berechnung der Gesamteffizienz werden für die Spiegelreflektion R_{Ni} die entsprechenden theoretischen Tabellenwerte verwendet. Diese sind allerdings nur bis 41 nm bekannt, so dass für größere Wellenlängen ein konstanter Wert von 86 % angenommen wird.

Die Effektivität des Gitters wurde ebenfalls mit Hilfe der 1. Beugungsordnungen eines Transmissionsgitters vermessen (siehe Abb.: A.1.3 (a)). Hierbei wurde die -1. Ordnung als Referenz verwendet, während in den Strahlengang der 1. Ordnung das Transmissionsgitter aus dem abbildenden Spektrometer gestellt wurde. Indem man dessen Gitterlinien horizontal orientiert, erhält man danach eine vertikale Aufspaltung der spektralen Komponenten in höhere Beugungsordnungen. Wie in der rechten Aufnahme von Abbildung A.1.3 (a) zu sehen ist, kann man auf diese Weise die 0. und 1. Beugungsordnung des zu charakterisierenden Gitters gleichzeitig messen. Um die Abhängigkeit von der Polarisation zu untersuchen, wurde die Effektivität mit s- und p-polarisierten XUV-Strahlen gemessen. Dafür wurde das



Abbildung A.1.3: Effektivität des Transmissionsgitters. (a) Für die Messung der Gittereffizienz wird die -1. Beugungsordnung als Referenz verwendet und die 1. Ordnung durch das charakterisierte Gitter mit horizontalen Gitterlinien geschickt. Auf diese Weise ist es möglich, die Effizienz in der 0. und 1. Ordnung zu messen. (b) Die Effizienz ist in diesem Spektralbereich konstant und unabhängig von der Polarisation der Harmonischen.

elektrische Feld des treibenden Laserpulses und damit auch das der Gas-Harmonischen mit einer $\lambda/2$ -Platte um 90° gedreht. Die Auswertung der Aufnahmen zeigt, dass sich die totale Effizienz des Gitters im zugänglichen Spektralbereich (20 bis 37 nm) nicht signifikant mit der Wellenlänge ändert (siehe Abb.: A.1.3 (b)). Zudem ist in diesem Bereich auch keine Polarisationsabhängigkeit zu beobachten. Für die Effizienz des Transmissionsgitters im verwendeten Spektrometer wird deshalb für den beobachteten Spektralbereich (17,1 bis 51,3 nm) eine absolute Effektivität von $\eta_G = 4,4\%$ angenommen. Dies ist plausibel, da Abweichungen erst bei anderen Wellenlängen zu tragen kommen. Bei kleinen Wellenlängen ($\lambda \leq 2$ nm) werden die Goldstege durchsichtig und aus dem Amplitudengitter wird ein Phasengitter [99]. Oder die Wellenlänge wird so groß, dass die Ausbreitung zwischen den Gitterstegen der Ausbreitung in einem Hohlraum gleichen kann [10].

Für die Aufnahme der Spektren wurde eine Andor DO420-BN XUV-Kamera verwendet. Da die Gas-Harmonischen-Quelle nicht kalibriert ist, wird hier die vom Hersteller angegebene Quanteneffizienz verwendet. Die gesamte spektrale Effizienz des abbildenden Spektrometers kann aus den separat bestimmten Effizienzen der einzelnen Komponenten nach

$$\eta = \eta_C \eta_G R_{Ni} T_{Al} \tag{A.1.2}$$

berechnet werden. Das Ergebnis der Multiplikation ist in Abbildung 4.1.6 (b) dargestellt. Für das gesamte Spektrometer addieren sich die relativen Fehler der einzelnen Komponenten zu einem Gesamtwert von etwa 60 %.

A.2 Spektrale Kalibrierung

Für die spektrale Kalibrierung des Spektrometers wird ein Material mit vielen bekannten charakteristischen Linien in den Fokus des Lasers gestellt. Hier haben wir eine DLC-Folie (Diamond-like carbon [66]) als Target verwendet und das emittierte Spektrum mit dem abbildenden Spektrometer aufgenommen. Neben den charakteristischen Kohlenstofflinien sind im resultierenden Spektrum auch noch die 1. und 3. Beugungsordnung der Aluminium L-Kante zu sehen (siehe Abb.: A.2.1 (a)). Indem man den Wellenlängen der bekannten Strukturen den entsprechenden Pixelwert zuordnet, kann man das Spektrometer kalibrieren.

Für die Bestimmung der Kohlenstofflinien kann man Datenbanken verwenden, in denen die Wellenlängen und diverse andere Eigenschaften möglicher Übergänge gesammelt sind [120]. Den Linien im Spektrum können die in Tabelle A.1 aufgelisteten Übergänge zugeordnet werden.

Wellenlänge [nm]	Ionisation	Übergang	Pixel
18,223	VI	2P ₀ -2D	398
19,702	V	1P ₀ -1D	375
22,720	V	$2S-3P_0$	350
24,874	V	$2S-3P_0$	328
28,923	IV	$2P_0-2D$	285
31,242	IV	$2S-2P_0$	259
38,418	IV	$2P_0-2D$	184
45,963	III	$3P_0-3D$	101
17,1	1. Ordnung Al L-Kante		411
51,1	3. Ordnung Al L-Kante		42

Tabelle A.1: Zur spektralen Kalibrierung werden den Wellenlängen der detektierten charakteristischen Kohlenstofflinien und der beiden Aluminium L-Kanten die gemessenen Pixelwerte zugeordnet.



Abbildung A.2.1: Spektrale Kalibrierung. (a) Mit bekannten charakteristischen Kohlenstoff Linien und der 1. und 3. Ordnung der Al L-Kante wird das Spektrometer kalibriert. (b) Die Messwerte zeigen einen linearen Zusammenhang zwischen Wellenlänge und Pixelposition, der durch die Gleichung A.2.1 angefittet werden kann.

In Abbildung A.2.1 (b) sind die Werte aus Tabelle A.1 als schwarze Punkte aufgetragen. Es zeigt sich ein linearer Zusammenhang zwischen der Wellenlänge λ und der Pixelposition p, der durch die Funktion

$$\lambda = \Lambda - \frac{\Delta\lambda}{\Delta p} \cdot p = 55,3 \,\mathrm{nm} - 0,093 \,\frac{\mathrm{nm}}{\mathrm{Pixel}} \cdot p \tag{A.2.1}$$

angefittet werden kann (rot gestrichelte Linie). Der relative Fehler für die Steigung $\frac{\Delta\lambda}{\Delta p}$ ist 0,8 % und damit zu vernachlässigen. Im Experiment wird mit Quarz (Si0₂) ein Material verwendet, dass in dem beobachteten Spektralbereich keine signifikanten charakteristischen Linien aufweist (siehe Abschnitt 4.2). Deshalb eignen sich in diesem Fall nur die beiden Aluminium L-Kanten zur Kalibrierung. Diese lassen sich allerdings nicht genau einem Pixel zuordnen. Für die Pixelposition der 1. Ordnung kann einen Fehler von 2 bis 3 Pixeln und für die 3. Ordnung ein Fehler von 4 Pixeln angenommen werden. Die Steigung nimmt damit Werte von $\frac{\Delta\lambda}{\Delta p} = 93^{+1}_{-0.5} \frac{\text{pm}}{\text{Pixel}}$ an. Eine nichtlineare Abhängigkeit der Wellenlänge von der Pixelposition ist mit der spektralen Auflösung des Spektrometers nicht zu messen. Die Bildfeldwölbung durch die ebene Kamerafläche kann somit vernachlässigt werden.
Literaturverzeichnis

- P. Agostini and L. F. DiMauro. The physics of attosecond light pulses. *Reports On Progress In Physics*, 67(6):813–855, June 2004.
- [2] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and atomic ions in a varying electromagnetic-field. *Zhurnal Eksperimentalnoi* I Teoreticheskoi Fiziki, 91(6):2008–2013, December 1986.
- [3] Daniel an der Brügge. Ultrashort and Ultraintense Electromagnetic Pulses. PhD thesis, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2010.
- [4] D. an der Brugge and A. Pukhov. Propagation of relativistic surface harmonics radiation in free space. *Physics Of Plasmas*, 14(9):093104, September 2007.
- [5] D. An der Brügge and A. Pukhov. Enhanced relativistic harmonics by electron nanobunching. *Phys. Plasmas*, 17(3):033110, 2010.
- [6] D. Attwood. Soft X-Rays and Extreme Ultraviolet Radiation. Cambridge University Press, New York, 1999.
- [7] S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, and J. H. Eberly. Tunneling ionization of noble-gases in a high-intensity laser field. *Physical Review Letters*, 63(20):2212–2215, November 1989.
- [8] T. Baeva, S. Gordienko, and A. Pukhov. Relativistic plasma control for single attosecond x-ray burst generation. *Physical Review E*, 74(6):065401, December 2006.
- [9] T. Baeva, S. Gordienko, and A. Pukhov. Theory of high-order harmonic generation in relativistic laser interaction with overdense plasma. *Physical Review E*, 74(4):046404, October 2006.

- [10] M. M. Balkey, E. E. Scime, M. L. Schattenburg, and J. van Beek. Effects of gap width on vacuum-ultraviolet transmission through submicrometer-period, freestanding transmission gratings. *Applied Optics*, 37(22):5087–5092, August 1998.
- [11] M. Behmke, D. an der Brugge, C. Rodel, M. Cerchez, D. Hemmers, M. Heyer, O. Jackel, M. Kubel, G. G. Paulus, G. Pretzler, A. Pukhov, M. Toncian, T. Toncian, and O. Willi. Controlling the spacing of attosecond pulse trains from relativistic surface plasmas. *Physical Review Letters*, 106(18):185002, May 2011.
- [12] M. Bellini, C. Lynga, A. Tozzi, M. B. Gaarde, T. W. Hansch, A. L'Huillier, and C. G. Wahlstrom. Temporal coherence of ultrashort high-order harmonic pulses. *Physical Review Letters*, 81(2):297–300, July 1998.
- [13] Jens Bernhardt. Aufbau eines experimentes zur Überlagerung zweier gegenläufiger intensiver laserpulse. Master's thesis, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2005.
- [14] Max Born and Emil Wolf. Principles of Optics. Cambridge University Press, 1999.
- [15] F. BrunelL. Not-so-resonant, resonant absorption. *Physical Review Letters*, 59(1):52– 55, July 1987.
- [16] S. V. Bulanov, N. M. Naumova, and F. Pegoraro. Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser-pulse with an overdense plasma. *Physics Of Plasmas*, 1(3):745– 757, March 1994.
- [17] K. Burnett, V. C. Reed, and P. L. Knight. Atoms in ultra-intense laser fields. Journal Of Physics B-Atomic Molecular And Optical Physics, 26(4):561–598, February 1993.
- [18] N. H. Burnett, H. A. Baldis, M. C. Richardson, and G. D. Enright. Harmonicgeneration in co2-laser target interaction. *Applied Physics Letters*, 31(3):172–174, 1977.
- [19] R. L. Carman, D. W. Forslund, and J. M. Kindel. Visible harmonic emission as a way of measuring profile steepening. *Physical Review Letters*, 46(1):29–32, 1981.
- [20] E. Casnati, A.Tartari, and C.Baraldi. An empirical approach to k-shell ionisation cross section by electrons. J. Phys. B. At. Mol. Phys., 15:155–167, 1982.

- [21] A. L. Cavalieri, N. Muller, T. Uphues, V. S. Yakovlev, A. Baltuska, B. Horvath, B. Schmidt, L. Blumel, R. Holzwarth, S. Hendel, M. Drescher, U. Kleineberg, P. M. Echenique, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Heinzmann. Attosecond spectroscopy in condensed matter. *Nature*, 449(7165):1029–1032, October 2007.
- [22] M Cerchez. Ultrashort laser pulse interaction with overdense plasmas. PhD thesis, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2008.
- [23] G. Cheriaux, P. Rousseau, F. Salin, J. P. Chambaret, B. Walker, and L. F. Dimauro. Aberration-free stretcher design for ultrashort-pulse amplification. *Optics Letters*, 21(6):414-416, March 1996.
- [24] V. Chvykov, P. Rousseau, S. Reed, G. Kalinchenko, and V. Yanovsky. Generation of 10(11) contrast 50 tw laser pulses. *Optics Letters*, 31(10):1456–1458, May 2006.
- [25] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mevel, C. Dorrer, C. Le Blanc, F. Salin, and P. Agostini. Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: Model and experiment. *Physical Review Letters*, 82(8):1668–1671, February 1999.
- [26] P. B. Corkum and F. Krausz. Attosecond science. Nature Physics, 3(6):381–387, June 2007.
- [27] J. Dawson and C. Oberman. High-frequency conductivity and the emission and absorption coefficients of a fully ionized plasma. *Physics Of Fluids*, 5(5):517–524, 1962.
- [28] T. Ditmire, J. W. G. Tisch, E. T. Gumbrell, R. A. Smith, D. D. Meyerhofer, and M. H. R. Hutchinson. Spatial coherence of short wavelength high-order harmonics. *Applied Physics B-Lasers And Optics*, 65(3):313–328, September 1997.
- [29] G. Doumy, F. Quere, O. Gobert, M. Perdrix, P. Martin, P. Audebert, J. C. Gauthier, J. P. Geindre, and T. Wittmann. Complete characterization of a plasma mirror for the production of high-contrast ultraintense laser pulses. *Physical Review E*, 69(2):026402, February 2004.
- [30] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinizi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz. Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. *Nature*, 419(6909):803-807, October 2002.

- [31] B. Dromey, D. Adams, R. Horlein, Y. Nomura, S. G. Rykovanov, D. C. Carroll, P. S. Foster, S. Kar, K. Markey, P. McKenna, D. Neely, M. Geissler, G. D. Tsakiris, and M. Zepf. Diffraction-limited performance and focusing of high harmonics from relativistic plasmas. *Nature Physics*, 5(2):146–152, February 2009.
- [32] B. Dromey, S. Kar, C. Bellei, D. C. Carroll, R. J. Clarke, J. S. Green, S. Kneip, K. Markey, S. R. Nagel, P. T. Simpson, L. Willingale, P. McKenna, D. Neely, Z. Najmudin, K. Krushelnick, P. A. Norreys, and M. Zepf. Bright multi-kev harmonic generation from relativistically oscillating plasma surfaces. *Physical Review Letters*, 99(8):085001, August 2007.
- [33] B. Dromey, S. Kar, M. Zepf, and P. Foster. The plasma mirror a subpicosecond optical switch for ultrahigh power lasers. *Review Of Scientific Instruments*, 75(3):645– 649, March 2004.
- [34] B. Dromey, M. Zepf, A. Gopal, K. Lancaster, M. S. Wei, K. Krushelnick, M. Tatarakis, N. Vakakis, S. Moustaizis, R. Kodama, M. Tampo, C. Stoeckl, R. Clarke, H. Habara, D. Neely, S. Karsch, and P. Norreys. High harmonic generation in the relativistic limit. *Nature Physics*, 2(7):456-459, July 2006.
- [35] K. Eidmann, T. Kawachi, A. Marcinkevicius, R. Bartlome, G. D. Tsakiris, K. Witte, and U. Teubner. Fundamental and harmonic emission from the rear side of a thin overdense foil irradiated by an intense ultrashort laser pulse. *Physical Review E*, 72(3):036413, September 2005.
- [36] A. Einstein. Zur elektrodynamik bewegter körper. Ann. Phys., 17:891, 1905.
- [37] D. W. Forslund, J. M. Kindel, K. Lee, E. L. Lindman, and R. L. Morse. Theory and simulation of resonant absorption in a hot plasma. *Physical Review A*, 11(2):679–683, 1975.
- [38] M. Geissler, S. Rykovanov, J. Schreiber, J. Meyer-Ter-Vehn, and G. D. Tsakiris. 3d simulations of surface harmonic generation with few-cycle laser pulses. *New Journal Of Physics*, 9:218, July 2007.
- [39] P. Gibbon. Harmonic generation by femtosecond laser-solid interaction: A coherent "water-window" light source? *Physical Review Letters*, 76(1):50–53, January 1996.

LITERATURVERZEICHNIS

- [40] P. Gibbon and A. R. Bell. Collisionless absorption in sharp-edged plasmas. *Physical Review Letters*, 68(10):1535–1538, March 1992.
- [41] Paul Gibbon. Short Pulse Laser Interaction with Matter. Imperial College Press, 2005.
- [42] L. V. Ginzburg. The Propagation of Electromagnetic Waves in Plasma. Oxford: Pergamon, 1970.
- [43] S. Gordienko, A. Pukhov, O. Shorokhov, and T. Baeva. Coherent focusing of high harmonics: A new way towards the extreme intensities. *Physical Review Letters*, 94(10):103903, March 2005.
- [44] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. S. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. L. Aquila, E. M. Gullikson, D. T. Attwood, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Kleineberg. Single-cycle nonlinear optics. *Science*, 320(5883):1614–1617, June 2008.
- [45] D. Hemmers and G. Pretzler. Multi-color xuv interferometry using high-order harmonics. Applied Physics B-Lasers And Optics, 95(4):667-674, June 2009.
- [46] B. L. Henke, E. M. Gullikson, and J. C. Davis. X-Ray Interactions Photoabsorption, Scattering, Transmission, And Reflection At E=50-30,000 Ev, Z=1-92. Atomic Data And Nuclear Data Tables, 54(2):181-342, July 1993.
- [47] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec,
 P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Attosecond metrology. *Nature*, 414(6863):509-513, November 2001.
- [48] M. Heyer. Erzeugung von oberflächen-harmonischen. Master's thesis, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2009.
- [49] R. Horlein, B. Dromey, D. Adams, Y. Nomura, S. Kar, K. Markey, P. Foster, D. Neely, F. Krausz, G. D. Tsakiris, and M. Zepf. High contrast plasma mirror: spatial filtering and second harmonic generation at 10(19)wcm(-2). New Journal Of Physics, 10:083002, August 2008.

- [50] R. Hörlein. Investigation of the XUV Emission from the Interaction of Intense Femtosecond Laser Pulses with Solid Targets. PhD thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2008.
- [51] J. Itatani, J. Faure, M. Nantel, G. Mourou, and S. Watanabe. Suppression of the amplified spontaneous emission in chirped-pulse-amplification lasers by clean highenergy seed-pulse injection. *Optics Communications*, 148(1-3):70-74, March 1998.
- [52] J. H. Jackson. Classical Electrodynamics. Wiley, New York, 1972.
- [53] J. Jasny, U. Teubner, W. Theobald, C. Wulker, J. Bergmann, and F. P. Schaefer. A single-shot spectrograph for the soft-x-ray region. *Review Of Scientific Instruments*, 65(5):1631–1635, May 1994.
- [54] R. Jung. Laser-plasma interaction with ultra-short laser pulses. PhD thesis, Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2007.
- [55] M. P. Kalashnikov, P. V. Nickles, T. Schlegel, M. Schnuerer, F. Billhardt, I. Will, and W. Sandner. Dynamics of laser-plasma interaction at 10(18)-w/cm(2). *Physical Review Letters*, 73(2):260–263, July 1994.
- [56] M. Kaluza, J. Schreiber, M. I. K. Santala, G. D. Tsakiris, K. Eidmann, J. Meyerter Vehn, and K. J. Witte. Influence of the laser prepulse on proton acceleration in thin-foil experiments. *Physical Review Letters*, 93(4):045003, July 2004.
- [57] D. Kaplan and P. Tournois. Acousto-optic spectral filtering of femtosecond laser pulses. ULTRAFAST OPTICS IV, Springer Verlag, pages 105–118, 2004.
- [58] H. C. Kapteyn, M. M. Murane, A. Szoke, and R. W. Falcone. Prepulse energy suppression for high-energy ultrashort pulses using self-induced plasma shuttering. *Optics Letters*, 16(7):490–492, April 1991.
- [59] L.V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. Sov. Phys. JETP, 20:1307, 1965.
- [60] S. Kohlweyer, G. D. Tsakiris, C. G. Wahlstrom, C. Tillmann, and I. Mercer. Harmonicgeneration from solid-vacuum interface irradiated at high laser intensities. *Optics Communications*, 117(5-6):431–438, June 1995.

- [61] F. Krausz and M. Ivanov. Attosecond physics. *Reviews Of Modern Physics*, 81(1):163– 234, January 2009.
- [62] W. L. Kruer. The Physics of Laser Plasma Interactions. Addison-Wesley, New York, 1988.
- [63] W. L. Kruer and K. Estabrook. Jxb heating by very intense laser-light. Physics Of Fluids, 28(1):430-432, 1985.
- [64] L. Le Deroff, P. Salieres, B. Carre, D. Joyeux, and D. Phalippou. Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a fresnel-mirror interferometer. *Physical Review A*, 61(4):043802, April 2000.
- [65] R. Lichters, J. MeyerterVehn, and A. Pukhov. Short-pulse laser harmonics from oscillating plasma surfaces driven at relativistic intensity. *Physics Of Plasmas*, 3(9):3425– 3437, September 1996.
- [66] V. K. Liechtenstein, T. M. Ivkova, E. D. Olshanski, R. Golser, W. Kutschera, P. Steier, C. Vockenhuber, R. Repnow, R. von Hahn, M. Friedrich, and U. Kreissig. Recent investigations and applications of thin diamond-like carbon (dlc) foils. Nuclear Instruments & Methods In Physics Research Section A-Accelerators Spectrometers Detectors And Associated Equipment, 521(1):197–202, March 2004.
- [67] X. Liu and D. Umstadter. Competition between ponderomotive and thermal forces in short-scale-length laser plasmas. *Physical Review Letters*, 69(13):1935–1938, September 1992.
- [68] W. Lotz. An empirical formula for electron-impact ionization cross-section. Zeitschrift Fur Physik, 206(2):205-&, 1967.
- [69] W. Lotz. Electron-impact ionization cross-sections and ionization rate coefficients for atoms and ions from hydrogen to calcium. *Zeitschrift Fur Physik*, 216(3):241–&, 1968.
- [70] W. Lu, M. Nicoul, and D. von der Linde. Optimizied k alpha x-ray flashes from femtosecond-laser-irradiated foils. *Physical Review E*, 80:026404, 2009.

- [71] A. Marcinkevicius, R. Tommasini, G. D. Tsakiris, K. J. Witte, E. Gaizauskas, and U. Teubner. Frequency doubling of multi-terawatt femtosecond pulses. *Applied Phy*sics B-Lasers And Optics, 79(5):547–554, September 2004.
- [72] A. Mick. Aufbau einer präzisions-optischen laserzielvorrichtung. Bachelor Arbeit, 2009. Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf.
- [73] H. M. Milchberg and R. R. Freemann. Expansion-induced doppler shifts from ultrashort-pulse laser-produced plasmas. *Physical Review A*, 41(4):2211–2214, February 1990.
- [74] P. Mulser, D. Bauer, and H. Ruhl. Collisionless laser-energy conversion by anharmonic resonance. *Physical Review Letters*, 101(22):225002, November 2008.
- [75] Y. Nomura, R. Horlein, P. Tzallas, B. Dromey, S. Rykovanov, Z. Major, J. Osterhoff, S. Karsch, L. Veisz, M. Zepf, D. Charalambidis, F. Krausz, and G. D. Tsakiris. Attosecond phase locking of harmonics emitted from laser-produced plasmas. *Nature Physics*, 5(2):124–128, February 2009.
- [76] Yutaka Nomura. Temporal characterization of harmonic radiation generated by intense laser plasma interaction. PhD thesis, Ludwig-Maximilians-Universität München, 2008.
- [77] P. A. Norreys, M. Zepf, S. Moustaizis, A. P. Fews, J. Zhang, P. Lee, M. Bakarezos, C. N. Danson, A. Dyson, P. Gibbon, P. Loukakos, D. Neely, F. N. Walsh, J. S. Wark, and A. E. Dangor. Efficient extreme uv harmonics generated from picosecond laser pulse interactions with solid targets. *Physical Review Letters*, 76(11):1832–1835, March 1996.
- [78] N. A. Papadogiannis, L. A. A. Nikolopoulos, D. Charalambidis, G. D. Tsakiris, P. Tzallas, and K. Witte. Two-photon ionization of he through a superposition of higher harmonics. *Physical Review Letters*, 90(13):133902, April 2003.
- [79] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Auge, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292(5522):1689–1692, June 2001.
- [80] B. M. Penetrante and J. N. Bardsley. Residual energy in plasmas produced by intense subpicosecond lasers. *Physical Review A*, 43(6):3100–3113, March 1991.

- [81] G. Pretzler. Höchstleistung-Kurzpulslaser. Ludwig-Maximilians-Universität München, 2000.
- [82] A. Pukhov. Three-dimensional electromagnetic relativistic particle-in-cell code vlpl (virtual laser plasma lab). Journal Of Plasma Physics, 61:425–433, April 1999.
- [83] F. Quere, C. Thaury, J. P. Geindre, G. Bonnaud, P. Monot, and P. Martin. Phase properties of laser high-order harmonics generated on plasma mirrors. *Physical Review Letters*, 1(9):095004, March 2008.
- [84] F. Quere, C. Thaury, P. Monot, S. Dobosz, P. Martin, J. P. Geindre, and P. Audebert. Coherent wake emission of high-order harmonics from overdense plasmas. *Physical Review Letters*, 96(12):125004, March 2006.
- [85] B. Quesnel and P. Mora. Theory and simulation of the interaction of ultraintense laser pulses with electrons in vacuum. *Physical Review E*, 58(3):3719–3732, September 1998.
- [86] R. Ramis, R. Schmalz, and J. Meyertervehn. Multi a computer code for onedimensional multigroup radiation hydrodynamics. *Computer Physics Communications*, 49(3):475–505, June 1988.
- [87] C. Rödel. Plasmaspiegel zur kontrastverbesserung von terawattlaserpulsen für die erzeugung von hohen harmonischen an oberflächen. Master's thesis, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2009.
- [88] C. Rödel, M. Heyer, M. Behmke, M. Kübel, O. Jäckel, W. Ziegler, D. Ehrt, M.C. Kaluza, and G.G. Paulus. High repetition rate plasma mirror for temporal contrast enhancement of terawatt femtosecond laser pulses by three orders of magnitude. Applied Physics B, DOI 10.1007/s00340-010-4329-7, 2010.
- [89] W. Rozmus and V. T. Tikhonchuk. Skin effect and interaction of short laser-pulses with dense-plasmas. *Physical Review A*, 42(12):7401–7412, December 1990.
- [90] W. Rozmus, V. T. Tikhonchuk, and R. Cauble. A model of ultrashort laser pulse absorption in solid targets. *Physics Of Plasmas*, 3(1):360–367, January 1996.
- [91] W. Rudolph and J.C. Diels. Ultrashort Laser Pulse Phenomena. Academic Press, 2006.

- [92] A. Rundquist, C. G. Durfee, Z. H. Chang, C. Herne, S. Backus, M. M. Murnane, and H. C. Kapteyn. Phase-matched generation of coherent soft x-rays. *Science*, 280(5368):1412–1415, May 1998.
- [93] S. G. Rykovanov, M. Geissler, J. Meyer-Ter-Vehn, and G. D. Tsakiris. Intense single attosecond pulses from surface harmonics using the polarization gating technique. *New Journal Of Physics*, 10:025025, February 2008.
- [94] B. E. A. Saleh and M. C. Teich. Fundamentals of Photonics. Wiley-Interscience, 2008.
- [95] P. Salieres, B. Carre, L. Le Deroff, F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, R. Kopold,
 W. Becker, D. B. Milosevic, A. Sanpera, and M. Lewenstein. Feynman's path-integral approach for intense-laser-atom interactions. *Science*, 292(5518):902–905, May 2001.
- [96] D. Salzmann. Atomic Physics in Hot Plasmas. Oxford University Press, New York, 1998.
- [97] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, S. Stagira, S. De Silvestri, and M. Nisoli. Isolated single-cycle attosecond pulses. *Science*, 314(5798):443–446, October 2006.
- [98] R. Sauerbrey. Acceleration in femtosecond laser-produced plasmas. Physics Of Plasmas, 3(12):4712–4716, December 1996.
- [99] L. P. Delvaille J. P. Epstein A. Kallne E. Schnopper, H. W. van Speybroeck, J. Bachrach, R. Z. Dijkstra, and L. Lantward. Diffraction grating transmission efficiencies for xuv and soft x-rays. *Applied Optics*, 16(4):1088–1091, 1977.
- [100] R. V. Shack. Direct phase-sensing interferometer. Journal Of The Optical Society Of America, 61(5):655-&, 1971.
- [101] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. Optics Communications, 56(3):219–221, 1985.
- [102] Y. Tamaki, J. Itatani, Y. Nagata, M. Obara, and K. Midorikawa. Highly efficient, phase-matched high-harmonic generation by a self-guided laser beam. *Physical Review Letters*, 82(7):1422–1425, February 1999.

- [103] A. Tarasevitch, K. Lobov, C. Wunsche, and D. von der Linde. Transition to the relativistic regime in high order harmonic generation. *Physical Review Letters*, 98(10):103902, March 2007.
- [104] A. Tarasevitch, A. Orisch, D. von der Linde, P. Balcou, G. Rey, J. P. Chambaret, U. Teubner, D. Klopfel, and W. Theobald. Generation of high-order spatially coherent harmonics from solid targets by femtosecond laser pulses. *Physical Review A*, 6202(2):023816, August 2000.
- [105] U. Teubner, K. Eidmann, U. Wagner, U. Andiel, F. Pisani, G. D. Tsakiris, K. Witte, J. Meyer-ter Vehn, T. Schlegel, and E. Forster. Harmonic emission from the rear side of thin overdense foils irradiated with intense ultrashort laser pulses. *Physical Review Letters*, 92(18):185001, May 2004.
- [106] U. Teubner and P. Gibbon. High-order harmonics from laser-irradiated plasma surfaces. *Reviews of Modern Physics*, 81(2):445, 2009.
- [107] U. Teubner, G. Pretzler, T. Schlegel, K. Eidmann, E. Forster, and K. Witte. Anomalies in high-order harmonic generation at relativistic intensities. *Physical Review A*, 67(1):013816, January 2003.
- [108] C. Thaury, H. George, F. Quere, R. Loch, J. P. Geindre, P. Monot, and P. Martin. Coherent dynamics of plasma mirrors. *Nature Physics*, 4(8):631-634, August 2008.
- [109] C. Thaury and F. Quere. High-order harmonic and attosecond pulse generation on plasma mirrors: basic mechanisms. Journal Of Physics B-Atomic Molecular And Optical Physics, 43(21):213001, November 2010.
- [110] C. Thaury, F. Quere, J. P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Reau, P. D'Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks, and P. H. Martin. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. *Nature Physics*, 3(6):424-429, June 2007.
- [111] M. Tolan. So werden wir Weltmeister Die Physik des Fußballspiels. Pieper Verlag, 2010.
- [112] G. D. Tsakiris, K. Eidmann, J. Meyer-ter Vehn, and F. Krausz. Route to intense single attosecond pulses. New Journal Of Physics, 8:19, January 2006.
- [113] R.K. Tyson. Principles of adaptive optics. Academic Press, 1998.

- [114] P. Tzallas, D. Charalambidis, N. A. Papadogiannis, K. Witte, and G. D. Tsakiris. Direct observation of attosecond light bunching. *Nature*, 426(6964):267–271, November 2003.
- [115] P. Tzallas, E. Skantzakis, C. Kalpouzos, E. P. Benis, G. D. Tsakiris, and D. Charalambidis. Generation of intense continuum extreme-ultraviolet radiation by many-cycle laser fields. *Nature Physics*, 3(12):846–850, December 2007.
- [116] M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze, A. J. Verhoef, V. Yakovlev, M. F. Kling, J. Rauschenberger, N. M. Kabachnik, H. Schroder, M. Lezius, K. L. Kompa, H. G. Muller, M. J. J. Vrakking, S. Hendel, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. *Nature*, 446(7136):627–632, April 2007.
- [117] K. Varju, Y. Mairesse, B. Carre, M. B. Gaarde, P. Johnsson, S. Kazamias, R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, K. J. Schafer, P. H. Balcou, A. L'Huillier, and P. Salieres. Frequency chirp of harmonic and attosecond pulses. *Journal Of Modern Optics*, 52(2-3):379–394, January 2005.
- [118] F. Verluise, V. Laude, Z.Cheng, Ch. Spielmann, and P. Tournois. Amplitude and phase control of ultrashort pulses by use of an acousto-optic programmable dispersive filter: pulse compression and shaping. *Optics Letters*, 25, No. 8:575–577, 2000.
- [119] D. von der Linde, T. Engers, G. Jenke, P. Agostini, G. Grilon, E. Nibbering, A. Mysyrowicz, and A. Antonetti. Generation of high-order harmonics from solid-surfaces by intense femtosecond laser-pulses. *Physical Review A*, 52(1):R25–R27, July 1995.
- [120] P. von Hoof. Atomic list, http://www.pa.uky.edu/ peter/atomic/. Unversity of Kentucky.
- [121] S. C. Wilks and W. L. Kruer. Absorption of ultrashort, ultra-intense laser light by solids and overdense plasmas. *Ieee Journal Of Quantum Electronics*, 33(11):1954– 1968, November 1997.
- [122] S. C. Wilks, W. L. Kruer, M. Tabak, and A. B. Langdon. Absorption of ultra-intense laser-pulses. *Physical Review Letters*, 69(9):1383–1386, August 1992.
- [123] A. H. Zewail. Femtochemistry: Atomic-scale dynamics of the chemical bond. Journal Of Physical Chemistry A, 104(24):5660-5694, June 2000.

Danksagung

Ich möchte mich bei allen Mitgliedern des Instituts für die freundschaftliche Zusammenarbeit bedanken. Diese hat dazu beigetragen, dass mir die Arbeit in den letzten Jahren stets Spaß gemacht hat.

Insbesondere danke ich:

Prof. Pretzler für die hervorragende Betreuung meiner Promotion

Prof. Pukhov für die bereitwillige Übernahme des Koreferats

Prof. Willi für sein offenes Ohr bei allen Problemen

Dr. Daniel an der Brügge für die Geduld bei der Erklärung theoretischer Zusammenhänge Christian Rödel, Dr. Oliver Jäckel, Martin Heyer, Matthias Kübel und Silvio Fuchs für die angenehme Kooperation mit dem Institut für Optik und Quantenelektronik in Jena

Dr. Dirk Hemmers, der mir mit seiner Erfahrung immer geholfen hat

Dr. Toma Toncian und Monika Toncian für die Betreuung des Lasersystems

Dr. Jens Osterholz und Dr. Mirela Cerchez für die Hilfe bei numerischen Berechnungen

Dr. Rainer Hörlein und Dr. Yutaka Nomura für die fruchtbare Zusammenarbeit bei Experimenten am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in München

Stefan Manderla für die fachkundige Unterstützung bei technischen Fragen

Claudia Dingle und Katharina Vogt, die mir den Weg durch die Bürokratie gewiesen haben Fabian Gaußmann, Thomas Hahn und Christian Stelzmann für die Versorgung mit Kaffee Fabian Budde, Thomas Königstein und Johannes Bockelmann für die geistreiche und unterhaltsame Gestaltung der Mittagspausen

Anika für die liebevolle Unterstützung

Meiner Familie, die mir immer zur Seite gestanden ist

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe. Die Dissertation wurde in der vorgelegten oder in ähnlicher Form noch bei keiner anderen Institution eingereicht. Ich habe bisher keine erfolglosen Promotionsversuche unternommen.

Düsseldorf,