

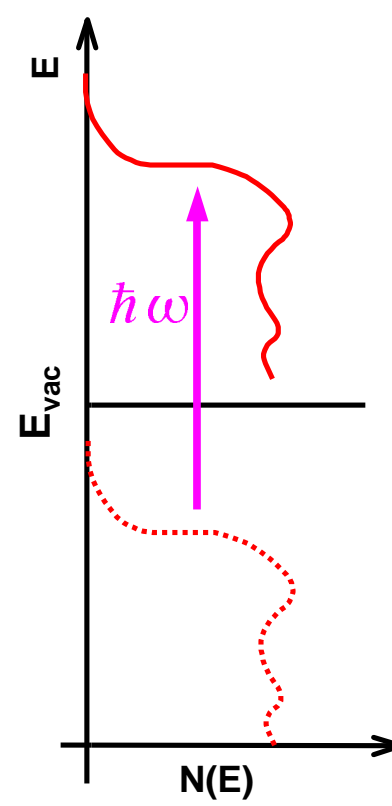
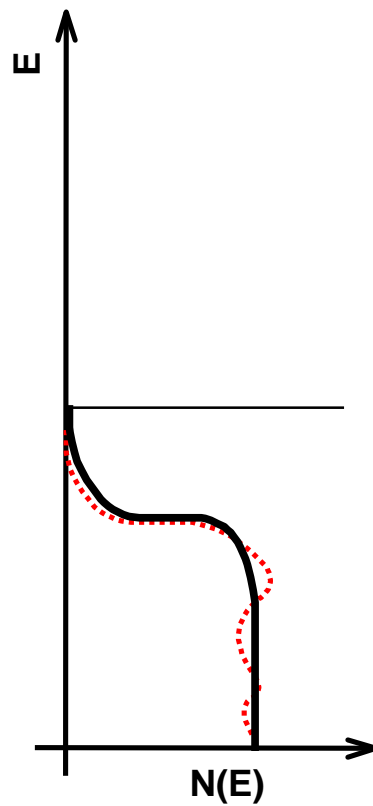
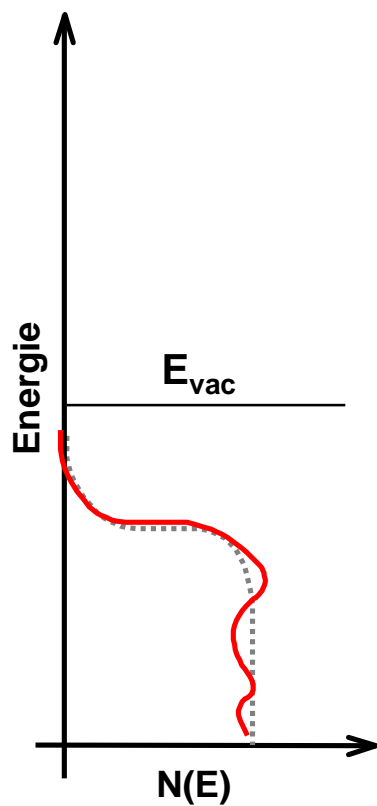
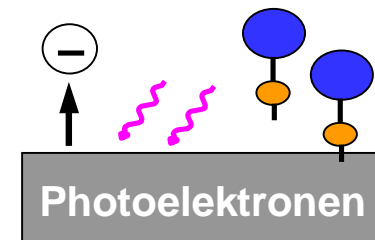
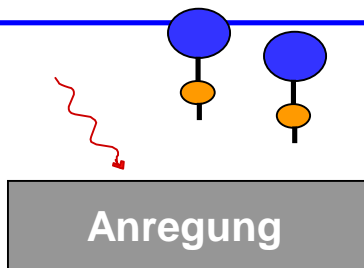
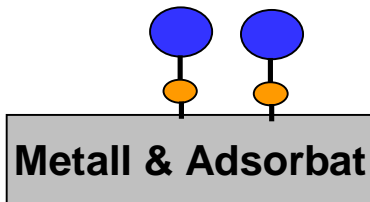
Erzeugung ultrakurzer Laserimpulse im extremen UV-Bereich

und deren Anwendung bei der

zeitaufgelösten UPS

Oliver Heinz
Dr. Ping Zhou
Inst. f. exp. Physik
(Campus Essen)

AG Prof. Dr. D. von der Linde



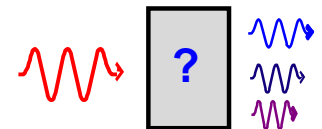
hohe Zeitauflösung !

energiereiche UV-Impulse !

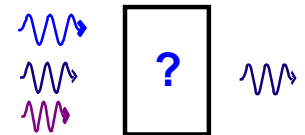
- Lasersystem



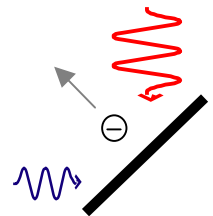
- Frequenzverschiebung durch Erzeugung Harmonischer hoher Ordnung (HOHG)

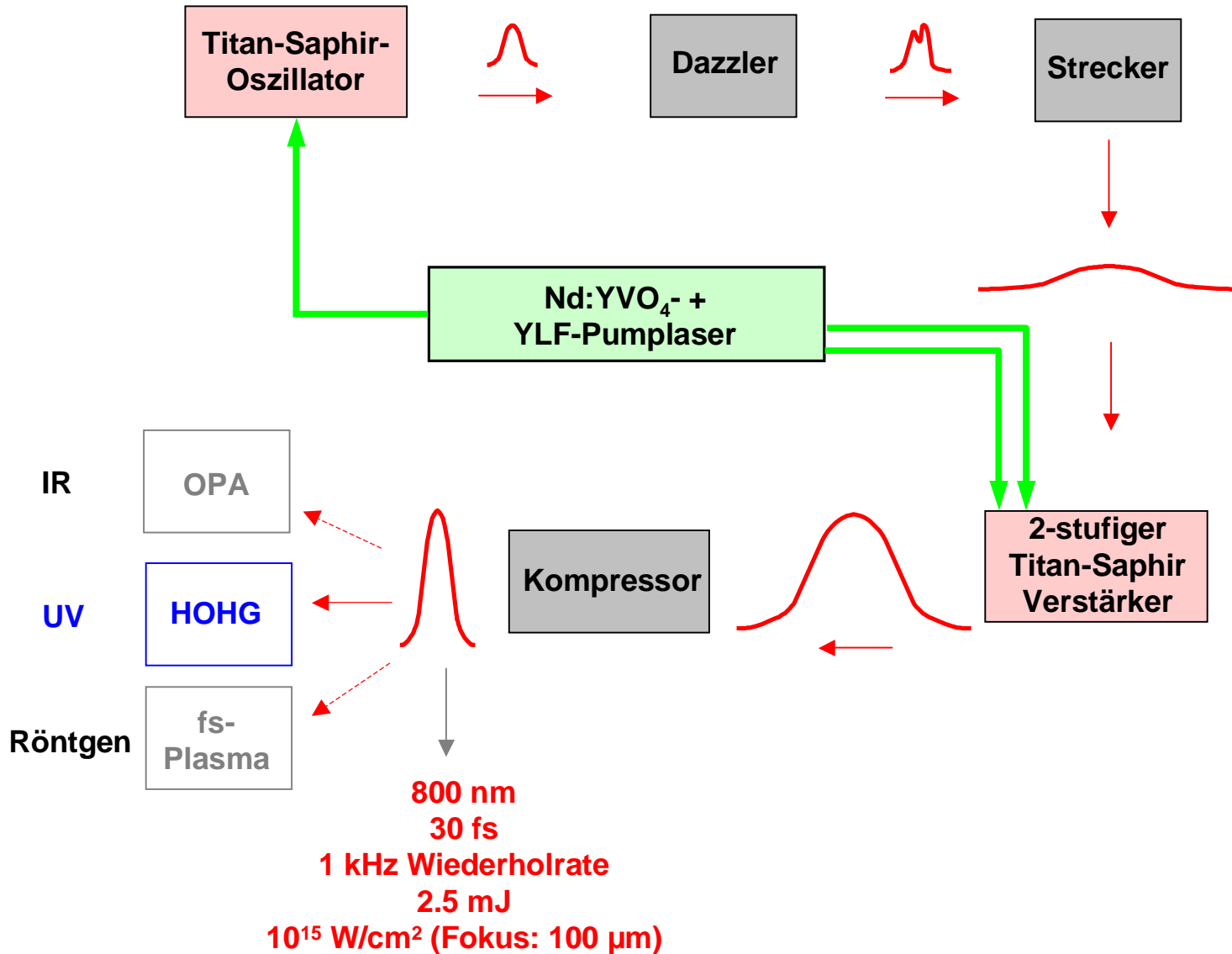


- Selektion der Harmonischen



- Photoelektronen-Spektroskopie mit hoher Zeitauflösung







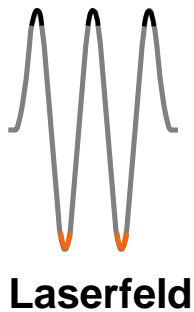
Laser



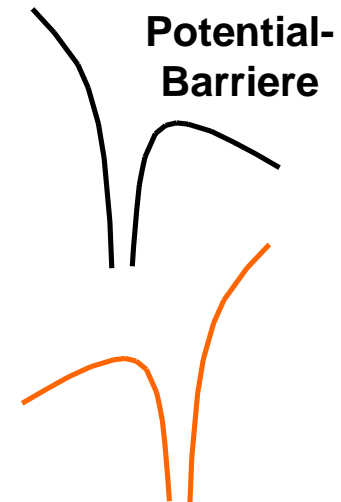
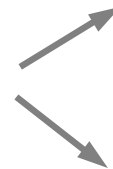
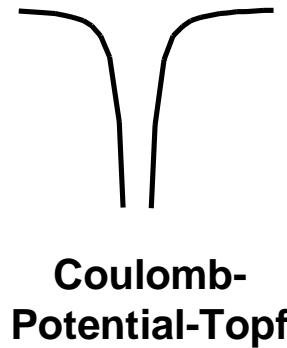
z. B.
40 fs @ 800 nm @ 1.6 mJ
Fokus Ø 100 µm

$$I \approx 10^{14} \frac{W}{cm^2} \Rightarrow E \approx 10^8 \frac{V}{cm} \approx \underbrace{\frac{1}{10}} E_{H-Atom}$$

Nicht nur eine Störung !

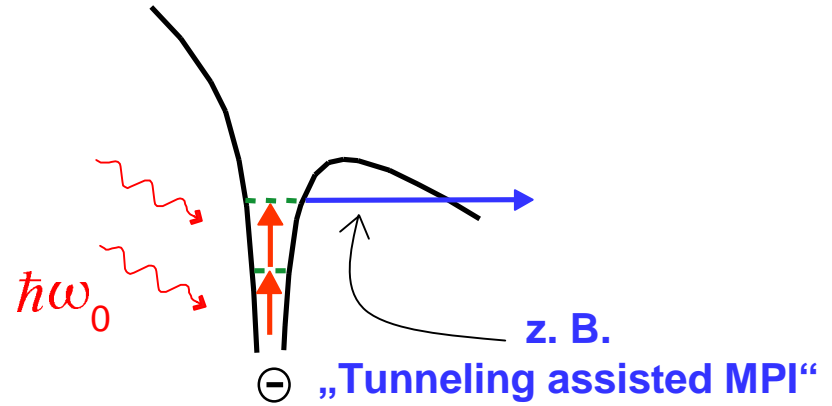


+



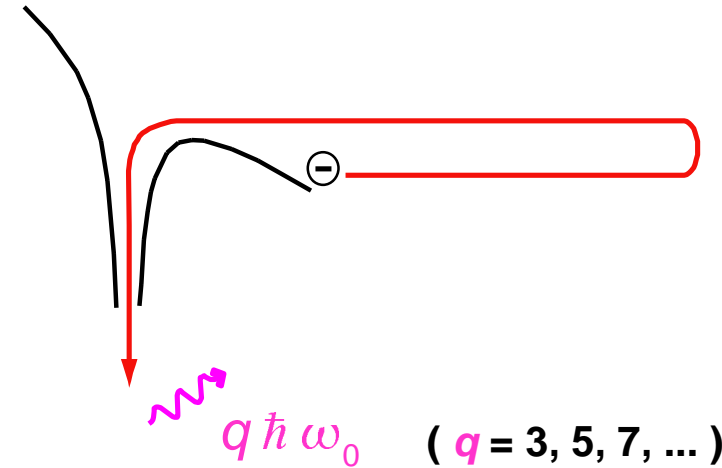


1. Multiphoton Anregung & „Ionisation“



2. WW mit Laserfeld & Rückstoß

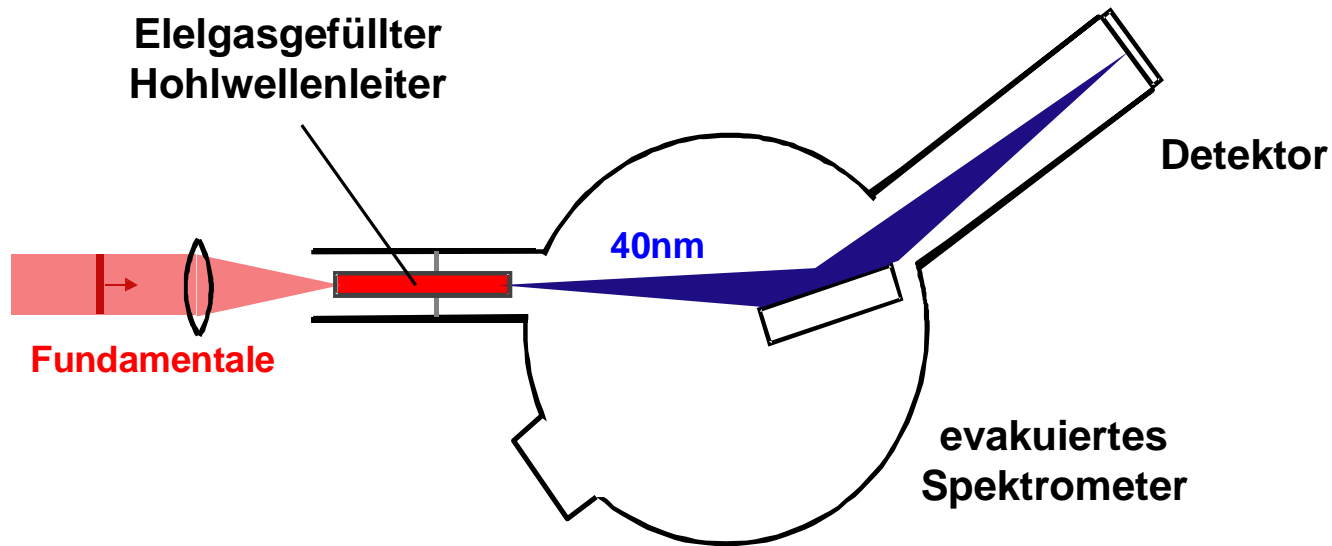
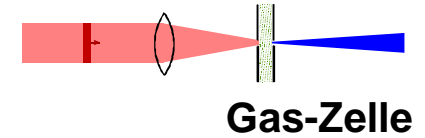
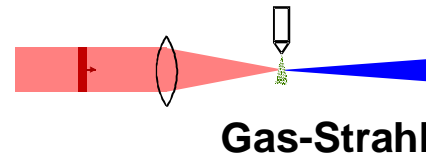
3. Rekombination & Emission von Strahlung



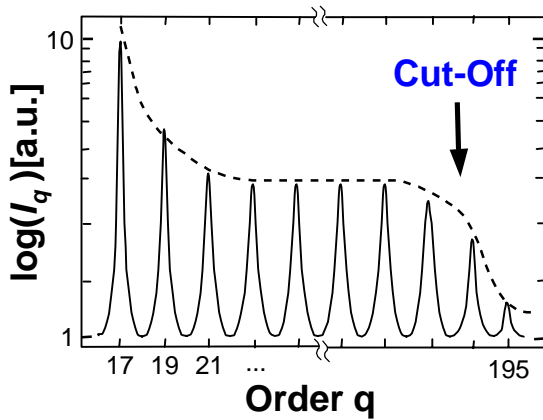
- Rekombination *nur* in *linear* polarisierten Feldern
- Vollständige Ionisation vermeiden !



im Gasmedium



- geführte Anregungswelle
- geringerer Gasverbrauch
- Anbindung an UHV



$$W_{Cut\ Off} = q_{max} \hbar \omega_0 \approx W_{ion} + 3,17 W_P \quad [2]$$

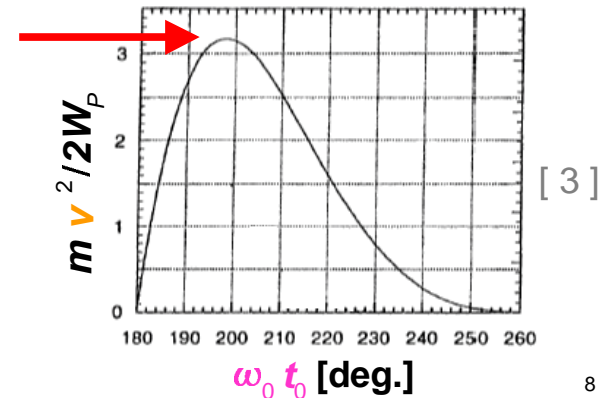
Newtonsche Bewegungsgleichung für das Elektron:

$$\frac{d^2x}{dt^2} = \frac{eE_0}{m} \cos(\omega_0 t)$$

Integration liefert:

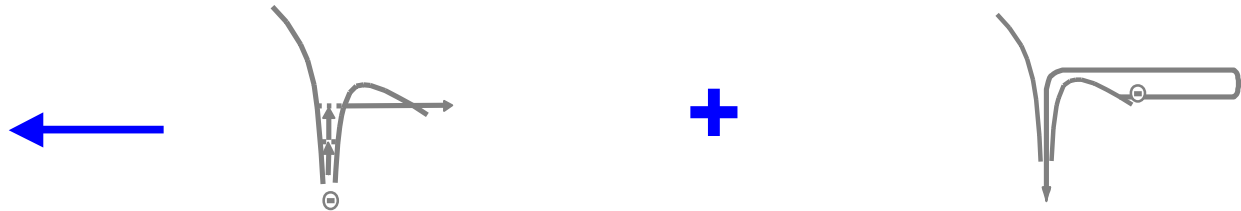
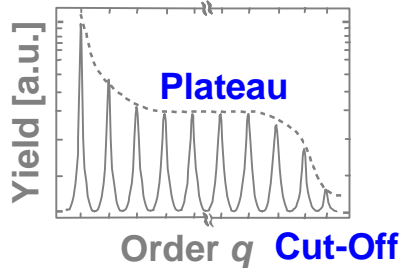
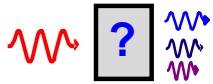
$$\left. \begin{aligned} v &= v(t, \omega_0 t_0) = \dots \\ x &= x(t, \omega_0 t_0) = \dots \neq 0 \end{aligned} \right\} v = v(\omega_0 t_0) = \dots$$

mit den Anfangsbedingungen $v_i = 0$ und $x_i = 0$



[2] KRAUSE et al. Physical Review Letters **68**, 3535 (1992)

[3] PROTOPAPAS et al. Rep. Prog. Phys. **60**, 389 (1996)



P. Corkum (1993) [1]

Keldysh's Theorie (1965) [4]

- Quantenmechanik, TDSE
- Quasistatisches externes Feld
- Keine Entvölkerung des Grundzustandes
- Elektron entsteht mit $v = 0$ bei $x = 0$

Rückstoß Bild

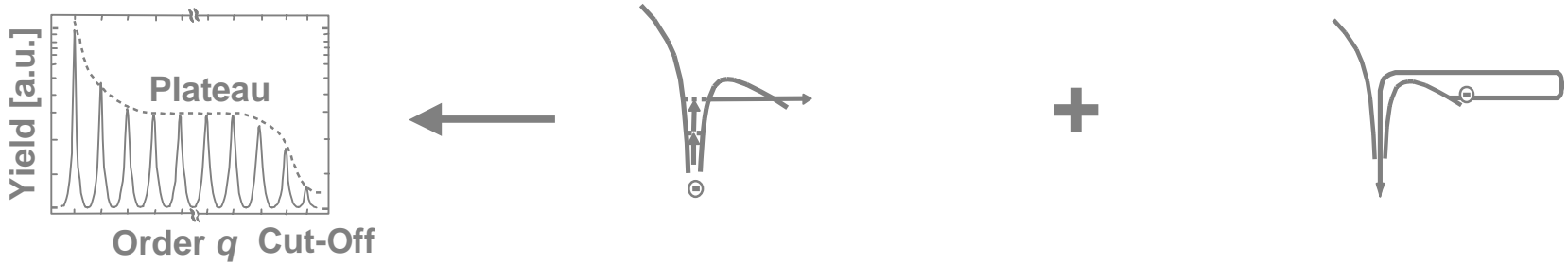
- Klassische Beschreibung
- Bezug zur Plasma Physik
- Kein Plateau

ADK Theorie (1986) [5]

- Verwandt mit Keldysh's Theorie
- Tunnel-Regime
- Quanteneffekte
- Ionisationsgrad Z

[4] KELDYSH Sov. Phys.-JETP **20**, 1307 (1965)

[5] AMMOSOV Sov. Phys.-JETP **64**, 1191 (1986)



M. Lewenstein (1994) [6]

Ausbreitung des Elektronen-Wellenpaketes

- Vollständige quantenmechanische Beschreibung

M. Protopapas (1996) [3]

Bremsstrahlung

- Flache Spektren (Plateau)

z. B. Tong et. al. (2000)[7]

Ab Initio Berechnungen & Monte Carlo Simulationen

- Verschiedene numerische Techniken zur Lösung der TDSE
- Keine neuen physikalischen Informationen



[6] LEWENSTEIN Phys. Rev. A **49**, 2117 (1994)

[7] TONG Phys. Rev. A **61**, 021802 (2000)



$$q_{max} \hbar \omega_0 \approx W_{ion} + 3,17 W_P$$

Gas	Ordnung q_{max}
He	195
Ne	119
Ar	41

$\propto I_0 \lambda_0^2$ Pondermotorische Energie

Annahme:

$$\leq I_{OTBI} \propto W_{ion}^4$$

Kritische Ionisations-Intensität [8]

Historisches

Die ersten Gas-Harmonischen: FERRAY et al. J. Phys. B **21**, L31 (1988)
 $q_{max} = 33$ (1064nm @ 30ps, Ar)

Die höchsten Gas-Harmonischen: CHANG et al. Physical Review Letters **79**, 2967 (1997)
 $q_{max} = 297$ (800nm @ 26fs, He)

▪ **Impuls- Dauer** des Anregungsimpulses beachten !

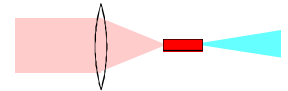


Phasenanpassung

Phasengeschwindigkeiten $v_{phase} (Laser) - v_{phase} (q\text{-te Harmonische}) \stackrel{!}{=} 0$

Phasen-Fehlanpassung $0 \stackrel{!}{=} qk_{\omega} - k_{q\omega} = \Delta k$

$$\Delta k = \Delta k_{Disp.} (n^{(0)} + I \cdot n^{(2)}) + \Delta k_{Fok.} (b) - \Delta k_{Pl.} (N_e, \tau) - \Delta k_{WL} (a, u^{(a)})$$



Intensität der q-ten Harmonischen [9]

$$I_q \propto L^2 \frac{\sin^2(\Delta k \frac{L}{2}) + \sinh^2((q\delta + \kappa_q) \frac{L}{4})}{(\Delta k \frac{L}{2})^2 + ((q\delta - \kappa_q) \frac{L}{4})^2} e^{-q\delta \frac{L}{2}} e^{-\kappa_q \frac{L}{2}}$$

⇒ Konversion 10^{-6}

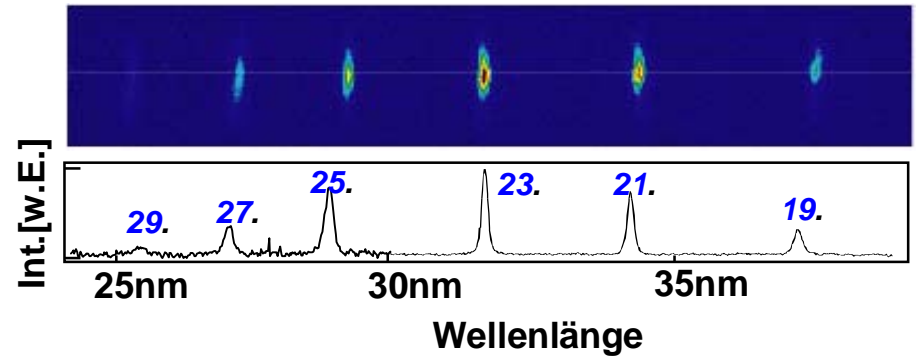
⇒ 10^9 Photonen/Impuls/Harm.

5nJ @ 40nm @ 30fs @ 1kHz

Phasenanpassung Reabsorption & Dämpfung

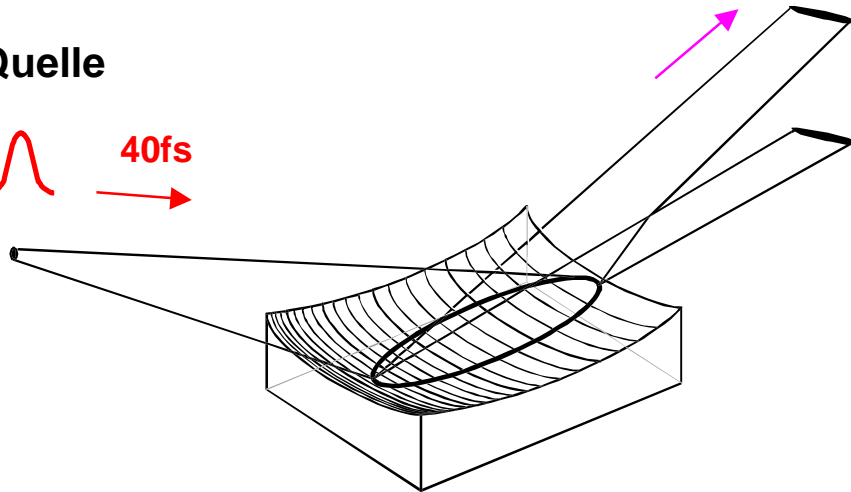


abbildendes Beugungs-Gitter



Spektrum

Quelle



☺ Verfügbarkeit

☹ Justage

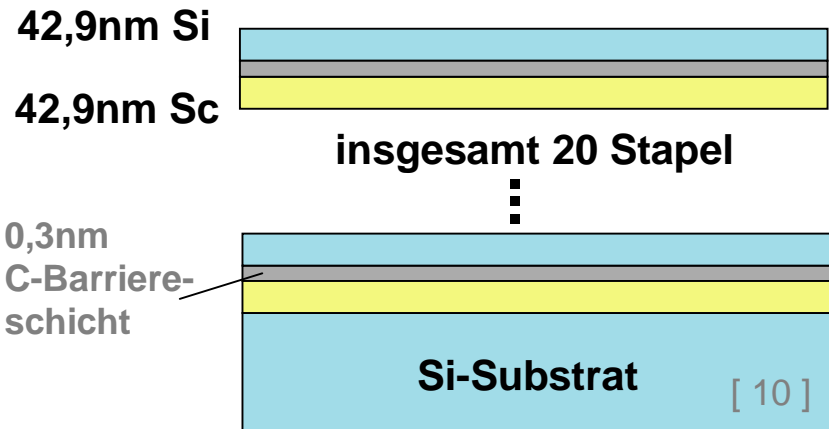
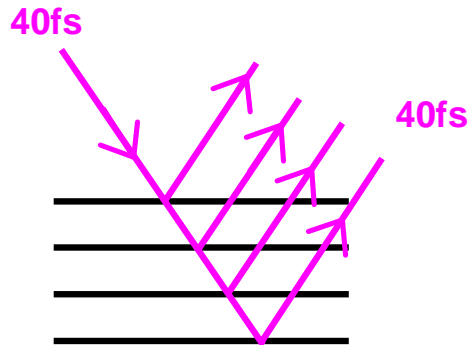
☹ Dispersion

☹ Empfindlichkeit

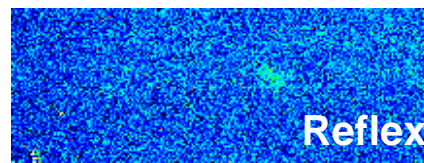
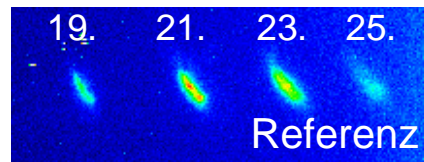
☹ Preis



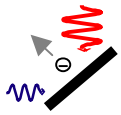
Multilagen-Spiegel



- Reflektivität $\approx 10\%$
- Bandbreite ?

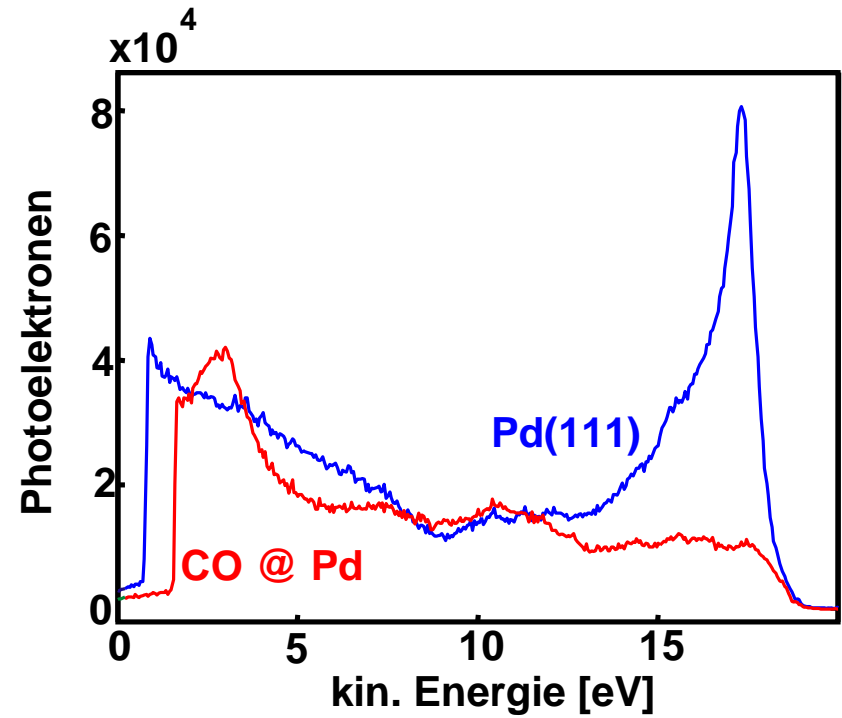
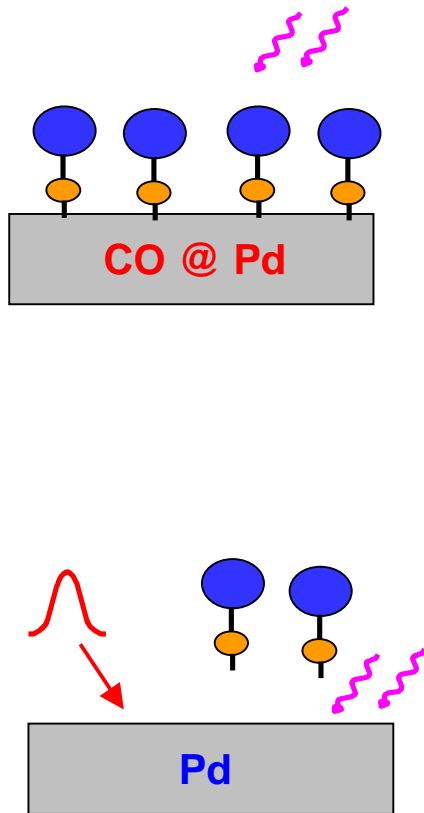


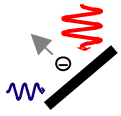
- ☹ Verfügbarkeit
- ☺ Justage
- ☺ Dispersion
- ☺ Empfindlichkeit
- ? Preis



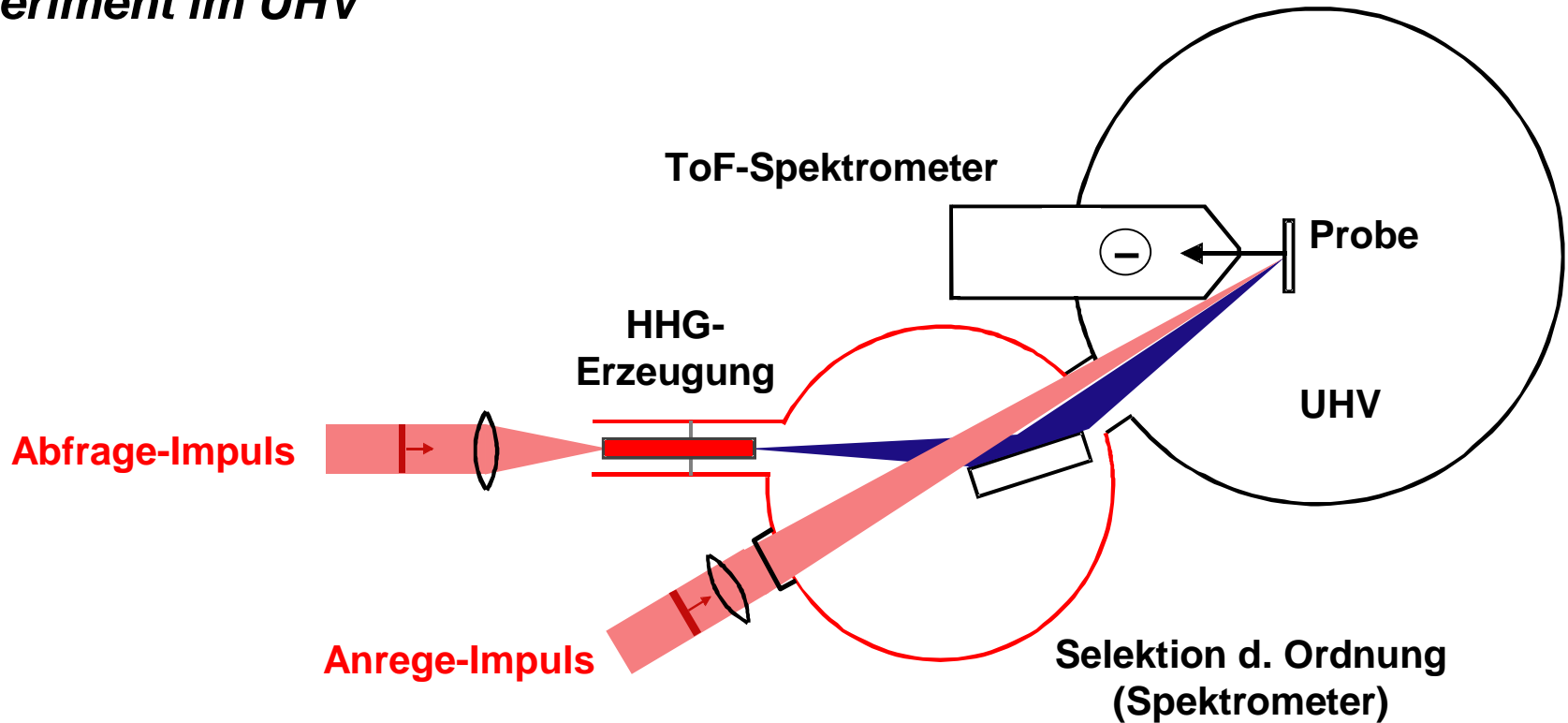
UV-Photoelektronen-Spektroskopie (UPS)

Beispiel CO @ Pd(111)
(mehrere Monolagen)

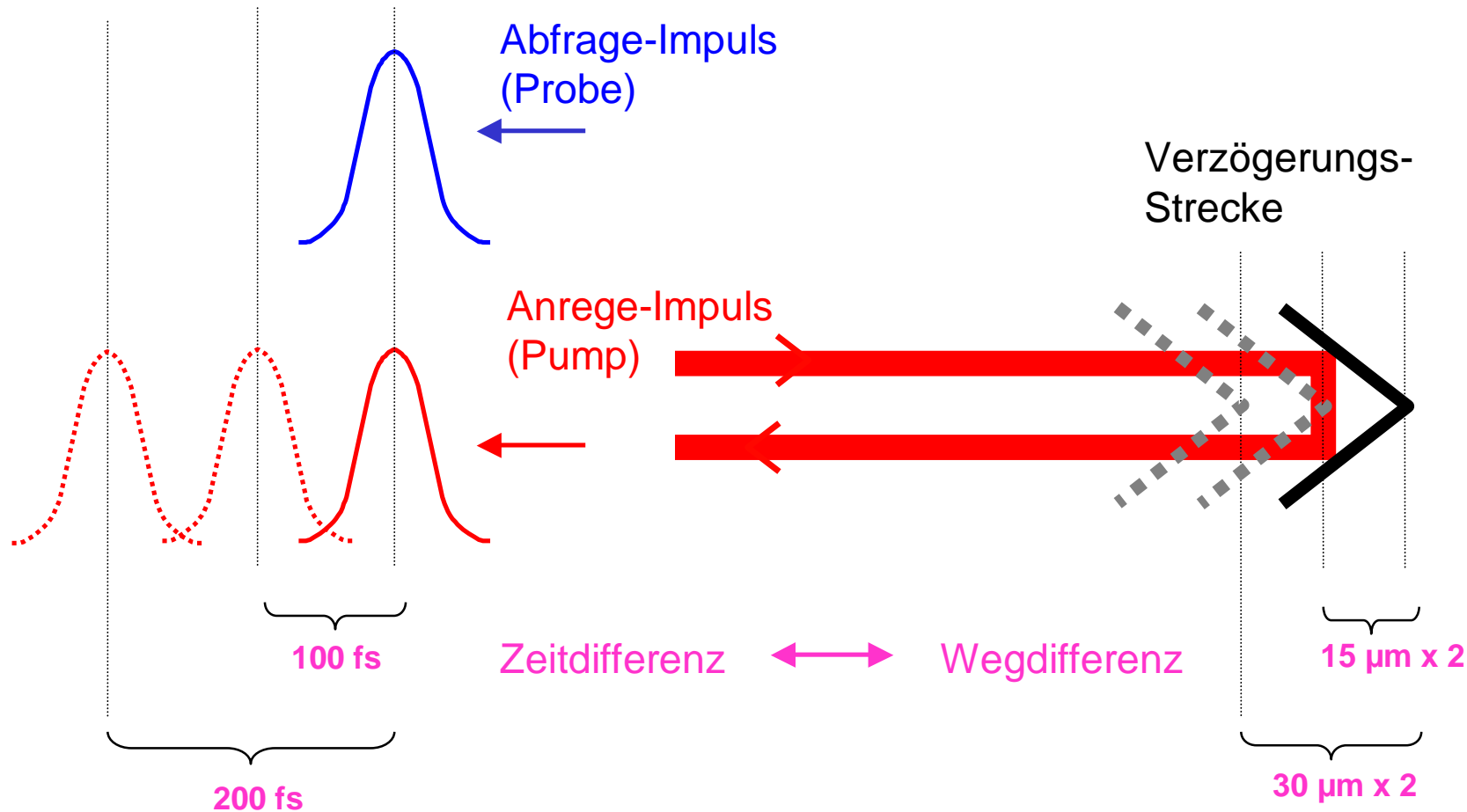
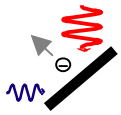




Experiment im UHV



- Anrege-Impuls → **heiße Elektronen**
- Abfrage-Impuls → **Photoelektronen** → **Spektrum**



- kein schneller Detektor erforderlich
- nachträgliche Rekonstruktion liefert hohe Zeitauflösung

Physik

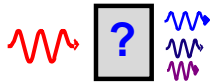
- Laserimpulse mit $\lambda = 15 \dots 50 \text{ nm}$ und $\tau \approx 40 \text{ fs}$.
- Pump-Probe-Experimente (z. B. UPS) mit Femtosekunden-Zeitauflösung
- **Ausblick:** Echtzeit-Bilder von **ultraschnellen** dynamischen Prozessen an Oberflächen

Biophysik - Ausblick

- Ultrakurze Impulse im **Wasser-Fenster** (2,33 nm...4,37 nm)

Industrie - Ausblick

- **Mikrolithographie** im extremen UV-Bereich



Warum $q = 3, 5, 7, \dots$?

$P \propto \chi \cdot E$ Polarisationsvektor

Nichtlineare Optik: $\chi = \chi(E)$ Suszeptibilität

$$P \propto \chi^{(1)} \cdot E + \chi^{(2)} \cdot E^2 + \chi^{(3)} \cdot E^3 + \chi^{(4)} \cdot E^4 + \dots$$

$\underbrace{\hspace{15em}}_{P_{NL}}$

1-atomiges Gas \Rightarrow Isotropie \Rightarrow **Symmetrie** $P(E) = -P(-E)$

$$\Rightarrow P \propto \chi^{(1)} \cdot E + \chi^{(3)} \cdot E^3 + \chi^{(5)} \cdot E^5 + \dots + \chi^{(q)} \cdot E^q + \dots$$

$\begin{array}{cccc} \downarrow & \downarrow & \downarrow & \downarrow \\ \omega_0 & 3\omega_0 & 5\omega_0 & q\omega_0 \end{array}$

$$E^3 = E_0^3 \cos^3(\omega_0 t) \propto \hat{E}_0 (\cos(\omega_0 t) + C \cos(3\omega_0 t))$$



LOPT:

$$I_q \propto I_0^q$$

Aber tatsächlich: $I_q \propto I_0^A$

Gaußsches Strahlprofil:

$$I_0 \propto e^{-\left(\frac{t}{\tau}\right)^2}$$

$$\Rightarrow I_q \propto e^{-\left(\frac{t}{\tau/\sqrt{A}}\right)^2}$$

Impulsdauer:

$$\tau_q = \frac{\tau_0}{\sqrt{A}}$$

⇒ Die Harmonischen haben eine *kürzere* Impulsdauer als der Anregungsimpuls !