

Optimierung der EUV-Emission aus Argon-Mikrotropfen durch geformte intensive Femtosekunden-Laserpulse

Dissertation
zur
Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität Rostock



vorgelegt von

Robert Irsig

Januar 2017

Betreuer

- Prof. Dr. Karl-Heinz Meiwes-Broer,
Universität Rostock, Institut für Physik
- PD Dr. Josef Tiggesbäumker,
Universität Rostock, Institut für Physik

Gutachter

- PD Dr. Josef Tiggesbäumker,
Universität Rostock, Institut für Physik
- Dr. habil. Ulf Zastra,
European XFEL GmbH

Datum der Einreichung : 27. Januar 2017

Datum der Verteidigung : 31. März 2017

Kurzzusammenfassung

In der Wechselwirkung intensiver, ultrakurzer Laserpulse mit Mikrometer großen Tropfen werden die Tropfen ionisiert, und es bildet sich ein Plasma. Mit der Expansion des Plasmas setzt Rekombination ein und hochenergetische Strahlung wird emittiert. In dieser Arbeit wird die Laser-Tropfen-Wechselwirkung anhand der Emission im extrem-ultravioletten (EUV) Wellenlängenbereich untersucht. Die Spektroskopie der Emission ermöglicht die Charakterisierung des Plasmazustandes und liefert Rückschlüsse über den Ablauf der Wechselwirkung. Es zeigt sich, dass die hohe Teilchendichte der Tropfen einen wesentlichen Einfluss auf die Plasmadynamik hat. Durch die gezielte Formung der Laserpulse in Amplitude und Phase wird die Anregung an die Dynamik des Plasmas angepasst und die EUV-Emission deutlich erhöht. Aus gemessenen Emissionsspektren werden Ladungszustände sowie Elektronendichte und -temperatur im Plasma bestimmt.

Abstract

In the interaction of intense ultra-short laser pulses with micrometer sized droplets, the droplets are ionised and transformed into a plasma. With the expansion of the plasma, recombination occurs and high energetic radiation is emitted. In this work, the laser-droplet-interaction is studied based on the emission in the extreme ultraviolet (EUV) spectral range. The spectroscopy of the emission allows for analysing the plasma state and the interaction sequence. The high particle density of the droplets significantly affects on the formation of the plasma. Applying shaped laser pulses, the excitation is adapted to the plasma dynamics resulting in an enhanced EUV yield. Charge states as well as electron densities and temperatures in the plasma are determined by spectroscopic measurements.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen	3
2.1. Laser-Tropfen-Wechselwirkung	3
2.1.1. Ionisationsmechanismen in starken Laserfeldern	3
2.1.2. Abschirmung	7
2.1.3. Expansion des Plasmas	8
2.1.4. Plasmafluoreszenz	10
2.1.5. Spektroskopische Notation	13
2.2. Beschreibung des Plasmazustandes	17
2.2.1. Lokales Thermodynamisches Gleichgewicht	17
2.2.2. Bestimmung von Plasmaeigenschaften	19
2.2.3. Hydrodynamische Simulation der Plasmadynamik	21
3. Experimenteller Aufbau	23
3.1. Intensive, ultrakurze Laserpulse	25
3.1.1. Fokussierung Gauß'scher Strahlen	25
3.1.2. Gechirpte Pulse	27
3.1.3. Pulsformung	30
Zeitliche Phase	30
Spektrale Phase	30
Optimierung der Phasenfunktion	33
3.1.4. Femtosekunden-Lasersystem	34
3.2. Erzeugung Mikrometer großer, flüssiger Argon-Tropfen	37
3.3. EUV-Spektrometer	38
3.3.1. Konstruktion	39
3.3.2. Datenaufnahme	44
3.3.3. Wellenlängenkalibrierung	45
4. Ergebnisse und Diskussion	49
4.1. Visuelle Beobachtung des Plasmas	50
4.2. Propagation der Laserpulse durch die Mikro-Tropfen	52

4.3. Plasmaemission im EUV-Wellenlängenbereich	56
4.3.1. Charakterisierung des Hintergrundsignals	58
4.3.2. Stabilität der Emission	61
4.3.3. Analyse einzelner Übergänge	63
4.3.4. Vergleich der Emission mit der Simulation	65
4.4. Anpassung der Laseranregung durch Pulsformung	68
4.4.1. Einfluss der Pulslänge	68
4.4.2. Einzel- vs. Doppelpulse	71
4.4.3. Asymmetrische Doppelpulsanregung	74
4.4.4. Optimierung der EUV-Emission	77
4.4.5. Korrelationen im Emissionsspektrum	82
4.5. Bestimmung der Plasmaparameter	84
4.6. Absolute EUV Photonenzahl und Konversionseffizienz	89
5. Zusammenfassung und Ausblick	93
A. Anhang	95
A.1. Charakterisierung der Laserpulse	95
A.2. Überprüfung der Linearität des Pulsformers	99
A.3. Parameter zur Bestimmung von Elektronendichte und -temperatur	102
A.4. Konstruktion der Vakuum-Kammer	103

Abbildungsverzeichnis

2.1.	Ionisationspotentiale und Keldysh-Parameter für Argon-Ionen	4
2.2.	Ionisationsraten und -querschnitte für Argon-Ionen	5
2.3.	Schematische Darstellung der Wechselwirkungsprozesse	12
2.4.	Besetzung der Elektronenschalen	15
2.5.	Energie-Terme der Besetzungsstatistiken	18
2.6.	Plasmaparameter aus hydrodynamischer Simulation	22
3.1.	Schematische Darstellung des Experimentes	24
3.2.	Schematische Darstellung der Vakuum-Kammer	24
3.3.	Strahlgeometrie im Fokus	26
3.4.	Intensitätsverteilung im Fokus	27
3.5.	Erzeugung ultrakurzer Laserpulse durch Interferenz	28
3.6.	Pulsformen in Abhängigkeit vom Chirp	29
3.7.	Erzeugung von <i>colored double pulses</i>	31
3.8.	Erzeugung von <i>colored triple pulses</i>	32
3.9.	Nelder-Mead Simplex Algorithmus	33
3.10.	Funktionsweise des Pulsformers	35
3.11.	Erzeugung Mikrometer großer, flüssiger Tropfen	37
3.12.	Strahlgeometrie des Flatfield-Gitters	39
3.13.	Spektrale Empfindlichkeit des EUV-Spektrometers	40
3.14.	Raytracing-Simulation	41
3.15.	Schematische Darstellung des EUV-Spektrometers	42
3.16.	Aufbau des Experimentes im Labor	43
3.17.	Aufnahme eines EUV-Spektrums	44
3.18.	Vergleichsspektren zur Wellenlängenkalibrierung	45
3.19.	Dispersionskurven des EUV-Spektrometers	46
3.20.	Übersicht von Spektren aus verschiedenen Messkampagnen	48
4.1.	Visuelle Beobachtung des Laserplasmas	51
4.2.	Plasmaleuchten unter Einfluss eines externen Potentials	51
4.3.	Laser-Strahlprofil nach der Propagation durch die Tropfen	52

4.4.	Histogramm der Überlagerung zwischen Laserpuls und Tropfen	53
4.5.	Transmission der Laserpulse	54
4.6.	EUV-Fluoreszenzspektrum von Argon	56
4.7.	EUV-Fluoreszenzspektren, Intensitätsabhängigkeit	59
4.8.	Linienemission und Hintergrund	60
4.9.	Experimentelle Schwankungen	62
4.10.	Intensitätsabhängigkeit Ar 4+, Ar 8+, Ar 9+	63
4.11.	Plasmaparameter aus Simulation, Intensitätsabhängigkeit	65
4.12.	EUV-Fluoreszenzspektren, Pulslängenabhängigkeit	68
4.13.	Intensitätsabhängigkeit Ar 7+ 3p←4d	69
4.14.	Energieabhängigkeit Ar 7+ 3p←4d	70
4.15.	Einzel- und Doppelpulsformen	72
4.16.	Einzel- und Doppelpulsanregung	72
4.17.	Plasmaparameter aus Simulation, dynamische Anregung	74
4.18.	Asymmetrische Doppelpulsanregung	76
4.19.	Durchläufe der Optimierung	79
4.20.	Rekonstruktion optimierter Pulsformen	80
4.21.	EUV-Fluoreszenzspektrum vor und nach der Optimierung	81
4.22.	Korrelationsmatrix der EUV-Emission	82
4.23.	Boltzmann-Plot für Ar 6+	85
4.24.	Experimentell bestimmte Elektronentemperaturen und -dichten	86
4.25.	Experimentelles und berechnetes EUV-Fluoreszenzspektrum	88
4.26.	Absolute EUV-Photonenzahl und Konversionseffizienz	90
5.1.	Plasmaemission im sichtbaren Spektralbereich	94
A.1.1.	Schematische Darstellung des THG-Frog	96
A.1.2.	THG-Frog-Spur eines Doppelpulses	98
A.2.1.	Schema zur Überprüfung des Pulsformers	100
A.2.2.	Ergebnis der Linearität des Pulsformers	101
A.4.1.	Schematische Ansicht der Vakuum-Kammer, Teil 2	103

1. Einleitung

Die Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie ist ein wesentlicher Aspekt in Anwendung und Forschung. Die Experimente profitieren von der stetigen Weiterentwicklung der Technologien zur Erzeugung ultrakurzer und hochintensiver Laserpulse. Heutzutage sind table-top-Lasersysteme mit Pulslängen von wenigen Femtosekunden ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) und Pulsintensitäten von 10^{16} W/cm^2 realisierbar [1, 2]. Auf der einen Seite ermöglichen ultrakurze Pulse die Analyse dynamischer Prozesse in z.B. Molekülen oder chemischen Reaktionen [3]. Auf der anderen Seite werden mit den hohen Intensitäten elektrische Feldstärken im Bereich von $10^{11} \text{ V/m} = 10 \text{ V/\AA}$ erreicht, die mit den Verhältnissen in Atomen vergleichbar sind. In der Starkfeldanregung mit intensiven Laserpulsen kann das atomare Potential verformt werden, dass z.B. die Erzeugung von Hohen Harmonischen und Attosekundenpulsen ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) möglich wird [4--9].

Die grundlegende Charakterisierung solcher Phänomene ist Gegenstand zahlreicher Experimente. Die Verwendung intensiver Laserpulse bietet dabei die Möglichkeit, Materie unter extremen Bedingungen studieren. Die Bandbreite der untersuchten Systeme reicht von Atomen [10, 11] und Molekülen [12, 13] über atomare Cluster [14--16] bis zu Festkörpern [17--19]. Eine zusätzliche Formung der Laserpulse in Amplitude und Phase erlaubt darüber hinaus die gezielte Anpassung der Anregung an die Dynamik der Wechselwirkung [20--24].

Im Grenzbereich zwischen Festkörpern und atomaren Systemen haben sich Mikro-Tropfen etabliert. Sie verbinden die Vorteile einer hohen Festkörperdichte mit den regenerativen Eigenschaften von Gas- und Clusterjets. Die Mikrometer großen Tropfen sind abgeschlossene Systeme, die in der Anregung mit intensiven Laserpulsen hohe Energien aufnehmen und in einem Plasmazustand speichern können. Sie werden als Emissionsquellen für Elektronen [25--27], Ionen [28--34], Hohe Harmonische [35, 36], EUV- [37--41] und Röntgenstrahlung [42--47] sowie auf dem Gebiet der nichtlinearen Optik [48--53] eingesetzt.

Speziell die Erzeugung kurzweilliger Strahlung im extrem-ultravioletten (EUV) Spektralbereich ist von großem Interesse. Die Wellenlängen im Bereich von einigen wenigen Nanometern eröffnen neue Wege in der Mikroskopie [54, 55] und Lithographie [56, 57].

Der Einsatz Tropfen-basierter EUV-Quellen stellt dabei eine hocheffiziente, kostengünstige [58--61] und Debris-freie [62--64] Alternative zu konventionellen EUV-Quellen dar.

Neben den vielversprechenden Anwendungsmöglichkeiten bieten Mikro-Tropfen einen umfassenden Zugang zur Grundlagenforschung auf dem Gebiet der Licht-Materie-Wechselwirkung. Unter dem Einfluss intensiver Laserstrahlung wird der Tropfen ionisiert, und es bildet sich ein Mikroplasma [65, 66] mit Temperaturen von einigen zehn bis einigen hundert Elektronenvolt ($1\text{ eV} \approx 10^4\text{ K}$). Mit der Expansion und Abkühlung des Plasmas setzt Rekombination ein und hochenergetische Strahlung wird emittiert. Die Plasmadynamik ist wesentlich durch die hohe Dichte der Tropfen bestimmt. Die Spektroskopie der Emission ermöglicht die Charakterisierung des Plasmazustandes und liefert Rückschlüsse über den Ablauf der Wechselwirkung [67--74].

In diese Thematik gliedert sich die vorliegende Arbeit ein. In einem Experiment wird die EUV-Plasmafluoreszenz aus Mikrometer großen Argon-Tropfen untersucht, die mit intensiven, ultrakurzen Laserpulsen im nah-infraroten (NIR) Wellenlängenbereich angeregt werden. Es wird ein Versuchsaufbau konzipiert und realisiert, der die Spektroskopie der EUV-Emission unter Vakuum-Bedingungen ermöglicht. Über Pulsformung wird versucht, die Laseranregung an die Dynamik des Mikroplasmas anzupassen und so die EUV-Emission zu optimieren. Anhand gemessener Fluoreszenzspektren werden neben der Konversionseffizienz NIR \rightarrow EUV die Plasmamparameter Ladungszustand, Elektronentemperatur und -dichte bestimmt.

Die Arbeit ist dreigeteilt. Teil eins beschäftigt sich mit den Grundlagen der Wechselwirkung zwischen intensiven Laserpulsen und Mikro-Tropfen. In Teil zwei wird die experimentelle Umsetzung des Versuches vorgestellt. Hier wird auch auf den Aspekt der Pulsformung eingegangen. Im dritten Teil werden die Ergebnisse dargestellt, interpretiert und diskutiert.

2. Grundlagen

Die Wechselwirkung von intensiven Laserpulsen mit Mikrometer großen Tropfen ist gegenüber der Anregung atomarer Systeme wesentlich durch die hohe Dichte der Tropfen bestimmt. Ausgelöst durch die Starkfeldionisation des Laserfeldes führen Plasmaheizung und Elektronenstöße zur Ausbildung hoher Ladungszustände. Es entsteht ein langlebiges Mikroplasma mit einer komplexen Dynamik.

Der folgende Abschnitt beschreibt den Weg von der Ionisation einzelner Atome über die Plasmabildung bis zur Fluoreszenz aus den Tropfen. Es werden grundlegende Begriffe und Zusammenhänge vorgestellt und erläutert. Im zweiten Teil wird auf die Beschreibung und speziell die Analyse des Plasmazustandes eingegangen.

2.1. Laser-Tropfen-Wechselwirkung

2.1.1. Ionisationsmechanismen in starken Laserfeldern

Die Ionisation von Atomen in intensiven Laserfeldern erfolgt je nach Intensität der Laserstrahlung nach unterschiedlichen Mechanismen. In schwachen Laserfeldern findet Multiphotonionisation (MPI) statt, bei der ein Elektron über Absorption mehrerer Photonen die Bindungsenergie des Atoms überwinden kann [75]. Die Ionisationsrate der Multiphotonionisation skaliert mit dem Wirkungsquerschnitt σ_n für die n -Photonen-Absorption und der Laserintensität I in n -ter Ordnung: $W_{\text{MPI}} = \sigma_n I^n$ [76]. Mit zunehmender Laserintensität wird das Atompotential durch das Laserfeld verformt, so dass ein Elektron durch die Potentialbarriere tunneln kann (Tunnelionisation, TI) [77]. Nach Ammosov, Delone und Krainov [78, 79] folgt die Ionisationsrate W_{TI} dem oszillierenden Verlauf des Laserfeldes. In den Umkehrpunkten wird sie durch eine maximale Feldstärke und dementsprechend minimale Tunnelbarriere begünstigt. Steigt die Laserintensität darüber hinaus an, wird das Atompotential stark abgesenkt, so dass ein Elektron direkt in das Kontinuum gelangen kann (optische Feldionisation, OFI). Die Intensitätsregime der drei Mechanismen können über den Keldysh-Parameter [80, 81] abgeschätzt werden, der das

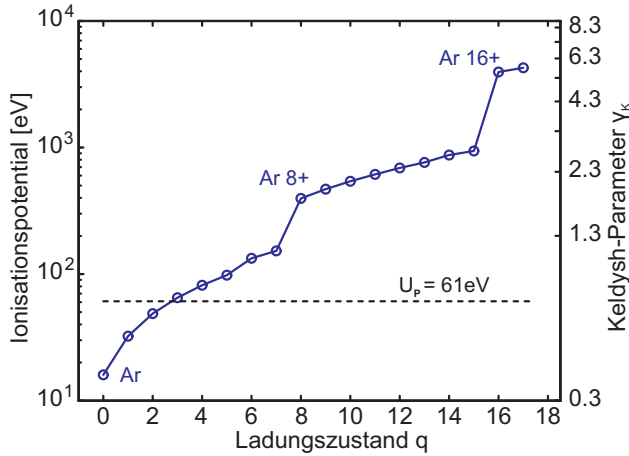


Abbildung 2.1: Ionisationspotential I_P und Keldysh-Parameter γ_K für Argon bis zum Ladungszustand $q = 17$ [82]. Für $q = 8$ und $q = 16$ sind die Schalenabschlüsse zu erkennen. Mit den im Experiment verwendeten Laserparametern $I = 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und $\lambda = 810 \text{ nm}$ ergibt sich ein ponderomotives Potential von $U_P = 61 \text{ eV}$.

Verhältnis aus Ionisationspotential I_P und Laseranregung U_P angibt :

$$\gamma_K = \sqrt{\frac{I_P}{2U_P}} \quad (2.1)$$

$\gamma_K \gg 1$ beschreibt den Bereich der Multiphotonionisation, für $\gamma_K \approx 1$ dominiert Tunnelionisation, und starke Felder mit $\gamma_K \ll 1$ ermöglichen optische Feldionisation. Das ponderomotive Potential

$$U_P = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} \quad (2.2)$$

entspricht der gemittelten kinetischen Energie der Elektronen im Laserfeld und beschreibt die Effizienz der Elektron-Photon-Kopplung. e und m_e sind Ladung und Masse eines Elektrons, E_0 und ω Feldstärke und Frequenz des elektrischen Feldes. In einer alternativen Form kann es über die Laserintensität I und -wellenlänge λ mit $I = c\epsilon_0 E_0^2/2$ und $\lambda = 2\pi c/\omega$ berechnet werden :

$$U_P [\text{eV}] = 9.337 \cdot I [10^{14} \text{ W/cm}^2] \cdot (\lambda [\mu\text{m}])^2 \quad (2.3)$$

Die Energieaufnahme der Elektronen aus dem Laserfeld wird durch eine Erhöhung der Laserintensität als auch eine Reduzierung der Schwingungsperiode begünstigt.

In dieser Arbeit werden Laserpulse mit Intensitäten bis 10^{15} W/cm^2 bei einer Wellenlänge von $\lambda = 810 \text{ nm}$ eingesetzt. Das entspricht einem ponderomotiven Potential von 61 eV , s. Abbildung 2.1. Für den Keldysh-Parameter ergibt sich in Verbindung mit den Ionisationspotentialen der Argon-Ionen [82] bis zum Ladungszustand $q = 15$ ein Wert von $\gamma_K < 3$. In diesem Bereich ist Tunnelionisation der dominierende Mechanismus. Allerdings

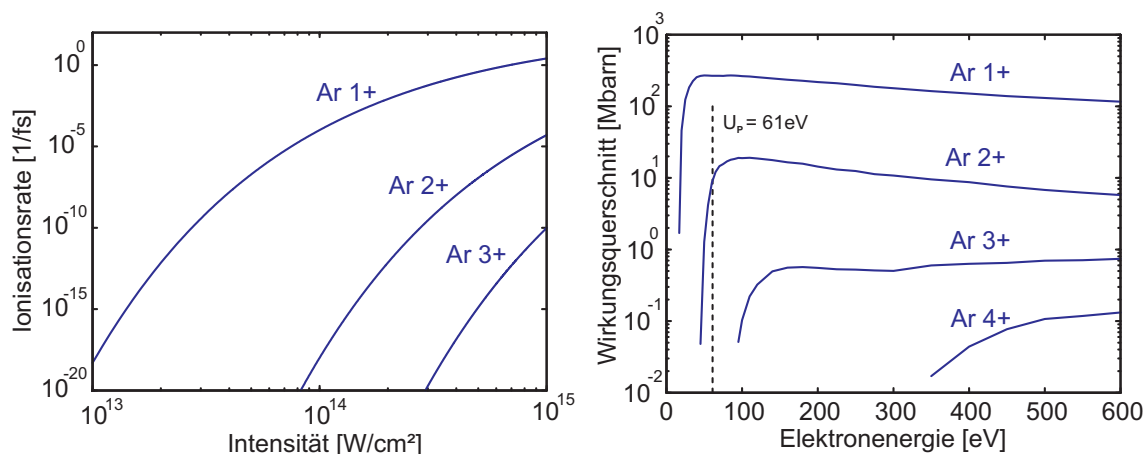


Abbildung 2.2.: links: Berechnete Ionisationsraten für Tunnelionisation von Argon nach dem ADK-Modell in Abhängigkeit von der Laserintensität für eine Laserwellenlänge von $\lambda = 810 \text{ nm}$ [78, 79]. Dargestellt sind Verläufe in den Ladungszuständen Ar 1+, Ar 2+ und Ar 3+. rechts: Wirkungsquerschnitte für die Stoßionisation von Argon in Abhängigkeit der Elektronenenergie [87--89]. Dargestellt sind Verläufe in den Ladungszuständen Ar 1+ bis Ar 4+. Die Wirkungsquerschnitte werden in den drei Quellen übereinstimmend angegeben.

ist der Wirkungsquerschnitt der Ionisation stark intensitätsabhängig. Eine Abschätzung der Ionisationsrate W_{T1} nach dem ADK-Modell¹ [78] zeigt, dass mit $1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ in der Einfachionisation eines Argon-Atoms etwa ein Elektron pro Laserzyklus erzeugt werden kann, s. Abbildung 2.2 links. Mit einem Abfall der Intensität auf $1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ sinkt die Rate bereits auf 10^{-4} fs^{-1} . Die Ionisation erfolgt nur innerhalb weniger Laserzyklen im Bereich der Pulsspitze. Darüber hinaus reduziert sich die Ionisationsrate mit zunehmendem Ionisationspotential für $q > 1$ um Größenordnungen. Es ist unwahrscheinlich, dass über Tunnelionisation hohe Ladungszustände erzeugt werden. In der Literatur finden sich experimentelle Arbeiten, in denen mit Intensitäten von 10^{15} W/cm^2 Ladungszustände bis Ar 3+ beobachtet werden [77, 83--86]. Das entspricht in etwa dem Fall $U_p = I_p$.

An dieser Stelle setzt der Effekt der hohen Dichte des Tropfens ein. Zum Einen werden in einem Mikrometer großen Laserfokus instantan mehrere Atome ionisiert. Zum Anderen bewegen sich die Elektronen außerhalb der Atome weiter unter dem Einfluss des Laserfeldes. Die Auslenkung der Oszillationsbewegung kann über die *quiver*-Amplitude [90]

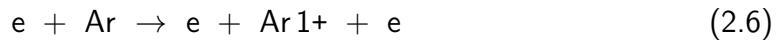
$$a = \frac{eE_0}{m_e \omega^2} \quad (2.4)$$

¹ Ein von Ammosov, Delone und Krainov entwickeltes Modell zur Beschreibung der Tunnelionisation in intensiven Feldern.

bzw.

$$a [\text{nm}] = 1.358 \cdot \sqrt{I [10^{14} \text{ W/cm}^2]} \cdot (\lambda [\mu\text{m}])^2 \quad (2.5)$$

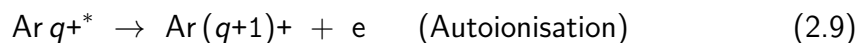
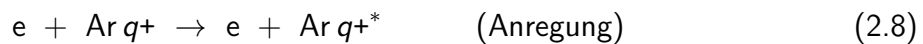
abgeschätzt werden. Für $I = 10^{15} \text{ W/cm}^2$ und $\lambda = 810 \text{ nm}$ ergibt sich mit $a = 2.8 \text{ nm}$ ein Vielfaches des Durchmessers eines Argon-Atoms von 0.188 nm [91]. In Folge stoßen die Elektronen mit den benachbarten Atomen. Die Stoßprozesse



stellen einen zusätzlichen Ionisationsmechanismus der Wechselwirkung dar, der im Vergleich zur Tunnelionisation wesentlich effizienter ist. Abbildung 2.2 rechts zeigt Elektronenstoß-Wirkungsquerschnitte für verschiedene Argon-Ionen. Mit Elektronenenergien von $U_p = 61 \text{ eV}$ können in den Nachbaratomen mit hohem Querschnitt Ladungszustände $\text{Ar} 1+$ und $\text{Ar} 2+$ erzeugt werden. Der zunehmende Ionisationsgrad in der Wechselwirkungszone führt wiederum zu einer erhöhten Energieaufnahme der Elektronen aus dem Laserfeld. Über inverse Bremsstrahlung (IB) setzt ein kontinuierlicher Heizmechanismus² ein, der direkt mit der Elektronen- und Ionendichte n_e, n_I skaliert [95, 96]:

$$W_{\text{IB}} = n_e n_I Z^2 / \sqrt{I} \quad (2.7)$$

$Z = 18$ entspricht dabei der Kernladungszahl von Argon. Die steigende Elektronenenergie erhöht die Stoßwahrscheinlichkeit für die Mehrfachionisation, so dass hohe Ladungszustände mit $q \gg 1$ gebildet werden und die Elektronendichte überproportional zunimmt. Folglich steigt die Heizrate der inversen Bremsstrahlung. Mit der sinkenden mittleren freien Weglänge treten vermehrt inelastische Elektronenstöße auf. Dabei können Ionen angeregt werden, die über Autoionisation [97] zusätzlich Ladungszustände erzeugen:



Aus dem Kreislauf entsteht eine hochkomplexe, nichtlineare Dynamik. Es bildet sich ein mikroskopisches Plasma an der Tropfenoberfläche.

² Andere Heizmechanismen, wie z.B. der Brunel- und anomale Skin-Effekt [92--94], werden erst bei höheren Laserintensitäten $> 10^{15} \text{ W/cm}^2$ relevant. Sie können in dieser Arbeit vernachlässigt werden.

2.1.2. Abschirmung

Die Ausbildung des Mikroplasmas ändert die optischen Eigenschaften des Tropfens. Nach dem Drude-Modell [98] ist die Elektronendichte n_e über die Plasmafrequenz

$$\omega_{pl} = \sqrt{\frac{n_e e^2}{\epsilon_0 m_e}} \quad (2.10)$$

mit der dielektrischen Funktion $\epsilon(\omega)$ verknüpft :

$$\epsilon_{pl}(\omega) = 1 - \frac{\omega_{pl}^2}{\omega^2} \quad (2.11)$$

Die dielektrische Funktion beschreibt allgemein die Propagation eines Lichtfeldes der Frequenz ω in einem Medium. Je nach Vorzeichen ist das Medium transparent $\epsilon_{pl} > 0$ ($\omega > \omega_{pl}$) oder reflektierend bzw. absorbierend $\epsilon_{pl} < 0$ ($\omega < \omega_{pl}$). Der Fall $\epsilon_{pl} = 0$ bei $\omega = \omega_{pl}$ ist über die kritische Elektronendichte

$$n_{krit} = \frac{\epsilon_0 m_e \omega^2}{e^2} \quad (2.12)$$

bzw.

$$n_{krit} [\text{cm}^{-3}] = 1.1 \cdot 10^{21} / (\lambda [\mu\text{m}])^2 \quad (2.13)$$

gegeben [99]. Für die Laserwellenlänge $\lambda = 810 \text{ nm}$ ist $n_{krit} = 1.7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. Ein Plasma mit einer Elektronendichte $n_e < n_{krit}$ ist für die Frequenz ω transparent und wird als optisch dünn bezeichnet. Analog beschreibt $n_e > n_{krit}$ ein optisch dichtes, intransparentes Plasma.

Ein neutraler Argon-Tropfen ist mit $n_e \ll n_{krit}$ und $\epsilon_{pl} > 0$ optisch dünn. Mit zunehmender Elektronendichte steigt die Plasmafrequenz, die dielektrische Funktion fällt und die Transmission reduziert sich. Es bildet sich ein sogenannter Plasmaspiegel [100--103]. Das bedeutet, dass das Plasma den Tropfen gegenüber dem Laserpuls abschirmt und eine vollständige Ionisation verhindert [104, 105]. Die Reichweite der Abschirmung hängt von der Dichte und der Temperatur der Elektronen im Plasma ab und kann über die Debye-Länge abgeschätzt werden :

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}} \quad (2.14)$$

bzw.

$$\lambda_D [\text{nm}] = 7.437 \cdot 10^9 \cdot \sqrt{\frac{T_e [\text{eV}]}{n_e [\text{cm}^{-3}]}} \quad (2.15)$$

Für typische Werte von $n_e = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ und $T_e = 100 \text{ eV}$ [76] ergibt sich eine etwa 2 nm dünne Schicht auf der Tropfenoberfläche, die durch den Laserpuls ionisiert werden kann.

Das Absinken des Wertes der dielektrischen Funktion ist besonders in der Anfangsphase der Wechselwirkung relevant, in der sprunghaft eine Elektronendichte mit $n_e \geq n_{\text{krit}}$ erzeugt wird. Je intensiver der Laserpuls, desto schneller steigen Elektronendichte und Plasmafrequenz. Unter Umständen wird die Rückseite des Laserpulses vollständig reflektiert. In diesem Fall kann es sinnvoll sein, die Intensität über eine Vergrößerung der Pulslänge zugunsten einer längeren Wechselwirkungszeit zu reduzieren. Das erhöht den Energiegewinn über inverse Bremsstrahlung und begünstigt die Erzeugung hoher Ladungszustände.

2.1.3. Expansion des Plasmas

Die hohe Dichte und die Bewegung der Elektronen in der dünnen Plasmaschicht lassen die Tropfenoberfläche expandieren. Ditmire et.al. beschreiben die Expansion in einem Nanoplasma-Modell über eine Druckanalogie [65]: Heiße, hochenergetische Elektronen können das Bindungspotential überwinden und die Tropfenoberfläche verlassen. Sie werden als äußere Elektronen bezeichnet [14, 106, 107] und erzeugen eine positive Überschussladung an der Oberfläche. Die resultierende elektrostatische Abstoßung bewirkt einen Coulomb-Druck P_{coul} . Sogenannte innere Elektronen dagegen propagieren innerhalb der Plasmaschicht. Aus der Wechselwirkung mit dem Laserfeld können sie über inverse Bremsstrahlung weiterhin Energie aufnehmen. Inelastische Stöße mit Ionenrümpfen und anderen Elektronen wandeln die kinetische Energie $m_e v_e^2/2$ in eine ungerichtete, thermische Energie $k_B T_e$ um und erzeugen einen hydrodynamischen Druck $P_{\text{hydro}} = n_e k_B T_e$, der den zweiten Beitrag zur Expansion liefert.

P_{coul} und P_{hydro} wirken auf unterschiedliche Art und Weise. Die Coulomb-Abstoßung zwischen zwei Ladungen im Abstand r skaliert mit $1/r^2$. Für den Coulomb-Druck als Verhältnis von Kraft pro Fläche ergibt sich eine $1/r^4$ -Abhängigkeit. Er ist vorrangig auf kurzen Distanzen relevant. Der hydrodynamische Druck dagegen zeigt mit $P_{\text{hydro}} \sim n_e$ eine $1/r^3$ -Abhängigkeit. Er dominiert mit zunehmenden Abständen. Speziell im Fall der be-

trachteten μm großen Tropfen überwiegt die hydrodynamische Expansion [66,99,108,109].

Die Expansion erfolgt sowohl nach außen in das Vakuum, als auch in das Tropfeninnere. In beide Richtungen ist der Dichtegradient negativ. Die Ausbreitung in den Tropfen ist mit einer Kompression verbunden und erzeugt Schockwellen [110--112]. Durch Stöße zwischen Elektronen und Ionen entsteht ein Energietransport von der Oberfläche in das Tropfenvolumen. Die Geschwindigkeit der Expansion ist über die Schallgeschwindigkeit des Plasmas

$$c_s = \sqrt{\frac{Z k_B T_e}{m_i}} \quad (2.16)$$

gegeben [96] und hängt von der Elektronentemperatur T_e , der Kernladungszahl Z und über die Masse m_i von der Trägheit der Ionen ab. Mit $c_s = 6.7 \cdot 10^4 \text{ m/s} = 0.067 \mu\text{m/ps}$ für $T_e = 100 \text{ eV}$ ergibt sich eine Dynamik auf Pikosekunden-Zeitskalen.

Die Ausdehnung der Plasmaschicht führt in Folge zu einer Abnahme der Elektronendichte und einer Abkühlung. Elektronen, Ionen und hochenergetische Photonen werden emittiert. Dabei kann ein Resonanzeffekt beobachtet werden, wenn die Elektronendichte erneut die kritische Dichte n_{krit} durchläuft. Aufgrund der dreidimensionalen Kugelgeometrie tritt die Resonanz in den Tropfen bei $n_e \approx 3n_{\text{krit}}$ auf³. Die Resonanz ist durch einen erhöhten Energieübertrag aus dem Laserfeld gekennzeichnet und kann über einen Signalanstieg in den Emissionskanälen detektiert werden. Das erlaubt die Angabe von zwei charakteristischen Zeitskalen: t_{res} zur Ausbildung der Resonanz und t_{dis} zum Absinken der Elektronendichte unter den kritischen Wert⁴.

In der Literatur findet sich eine Vielzahl an Experimenten, die sich mit Bestimmung dieser Zeitskalen beschäftigen. Neben der Emission von Elektronen, Ionen und kurzwelliger Strahlung im Röntgen-, XUV- und EUV-Bereich [11,66,108,109,113--117] wird Streuung und Absorption der Laserstrahlung beobachtet [118--124]. Die Mehrheit der Experimente untersucht kleine Edelgas-Cluster, deren Durchmesser kleiner als die Laserwellenlänge ist. Diese werden vollständig durchionisiert. Die verwendeten Laserintensitäten liegen im Bereich von 10^{17} W/cm^2 bis 10^{19} W/cm^2 . Damit wird die Ausbildung der Resonanz typisch innerhalb einiger hundert Femtosekunden beobachtet. Die anschließende Expansion erfolgt langsamer und kann sich über mehrere Pikosekunden erstrecken. Im Fall einer moderaten

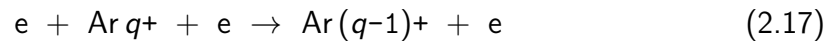
³ An Oberflächen liegt die Resonanz bei $n_e \approx 2n_{\text{krit}}$.

⁴ Die Zeit t_{dis} wird in der Literatur oft als 'disassembly time' bezeichnet.

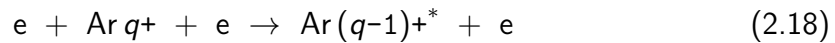
Laseranregung mit Intensitäten bis 10^{15} W/cm^2 kann sich bereits die Ausbildung der Resonanz bis in den Pikosekundenbereich schieben [66, 125, 126]. Auf der anderen Seite beeinflusst die Targetgröße die Dynamik. Mit zunehmender Teilchenzahl verzögert sich die Ausbildung der Resonanz, da sich die Expansion verlangsamt [109, 113, 114, 127]. In Systemen mit Mikrometer Abmessungen, wie sie in dieser Arbeit betrachtet werden, kann sie bis zu Nanosekunden betragen [38, 39, 45, 128].

2.1.4. Plasmafluoreszenz

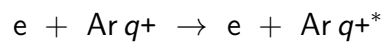
Im Verlauf der Expansion kühlt das Plasma ab. Die Wahrscheinlichkeit für Stoßionisation sinkt, und Rekombination wird möglich. Aufgrund der Impulserhaltung ist für die Rekombination eine Drei-Körper-Wechselwirkung mit einem Ion und zwei Elektronen erforderlich, so dass das zusätzliche Elektron einen Impulsüberschuss aufnehmen kann. Die Rekombination kann in den $q - 1$ Grundzustand



oder einen angeregten Zustand



erfolgen. In einer Zwei-Körper-Wechselwirkung ist weiterhin die Anregung von Ionen bei Erhaltung des Ladungszustandes möglich (2.8),



wobei das angeregte Ion anschließend über Autoionisation (2.9)



in einen höheren Ladungszustand gelangen kann oder durch Emission eines Photons in einen energetisch niedrigeren Zustand übergeht :



Die Prozesse treten während der gesamten Expansionsphase auf, so dass sich der Plasmazustand noch Nanosekunden nach der Laseranregung ändert. Abbildung 2.3 bietet eine schematische Übersicht. Abhängig von den Ladungszuständen q und den inneratomaren

Übergängen $E_{q,1} \leftarrow E_{q,2}$ ergeben sich charakteristische Photonenenergien

$$h\nu = E_{q,2} - E_{q,1} \quad (2.20)$$

und es wird ein diskretes Linienspektrum emittiert. Die Fluoreszenz im extrem-ultravioletten Wellenlängenbereich stellt die Strahlungsquelle für die spektroskopischen Untersuchungen dieser Arbeit dar.

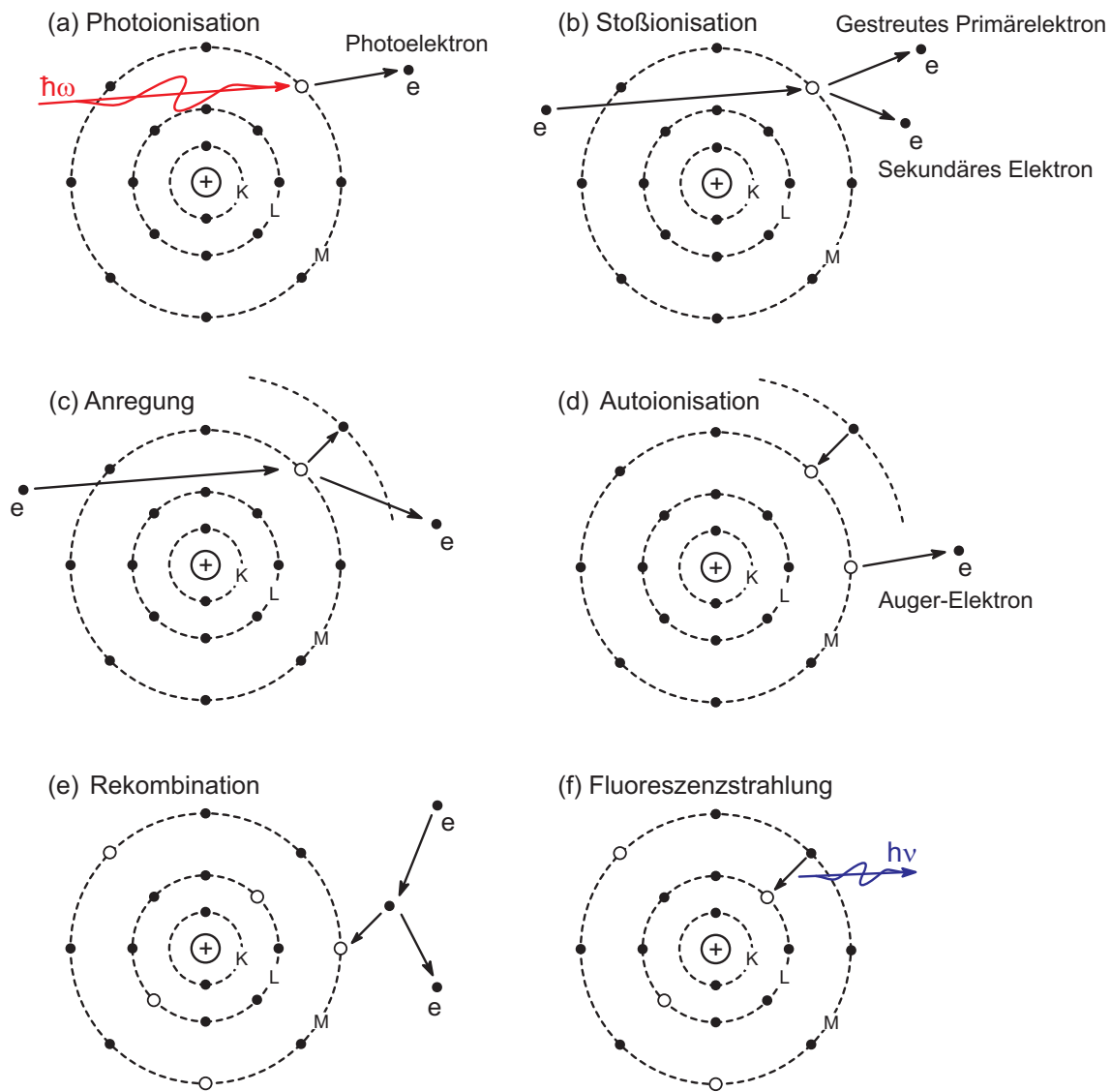


Abbildung 2.3.: Schematische Darstellung der Wechselwirkungsprozesse: (a) Ionisation durch das NIR-Laserfeld $\hbar\omega$. (b) Die Elektronen können mit den Nachbaratomen stoßen und weitere Elektronen freisetzen. Je höher die Energie der Primärelektronen, desto wirkungsvoller ist die Stoßionisation. (c) Mit geringen Energien werden gebundenen Elektronen durch Stöße nicht freigesetzt, sondern in höhere Energieniveaus angeregt. (d) In den angeregten Ionen kann Autoionisation auftreten. Über (b)-(d) können hohe Ladungszustände entstehen. In einer Drei-Körper-Wechselwirkung können Elektronen von außerhalb mit den Ionenrümpfen rekombinieren (e) und schließlich in inneratomaren Übergängen durch Fluoreszenz EUV-Photonen $h\nu$ emittieren (f). Modifiziert aus [129].

2.1.5. Spektroskopische Notation

Die eindeutige Bezeichnung der Energieniveaus in einem Atom erfolgt über einen Satz von Quantenzahlen. Diese Thematik wird umfassend in der Literatur beschrieben, z.B. [130]. Der folgende Abschnitt konzentriert sich auf ausgewählte Aspekte, die für das Verständnis der Arbeit relevant sind.

Ein einzelner Elektronenzustand wird über die Hauptquantenzahl n zur Angabe der Elektronenschale, die Neben- oder Bahndrehimpulsquantenzahl l für die Orbitale, die magnetische Quantenzahl m für die Orientierung des Bahndrehimpulses sowie den Spin s vollständig beschrieben. Der Gesamtdrehimpuls des Elektrons j setzt sich aus der Summe aus Bahndrehimpuls und Spin zusammen. Es gilt

$$n = 1, 2, 3, 4, \dots, \infty = \text{K, L, M, N, } \dots \quad (2.21)$$

$$l = 0, 1, 2, 3, \dots, n - 1 = \text{s, p, d, f, } \dots \quad (2.22)$$

$$m = -l, \dots, 0, \dots, l \quad (2.23)$$

$$s = \pm 1/2 \quad (2.24)$$

$$j = l + s \quad (2.25)$$

Der Übergang eines Elektrons aus einem energetisch hohen in einen freien energetisch tieferen Zustand kann unter der Emission eines Photons erfolgen. Aufgrund der Drehimpulserhaltung ergeben sich dabei folgende Auswahlregeln :

$$\Delta l = \pm 1 \quad (2.26)$$

$$\Delta m = 0, \pm 1 \quad (2.27)$$

$$\Delta s = 0 \quad (2.28)$$

In Systemen mit mehreren Elektronen tritt durch die Wechselwirkung untereinander eine zusätzliche Kopplung der Drehimpulse auf. In leichten Atomen mit wenigen Elektronen dominiert die elektrostatische Coulomb-Abstoßung gegenüber der Dipol-Dipol-Wechselwirkung. Formal wird der Effekt durch die LS-Kopplung beschrieben. Dabei wird davon ausgegangen, dass die gegenseitige Beeinflussung von Bahndrehimpuls und Spin gerade vernachlässigt werden kann. Die Drehimpulse der einzelnen Elektronen kön-

nen unabhängig voneinander aufaddiert und zu einem gekoppelten Gesamtdrehimpuls J zusammengesetzt werden. Für den Gesamtbahndrehimpuls L sowie des Gesamtspin S gilt⁵:

$$L = \sum_i l_i \quad (2.29)$$

$$S = \sum_i s_i \quad (2.30)$$

Der Gesamtdrehimpuls der Elektronenhülle ergibt sich zu:

$$J = L + S \quad (2.31)$$

Für schwere Atome mit hoher Elektronenzahl ist die Spin-Bahn-Kopplung nicht mehr vernachlässigbar. In diesem Fall wird die jj-Kopplung verwendet. Bahndrehimpuls und Spin der Elektronen werden zu Einzel-Gesamtdrehimpulsen j_i zusammengefasst,

$$j_i = l_i + s_i \quad (2.32)$$

aus denen der Gesamtdrehimpuls der Elektronenhülle resultiert:

$$J = \sum_i j_i \quad (2.33)$$

Der Übergang von der LS- zur jj-Kopplung mit zunehmender Kernladungszahl Z macht sich in einer zusätzlichen Aufspaltung der Energieniveaus bemerkbar. Nach [130] ist die jj-Kopplung für $Z > 30$ relevant. In dieser Arbeit wird für Argon mit $Z = 18$ die LS-Kopplung zur Bestimmung des Gesamtdrehimpulses der Elektronenhülle verwendet. J ist darüber hinaus mit dem statistischen Gewicht g verbunden:

$$g = 2J + 1 \quad (2.34)$$

Im Allgemeinen beschreibt das statistische Gewicht die Anzahl mikroskopischer Zustände in einem makroskopischen System. Hier entspricht es der Anzahl der energetisch entarteten Unterniveaus in der Elektronenhülle, also der Gesamtheit der möglichen Besetzungszustände für ein Elektron.

⁵ Es handelt sich hierbei um vektorielle Additionen.

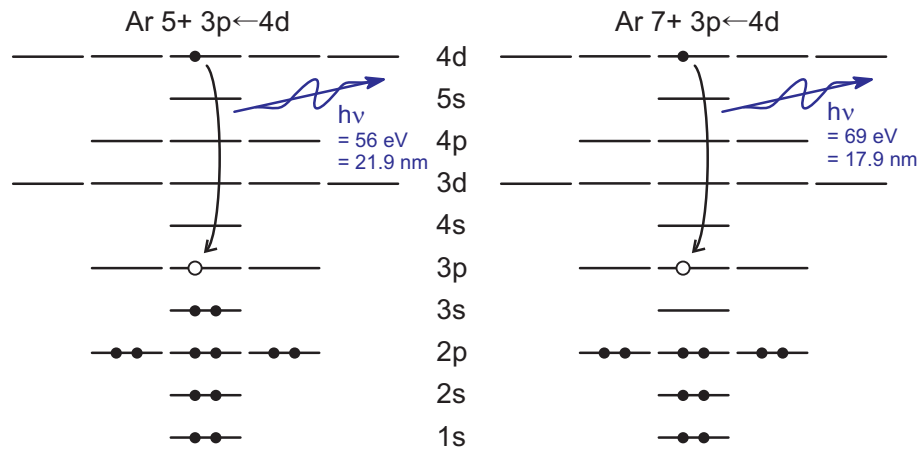
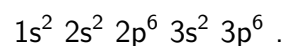
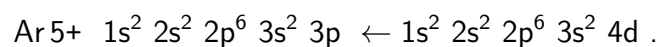


Abbildung 2.4.: Besetzung der Elektronenschalen in den Coulomb-verschobenen Übergängen Ar5+ 3p←4d und Ar7+ 3p←4d [131]. Aufgrund der geringeren Elektronenzahl ist für Ar7+ 3p←4d die Anziehungskraft des Atomkerns und damit die Verschiebung der Energieniveaus stärker ausgeprägt. Trotz identischem Schalenübergang ist die emittierte Photonenenergie unterschiedlich.

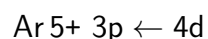
Die Energieniveaus können anhand der Elektronenkonfiguration unter Verwendung der Haupt- und Nebenquantenzahlen n, l identifiziert werden. In der üblichen Schreibweise $n l^x$ werden die Elektronenschalen als Ziffer, die Orbitale als Buchstabe und die Anzahl der Elektronen pro Orbital als Index geschrieben. Für ein neutrales Argon-Atom im Grundzustand lautet die Bezeichnung



Mit $Z = 18$ ist die Elektronenschale bis zum 3p-Orbital vollbesetzt und abgeschlossen. Ein Fluoreszenzübergang $E_{q,1} \leftarrow E_{q,2}$ in einem Argon-Ion im Ladungszustand $q = 5$ ist beispielsweise



Die vollständige Elektronenkonfiguration kann der NIST-Datenbank [131] entnommen werden. Es bietet sich an, die Notation auf die Angabe des Leuchtelektrons zu vereinfachen :



In Verbindung mit dem Ladungszustand und der Energie bzw. Wellenlänge des emittierten Photons ist die Bezeichnung eindeutig. Abbildung 2.4 veranschaulicht das Prinzip anhand der Coulomb-verschobenen Übergänge Ar5+ 3p←4d und Ar7+ 3p←4d, also ein identischer Schalenübergang in verschiedenen Ladungszuständen. Für Ar5+ 3p←4d sind

die Elektronenschalen bis zum 3s-Orbital vollständig besetzt, der Übergang erfolgt in den Grundzustand. $\text{Ar}^{7+} 3p \leftarrow 4d$ entspricht mit einem leeren 3s-Orbital dagegen einem Übergang in einen angeregten Zustand. Die geringere Anzahl von Elektronen in der Hülle bewirkt eine stärkere Anziehung durch den Atomkern, so dass sich die Energieniveaus verschieben. Als Folge ist die emittierte Photonenenergie für $\text{Ar}^{7+} 3p \leftarrow 4d$ größer und die Übergänge werden unterscheidbar :

$$\text{Ar}^{5+} 3p \leftarrow 4d : h\nu = 56 \text{ eV} = 21.9 \text{ nm}$$

$$\text{Ar}^{7+} 3p \leftarrow 4d : h\nu = 69 \text{ eV} = 17.9 \text{ nm}$$

2.2. Beschreibung des Plasmazustandes

Der Abschnitt beschreibt die Methoden zur Charakterisierung des Plasmazustandes. Es wird gezeigt, wie aus Fluoreszenzspektren Informationen über die Elektronentemperatur und -dichte extrahiert werden können. Anschließend wird eine Simulation zur Beschreibung der Plasmadynamik vorgestellt.

2.2.1. Lokales Thermodynamisches Gleichgewicht

Die Beschreibung des Plasmas erfordert die Betrachtung aller freien Elektronen, Ionen und ihrer Wechselwirkungen untereinander. Diese Zusammenhänge sind in Systemen mit hoher Teilchendichte komplex und schwer zu erfassen. In einer makroskopischen Vereinfachung kann das Plasma über Gleichgewichtsmodelle angenähert werden, so dass eine Charakterisierung anhand von Verteilungsfunktionen möglich ist [68, 69, 132]. Für die Energie bzw. Geschwindigkeit der Elektronen und Ionen wird typisch eine Maxwell-Verteilung

$$f(v) = 4\pi \left(\frac{m}{2\pi k_B T} \right)^{3/2} v^2 \exp \left[-\frac{mv^2}{2\pi k_B T} \right] \quad (2.35)$$

angenommen. Die Besetzungsdichten n_q in den Energieniveaus E_q können in Bezug zum Grundzustand n_0 und der Elektronenenergie T_e über eine Boltzmann-Verteilung

$$\frac{n_q}{n_0} = \frac{g_q}{g_0} \exp \left[-\frac{E_q}{k_B T_e} \right] \quad (2.36)$$

beschrieben werden. Hierbei ist $g = 2J + 1$ das statistische Gewicht und J der Gesamtdrehimpuls der Elektronenhülle. Das Verhältnis der Besetzungsdichten in verschiedenen Ladungszustände n_q und n_{q+1} ist über die Saha-Gleichung

$$\frac{n_{q+1} n_e}{n_q} = \frac{g_{q+1}}{g_q} \frac{2(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}}{h^3} \exp \left[-\frac{E_{q+1} - E_q + E_{IP,q}}{k_B T_e} \right] \quad (2.37)$$

gegeben. Die Energiedifferenz $E_{q+1} - E_q$ ist über das Ionisationspotential $E_{IP,q}$ mit dem Grundzustand verknüpft, s. Abbildung 2.5. Der Term $\sqrt{2\pi m_e k_B T_e}/h$ entspricht dem Reziproken der thermischen Wellenlänge eines Elektrons, so dass $(\sqrt{2\pi m_e k_B T_e}/h)^3$ als Phasenraum der möglichen Besetzungszustände interpretiert werden kann. Der Vorfaktor 2 beschreibt das statistische Gewicht eines Elektrons.

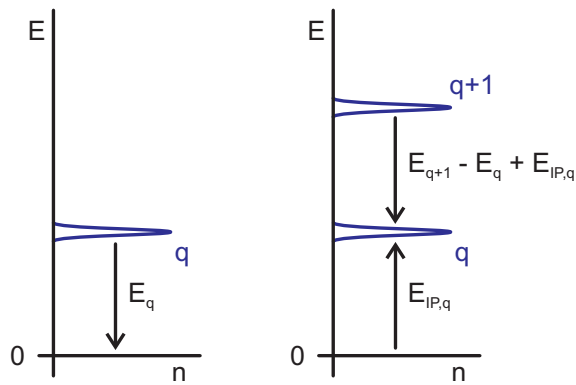


Abbildung 2.5: Veranschaulichung der Energie-Terme der Besetzungsstatistiken. links: Die Boltzmann-Gleichung (2.36) steht direkt im Bezug zum Grundzustand. rechts: In der Saha-Gleichung (2.37) erfolgt die Verbindung zum Grundzustand über das Ionisationspotential $E_{IP,q}$.

In der Anwendung der Verteilungsfunktionen muss allerdings die Frage nach der Gültigkeit berücksichtigt werden. Es ist unrealistisch, die gesamte Plasmaschicht als eine homogene Struktur im thermodynamischen Gleichgewicht zu betrachten. Entlang der Propagationsachse der Laserstrahlung und in den Randgebieten des Plasmas treten hohe Dichte- und Temperaturgradienten auf. Es kann aber angenommen werden, dass sich innerhalb des Plasmas kleine Bereiche mit annähernd konstanter Dichte und Temperatur ausbilden. In diesem Fall liegt ein lokal begrenztes, thermodynamisches Gleichgewicht (*local thermodynamic equilibrium*, LTE) vor, das über die o.g. Verteilungsfunktionen beschrieben werden kann. Die räumliche Ausdehnung der Bereiche orientiert sich an den Änderungen von Dichte und Temperatur, so dass der Einfluss von Inhomogenitäten vernachlässigt werden kann. Gleichermäßen werden zeitlichen Änderungen als langsam gegenüber den Stoßfrequenzen betrachtet. Das bedeutet, dass die Elektronenenergien gering sind und sich keine Hotspots bilden.

Die Plasmaschicht kann als quasi-neutral betrachtet werden. Lokal kann ein hoher Ionisationsgrad vorliegen, aber nach außen kompensieren sich die Ladungen der Elektronen und Ionen. Die Annahme ist möglich, solange der Anteil äußerer Elektronen gering ist und ausreichend innere Elektronen in der Plasmaschicht propagieren. Für hohe Laserintensitäten und hohe Elektronenenergien versagt die Annahme. Bei moderaten Intensitäten bis 10^{15} W/cm^2 und Mikrometer großen Systemen kann sie dagegen angewendet werden. Aus der Quasi-Neutralität folgt, dass eine homogene Abschirmung der Elektronen und Ionen vorliegt. Damit ergibt sich eine charakteristische Ausdehnung der Gleichgewichtsbereiche, die klein im Vergleich zur Debye-Abschirmlänge (2.14) ist: $L \ll \lambda_D$.

2.2.2. Bestimmung von Plasmaeigenschaften

Die Spektroskopie der Plasmafluoreszenz erlaubt eine umfangreiche Charakterisierung der Laser-Tropfen-Wechselwirkung. Die beobachteten Emissionslinien geben Auskunft über den Ionisationsgrad, der im Plasma erzeugt wird. Mit Hilfe der NIST-Datenbank [131] kann für jeden Übergang die exakte Elektronenkonfiguration identifiziert werden. Darüber hinaus kann aus gemessenen Spektren die Temperatur und die Dichte der Elektronen im Plasma bestimmt werden. Dazu werden unter der Annahme eines lokalen thermodynamischen Gleichgewicht die Signalstärken der Emissionslinien ausgewertet. Das Verfahren wird umfangreich in der Literatur beschrieben, z.B. [68,69,133--138], und findet speziell Anwendung in der Laserinduzierten Plasmaspektroskopie (*laser-induced breakdown spectroscopy*, LIBS) [139--144]. Es beruht auf dem Ansatz, dass die Emissionsstärke I_k eines Überganges k gleichermaßen mit der Besetzungsdichte n_k , der Frequenz ν_k und dem Einstein-Koeffizienten A_k als Übergangswahrscheinlichkeit skaliert,

$$I_k \sim h\nu_k A_k n_k \quad (2.38)$$

so dass mit einer Proportionalitätskonstante c_k

$$I_k = c_k \cdot h\nu_k A_k n_k \quad (2.39)$$

geschrieben werden kann. An dieser Stelle wird davon ausgegangen, dass I_k in Bezug auf die spektrale Sensitivität des Messgerätes korrigiert ist⁶. In einem lokalen thermodynamischen Gleichgewicht ist die Besetzungsdichte n_k der Elektronen über eine Boltzmann-Verteilung (2.36)

$$\frac{n_k}{n_0} = \frac{g_k}{g_0} \exp\left[-\frac{E_k}{k_B T_e}\right]$$

mit der Temperatur der Elektronen T_e verknüpft, also

$$I_k = c_k \cdot h\nu_k A_k \cdot n_0 \frac{g_k}{g_0} \exp\left[-\frac{E_k}{k_B T_e}\right] \quad (2.40)$$

$$\frac{I_k}{A_k g_k \nu_k} = c_k \cdot h \cdot \frac{n_0}{g_0} \exp\left[-\frac{E_k}{k_B T_e}\right] \quad (2.41)$$

$$\ln\left[\frac{I_k}{A_k g_k \nu_k}\right] = \ln\left[\frac{c_k h n_0}{g_0}\right] - \frac{E_k}{k_B T_e} \quad (2.42)$$

⁶ Transmission von Filtern, Quanteneffizienz des Detektors, etc.

Es resultiert eine Geradengleichung $y = ax + b$ mit $x = E_k = h\nu_k$ und $y = \ln [I_k/A_k g_k \nu_k]$. Der Anstieg $a = -1/k_B T_e$ bestimmt die Elektronentemperatur. In dieser Form ist es nicht erforderlich, die Konstante c_k oder den Bezug zum Grundzustand n_0, g_0 zu kennen. Werden mehrere Emissionslinien aus unterschiedlichen Übergängen k in ein und demselben Ladungszustand q beobachtet, kann eine lineare Regression durchgeführt werden. In dem sogenannten Boltzmann-Plot erhöht sich die Genauigkeit von T_e erheblich gegenüber einer Einzelmessung.

In einer ähnlichen Rechnung kann das Verhältnis der Signalstärken zweier Emissionslinien in unterschiedlichen Ladungszuständen gebildet werden :

$$\frac{I_k}{I_i} = \frac{c_k h \nu_k A_k n_k}{c_i h \nu_i A_i n_i} \quad (2.43)$$

Dabei bezeichnet der Index i einen Übergang im Ladungszustand q , und der Index k einen Übergang im Ladungszustand $q + 1$. In diesem Fall werden die Besetzungsdichten n_k, n_i über die Saha-Gleichung (2.37)

$$\frac{n_k n_e}{n_i} = \frac{g_k}{g_i} \frac{2(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}}{h^3} \exp \left[-\frac{E_k - E_i + E_{IP,i}}{k_B T_e} \right]$$

beschrieben. Wird $c_k = c_i$ gesetzt, folgt

$$\frac{I_k}{I_i} = \frac{A_k g_k \nu_k}{A_i g_i \nu_i} \cdot \frac{2(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}}{n_e h^3} \exp \left[-\frac{E_k - E_i + E_{IP,i}}{k_B T_e} \right] \quad (2.44)$$

Die Form kann ebenfalls in eine Geradengleichung $y = ax + b$ umgeschrieben werden :

$$\ln \left[\frac{I_k}{I_i} \right] - \ln \left[\frac{A_k g_k \nu_k}{A_i g_i \nu_i} \right] = \ln \left[\frac{2(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}}{n_e h^3} \right] - \frac{E_k - E_i + E_{IP,i}}{k_B T_e} \quad (2.45)$$

Analog zum Boltzmann-Plot kann auch hier eine lineare Regression durchgeführt werden, wenn mehrere Emissionslinien i, k in den Ladungszuständen q und $q + 1$ vorliegen. Im Parameter b ist die Elektronendichte n_e enthalten. Durch die Verhältnisbildung der Signalstärken I_k/I_i ist die Kenntnis der Grundzustandsbesetzung $n_{0,i}, g_{0,i}$ und $n_{0,k}, g_{0,k}$ nicht erforderlich. Dieser Schritt setzt allerdings ebenso wie das Setzen von $c_k = c_i$ eine gewisse Homogenität des Plasmas voraus. In der Anwendung muss bedacht werden, dass diese Annahmen im Experiment eventuell nicht gegeben sind.

2.2.3. Hydrodynamische Simulation der Plasmadynamik

Mit den Näherungen des lokalen thermodynamischen Gleichgewichtes und den makroskopischen Verteilungsfunktionen ist es nicht nur möglich, die Plasmaparameter experimentell zu bestimmen. Gleichmaßen kann die Dynamik des Plasmas in einem hydrodynamischen Modell beschrieben und simuliert werden. In dieser Arbeit wird der *Helios*-Code [145] eingesetzt, der das Plasma als eindimensionales Fluid aus Elektronen und Ionen betrachtet, z.B. [146--148]. Die zeitliche Entwicklung des Plasmas wird anhand von Bewegungs- und Ratengleichungen berechnet. Die Energien der Elektronen und Ionen werden in einem Zwei-Temperatur-Modell unabhängig voneinander betrachtet. Über Strahlungs- und Stoßprozesse ist ein Austausch von Energie möglich. Der Energieübertrag aus dem Laserfeld in das Plasma ist über inverse Bremsstrahlung realisiert.

Die Simulation liefert Aussagen über Dichte, Temperatur und Ladungszustände im Plasma während und nach der Wechselwirkung mit dem Laserpuls. Damit ist es einerseits möglich, die Dynamik des Plasmas schrittweise nachzuvollziehen. Andererseits ist der direkte Vergleich mit experimentellen Daten möglich, die aus Fluoreszenzspektren extrahiert werden können. Die Reduzierung auf eine Dimension bringt allerdings Grenzen des Modells mit sich. Räumliche Effekte wie Plasmawellen auf der Tropfenoberfläche [110--112] oder Feldüberhöhung an der Tropfenrückseite durch Mie-Streuung [149, 150] werden nicht erfasst. Gerade Letzteres ist für ein Verhältnis Tropfengröße $>$ Laserwellenlänge relevant [151--153]. In gleichem Maße werden Energietransporte sowie Dichte- und Temperaturgradienten innerhalb des Tropfens nur entlang einer Richtung betrachtet, so dass die Freiheitsgrade eingeschränkt sind. Als Konsequenz muss davon ausgegangen werden, dass die Dynamik des Plasmas in der Simulation unterschätzt wird. Dennoch zeigt sich im Vergleich mit einer komplexeren, mehrdimensionalen Simulationen in gewissem Rahmen eine gute Übereinstimmung [154].

Die Rechnungen wurden von Mohammed Shihab in der Arbeitsgruppe Redmer an der Universität Rostock durchgeführt. Dabei wurde die Simulation an die experimentellen Vorgaben dieser Arbeit angepasst. Das bedeutet, dass explizit $10\ \mu\text{m}$ große Argon-Tropfen mit Festkörperdichte und Laserpulse mit Intensitäten von $10^{15}\ \text{W}/\text{cm}^2$ bei einer Wellenlänge von $800\ \text{nm}$ betrachtet wurden. Abbildung 2.6 zeigt als ein erstes Ergebnis der Simulation die Entwicklung der Elektronentemperatur und der Ionenverteilung während der Expansionsphase nach Anregung mit einem $100\ \text{fs}$ langen Laserpuls. In der Wechselwirkung wird sprunghaft ein heißes Plasma mit $T_e \approx 250\ \text{eV}$ erzeugt. Die hohe Temperatur entspricht einem Vielfachen des ponderomotiven Potentials der Laseranregung. Hier zeigt

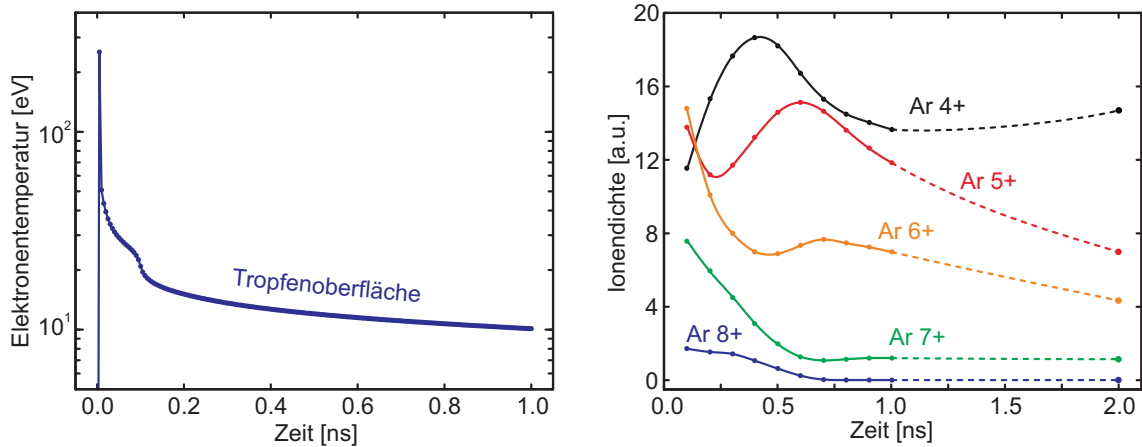


Abbildung 2.6.: Elektronentemperatur der Tropfenoberfläche (links) und Ionendichten in der Plasmaschicht (rechts) während der Expansion. Die Temperatur zeigt in der Wechselwirkung mit dem Laserpuls einen sprunghaften Anstieg. Die Abkühlung erstreckt sich stufenweise bis in den Nanosekundenbereich. In der Abkühlphase bilden sich hohe Ladungszustände. Die gestrichelten Linien in der rechten Abbildung überbrücken die Datenpunkte bei $t = 1$ ns und $t = 2$ ns.

sich die Auswirkung der inversen Bremsstrahlung als zusätzlicher Heizprozess. Nach dem Abklingen des Laserfeldes beginnt das Plasma zu expandieren und kühlt schnell ab. Innerhalb von 100 ps sinkt die Temperatur auf $T_e \approx 20$ eV. Der Wert bleibt bis in den Nanosekundenbereich annähernd erhalten. In dieser Phase der Abkühlung entstehen durch Elektronenstoß hochgeladene Ionen. In der Simulation werden Ladungszustände bis $q = 8$ beobachtet. Mit den Ionisationspotentialen von $I_p(\text{Ar } 7+) \approx 150$ eV und $I_p(\text{Ar } 8+) \approx 400$ eV ist das realistisch. Es zeigt sich, dass die hohen Ladungszustände vorrangig in der Anfangsphase mit hoher Elektronentemperatur entstehen. Mit zunehmender Expansionszeit und Abkühlung tritt Rekombination auf und der Ionisationsgrad sinkt. In Bezug auf Abbildung 2.6 rechts kann angenommen werden, dass die abnehmenden Häufigkeiten von Ar 7+ und Ar 8+ durch Rekombination die Anteile von Ar 4+ und Ar 5+ erhöhen. Die niedrigen Ladungszustände entwickeln sich um mehrere hundert Pikosekunden verzögert zur Laseranregung und bei geringen Temperaturen. Es wird eine stark inhomogene Verteilung beobachtet, die auf eine komplexe Dynamik in der Plasmaschicht schließen lässt. Die Simulation zeigt, dass je nach ionischer Zusammensetzung eine charakteristische Emission für die unterschiedlichen Phasen der Expansion zu erwarten ist.

3. Experimenteller Aufbau

Das Kapitel beschreibt die experimentelle Umsetzung des Versuches. Abbildung 3.1 zeigt den schematischen Aufbau: Intensive, ultrakurze Laserpulse werden auf einen Strahl aus kryogen gekühlten, flüssigen, μm großen Argon-Tropfen fokussiert. In der Wechselwirkung entsteht hochenergetische Fluoreszenzstrahlung, die über ein EUV-Spektrometer detektiert wird. Das Spektrometer ist senkrecht zur Laser-Tropfen-Ebene ausgerichtet. Es wurde im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und aufgebaut. Zusätzlich wird die Transmission der Laserpulse durch die Tropfen gemessen. Die NIR-Transmission entspricht im Gegensatz zur zeitlich verzögerten EUV-Emission einer instantanen Response und bietet einen zusätzlichen Reaktionskanal. Das Experiment wird unter Vakuum-Bedingungen durchgeführt.

Der erste Teil des Kapitels konzentriert sich auf die Aspekte der Lasertechnik. Im zweiten Teil wird auf die Erzeugung des Tropfenstrahls eingegangen, und in Teil drei die Entwicklung und Inbetriebnahme des EUV-Spektrometers beschrieben. Neben dem Spektrometer wurde in dieser Arbeit die Vakuum-Kammer konstruiert, an der das Experiment durchgeführt wurde, s. Abbildung 3.2. Sie wird im Anhang A.4 vorgestellt.

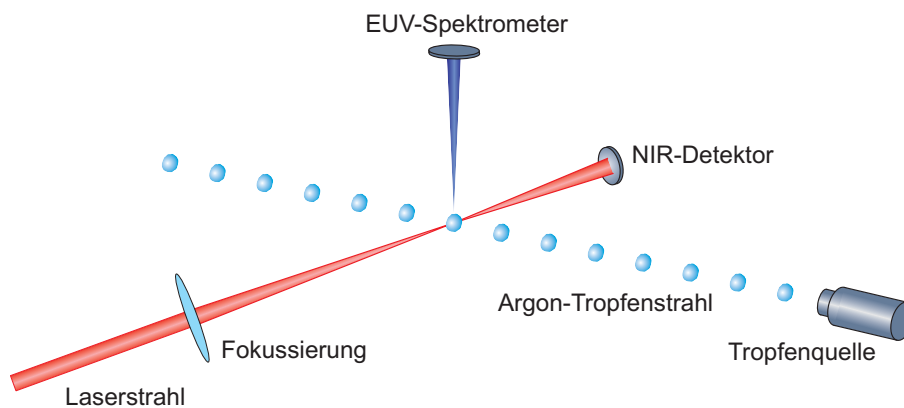


Abbildung 3.1.: Schematische Darstellung des Experimentes: Intensive, ultrakurze Laserpulse werden auf einen Strahl aus flüssigen, μm großen Argon-Tropfen fokussiert. Die EUV-Emission aus den Tropfen und die NIR-Transmission der Laserpulse durch den Tropfen werden detektiert. Das EUV-Spektrometer ist senkrecht zur Laser-Tropfen-Ebene ausgerichtet.

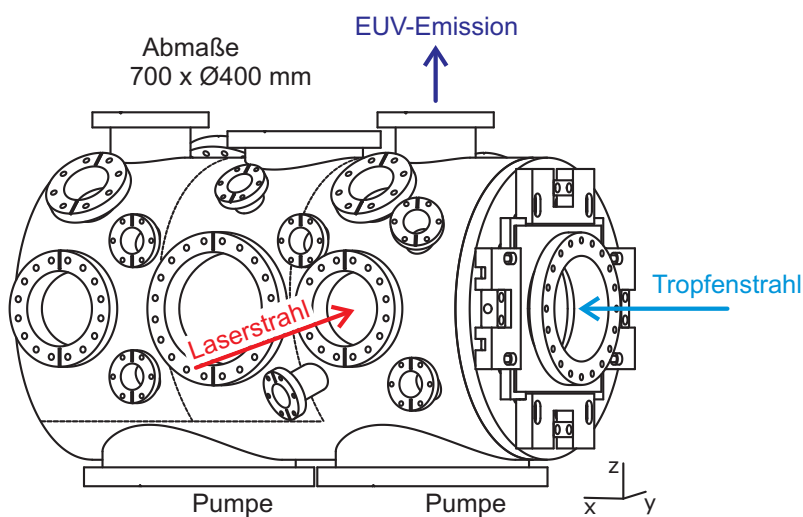


Abbildung 3.2.: Schematische Darstellung der Vakuüm-Kammer, an der das Experiment durchgeführt wurde. Sie wird im Anhang A.4 genauer vorgestellt. Die Ausrichtung von Laserstrahl, Tropfenstrahl und EUV-Spektrometer sind analog zu Abbildung 3.1 skizziert.

3.1. Intensive, ultrakurze Laserpulse

Die Experimente zur Untersuchung der EUV-Fluoreszenz aus Mikrometer großen Tropfen erfordern hohe Laserintensitäten, die durch den Einsatz ultrakurzer Laserpulse erreicht werden. Bei einer Pulsenergie von $E_p = 1$ mJ und einer zeitlichen Kompression auf eine Pulslänge von $\tau = 100$ fs beträgt die Spitzenleistung pro Puls bereits mehrere Gigawatt. Mit der zusätzlichen Fokussierung auf eine Spotgröße von wenigen $10 \mu\text{m}$ ergeben sich Intensitäten bis zu 10^{15} W/cm². Die Geometrie der Fokussierung hängt dabei im Wesentlichen von der Brennweite und dem Strahldurchmesser ab.

Im Folgenden werden die Aspekte der Strahlfokussierung zum Erreichen hoher Laserintensitäten beschrieben. Daran anknüpfend werden die Phase der Laserpulse und weiterführend die Möglichkeiten der Pulsformung diskutiert. Abschließend wird das in dieser Arbeit verwendete Femtosekunden-Lasersystem vorgestellt.

3.1.1. Fokussierung Gauß'scher Strahlen

Das elektrische Feld eines Laserpulses entlang der Propagationsachse z ist durch

$$E(z, t) = E_0 \exp[-i(\omega t - kz)] \quad (3.1)$$

gegeben. Das räumliche Strahlprofil des Laserpulses hat typisch die Form einer TEM₀₀-Mode und kann als gaußförmig angesehen werden. E_0 ist die Amplitude, ω die Frequenz und k die Wellenzahl. Der Term kz beschreibt die ebenen Wellenfronten des Laserstrahls als Näherung unendlich ausgedehnter Kugelwellen. Die Ausbreitungsrichtung des Laserfeldes ist senkrecht zu den Wellenfronten. Im Fall einer Fokussierung werden die Wellenfronten gekrümmt und können durch Kugelwellen mit endlichem Radius approximiert werden :

$$E(z, t) = E_0 \frac{\exp[-i(\omega t - kz)]}{kz} \quad (3.2)$$

Der Übergang zwischen ebenen und Kugelwellen ermöglicht es, die Fokusgeometrie zu definieren [155, 156]. Abbildung 3.3 zeigt schematisch den Strahlverlauf. Der Strahlradius

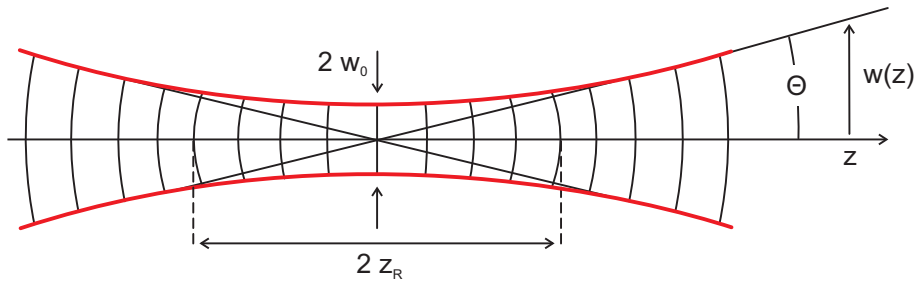


Abbildung 3.3.: Strahlgeometrie im Fokus mit Strahltaile w_0 und Rayleigh-Länge z_R . Der Fokus kann über die Krümmung R der Wellenfronten charakterisiert werden: Im Nahfeld um den Fokus ($|z| \ll z_R$) propagieren ebene Wellen: $R \rightarrow \infty$. Für $|z| = z_R$ entspricht die Form einer Kugelwelle mit $R \rightarrow \min$. Im Fernfeld ($|z| \gg z_R$) ist wieder eine Näherung als ebene Welle möglich: $R \approx z$.

$w(z)$ folgt der Form

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left(\frac{\lambda z}{\pi n w_0^2} \right)^2}. \quad (3.3)$$

Dabei ist λ die Wellenlänge des Laserlichtes und n der Brechungsindex. Die Strahltaile

$$w_0 = \sqrt{\frac{\lambda z_R}{\pi n}} \quad (3.4)$$

entspricht dem minimalen Radius im Fokuspunkt. Die zweite wichtige geometrische Größe ist die Rayleigh-Länge,

$$z_R = \frac{\pi n w_0^2}{\lambda} \quad (3.5)$$

die den Bereich der annähernd beugungsbegrenzten Propagation beschreibt. Im Abstand $|z| = z_R$ hat sich der Strahlradius gerade um den Faktor $\sqrt{2}$ vergrößert:

$$w(z_R) = \sqrt{2} w_0 \quad (3.6)$$

An dieser Stelle ist der Radius der Kugelwellen minimal. Im Fokus $|z| \ll z_R$ und im Fernfeld $|z| \gg z_R$ liegen ebene Wellen vor. Über die Divergenz des Laserstrahls Θ außerhalb der Rayleigh-Zone erfolgt die Verbindung zum Strahldurchmesser $2w(f)$ und zur Brennweite f :

$$\tan \Theta = \frac{\sqrt{2} w_0}{z_R} = \frac{w(f)}{f} \quad (3.7)$$

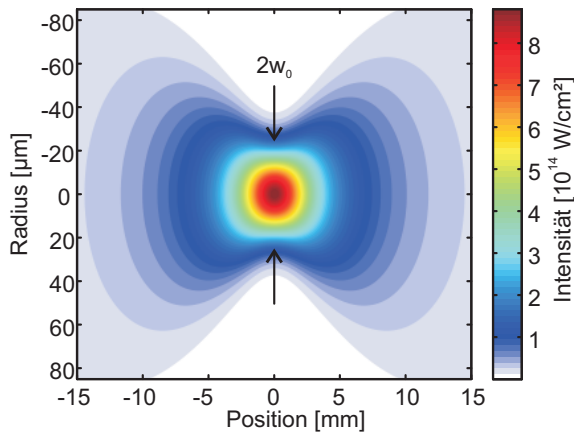


Abbildung 3.4: Intensitätsverteilung $I(z, r)$ im Fokus für die Lasereinstellungen $E_p = 1.46$ mJ und $\tau = 100$ fs. Aus der Strahlgeometrie ergibt sich ein Fokusbereich von $2w_0 = 50$ μm und eine Rayleigh-Länge von $2z_R = 5$ mm. Die Spitzenintensität bei $z, r = 0$ beträgt $I_0 = 8.8 \cdot 10^{14}$ W/cm².

Für $2w(f) = 10$ mm und $f = 500$ mm ist beispielsweise der Fokusbereich $2w_0 = 50$ μm und die Rayleigh-Länge $2z_R = 5$ mm. Das entspricht der in dieser Arbeit genutzten Strahlgeometrie. Die Intensitätsverteilung $I(z, r)$ im Bereich des Fokus ist über

$$I(z, r) = I_0 \left(\frac{w_0^2}{w^2(z)} \right) \exp \left[\frac{-2r^2}{w^2(z)} \right] \quad (3.8)$$

gegeben, wobei die Spitzenintensität I_0 neben der Fokusgröße von den Lasereinstellungen Pulsenergie E_p und Pulslänge τ abhängt:

$$I_0 = \frac{E_p/\tau}{\pi w_0^2} \quad (3.9)$$

Abbildung 3.4 zeigt mit $E_p = 1.46$ mJ und $\tau = 100$ fs eine typische Intensitätsverteilung dieser Arbeit.

3.1.2. Gekürzte Pulse

Femtosekunden-Laserpulse sind durch ein breites Frequenzspektrum gekennzeichnet. Zeit- und Spektralbereich des elektrischen Feldes sind über die Fouriertransformation:

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) \exp[-i\omega t] dt \quad (3.10)$$

bzw. die Rücktransformation

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) \exp[i\omega t] d\omega \quad (3.11)$$

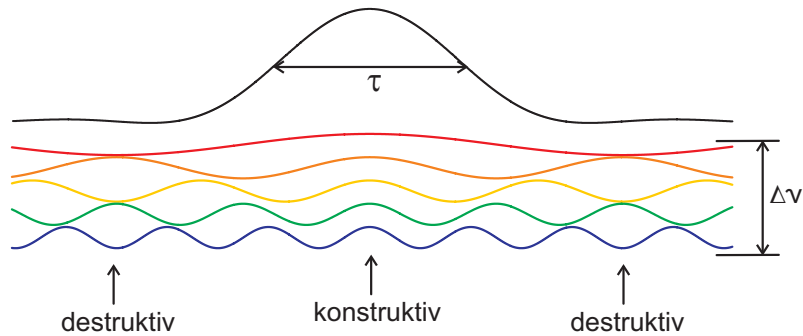


Abbildung 3.5.: Erzeugung ultrakurzer Laserpulse durch konstruktive und destruktive Interferenz spektraler Moden. Je größer die spektrale Breite $\Delta\nu$, desto kleiner wird die Pulslänge τ .

miteinander verknüpft. Die Überlagerung der Spektralkomponenten ermöglicht über konstruktive und destruktive Interferenz die Formung von Pulsen im Femtosekundenbereich. Je breiter das Frequenzspektrum, umso mehr Moden können miteinander interferieren, und umso kürzer kann der Puls werden. Der Zusammenhang ist graphisch in Abbildung 3.5 dargestellt und wird mathematisch durch das Pulslängen-Bandbreiten-Produkt (PBP) beschrieben :

$$\tau \cdot \Delta\nu \geq K \quad (3.12)$$

τ ist die Pulslänge und $\Delta\nu = \Delta\omega/2\pi$ die spektrale Breite, jeweils in FWHM-Notation⁷. Die Konstante K ist abhängig von der Pulsform. Für gaußförmige Pulse ist $K = 0.441$ [157, 158]. Das Pulslängen-Bandbreiten-Produkt gibt die minimal mögliche Pulslänge für eine gegebene spektrale Breite an. Das Minimum wird erreicht, wenn die zeitliche Phase und die Frequenz im Verlauf des Pulses konstant sind. Das entspricht der idealen Überlagerung der spektralen Moden. Ein solcher Puls wird als fourier-limitiert oder bandbreitenbegrenzt bezeichnet. Ändern sich Phase und Frequenz mit der Zeit, sind die Moden im Pulsverlauf gegeneinander verschoben. Es ergeben sich sogenannte geschirpte Pulse⁸ und die Pulslänge nimmt zu: $\tau \cdot \Delta\nu > K$. Die Pulsintensität $I \sim 1/\tau$ ist in dem Fall reduziert.

Der Einfluss der Phase auf den Frequenzverlauf des Pulses wird in einer Taylorentwicklung deutlich. Das elektrische Feld eines Laserpulses kann vereinfacht in der Form

$$E(t) = A(t) \exp[-i(\omega_0 t - \varphi(t))] \quad (3.13)$$

⁷ Full Width at Half Maximum

⁸ in Anlehnung an die Frequenzänderung bei Vogelgezwitscher

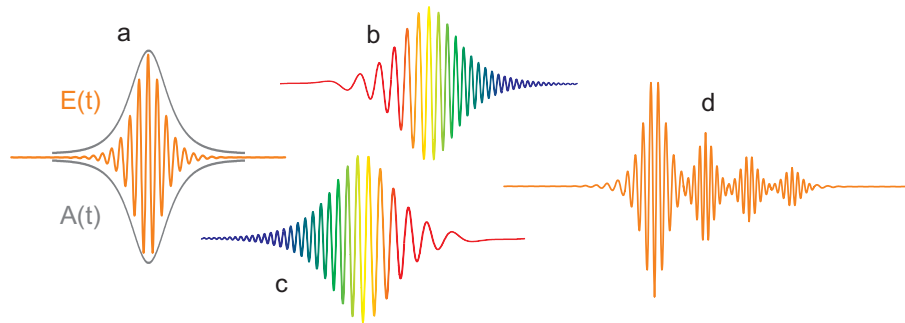


Abbildung 3.6.: Pulsformen in Abhängigkeit von der zeitlichen Phase $\varphi(t)$. (a) Bandbreitenbegrenzter Puls mit minimaler Pulslänge, Phasenterme ab zweiter Ordnung sind gleich null. (b,c) Positiv bzw. negativ linear gechirpte Pulse durch eine quadratische Phase. Je nach Stärke des Chirps ändert sich die Pulslänge. (d) Amplitudenmodulation durch eine kubischen Phase.

geschrieben werden. Die Einhüllende ist für gaußförmige Pulse $A(t) = A_0 \exp[-t^2/\tau^2]$. ω_0 ist die Mittenfrequenz des Spektrums, $\omega_0 t - \varphi(t)$ die instantane Phase und $\varphi(t)$ die relative Phase des Pulses. Der Frequenzverlauf $\omega(t)$ ergibt sich aus der zeitlichen Ableitung der instantanen Phase:

$$\omega(t) = \omega_0 - \frac{\partial \varphi(t)}{\partial t} \quad (3.14)$$

Mit der Taylorentwicklung von $\varphi(t)$ um t_0 zeigen sich die Auswirkungen einer Zeitabhängigkeit auf den Frequenzverlauf:

$$\begin{aligned} \omega(t) = \omega_0 - \frac{\partial}{\partial t} \left(\varphi(t_0) + \varphi'(t_0) \cdot (t - t_0) \right. \\ \left. + \frac{1}{2} \varphi''(t_0) \cdot (t - t_0)^2 + \frac{1}{6} \varphi'''(t_0) \cdot (t - t_0)^3 + \dots \right) \quad (3.15) \end{aligned}$$

Der erste Term $\varphi(t_0)$ ist eine Konstante, die in der Zeitableitung wegfällt. Der zweite Term $\varphi'(t_0)$ entspricht der Gruppenverzögerungszeit des gesamten Pulses. Diese beiden Terme haben keinen Einfluss auf die Pulslänge, $\omega(t)$ bleibt zeitlich konstant. Erst Terme höherer Ordnung ändern den Frequenzverlauf und erzeugen gechirpte Pulse. Die quadratische Zeitabhängigkeit der Phase $\varphi''(t_0)$ führt in der Zeitableitung zu einer linearen Frequenzänderung (linearer Chirp), die kubische Zeitabhängigkeit $\varphi'''(t_0)$ zu einer quadratischen Frequenzänderung (quadratischer Chirp), usw. Abbildung 3.6 veranschaulicht die Auswirkung des Frequenzverlaufes auf die Pulsform.

3.1.3. Pulsformung

Die Laserpulse können im Zeit- und im Frequenzraum moduliert werden [24, 159--164]. Dabei besteht jeweils Zugriff auf die Amplituden- und die Phasenfunktionen des Pulses. Die Modulation der Amplitude erfolgt über eine Abschwächung einzelner Moden. Diese Methode wird in dieser Arbeit nicht verwendet. Es wird sich zeigen, dass der Amplitudenverlauf des Pulses gleichermaßen über die Modulation der Phase geformt werden kann.

Zeitliche Phase

Der Einfluss der zeitlichen Phase $\varphi(t)$ wird im vorherigen Abschnitt diskutiert. Anhand einer Taylorentwicklung (3.15) werden Phasenterme identifiziert und deren Wirkung auf den Pulsverlauf dargestellt. Aus einer quadratischen Phasenfunktion ergibt sich je nach Vorzeichen ein ansteigender oder abfallender Frequenzverlauf (positiver bzw. negativer linearer Chirp). Abhängig vom Faktor φ'' wird der Puls unterschiedlich stark zeitlich gestreckt. Dabei besteht die Möglichkeit, Dispersionseffekte zu kompensieren. Im Experiment kann trotz der Propagation durch Luft oder Glas am Ort der Wechselwirkung ein bandbreitenbegrenzter Puls mit einer Phase $\varphi(t) = 0$ eingestellt werden.

Spektrale Phase

Analog zur zeitlichen Phase kann auch die Phase $\phi(\omega)$ des Spektrums

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{A}(\omega) \exp[-i\phi(\omega)] \quad (3.16)$$

um die Mittenfrequenz ω_0 in eine Taylorreihe entwickelt werden :

$$\phi(\omega) = a_0 + a_1 \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} a_2 \cdot (\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (3.17)$$

Die beiden Phasen $\varphi(t)$ und $\phi(\omega)$ sind über die Fouriertransformation miteinander verknüpft und beeinflussen sich gegenseitig. Für den trivialen Fall eines bandbreitenbegrenzten Pulses mit $\varphi(t) = 0$ ist auch $\phi(\omega) = 0$. In dieser Arbeit ist speziell der lineare Term der spektralen Phase $a_1 \cdot (\omega - \omega_0)$ von Interesse. Nach dem ersten Verschiebungssatz der Fouriertransformation [165--167] führt eine lineare Modulation des Spektrums zu einer Verzögerung des Pulses im Zeitraum :

$$\tilde{E}(\omega) \cdot \exp[ia_1(\omega - \omega_0)] \rightarrow E(t + a_1) \quad (3.18)$$

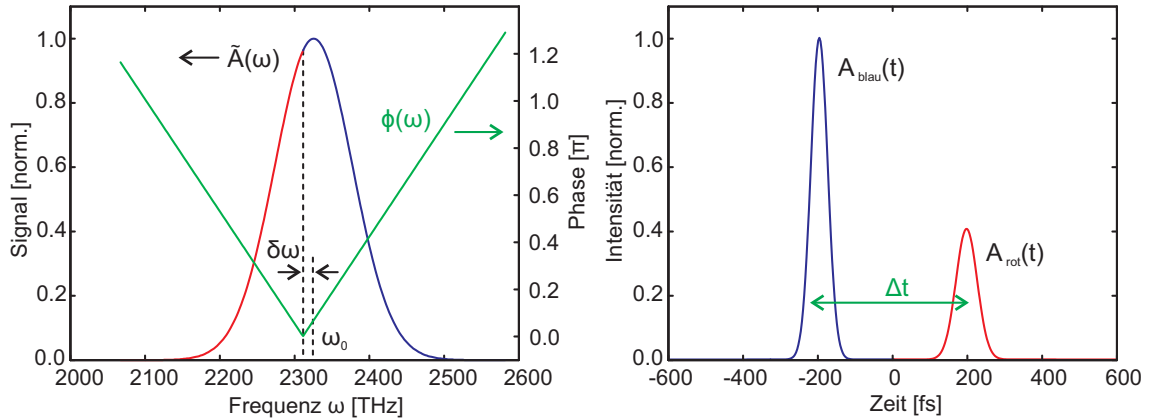


Abbildung 3.7.: Erzeugung von Doppelpulsen durch *colored double pulses*-Formung der spektralen Phase $\phi(\omega)$. Eine linear geformte Phasenfunktion bewirkt einen zeitlichen Versatz um den Wert des Anstieges. Ein negativer Anstieg verzögert die Spektralkomponenten. Der Frequenzwert $\delta\omega$ steuert das Verhältnis der Pulsenergien. Es ist zu beachten, dass der Verlauf in der linken Grafik relativ zu $t = 0$ dargestellt ist. $A_{\text{blau}}(t)$ befindet sich zeitlich vor $A_{\text{rot}}(t)$.

Wird anstelle eines linearen Verlaufes eine Betragsfunktion zur Pulsformung gewählt,

$$\phi(\omega) = \begin{cases} -a_1(\omega - \omega_0) & \text{für } \omega \leq \omega_0 \\ a_1(\omega - \omega_0) & \text{für } \omega > \omega_0 \end{cases} \quad (3.19)$$

verschieben sich die langwelligen Spektralkomponenten $\omega \leq \omega_0$ um den Anstieg $-a_1$, und die kurzwelligen Komponenten $\omega > \omega_0$ um $+a_1$. Es entsteht eine Doppelpulsstruktur mit einem zeitlichen Abstand $\Delta t_{\text{cdp}} = 2a_1$. Die Technik wird als *colored double pulses* (cdp) bezeichnet [167–169], da sich die Teilpulse aus verschiedenen Farbbereichen des Laserspektrums zusammensetzen. Sie sind bezüglich ω_0 rot- bzw. blau-verschoben.

In dieser Arbeit wird die Phasenfunktion in der Form

$$\phi_{\text{cdp}}(\omega) = -\frac{\Delta t}{2} \cdot |\omega - \omega_{\text{brk}}| = -\Delta t_{\text{cdp}} \cdot |\omega - \omega_{\text{brk}}| \quad (3.20)$$

eingesetzt. Jeder Teilpuls wird um $\Delta t/2$ verschoben, so dass in der Summe die Separationszeit genau Δt_{cdp} ist. Der Frequenzwert⁹

$$\omega_{\text{brk}} = \omega_0 + \delta\omega \quad (3.21)$$

⁹ Der Index brk steht für 'break', etwa 'Umbruchfrequenz'.

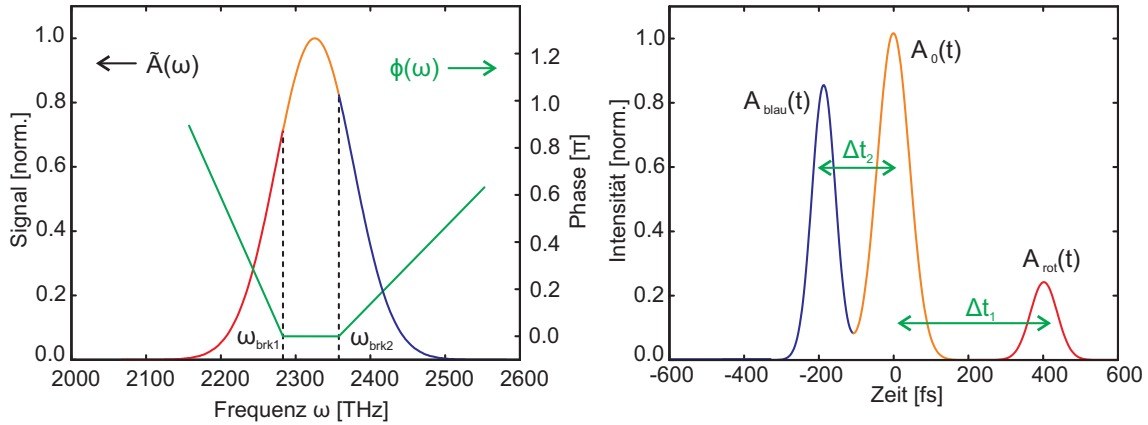


Abbildung 3.8.: Erweiterung der Phasenmodulation auf *colored triple pulses* zur Erzeugung von Dreipulsstrukturen. In der dreistufigen Phasenfunktion wird das Zentrum des Spektrums mit $\phi = 0$ nicht beeinflusst. Die Flanken werden entsprechend der Anstiege zeitlich verschoben. Die Aufspaltung des Spektrums ist über ω_{brk1} und ω_{brk2} einstellbar.

ermöglicht die Einstellung des Energieverhältnisses $E_{p,\text{blau}} : E_{p,\text{rot}}$ der Teilpulse. Für $\delta\omega < 0$ wird das Spektrum bei kleineren Frequenzen geteilt. Damit setzt sich der blaue Teilpuls aus einem größeren Spektralbereich zusammen und hat eine höhere Pulsenergie als der rote: $E_{p,\text{blau}} : E_{p,\text{rot}} > 1$. Entsprechend ist $E_{p,\text{blau}} : E_{p,\text{rot}} < 1$ für positive $\delta\omega$, und $E_{p,\text{blau}} : E_{p,\text{rot}} = 1$ für $\omega_{\text{brk}} = \omega_0$. Das Schema ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Eine negative Separationszeit $\Delta t < 0$ bewirkt eine Umkehr der Pulsreihenfolge. Das Energieverhältnis kann über ω_{brk} kontinuierlich durchgestimmt werden. Die minimale Schrittweite ist im Experiment durch die spektrale Auflösung des Pulsformers gegeben. Allerdings muss beachtet werden, dass sich durch die unterschiedliche Modenanzahl respektive Bandbreite die Pulslänge ändert. Das Intensitätsverhältnis $I_{\text{blau}} : I_{\text{rot}}$ skaliert hier nicht linear mit ω_{brk} .

Als Erweiterung zu den Doppelpulsen ist eine dreistufige Phasenfunktion denkbar :

$$\phi_{\text{ctp}}(\omega) = \begin{cases} -\Delta t_1(\omega - \omega_{\text{brk1}}) & \text{für } \omega < \omega_{\text{brk1}} \\ 0 & \text{für } \omega_{\text{brk1}} \leq \omega \leq \omega_{\text{brk2}} \\ \Delta t_2(\omega - \omega_{\text{brk2}}) & \text{für } \omega > \omega_{\text{brk2}} \end{cases} \quad (3.22)$$

Das Spektrum wird an den zwei Stellen ω_{brk1} und ω_{brk2} aufgespalten, so dass zeitlich eine Dreipulsstruktur (*colored triple pulses*, ctp) entsteht. Die Pulse sind wieder farblich verschieden. Entsprechend der Anstiege der Phasenfunktion wird der rote Teilpuls um Δt_1 verschoben, der blaue um Δt_2 . Der dritte Puls verbleibt aufgrund der

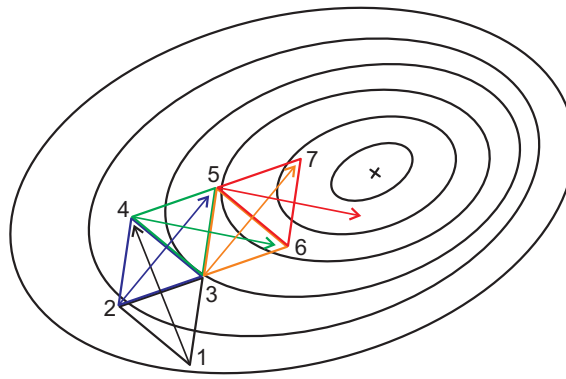


Abbildung 3.9.: Funktionsprinzip des Nelder-Mead Simplex Algorithmus in zwei Dimensionen. Über den Vergleich von jeweils drei Funktionswerten konvergiert der Algorithmus zu einem Optimum (x). Messpunkt 1 wird als Startwert übergeben. Die Messpunkte 2 und 3 werden vom Algorithmus durch Variation des Startwertes bestimmt, so dass ein Dreieck 1-2-3 gebildet wird. Der Punkt mit dem schlechtesten Funktionswert (hier 1) wird über die Verbindungslinie der beiden anderen Punkte (hier $\overline{23}$) gespiegelt und erzeugt den nächsten Messpunkt 4. Das Schema wiederholt sich für das neue Dreieck 2-3-4, in dem 2 über $\overline{34}$ gespiegelt wird und 5 erzeugt, usw. Wird in einem Iterationsschritt keine Verbesserung des Funktionswertes erreicht (hier ab Messpunkt 9), erfolgt eine Anpassung der Schrittweite. Die Dreiecke werden dadurch gestaucht und gestreckt. Das Schema ermöglicht eine schnelle, robuste Konvergenz.

konstanten Phase bei $t = 0$. Über die Frequenzwerte ω_{brk1} und ω_{brk2} kann analog zur Doppelpulserzeugung das Energieverhältnis der Teilpulse variiert werden, s. Abbildung 3.8.

Optimierung der Phasenfunktion

Es zeigt sich, dass die Phasenmodulation eine vielseitige Variation der Pulsform ermöglicht. Auf der einen Seite kann über einen zeitlichen, linearen Chirp die Pulslänge eingestellt werden. Auf der anderen Seite ermöglicht eine spektrale Modulation die Erzeugung von Pulszügen mit frei einstellbaren Separationszeiten und Amplituden.

Die beiden vorgestellten Varianten der spektralen Phasenmodulation erfordern allerdings unterschiedliche Herangehensweisen an das Experiment. Die Verwendung von Doppelpulsen bietet mit Δt_{cdp} und ω_{brk} zwei freie Parameter und kann mit gewissem Aufwand systematisch durchgeführt werden. Die Dreipulsstruktur dagegen basiert auf den vier freien Parametern Δt_1 , Δt_2 , ω_{brk1} und ω_{brk2} . Der daraus resultierende Phasenraum ist umfangreich und kann mit vertretbarem Aufwand nicht vollständig vermessen werden. An dieser Stelle wird ein Optimierungsalgorithmus eingesetzt, um eine effiziente Parameterkombination zu finden [20--23, 170]. Dazu ist eine Feedback-Schleife erforderlich, die aus

den Messdaten in situ die Effizienz einer Pulsform bestimmt und an den Algorithmus zurückliefert [171--173]. Dieser sogenannte Funktionswert ist z.B. die Signalstärke einer Spektrallinie in Abhängigkeit von der eingestellten Parameterkombination. In der vorliegenden Arbeit wird der Downhill-Simplex Algorithmus nach Nelder und Mead [174] als nichtlineares, ableitungsfreies und unbeschränktes Optimierungsverfahren genutzt. Der Algorithmus stellt keine Anforderungen an ein homogenes Optimierungsproblem. Pro Iterationsschritt werden lediglich drei Funktionswerte im Phasenraum verwendet. Über den direkten Vergleich der Funktionswerte miteinander wird die nächste Kombination in Richtung optimaler Parameter bestimmt. Der entscheidende Vorteil ist, dass der Algorithmus weitgehend unempfindlich gegenüber experimentellen Schwankungen ist. Abbildung 3.9 veranschaulicht das Prinzip schematisch. Die Implementierung des Algorithmus in das Experiment erfolgt über die Matlab-Funktion *fminsearch* [175].

3.1.4. Femtosekunden-Lasersystem

Im Experiment wird ein Femtosekunden-Oszillator (*Synergy*, Femtolasers/Spectra-Physics) in Verbindung mit einem Femtosekunden-Verstärker (*Odin-II-HE*, Quantronix/Continuum) eingesetzt. Beide Systeme sind kommerziell erhältlich und basieren auf Ti:Sa-Kristallen¹⁰ als optisches Medium. Die Verstärkung der Laserpulse erfolgt nach dem Schema der *Chirped-Pulse-Amplification* (CPA) [176--178]. In der Konfiguration stehen Laserpulse mit einer Zentralwellenlänge von 810 nm bei einer Repetitionsrate von 1 kHz zur Verfügung. Mit der minimal möglichen Pulslänge von 100 fs und der maximal möglichen Pulsenergie von 1.46 mJ werden Intensitäten bis $8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ erreicht, s. Abbildung 3.4. Die Pulsenergie ist über den Verstärkungsprozess kontinuierlich einstellbar.

In das Lasersystem - zwischen Oszillator und Verstärker - ist ein akusto-optischer Pulsformer (*Dazzler*, Fastlite) [179--184] integriert¹¹. Das Funktionsprinzip der akusto-optischen Modulation basiert auf dem Debye-Sears-Effekt [186, 187]: Über eine Schallwelle wird die Gitterstruktur eines Festkörpers derart verformt, dass sich Änderungen im Brechungsindex n ausbilden [188, 189]. Im speziellen Fall des hier verwendeten Pulsformers propagiert ein Laserpuls entlang der ordentlichen Achse eines doppelbrechenden Kristalls. Mit einer kollinear ausgebildeten Schallwelle wird entlang der Propagationsachse wellenlängenselektiv eine Phasen Anpassung $n_o = n_{ao}$ eingestellt. Damit ergeben sich für die einzelnen Spektralkomponenten unterschiedliche Positionen entlang der ordentlichen (schnellen)

¹⁰ Titan-Saphier, ein mit Titan dotierter Al_2O_3 -Kristall.

¹¹ Die eingestellte Phasenmodulation bleibt im Verstärkungsprozess erhalten [161, 185].

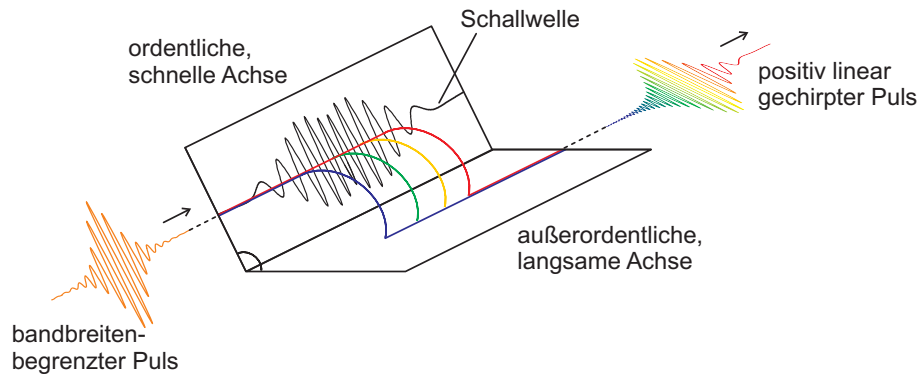


Abbildung 3.10.: Funktionsweise des akusto-optischen Pulsformers [181]: Der Laserpuls propagiert kollinear zur Schallwelle in einem doppelbrechenden Kristall. Die Schallwelle moduliert die Gitterstruktur des Kristalls und bewirkt lokal und wellenlängenselektiv eine Phasenanpassung $n_o = n_{ao}$ und damit den Wechsel einzelner Spektralkomponenten von der ordentlichen (schnellen) auf die außerordentliche (langsame) Achse. Frühzeitig konvertierte Anteile (hier blau) propagieren überwiegend auf der langsamen Achse und werden verzögert ausgekoppelt.

Achse, an denen sie ebenso auf der außerordentlichen (langsamen) Achse propagieren. Abbildung 3.10 zeigt ein Beispiel, in dem die blauen Spektralanteile frühzeitig auf die außerordentliche Achse wechseln. Die roten Spektralanteile propagieren weiter entlang der ordentlichen Achse. Die blauen Anteile werden damit gegenüber den roten Anteilen verzögert. Für den ausgekoppelten Puls ergibt sich ein zeitlich ansteigender Frequenzverlauf. Der Puls ist positiv gechirpt.

Die Phasenmodulation wird sowohl zur Einstellung der Pulslänge als auch zur Erzeugung von Multipulsstrukturen verwendet, s. Abschnitt 3.1.2 und 3.1.3. Der quadratische Term der zeitlichen Phase des elektrischen Feldes $\varphi''(t)$ ändert den Frequenzverlauf des Laserpulses. Es resultiert ein linearer positiv oder negativ gechirpter Puls mit einstellbarer Pulslänge. $\varphi''(t)$ kann im Bereich von -6000 fs^2 bis 10000 fs^2 variiert werden. Das entspricht Pulslängen zwischen 100 fs und 800 fs . Doppel- und Dreifachpulse werden über die stückweise lineare Modulation der spektralen Phase $\phi(\omega)$ erzeugt. Mit dem Pulsformer sind im Experiment Separationszeiten bis zu 1 ps realisierbar.

Ein wesentlicher Aspekt bei der Verwendung geformter Laserpulse ist eine präzise Charakterisierung der Pulsstrukturen in Bezug auf Amplitude und Phase des elektrischen Feldes. Beispielsweise zur Bestimmung der Abhängigkeit zwischen Chirp $\varphi''(t)$ und Pulslänge τ , s.o. Im Rahmen dieser Arbeit wurde dazu ein THG-Frog-System aufgebaut und eingesetzt. Darüber hinaus ist die Überprüfung des Pulsformers auf ein lineares Schaltverhalten elementar. Das bedeutet, dass die Konversionseffizienz bzw. die Energie der geformten

Pulse unabhängig von der eingestellten Phasenfunktion konstant bleiben muss. Diese beiden Punkte werden im Anhang A.1 und A.2 behandelt.

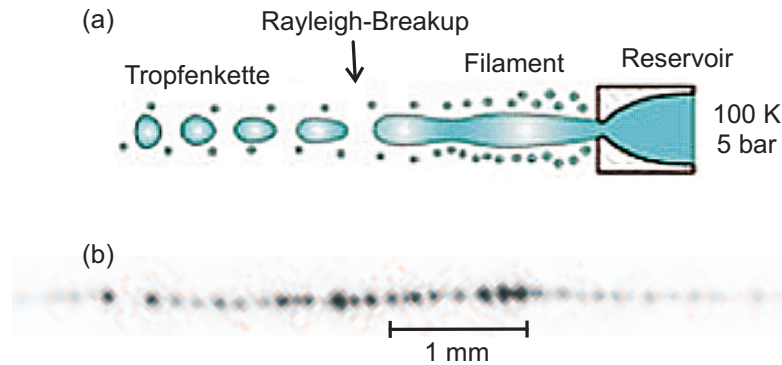


Abbildung 3.11.: (a) Prinzip der Tropfengeneration [190]. Kryogen verflüssigtes Argon wird in das Vakuum expandiert. Es bildet sich ein Filament, das nach wenigen Millimetern durch Störungen an der Oberfläche in einzelne Tropfen zerfällt. Der Zerfall erfolgt spontan. (b) Stroboskopisch belichtete Tropfenkette im Experiment. Es sind einzeln separierte Tropfen erkennbar, aber auch Inhomogenitäten in der Größe und den Abständen.

3.2. Erzeugung Mikrometer großer, flüssiger Argon-Tropfen

Die Tropfenerzeugung erfolgt über eine Flüssigkeitsexpansion. Ähnliche Quellen werden z.B. in [38, 191--195] beschrieben. Abbildung 3.11 a veranschaulicht das Funktionsprinzip: In einem Reservoir wird Argon-Gas kryogen gekühlt und verflüssigt¹², und strömt anschließend durch eine Düse in das Vakuum. Auf der Vakuumseite der Düse bildet sich ein zusammenhängendes, wenige Millimeter langes Filament. Durch Störungen an der Oberfläche zerfällt das Filament spontan in einem Rayleigh-Breakup in einzelne Tropfen [190, 196, 197]. Der Durchmesser der Tropfen d_{Tropfen} hängt von der Größe der Düsenöffnung $d_{\text{Düse}}$ ab und beträgt etwa

$$d_{\text{Tropfen}} = 1.8 \cdot d_{\text{Düse}} \quad (3.23)$$

Mit der in dieser Arbeit verwendeten $5 \mu\text{m}$ große Düse ergibt sich ein Tropfendurchmesser von $9 \mu\text{m}$. Die Propagationsgeschwindigkeit der Tropfen kann über den Druck p_{Ar} und die Dichte ρ_{Ar} berechnet werden:

$$v_{\text{Tropfen}} = \sqrt{\frac{2p_{\text{Ar}}}{\rho_{\text{Ar}}}} \quad (3.24)$$

Für $p_{\text{Ar}} = 5 \text{ bar}$ und $\rho_{\text{Ar}} = 1.4 \cdot 10^3 \text{ kg/m}^3$ ist $v_{\text{Tropfen}} = 26.7 \text{ m/s} \approx 30 \text{ m/s}$. Abbildung 3.11 b zeigt eine stroboskopische Aufnahme der Tropfenkette. Die Belichtung erfolgt mit einem Nanosekunden-Laser (*Minilite*, Continuum) bei einer Wellenlänge von 532 nm . Über

¹² Im Experiment werden Temperaturen zwischen 100 K und 105 K bei einem Gasdruck von 5 bar verwendet.

das Streulicht sind deutlich separierte Tropfen zu erkennen. Allerdings schwankt die Intensität des gestreuten Lichtes entlang der Tropfenkette. Das kann auf eine ungleichmäßige Größenverteilung zurückgeführt werden, da der Rayleigh-Breakup nicht homogen erfolgt. Darüber hinaus sind die Abstände der Tropfen nicht äquidistant. Bei etwa 8 bis 9 Tropfen pro Millimeter kann ein Abstand von $100\ \mu\text{m}$ abgeschätzt werden. Mit dem Laserfokus von $50\ \mu\text{m}$ befindet sich damit maximal ein Tropfen in der Wechselwirkungszone, und die Laserpulse mit zeitlichen Abständen von $1\ \text{ms}$ treffen jeweils einen neuen Tropfen.

Die Größe der Tropfen ist aufgrund der Divergenz des Streulichtes aus der Abbildung nicht bestimmbar. Bei genauer Betrachtung ist zudem eine langwellige, laterale Oszillation in der Tropfenkette erkennbar. Es muss also mit starken Fluktuationen des Fluoreszenzsignals gerechnet werden. Mit dem lateralen Versatz der Tropfen geht die räumliche Überlagerung mit den Laserpulsen verloren, und mit den unterschiedlichen Abständen die zeitliche Überlagerung. Darüber hinaus entwickelt sich der Tropfenstrahl mit jedem Startprozess der Quelle unter einem geringfügig anderen Winkel. Es ist erforderlich, das Experiment in jeder Messkampagne neu einzujustieren.

3.3. EUV-Spektrometer

Das EUV-Spektrometer ist das wichtige Messinstrument des Experimentes. Es wurde im Rahmen dieser Arbeit konstruiert und aufgebaut. Die Hauptkomponenten sind ein Reflektionsgitter, ein EUV-empfindlicher CCD-Detektor sowie ein Manipulator für die Justage. Das Spektrometer ist für den Einsatz unter Vakuum-Bedingungen ausgelegt.

Es wird im Flatfield-Design aufgebaut [198, 199]. Flatfield-Gitter (auch *variable line spacing gratings*, VLSG) sind durch eine gekrümmte Oberfläche und eine aperiodische Gitterkonstante gekennzeichnet. Dadurch wird das Spektrum flach in einer Ebene abgebildet und kann ohne weitere Strahlführung direkt mit CCD-Detektoren aufgenommen werden. Die Kombination aus Dispersion und Abbildung in einem einzelnen optischen Element ermöglicht den Aufbau kompakter Spektrometer zur Plasmadiagnostik, z.B. [200--205]. Dabei stellen die Gitter hohe Anforderungen an die Strahlgeometrie. Abstände und Winkel zwischen Quellpunkt, Gitter und Detektor sind exakt vorgegeben. Im Folgenden wird die Konstruktion und Inbetriebnahme des Spektrometers vorgestellt.

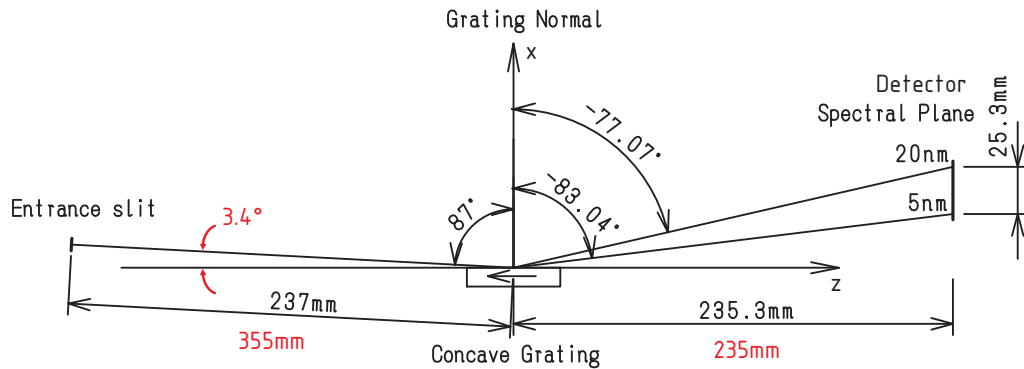
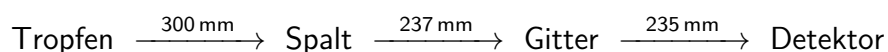


Abbildung 3.12.: Strahlgeometrie des Flatfield-Gitters [206]. Das Gitter ist im streifendem Einfall ausgerichtet. Der Abstand zum Eintrittsspalt beträgt 237 mm. Das Spektrum wird 235 mm hinter dem Gitter in einer Ebene abgebildet und kann direkt mit einem CCD-Detektor aufgenommen werden. In dieser Arbeit wird das Gitter in einer abweichenden Geometrie verwendet. Anstelle des Eintrittsspalt werden die μm großen Tropfen als Quellpunkte genutzt. Die geänderten Maße sind in rot angegeben.

3.3.1. Konstruktion

Das verwendete Flatfield-Gitter (001-0437, Hitachi) ist für den Wellenlängenbereich von 5 bis 20 nm ausgelegt [207, 208]. Abbildung 3.12 zeigt die vorgegebene Strahlgeometrie. Die Gesamtlänge vom Eintrittsspalt als Quellpunkt bis zum Detektor beträgt etwa 50 cm. Das Gitter ist in einem Winkel von 3° zum einfallenden Strahl ausgerichtet. Als Detektor wird eine backside-illuminated CCD-Kamera (*Newton 940 [DO]*, Andor) mit einem 2048×512 Pixel großen Chip verwendet [209]. Die Längsseite des Chips entspricht 27,6 mm, so dass die auf 25,3 mm abgebildete spektrale Ebene vollständig aufgenommen wird. Eine 200 nm dünne Aluminiumfolie (*0.2AL-0-LS1.5*, Lebow) im Strahlengang dient als Filter für gestreutes Laserlicht. Die markante Absorptionskante von Aluminium beeinflusst wesentlich die spektrale Empfindlichkeit des Spektrometers, s. Abbildung 3.13. Unterhalb 17 nm sinkt die Nachweiseffizienz um bis zu drei Größenordnungen. Für größere Wellenlängen ist die Transmission deutlich höher und der spektrale Verlauf annähernd konstant.

Das Spektrometer wird justierbar in einem x,y,z -Manipulator (*MAX 25-100*, VAb) on top an die Vakuum-Kammer angebaut. Damit ist der Abstand vom Tropfenstrahl zum Eintrittsspalt durch die Kammergeometrie vorgegeben. Er beträgt Kammerradius + Flanschhöhe = $200 \text{ mm} + 100 \text{ mm} = 300 \text{ mm}$. Das Gitter ist also mindestens $300 \text{ mm} + 237 \text{ mm} = 537 \text{ mm}$ von den Tropfen entfernt :



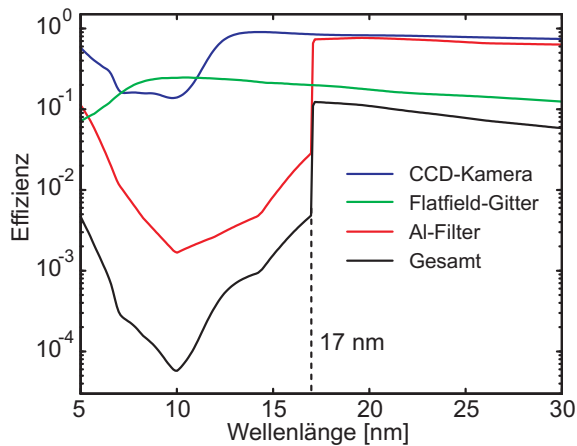


Abbildung 3.13: Spektrale Empfindlichkeit des EUV-Spektrometers zwischen 5 nm und 30 nm. Dargestellt sind die Quanteneffizienz der CCD-Kamera [210], die Reflektivität des Flatfield-Gitters [211] und die Transmission des Aluminium-Filters [212]. Der Aluminium-Filter mit der Absorptionskante bei 17 nm dominiert die Gesamteffizienz.

Die Funktion des Spaltes ist die räumliche Eingrenzung einer großflächigen Strahlungsquelle zugunsten einer hohen spektralen Auflösung. Die Spaltöffnung beträgt typisch einige 10 μm . In dieser Arbeit sind allerdings mit etwa 9 μm großen Tropfen bereits lokal definierte Quellpunkte gegeben. Das bietet die Möglichkeit, auf den Eintrittsspalt zu verzichten und das Gitter direkt auf die Tropfen auszurichten. Damit vergrößert sich das Sichtfenster des Spektrometers und die Justage wird erheblich erleichtert. Der Abstand zwischen Gitter und Tropfenstrahl kann um ein Drittel auf 355 mm reduziert werden¹³ :



Es ist leicht nachvollziehbar, dass diese Modifikation Auswirkungen auf die Funktionsweise des Gitters hat. Für eine weiterhin ebene Projektion des Spektrums ist eine Anpassung der Strahlgeometrie erforderlich [214,215]. Ein entsprechendes Programm für eine Raytracing-Simulation wird von Dzelzainis [213] bereitgestellt. Die berechneten Fokienebenen für die Abstände 237 mm (Quellpunkt=Spalt) und 355 mm (Quellpunkt=Tropfen) sind in Abbildung 3.14 dargestellt. Es zeigt sich, dass die Fokienebenen durch den geänderten Abstand verschoben werden. Eine ebene Projektion ist über eine Änderung der Gitterneigung um 0.4° reproduzierbar. Der Abstand zwischen Gitter und Detektor von 235 mm bleibt erhalten. Die korrigierten Maße sind in Abbildung 3.12 in rot angegeben. Mit der Anpassung ändert sich ebenfalls der detektierbare Raumwinkel. Für eine Abschätzung kann der Strahlengang vom Quellpunkt zum Gitter als Pyramidenform angenommen werden. Die Grundfläche der Pyramide ist durch die Apertur des Gitters $w_x = \text{Gitterhöhe} \cdot \tan(\text{Neigungswinkel}) = 3 \text{ mm}$ sowie die Breite des CCD-Chips $w_y = 6.9 \text{ mm}$ gegeben. Die Höhe h der Pyramide entspricht dem Abstand zwischen

¹³ Der Abstand ist durch die Höhe des Manipulators gegeben.

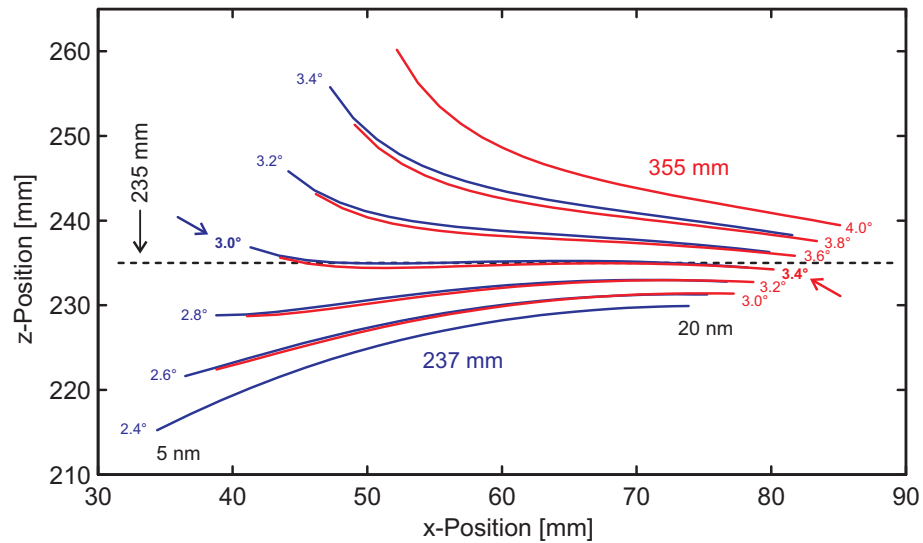


Abbildung 3.14.: Lage der spektralen Ebenen des Flatfield-Gitters als Ergebnis von Raytracing-Simulationen [213]. Die Achsenbeschriftung orientiert sich an Abbildung 3.12. Der Koordinatenursprung liegt auf der Gitteroberfläche. Dargestellt sind die Fokuspunkte zwischen 5 nm und 20 nm für die Abstände Quellpunkt→Gitter von 237 mm (Quellpunkt=Spalt) und 355 mm (Quellpunkt=Tropfen) für verschiedene Neigungswinkel des Gitters. Die optimalen Winkel für eine ebene Abbildung sind durch Pfeile gekennzeichnet. Die ursprüngliche Lage der spektralen Ebene kann für den vergrößerten Abstand mit einer Gitterneigung um 0.4° reproduziert werden.

Quellpunkt und Gitter. Mit

$$\Omega = 4 \arctan \frac{w_x w_y}{2h \sqrt{4h^2 + w_x^2 + w_y^2}} \quad (3.25)$$

ergibt sich ein Raumwinkel von $\Omega = 1.6 \cdot 10^{-4}$ sr, der sich durch die Modifikation gegenüber der Originalgeometrie etwa halbiert hat. Abbildung 3.15 zeigt den vollständigen Aufbau des Spektrometers.

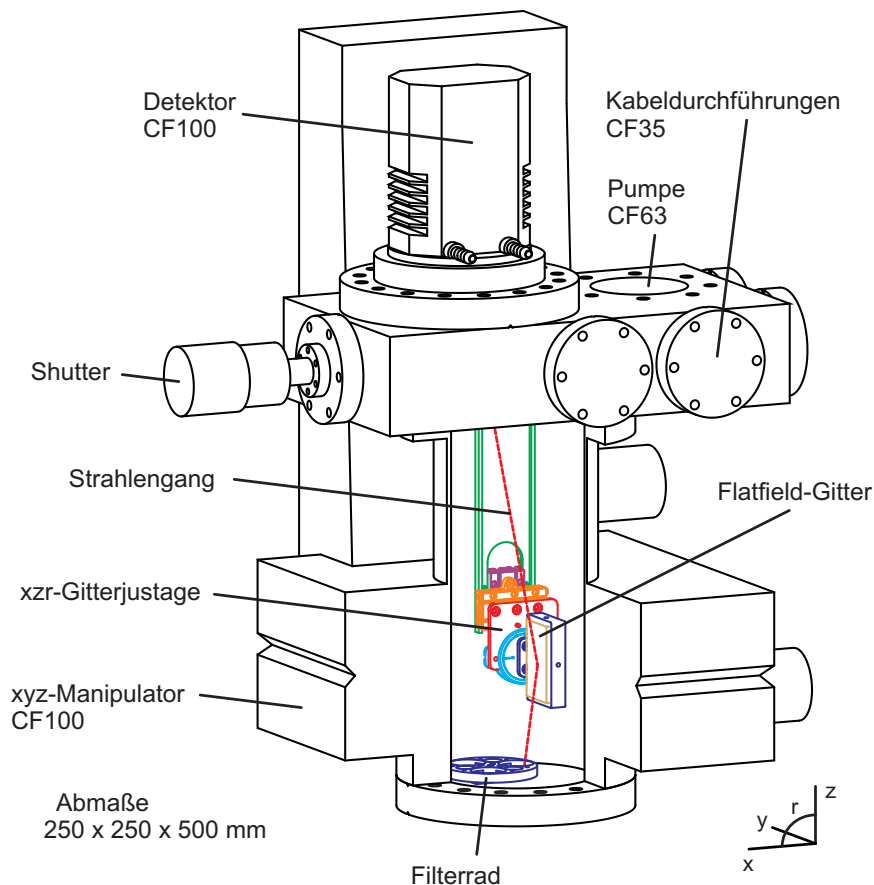


Abbildung 3.15.: Schematische Darstellung des EUV-Spektrometers. Gitter und Detektor sind entsprechend der Raytracing-Simulation in Abbildung 3.14 angeordnet. Der x,y,z -Manipulator dient zur Ausrichtung des gesamten Systems auf den Quellpunkt. Das Gitter kann davon unabhängig in x,z -Richtung ($2 \times SLC-2445-HV$, SmarAct) und im Winkel ($SR-3610-HV$, SmarAct) eingestellt werden. Das Filterrad am Boden des Manipulators ist drehbar ($SR-1910-HV$, SmarAct) und bietet vier Einstellungen: Auf, Zu, Filter, Reservefilter. Der Strahlengang kann vor dem CCD-Detektor mit einem Shutter blockiert werden. Alle Komponenten sind unter Vakuum-Bedingungen justierbar.

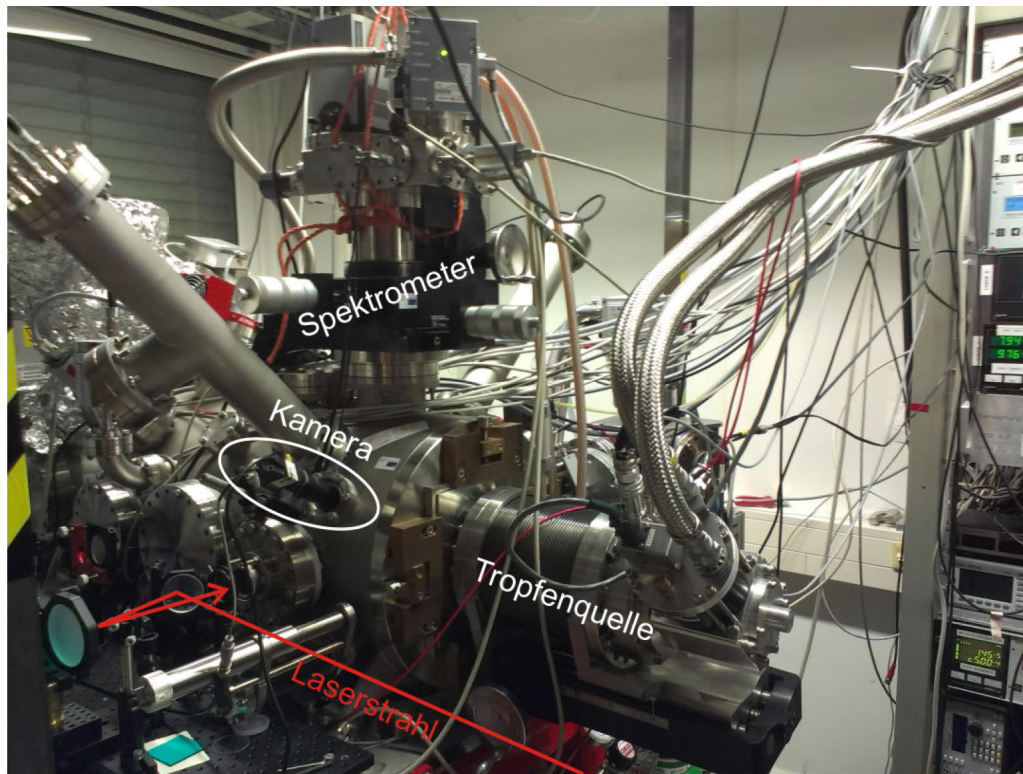


Abbildung 3.16.: Aufbau des Experimentes im Labor. Die Anordnung entspricht Abbildung 3.1 und 3.2. Neben dem EUV-Spektrometer und der Tropfenquelle sind zusätzliche Messgeräte zur Diagnose an die Vakuum-Kammer angeschlossen. Der Laserstrahl wird über einen Konkavspiegel in die Kammer fokussiert. Mit einer Kamera kann die Überlagerung des Laserstrahls mit dem Tropfenstrahl beobachtet werden. EUV-Spektrometer und Vakuum-Kammer wurden im Rahmen dieser Arbeit entwickelt.

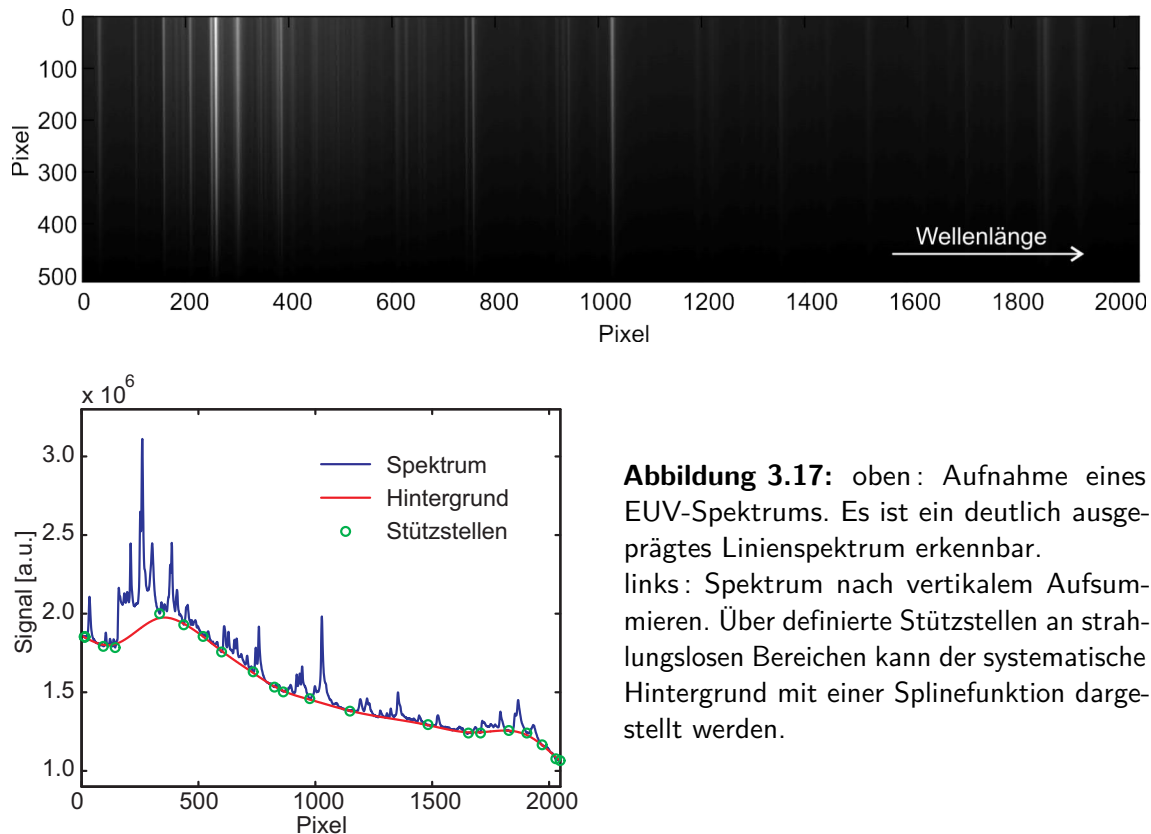


Abbildung 3.17: oben: Aufnahme eines EUV-Spektrums. Es ist ein deutlich ausgeprägtes Linienspektrum erkennbar. links: Spektrum nach vertikalem Aufsummieren. Über definierte Stützstellen an strahlungslosen Bereichen kann der systematische Hintergrund mit einer Splinefunktion dargestellt werden.

3.3.2. Datenaufnahme

Abbildung 3.17 zeigt eine typische Spektrometernaufnahme der EUV-Emission aus Argon-Mikrotropfen nach Anregung mit intensiven Laserpulsen. Die Dispersionsachse ist horizontal ausgerichtet. Die vertikale Achse enthält keine physikalische Information. Die Aufnahme ist über 1000 Laserpulse integriert. Es ist ein deutlich ausgeprägtes Linienspektrum erkennbar, das Emissionsbeiträgen der EUV-Fluoreszenz von Argon in verschiedenen Ladungszuständen entspricht. Für die Analyse wird die Aufnahme vertikal aufsummiert. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.17 links dargestellt. Das Spektrum enthält einen charakteristischen Hintergrundanteil. Die Struktur lässt vermuten, dass er von systematischer Natur ist und durch gestreutes NIR-Laserlicht verursacht wird¹⁴. Er wird von dem Linienspektrum getrennt und separat ausgewertet. Dazu werden an strahlungslosen Bereichen des Spektrums Stützstellen definiert und der Verlauf durch eine Splinefunktion angepasst. Die Splinefunktion wird von den Rohdaten subtrahiert. Damit stehen für die Auswertung der Emissionsstärken hintergrundfreie Linienspektren zur Verfügung.

¹⁴ Für eine EUV-Kontinuummmission ist einerseits eine höhere Laserintensität erforderlich, andererseits wird eine weniger gewellte Struktur erwartet.

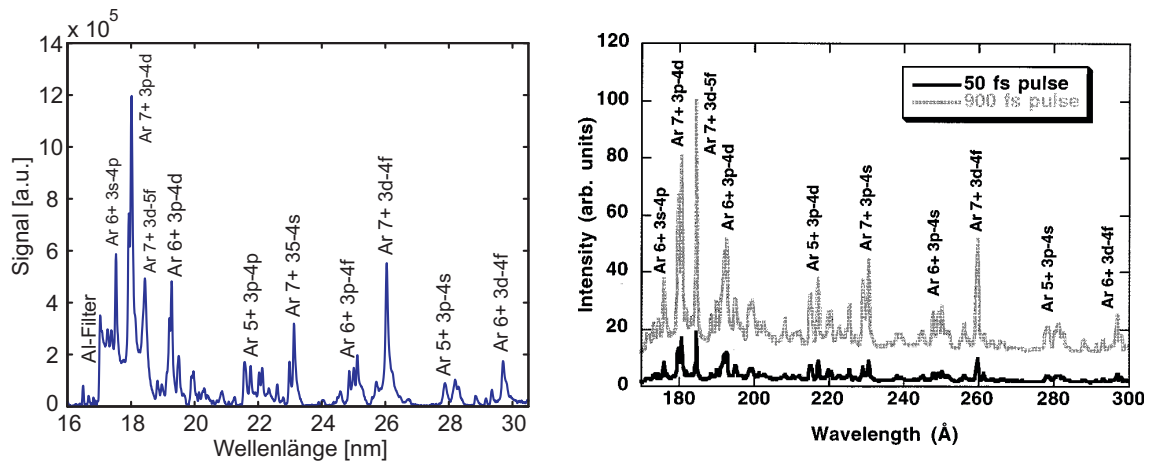


Abbildung 3.18.: links : Hintergrundfreies Spektrum dieser Arbeit. rechts : Referenzspektrum zur Wellenlängenkalibrierung [109]. Beide Spektren zeigen die EUV-Fluoreszenz von Argon nach Anregung mit intensiven NIR-Laserpulsen. Die rechts identifizierten atomaren Übergänge können nach links übernommen und zur Kalibrierung der Dispersionsachse des Spektrometers genutzt werden. In dem Referenzspektrum ist darüber hinaus bereits eine Abhängigkeit von der Pulslänge erkennbar.

Die im Abschnitt 3.2 beschriebenen Schwankungen des Tropfenstrahls führen zu einer unregelmäßigen Überlagerung mit den Laserpulsen. Als Folge ändern sich Form und Stärke des Emissionssignals mit jeder Aufnahme. Die Splinefunktion muss für jedes gemessene Spektrum individuell bestimmt werden. Diese Prozedur wird im Rahmen der Datenauswertung automatisiert durchgeführt. Solange die Ausrichtung des Spektrometers nicht geändert wird, bleiben die Positionen der Stützstellen erhalten. In der Regel ist das innerhalb einer Messkampagne der Fall.

3.3.3. Wellenlängenkalibrierung

Das Spektrometer liefert keine Information über die Skalierung der Wellenlängenachse. Die Ausrichtung zwischen Gitter und Detektor und die Justage auf den Quellpunkt ist im Experiment nicht in dem Maße realisierbar, dass das Ergebnis der Raytracing-Simulation zur Berechnung der Wellenlängenachse verwendet werden kann. Allerdings weisen die gemessenen Fluoreszenzspektren eine charakteristische Struktur auf, die den Vergleich mit Literaturwerten ermöglicht. Anhand publizierter Daten können den Emissionslinien nachträglich die entsprechenden Wellenlängen zugeordnet werden. Abbildung 3.18 zeigt ein Beispiel. Dargestellt ist links ein hintergrundfreies Spektrum dieser Arbeit und rechts ein kalibriertes Spektrum von Zweiback et. al. [109]. Das Referenzspektrum wurde mit Argonclustern und NIR-Laserpulsen mit Intensitäten zwischen $1.1 \cdot 10^{16} \text{ W/cm}^2$ und

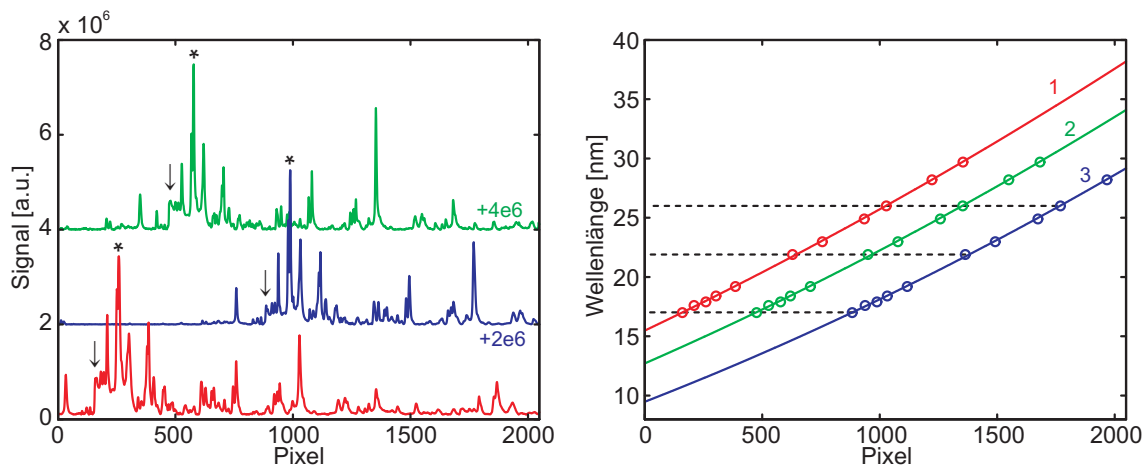


Abbildung 3.19.: links : Position der Spektren auf dem Detektorchip für verschiedene Ausrichtungen des Spektrometers auf den Quellpunkt. Die Pfeile markieren die Absorptionskante des Aluminiumfilters bei $\lambda = 17$ nm. rechts : Dispersionskurven als Ergebnis der Wellenlängenkalibrierung.

$1.9 \cdot 10^{17}$ W/cm² aufgenommen. Hier zeigt sich bereits der Einfluss der Targetgröße und der hohen Teilchendichte. Trotz geringerer Laserintensität in dieser Arbeit ist die Emission in beiden Fällen vergleichbar. Größtenteils stimmen die relativen Signalstärken der Emissionslinien überein. In dem Referenzspektrum sind im Wellenlängenbereich zwischen 17 nm und 30 nm mehrere Übergänge in den Ladungszuständen Ar 5+, Ar 6+ und Ar 7+ angegeben, die sich in den Spektren dieser Arbeit wiederfinden lassen. Die Emissionslinien sind in Abbildung 3.18 links entsprechend gekennzeichnet. Die exakten Wellenlängenwerte werden über die NIST-Datenbank [131] ermittelt. Zusätzlich bietet der Aluminium-Filter mit der markanten Absorptionskante bei 17 nm eine weitere Referenz. Insgesamt ergeben sich 11 Stützstellen zur Kalibrierung der Wellenlängenchse des Spektrometers.

Bei der Durchführung der Kalibrierung zeigt sich eine spezielle Eigenschaft des Experimentes, die auf die Verwendung des Tropfenstrahls zurückgeführt werden kann. Der Tropfenstrahl entwickelt sich mit jedem Start der Quelle unter einem geringfügig geänderten Winkel. Das bedeutet, dass Laserstrahl und Spektrometer jeweils neu ausgerichtet werden müssen. Der Strahlengang im Spektrometer ist dabei nicht exakt reproduzierbar, so dass sich die Spektren auf dem Detektorchip verschieben. Das bedeutet, dass die Wellenlängenkalibrierung für jede Messkampagne individuell durchgeführt werden muss. Innerhalb einer Messkampagne bleibt die Kalibrierung in der Regel erhalten. Abbildung 3.19 zeigt exemplarisch Spektren und die zugehörigen Dispersionskurven aus drei verschiedenen Messkampagnen. Bis auf eine Ausnahme sind jeweils alle 11 Stützstellen

enthalten¹⁵. Die Dispersionskurven können durch Polynome zweiter Ordnung beschrieben werden :

$$\lambda_1[\text{nm}] = 8.11 \cdot 10^{-7} \text{px}^2 + 9.42 \cdot 10^{-3} \text{px} + 15.48 \quad (3.26)$$

$$\lambda_2[\text{nm}] = 8.66 \cdot 10^{-7} \text{px}^2 + 8.66 \cdot 10^{-3} \text{px} + 12.71 \quad (3.27)$$

$$\lambda_3[\text{nm}] = 9.29 \cdot 10^{-7} \text{px}^2 + 7.71 \cdot 10^{-3} \text{px} + 9.47 \quad (3.28)$$

Die Emissionslinien befinden sich also nicht nur an unterschiedlichen Positionen des Detektorchips, sind auch verschieden stark gestaucht. Die quadratische Abhängigkeit kann in der Literatur wiedergefunden werden [216--218], teilweise ist eine Anpassung höherer Ordnung notwendig [202, 203]. Aus den Dispersionskurven folgt eine gerechnete, mittlere Auflösung von etwa 0.01 nm/px. Für kürzere Wellenlängen ist die Auflösung höher.

Die unterschiedliche Projektion der Spektren auf den Detektorchip führt dazu, dass sich die Linienbreiten ändern. Das ist in Abbildung 3.19 links z.B. an den mit * markierten Emissionslinien erkennbar (speziell im grünen und roten Spektrum). Die Verbreiterung kann auf eine nicht optimale Ausrichtung des Spektrometers zurückgeführt werden. Die Raytracing-Simulationen in Abbildung 3.14 zeigen, dass bereits geringe Abweichungen im Winkel zu einer Fokussierung der Spektralkomponenten vor oder hinter dem Detektorchip führen, die Emissionslinien also unscharf aufgenommen werden. Als Folge ist die experimentelle spektrale Auflösung unbestimmt. Aussagen über die tatsächliche Breite einer Emissionslinie sind hier nicht möglich. Auf die Kalibrierungen hat der Effekt jedoch keine Auswirkung, da diese anhand der Linienpositionen durchgeführt werden und damit weitgehend unempfindlich gegenüber einer Defokussierung sind. Das zeigt sich in Abbildung 3.20. Dort ist eine Gegenüberstellung von Spektren aus 28 Messkampagnen dargestellt, aus der sich zusammenfassend folgende charakteristische Merkmale des Spektrometers ergeben :

- Entgegen den Spezifikationen des Flatfield-Gitters, Abbildung 3.12, liegt der Wellenlängenbereich zwischen 10 nm und 40 nm. Das kann auf den Einsatz des Aluminium-Filters mit der stark reduzierten Transmission unterhalb 17 nm zurückgeführt werden. Die Justage des Spektrometers erfolgt anhand der EUV-Emissionslinien, so dass ein

¹⁵ Im Beispiel 3 ist der Strahlengang im Spektrometer so stark verschoben, dass nicht alle Stützstellen beobachtet werden können.

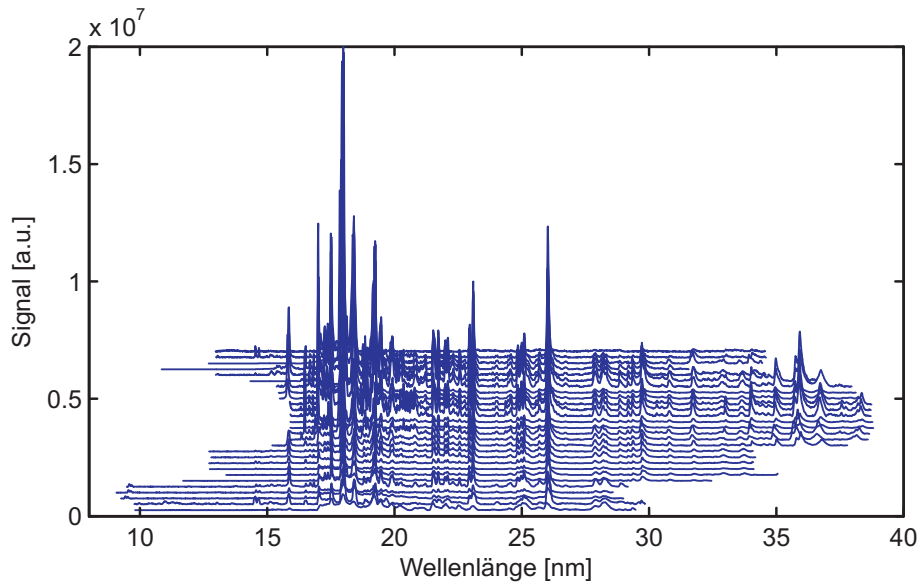


Abbildung 3.20.: Übersicht der Spektren aus verschiedenen Messkampagnen. Die Bestimmung der Wellenlängensachse erfolgt über eine individuelle Kalibrierung anhand der Linienpositionen. Die Spektren sind zueinander vertikal verschoben dargestellt.

Spektralbereich in Richtung hoher Filtertransmission und damit hoher Signalstärke resultiert. Die Funktionsweise des Gitters ist dadurch nicht beeinträchtigt.

- Die Feinausrichtung des Spektrometers ist nicht exakt reproduzierbar. Als Folge werden in den Messkampagnen verschobene Spektralbereiche und verbreiterte Emissionslinien beobachtet.
- Die Spektralbereiche können über die Kalibrierung anhand der Position der Emissionslinien der Nanometer-Wellenlängensachse zugeordnet werden.

Einige Emissionslinien werden in Abbildung 3.20 nicht durchgängig in allen Spektren beobachtet. Das kann an dieser Stelle auf eine teilweise schwächere Laseranregung zurückgeführt werden und ist Thema des folgenden Kapitels.

4. Ergebnisse und Diskussion

In diesem Kapitel werden die Ergebnisse der Arbeit vorgestellt und diskutiert. Die in den Grundlagen beschriebenen Aspekte der Plasmadynamik werden aufgegriffen und mit experimentellen Beobachtungen verglichen :

- Starkfeldionisation in intensiven Laserfeldern
- Plasmaheizung
- Erzeugung hoher Ladungszustände mit $I_p > U_p$
- Expansion und Abkühlung des Plasmas
- Rekombination und Fluoreszenz

Es werden Aussagen über die Stabilität des Argon-Tropfenstrahls getroffen und Vergleiche mit Resultaten der hydrodynamischen Simulation durchgeführt. Die Aussagen beruhen auf der Auswertung aufgenommener EUV-Emissionsspektren. Zur Unterstützung werden Beobachtungen aus Transmissionsmessungen einbezogen. Der Bezug zur Laser-Tropfen-Wechselwirkung ergibt sich dabei aus der Interpretation der EUV-Spektren in Abhängigkeit von der Laseranregung. Basierend auf ersten Messungen zur Intensitätsabhängigkeit der EUV-Emission über den Einsatz asymmetrischer Doppelpulse bis zur Optimierung der Phasenfunktion ergeben sich interessante Zusammenhänge. Das Kapitel schließt mit einer Abschätzung der absolut emittierten EUV-Photonenzahl und der Konversionseffizienz NIR → EUV ab.

Das Mikroplasma ist mit bloßem Auge sichtbar.
Das bietet den passenden Einstieg.

4.1. Visuelle Beobachtung des Plasmas

Abbildung 4.1 zeigt eine typische Aufnahme der Wechselwirkung zwischen Laser- und Tropfenstrahl. Bereits mit bloßem Auge ist ein stark blaues, isotrop abgestrahltes Plasmaleuchten erkennbar, das auf inkohärente Fluoreszenz schließen lässt. Der blaue Spektralbereich kann elektronischen Übergängen in schwach geladenen Argon-Ionen ($\text{Ar } 1+$, $\text{Ar } 2+$, $\text{Ar } 3+$) zugeordnet werden [131]. Ein weiterer Aspekt ergibt sich mit Einbeziehung der Tropfenquelle. Die Quelle ist geerdet und stellt für geladene Teilchen ein attraktives, elektrostatisches Potential dar. Wird die Quelle an das Laserplasma herangefahren, kann eine Verformung des Plasmas beobachtet werden. Abbildung 4.2 zeigt das Ergebnis für Abstände von 6, 4 und 3 mm. Es ist deutlich erkennbar, dass sich das Plasmaleuchten mit abnehmender Distanz in Richtung Quelle ausbildet. Damit können zwei wichtige Aussagen über die Wechselwirkung getroffen werden. Einerseits wird das Vorhandensein geladener Teilchen verifiziert, die vom Massepotential der Quelle angezogen werden. Andererseits bedeutet es, dass die Lichtemission auch außerhalb des Laserfokus erfolgt. Ionen und Elektronen können mehrere Millimeter aus dem Fokusbereich herauspropagieren, bevor Rekombination einsetzt. Mit einer nach Gleichung (2.16) angenommenen Expansionsgeschwindigkeit von 67 nm/ps entspricht das einem Zeitversatz von mehreren zehn Nanosekunden¹⁶. Die Fluoreszenz ist nicht auf die Zeit und den Ort der Wechselwirkung mit dem Laser beschränkt. Die Lichtemission ist räumlich und zeitlich inkohärent.

Aus den Beobachtungen ergibt sich ein Bild der Wechselwirkung zwischen Tropfen und Laserpuls, das über die instantane Response atomarer Systeme hinausgeht. Die Ionisation folgt nicht dem Intensitätsverlauf des Laserpulses. Infolge der hohen Dichte der Tropfen treten Stöße auf, die weitaus effizienter zur Ionisation des Tropfens beitragen. Es bildet sich ein langlebiges Plasma, dessen Dynamik bis in den Nanosekundenbereich beobachtet werden kann.

¹⁶ Es muss allerdings davon ausgegangen werden, dass die Ionen durch das anziehende Potential der Tropfenquelle beschleunigt werden.

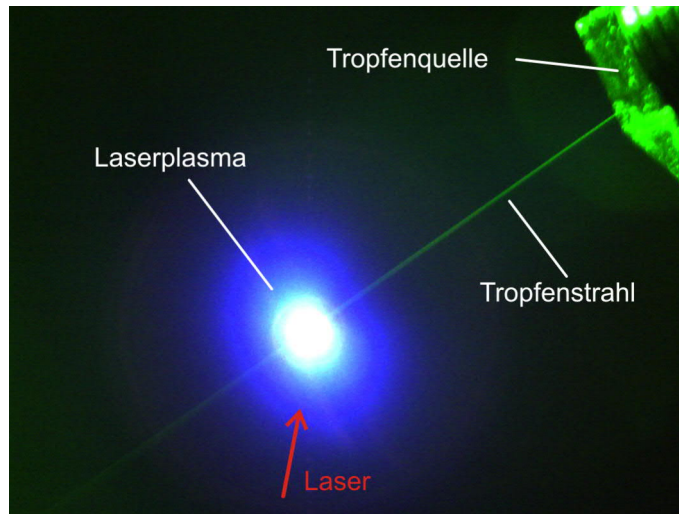


Abbildung 4.1.: Visuelle Beobachtung des Laserplasmas. Die Position der Kamera ist in Abbildung 3.16 angegeben. Die Blick erfolgt entlang des Laserstrahls. Es ist eine starke Lichtemission im blauen Spektralbereich erkennbar, die auf Argon-Ionen in niedrigen Ladungszuständen Ar $1+$ bis Ar $3+$ zurückgeführt werden kann. Das weiße Zentrum entsteht durch Reflexion von NIR-Laserlicht an der Tropfenoberfläche. Der Abstand zwischen Laserfokus und Tropfenquelle beträgt etwa 1 cm.

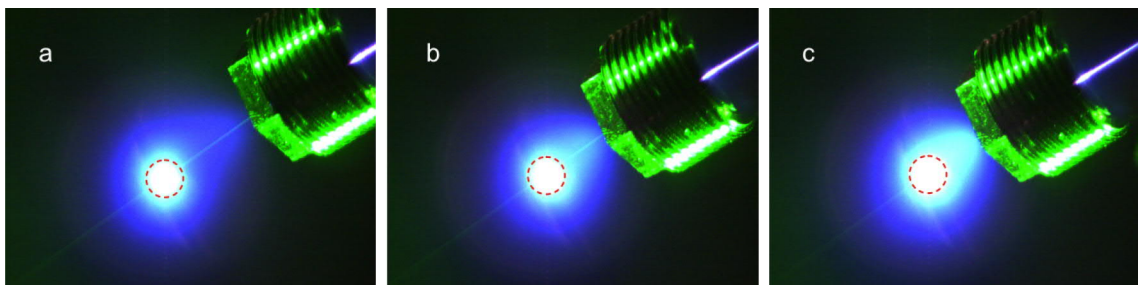


Abbildung 4.2.: Ausbildung des Plasmaleuchtens unter Einfluss eines externen Potentials. Die Tropfenquelle ist geerdet und wirkt anziehend auf geladene Teilchen. Gezeigt sind Abstände zwischen Laserfokus und Quelle von (a) 6 mm, (b) 4 mm und (c) 3 mm. Mit abnehmender Distanz verformt sich das Plasmaleuchten deutlich in Richtung Quelle. Die Lichtemission erfolgt schließlich auch außerhalb des Laserfokus. Genau betrachtet erscheint die Düsenöffnung als anziehender Punkt, an deren Rändern sich die Feldlinien des elektrostatischen Potentials konzentrieren.

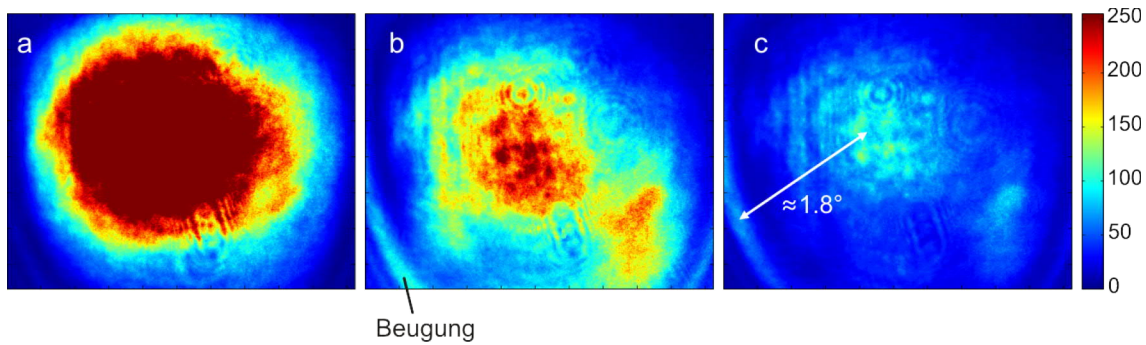


Abbildung 4.3.: Strahlprofile einzelner Laserpulse nach der Propagation durch die Tropfen. Aufgrund von Instabilitäten des Tropfenstrahls ist die Überlagerung mit den Laserpulsen und damit die Transmission nicht konstant. (a) Ungestörtes Strahlprofil ohne Wechselwirkung, (b) teilweise Überlagerung und (c) vollständige Überlagerung mit einem Tropfen. Die Aufnahmen werden mit identischen Laserparametern durchgeführt. Zusätzlich können Beugungsringe beobachtet werden (b,c).

4.2. Propagation der Laserpulse durch die Mikro-Tropfen

Die Beobachtung der Transmission der Laserpulse liefert Aussagen über die instantane Wechselwirkung. Die Pulspropagation durch die Tropfen wird unmittelbar durch Absorption und Reflektion an der ionisierten Tropfenoberfläche beeinflusst. Beides skaliert mit dem Ionisationsgrad des Plasmas. Einerseits begünstigt eine hohe Anzahl freier Elektronen die Absorption durch inverse Bremsstrahlung. Andererseits stellt das Plasma einen Spiegel für NIR-Laserlicht dar, s. Abschnitt 2.1.1 und 2.1.2.

Die Messungen der Transmission erfolgen anhand der Strahlprofile der Laserpulse nach der Propagation durch die Tropfen. Sie werden außerhalb der Vakuum-Kammer mit einer CCD-Kamera aufgenommen. Abbildung 4.3 zeigt drei Beispiele, die bei identischen Laserparametern von $E_p = 1.4$ mJ und $\tau = 100$ fs aufgenommen wurden. Es sind deutliche Unterschiede in der Transmission zu erkennen, die auf Instabilitäten des Tropfenstrahls zurückgeführt werden können. Im Abschnitt 3.2 wird beschrieben, dass die Tropfenbildung spontan erfolgt und räumlich und zeitlich nicht konstant ist. Als Folge trifft nicht jeder Laserpuls einen Tropfen. Vielmehr ergeben sich verschiedene Abstufungen der Überlagerung. Abbildung 4.3 a zeigt ein Beispiel, in dem sich kein Tropfen in der Wechselwirkungszone befindet. In dem Fall wird das ungestörte Strahlprofil des Laserpulses gemessen. Die Intensität des Messsignals ist eine Referenz für die Pulsenergie. Ist dagegen ein Tropfen im Fokus des Laserpulses und bildet sich ein Plasma, ist die Transmission reduziert. Je nach Ausmaß der Überlagerung ist der Effekt stärker oder schwächer ausgeprägt. In Abbildung 4.3 b ist ein teilweise abgeschwächtes Strahlprofil dargestellt, in Abbildung 4.3 c

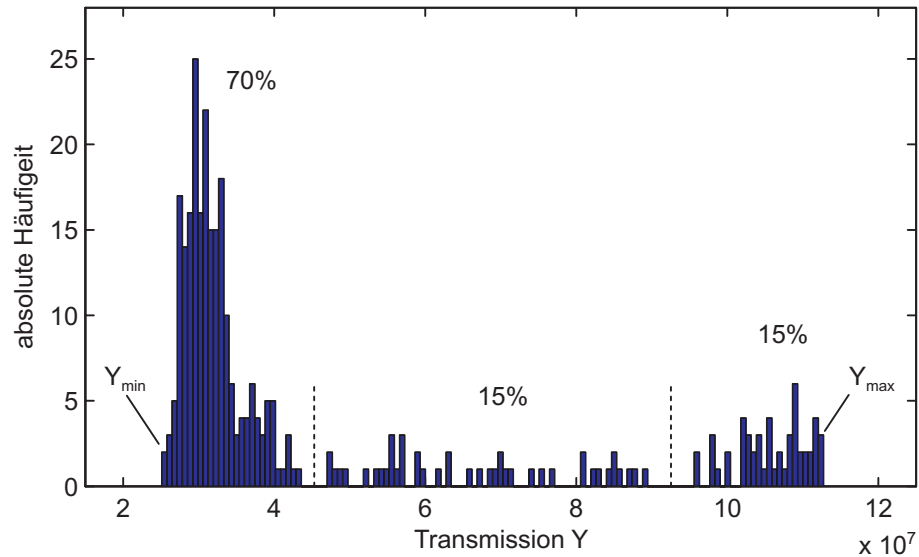


Abbildung 4.4.: Histogramm der Transmission der Laserpulse. Die maximale Transmission Y_{\max} korreliert mit der Pulsenergie, die minimale Transmission Y_{\min} entspricht dem Fall einer idealen Überlagerung. Aufgrund der Instabilitäten des Tropfenstrahls treffen nur 70 % der Laserpulse einen Tropfen vollständig.

ein deutlich abgeschwächtes Strahlprofil. Letzteres entspricht der optimalen Korrelation zwischen Laserpuls und Tropfen.

Die stroboskopische Belichtung der Tropfenkette in Abbildung 3.11 zeigt, dass sich neben den räumlichen und zeitlichen Instabilitäten auch deutliche Unterschiede in der Tropfengröße ausbilden. Im Fall der Wechselwirkung eines Laserpulses mit einem größeren Tropfen können in den Transmissionsbildern Beugungseffekte beobachtet werden, die eine Abschätzung der Tropfengröße ermöglichen. Aus den Abbildungen 4.3 b und 4.3 c ergibt sich mit der Geometrie des Messaufbaus ein Beugungswinkel von $\alpha \approx 1.8^\circ$. Entsprechend

$$d \sin \alpha = (k + 1/2) \lambda \quad (4.1)$$

kann mit der Laserwellenlänge $\lambda = 810 \text{ nm}$ und $k = 1$ für das erste Beugungsmaximum eine Tropfengröße von $d \approx 40 \mu\text{m}$ bestimmt werden. Das Ergebnis ist etwa ein Faktor 4 größer als der nach Gleichung (3.23) berechnete Wert von $d = 9 \mu\text{m}$. Die Größenordnung wird korrekt wiedergegeben. Es ist allerdings zu beachten, dass es sich bei den Abbildungen um ausgewählte Einzelaufnahmen handelt. Die Beugungsringe treten nur selten auf, so dass eine Aussage zur Statistik der Größenverteilung an dieser Stelle nicht möglich ist.

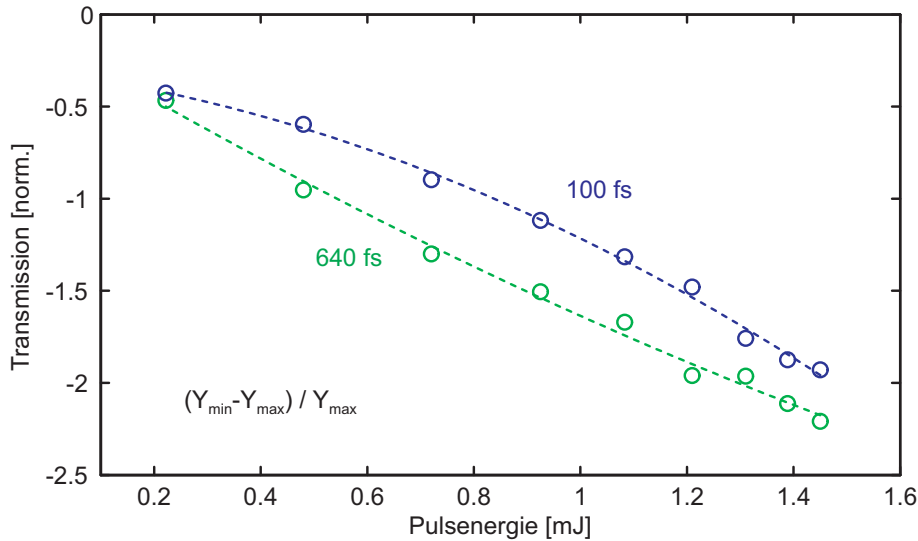


Abbildung 4.5.: Transmission der Laserpulse in Abhängigkeit von der Pulsenergie. Die Pulspropagation wird instantan durch das Plasma beeinflusst, Reflektion und Absorption verringern die Transmission. Mit steigender Pulsenergie erhöht sich der Ionisationsgrad des Plasmas, und die Transmission nimmt ab. Für lange Laserpulse ist der Effekt stärker ausgeprägt.

Über die instantane Wechselwirkung und die Abnahme der Transmission kann allerdings eine Häufigkeitsverteilung der Überlagerung extrahiert werden. Abbildung 4.4 zeigt ein entsprechendes Ergebnis aus mehreren hundert Einzelaufnahmen bei identischen Laserparametern. Die Transmission Y wird aus den Signalstärken der Kamerabilder durch Aufintegration ermittelt. Je besser die Überlagerung zwischen Laserpuls und Tropfen, desto geringer die Transmission. Es zeigt sich, dass aufgrund der Strahlinstabilitäten nur etwa 70 % der Laserpulse einen Tropfen vollständig treffen. Jeweils 15 % der Laserpulse überlagern nur teilweise oder gar nicht mit einem Tropfen.

Das Histogramm beinhaltet sowohl die ideale Überlagerung mit minimaler Transmission Y_{\min} (Abbildung 4.3 c), als auch das ungestörte Strahlprofil mit maximaler Transmission Y_{\max} (Abbildung 4.3 a). Letzteres skaliert linear mit der Pulsenergie respektive der NIR-Photonenzahl. Die Differenz $Y_{\min} - Y_{\max}$ entspricht der effektiven Abschwächung des Laserpulses durch das Plasma. Werden die Transmissionsmessungen mit verschiedenen Laserparametern wiederholt und jeweils Y_{\min} und Y_{\max} bestimmt, ist eine Aussage über die Plasmaentwicklung möglich. Abbildung 4.5 zeigt das Ergebnis in Abhängigkeit von der Pulsenergie für Pulslängen von 100 fs und 640 fs. Dargestellt ist das normierte Signal $(Y_{\min} - Y_{\max})/Y_{\max}$. Es ist eine stetige Abnahme mit zunehmender Pulsenergie zu beobachten. Im Bereich von 0.2 mJ bis 1.4 mJ sinkt das transmittierte Signal um etwa einen Faktor 4. In diesem Verhalten zeigt sich deutlich die Rückwirkung des Plasmas auf

den Laserpuls. Absorption und Reflektion an der ionisierten Tropfenoberfläche verringern die Transmission des Laserlichtes. Je größer die Pulsenergie, desto höher ist der Ionisationsgrad und damit die Wechselwirkung mit dem Plasma. Ein ähnliches Verhalten wird in [118, 121, 219] beobachtet.

Interessant ist, dass ein kurzer Puls bei gleicher Pulsenergie eine geringere Wechselwirkung zeigt als ein langer Puls. Dieses Verhalten weicht von dem Bild der Ionisation in atomaren Systemen ab, das kurze Pulse über die höhere Pulsintensität mit einem höheren Ionisationsgrad verbindet, s. Abschnitt 2.1.1. Abbildung 4.5 zeigt ein gegenteiliges Verhalten. Trotz der höheren Intensität wird ein kurzer Puls in der Propagation weniger beeinflusst als ein langer Puls. Neben der Erhöhung der Pulsenergie scheinen lange Pulse die Plasmabildung zu verstärken. Die Beobachtung kann auf die längere Wechselwirkungszeit zurückgeführt werden [119, 121, 126].

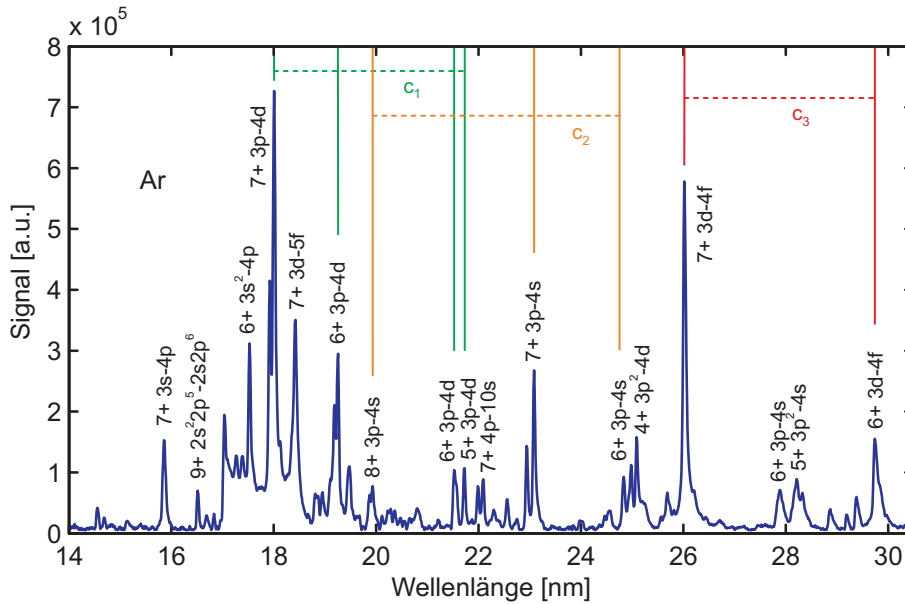


Abbildung 4.6.: EUV-Fluoreszenzspektrum von Argon nach Anregung mit NIR-Laserpulsen. Die Darstellung ist hintergrundfrei. Ein Großteil der Emissionslinien kann elektronischen Übergängen in den Ladungszuständen Ar4+ bis Ar9+ zugeordnet werden. Es treten drei Varianten der Coulomb-Verschiebungen auf (c_1, c_2, c_3). Daneben werden Beiträge beobachtet, die hier nicht identifiziert werden können.

4.3. Plasmaemission im EUV-Wellenlängenbereich

Abbildung 4.6 zeigt ein typisches Emissionsspektrum aus einem Argon-Mikroplasma im Wellenlängenbereich von 14 nm bis 30 nm. Die Anregung erfolgt mit NIR-Laserpulsen bei einer Intensität von $I = 8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Die ausgeprägte Linienstruktur ist charakteristisch und kann elektronischen Übergängen in unterschiedlichen Ionisationsstufen zugeordnet werden. Beiträge aus Ladungszuständen von Ar4+ bis Ar9+ werden beobachtet. Die Identifizierung der Emissionslinien erfolgt über den Vergleich mit Literaturwerten [38, 39, 65, 109, 113, 114, 122, 124, 218, 220–223]. Zweiback et. al. [109] liefern eine umfangreiche Quelle, die bereits zur Wellenlängenkalibrierung genutzt wird, s. Abschnitt 3.3.3. Die Ergebnisse sind mit der NIST-Datenbank [131] abgeglichen. Tabelle 4.1 bietet eine Übersicht der identifizierten Emissionslinien. Anhand der Elektronenkonfiguration sind mehrere Gruppierung möglich. Zum Einen werden Coulomb-verschobene Emissionslinien beobachtet, also Übergänge mit identischer Elektronenkonfiguration in verschiedenen Ladungszuständen: $3p \leftarrow 4d$, $3p \leftarrow 4s$ und $3d \leftarrow 4f$, s. Abbildung 2.4. Zum Anderen entsprechen die Emissionslinien Ar7+ $3s \leftarrow 4p$, Ar9+ $2s^2 2p^5 \leftarrow 2s 2p^6$, Ar6+ $3s^2 \leftarrow 4p$ und Ar5+ $3p \leftarrow 4d$ einem Übergang in den Grundzustand. Im Ladungszustand Ar6+ können darüber hinaus Singulett- und Triplett-Zustände identifiziert werden.

Nr.	Wellenlänge [nm]	Ladungszustand	Übergang $i \leftarrow k$	
1	15.9	7+	3s \leftarrow 4p	g_0
2	16.5	9+	$2s^2 2p^5 \leftarrow 2s 2p^6$	g_0
3	17.6	6+	$3s^2 \leftarrow 4p$	g_0
4	17.9	7+	3p \leftarrow 4d	c_1
5	18.4	7+	3d \leftarrow 5f	
6	19.2	6+	3p \leftarrow 4d	c_1, t_1
7	19.9	8+	3p \leftarrow 4s	c_2
8	21.5	6+	3p \leftarrow 4d	c_1, s_1
9	21.9	5+	3p \leftarrow 4d	c_1, g_0
10	22.1	7+	4p \leftarrow 10s	
11	22.9	7+	3p \leftarrow 4s	c_2
12	24.9	6+	3p \leftarrow 4s	c_2, t_2
13	25.3	4+	$3p^2 \leftarrow 4d$	
14	26.0	7+	3d \leftarrow 4f	c_3
15	27.9	6+	3p \leftarrow 4s	c_2, s_2
16	28.2	5+	$3p^2 \leftarrow 4s$	
17	29.7	6+	3d \leftarrow 4f	c_3

Tabelle 4.1.: Identifizierung der Argon-Emissionslinien anhand der Wellenlänge [131]. Insgesamt können 17 Linien elektronischen Übergängen in den Ladungszuständen Ar4+ bis Ar9+ zugeordnet werden. Größtenteils handelt es sich um Beiträge von Ar6+ und Ar7+. Die Notation $i \leftarrow k$ entspricht der Form *unteres Niveau* \leftarrow *oberes Niveau*. Entsprechend der Elektronenkonfiguration treten Coulomb-Verschiebungen (c_x), Übergänge in den Grundzustand (g_0) sowie Singulett- und Triplettzustände (s_x, t_x) auf. Die Übergänge folgen der Auswahlregel der Bahndrehimpulsquantenzahl $\Delta l = \pm 1$, also $s \leftrightarrow p \leftrightarrow d \leftrightarrow f$, s. Abschnitt 2.1.5.

Die Beobachtung hoher Ladungszustände ist ein erster Hinweis für eine starke Plasmadynamik. Mit Laserintensitäten bis 10^{15} W/cm^2 können über Tunnelionisation im Wesentlichen $\text{Ar} 1+$, $\text{Ar} 2+$ und $\text{Ar} 3+$ erzeugt werden, s. Abschnitt 2.1.1. Für höhere Ladungszustände ist ein zusätzlicher Ionisationsmechanismus erforderlich. Hier werden die Stöße freier Elektronen als wirksamer Prozess identifiziert. Die hohe Dichte der Tropfen begünstigt sowohl die Stoßwahrscheinlichkeit als auch den Energieübertrag aus dem Laserfeld über inverse Bremsstrahlung. Die Elektronenstöße führen zur Ausbildung eines hohen Ionisationsgrades im Tropfen. Im Experiment werden Ladungszustände bis $\text{Ar} 9+$ beobachtet. Das bedeutet, dass die Elektronenenergien auf mindestens 400 eV ansteigen und das Ionisationspotential von $\text{Ar} 8+$ erreicht wird, s. Abbildung 2.1. Das ist deutlich höher als das ponderomotive Potential von 61 eV. Es ist nicht auszuschließen, dass auch Ladungszustände mit $q > 9$ erzeugt werden. Die entsprechenden Emissionslinien können außerhalb des Wellenlängenbereiches des Spektrometers liegen und daher nicht beobachtet werden. Analog gilt das für die Beiträge von $\text{Ar} 1+$, $\text{Ar} 2+$ und $\text{Ar} 3+$, wobei deren Existenz über das blaue Plasmaleuchten gegeben ist, s. Abschnitt 4.1.

Die Emission der EUV-Strahlung hängt stark von den Eigenschaften der NIR-Laserpulse ab. Abbildung 4.7 zeigt gemessene Spektren für drei verschiedene Pulsintensitäten. Die Einstellung der Intensität erfolgt durch Änderung der Pulsenergie im Bereich von 0.92 mJ bis 1.46 mJ bei einer konstanten Pulslänge von 100 fs, d.h. es wird die Photonenzahl variiert. Bei einer Intensität von $7.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ sind die Emissionslinien nur schwach ausgeprägt. Mit einer Erhöhung auf $8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ entwickelt sich das Spektrum drastisch. Das entspricht einer Intensitätszunahme von 20 % und impliziert die Existenz einer Emissionsschwelle und eine nichtlineare Intensitätsabhängigkeit. Bevor diese Punkte genauer analysiert werden, ist zunächst eine allgemeine Beschreibung der Emissionsspektren erforderlich.

4.3.1. Charakterisierung des Hintergrundsignals

Die gemessenen Spektren enthalten ein kontinuierliches Hintergrundsignal, das mit steigender Laserintensität zunimmt, s. Abbildung 4.7. Obwohl bei geringen Intensitäten kaum EUV-Linien beobachtet werden, ist das Hintergrundsignal bereits deutlich ausgeprägt. Die Form des Hintergrundes lässt eine Aussage über den Ursprung zu. Die markante Absorptionskante des Aluminiumfilters bei $\lambda = 17 \text{ nm}$ ist bei geringen Laserintensitäten kaum vorhanden. Sie entwickelt sich erst mit dem Auftreten der Linienemission. Das lässt darauf schließen, dass das Hintergrundsignal keine EUV-Beiträge enthält, sondern

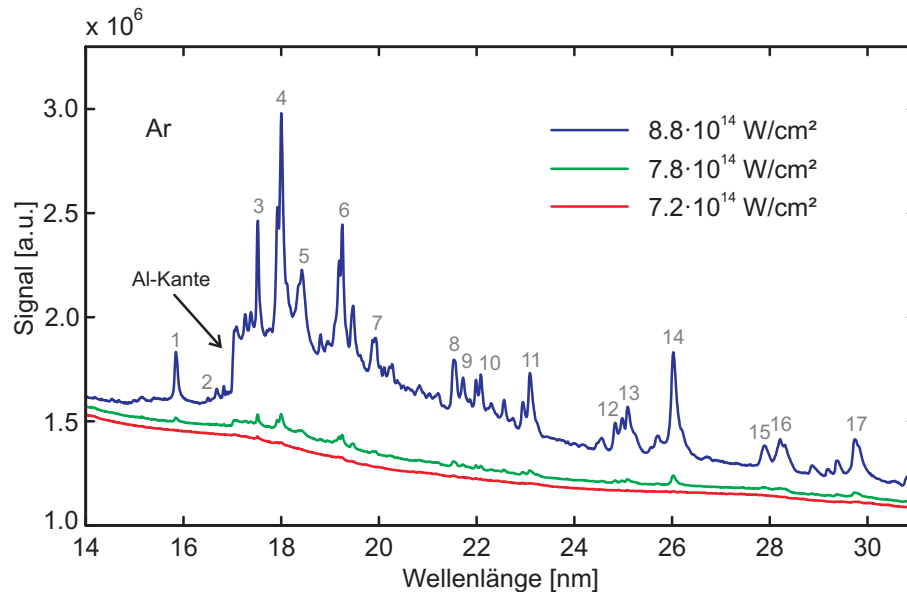


Abbildung 4.7.: EUV-Fluoreszenzspektren von Argon nach Anregung mit verschiedenen intensiven Laserpulsen. Die Intensität wird über die Pulsenergie bei konstanter Pulslänge variiert. Für eine Intensität von $7.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ sind die Emissionslinien nur schwach ausgeprägt. Innerhalb einer Intensitätszunahme von 20 % auf $8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ entwickelt sich das Linienspektrum deutlich. Jedes Spektrum enthält einen systematischen Hintergrundanteil. Die Absorptionskante des Aluminiumfilters wird erst mit einsetzender EUV-Linienemission beobachtet. Die Beschriftung der Emissionslinien richtet sich nach der Nummerierung in Tabelle 4.1.

sich aus gestreuten NIR-Photonen zusammensetzt. Für die Laserwellenlänge hat der Filter eine flache Transmissionskurve. Es kann davon ausgegangen werden, dass das Hintergrundsignal keine spektrale Information enthält und von systematischer Natur ist.

Die Schlussfolgerung wird durch eine Messung der Intensitätsabhängigkeit der EUV-Emission unterstützt. Dazu werden Spektren im Intensitätsbereich von $5.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bis $8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ aufgenommen. In jedem Spektrum wird der Hintergrund jeweils durch eine Splinefunktion dargestellt und von den Emissionslinien extrahiert. Das Verfahren wird im Abschnitt 3.3.2 im Rahmen der Datenaufnahme vorgestellt. Beide Beiträge - Linienemission und Hintergrund - werden separat über den Wellenlängenbereich aufintegriert und die Signalstärke in Abhängigkeit von der Laserintensität dargestellt, s. Abbildung 4.8. Die Linienemission zeigt wie erwartet mit zunehmender Laserintensität einen stark nichtlinearen Verlauf. Für $I \approx 7.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ kann eine Schwelle in der EUV-Emission identifiziert werden. Das ist in guter Übereinstimmung mit Literaturwerten für die Tunnelionisation von Argon [77, 83–86]. Unterhalb der Schwelle ist unabhängig von der Intensität kaum eine Emission messbar, oberhalb der Schwelle steigt die Signalstärke überproportional an. Bis $I = 8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ wird eine Zunahme der Emission

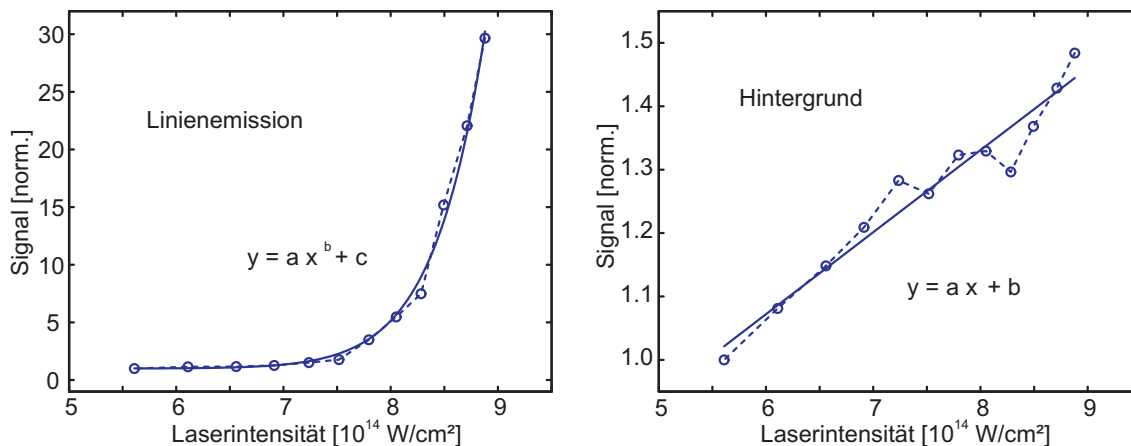


Abbildung 4.8.: Intensitätsabhängigkeit der Linienemission (links) und des Hintergrundes (rechts). Die Beiträge werden separat aus gemessenen Spektren extrahiert. Die Verläufe sind auf I_{\min} normiert. Die gestrichelten Kurven folgen den Messpunkten und dienen der Führung des Auges. Die durchgezogenen Kurven entsprechen einem Potenz- bzw. Geradenverlauf. Die Linienemission zeigt eine stark nichtlineare Abhängigkeit mit einer Schwelle bei $I \approx 7.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Der Hintergrund entwickelt sich linear mit der Intensität. Das entspricht hier einer direkten Proportionalität zur Anzahl der NIR-Photonen im Laserpuls.

um etwa einen Faktor 30 erreicht. Der Hintergrundsignal zeigt dagegen ein anderes Verhalten. Hier wird im gesamten Intensitätsbereich ein linearer Anstieg beobachtet. Die Zunahme ist mit einem Faktor 1.5 gegenüber der Linienemission reduziert. Offensichtlich entwickelt sich der Hintergrund unabhängig vom Linienspektrum. Da in der Messung die Intensität über die Pulsenergie E_p bei konstanter Pulslänge eingestellt wird, ergibt sich mit $I \sim E_p = n \cdot \hbar\omega$ eine direkte Proportionalität zwischen dem Hintergrundsignal und der Anzahl der NIR-Photonen n . Das unterstützt die Annahme, dass sich der Hintergrund aus gestreuten NIR-Photonen zusammensetzt und keine EUV-Beiträge enthält.

Der stark nichtlineare Anstieg der EUV-Linienemission in Abbildung 4.8 links erinnert an die Intensitätsabhängigkeit der Multiphotonionisation, s. Abschnitt 2.1.1. Die Ionisationsrate $W_{\text{MPI}} = \sigma_n I^n$ skaliert in n -ter Ordnung mit der Laserintensität [76]. Das gemessene EUV-Signal folgt diesem Verlauf. Allerdings resultiert aus der Darstellung mit $n = 18$ eine zu geringe Photonenzahl. Mit $n \cdot \hbar\omega = 18 \cdot 1.5 \text{ eV} = 27 \text{ eV}$ wird die Ionisationsschwelle für keinen der beobachteten Ladungszustände erreicht. Der nichtlineare Verlauf der Emissionsstärke kann an dieser Stelle auf den kaskadenartigen Ablauf der Elektronenstöße und die kontinuierliche Energiezunahme über inverse Bremsstrahlung zurückgeführt werden.

4.3.2. Stabilität der Emission

Im Abschnitt 3.2 wird der spontane und unregelmäßige Prozess der Tropfenerzeugung beschrieben. Die Instabilitäten des Tropfenstrahls lassen sich in der Emission der EUV-Fluoreszenz beobachten. Durch die inhomogene Überlagerung der Tropfen mit den Laserpulsen ist die Wechselwirkung jeweils unterschiedlich stark ausgeprägt. Die gemessenen Signalstärken unterliegen erheblichen Schwankungen. Für eine quantitative Abschätzung wird eine Messreihe über 1000 Spektren bei identischen Laserparametern aufgenommen. Die Messungen erfolgen im Einzelschuss-Modus, d.h. es wird das EUV-Signal einzelner Laserpulse detektiert. Der Beitrag der Linienemission wird aus den Spektren extrahiert und über den Wellenlängenbereich aufintegriert. Abbildung 4.9 zeigt ein Histogramm der resultierenden EUV-Signalstärken. Zusätzlich sind die Einzelschuss-Schwankungen der Laserpulse in Bezug auf Pulsenergie und Strahlage angegeben. Letzteres wird über den Aufbau der NIR-Transmissionsmessung ermittelt, s. Abschnitt 4.2. Die Position des Strahlprofils auf dem CCD-Chip wird ausgewertet. Das entspricht der Richtung des Poynting-Vektors [155]. Die Messung erfolgt ohne Argon-Tropfenstrahl und ebenfalls über 1000 Laserpulse.

Es zeigt sich, dass die Laserpulse eine hohe Puls-zu-Puls-Stabilität aufweisen. Die Streuung in der Poynting-Richtung beträgt 0.1 %. Die Pulsenergie schwankt um 3 %. Die Messwerte sind symmetrisch um den Mittelwert verteilt. Im Vergleich dazu ist das EUV-Signal weniger stabil. Es treten Fluktuationen von 40 % auf, die nur mit Unregelmäßigkeiten des Argon-Tropfenstrahls erklärt werden können. Die Messwerte sind asymmetrisch um den Mittelwert verteilt, was die starke Intensitätsabhängigkeit der Wechselwirkung widerspiegelt. Bereits eine geringe Abweichung in der Überlagerung mit den Laserpulsen führt zu einer deutlichen Verringerung der EUV-Emission. Mit Einbeziehung der Ergebnisse der Transmissionsmessungen in Abbildung 4.4 ergibt sich folgendes Bild: Aufgrund des unregelmäßig geformten Tropfenstrahls treffen nur 70 % der Laserpulse einen Tropfen ausreichend genau und erzeugen ein messbares EUV-Signal. Innerhalb der 70 % treten Unterschiede in der Überlagerung auf, so dass die gemessene Signalstärke um 40 % schwankt. Im Rahmen dieser Arbeit ist es nicht möglich, die NIR-Transmission und die EUV-Emission für eine Einzelschuss-Analyse zu kombinieren. Mit beiden Methoden kann das Ergebnis einzelner Laserpulse detektiert werden, aber die Synchronisation auf ein und denselben Laserpuls ist nicht gegeben. In den Messungen kann also nicht zurückverfolgt werden, wie genau sich Tropfen und Laserpuls überlagern. Zur Minimierung der Schwankungen werden die Emissionsspektren über 1000 Laserpulse integriert aufgenommen.

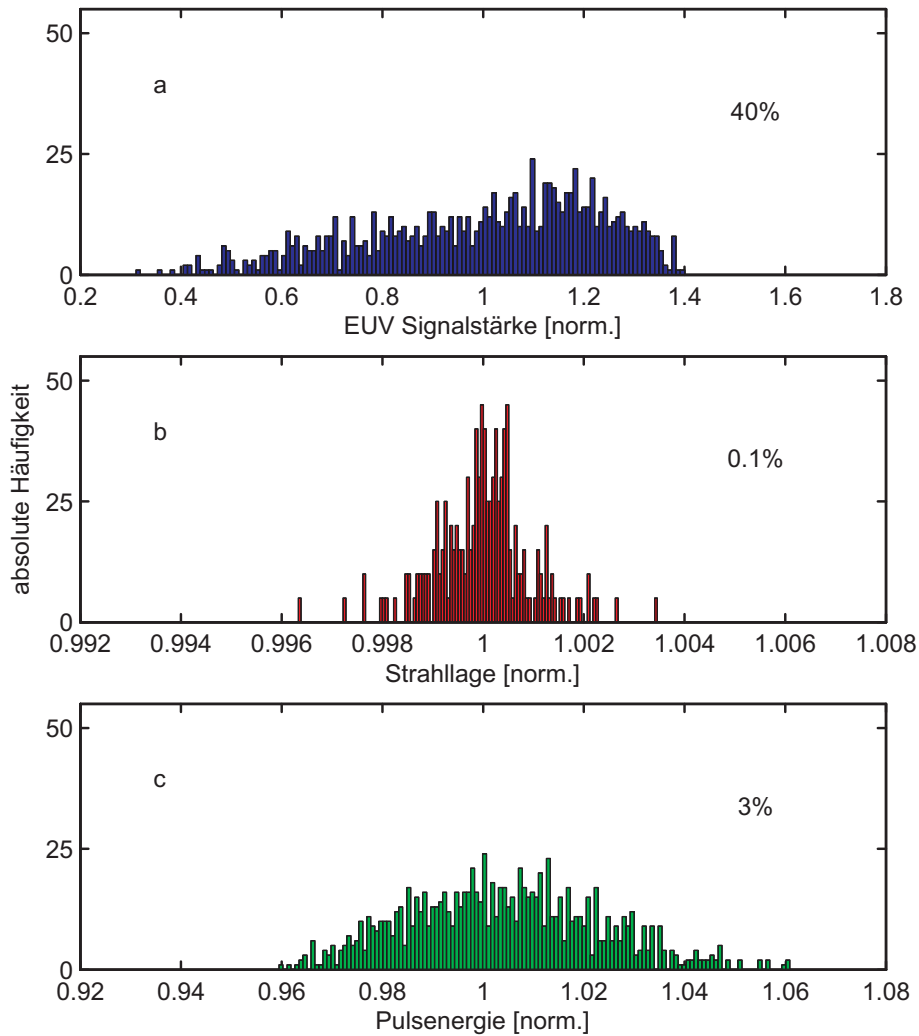


Abbildung 4.9.: Experimentelle Schwankungen. Die x-Achsen der Histogramme sind auf die Mittelwerte der Verteilungen normiert. Die unterschiedlichen Skalierungen sind zu beachten. Die Signalstärke der EUV-Emission (a) unterliegt einer großen Streuung von 40%. Die Laserpulse sind mit Schwankungen von 0.1% in der Strahlage (b) und 3% in der Pulsenergie (c) wesentlich stabiler. Die Unregelmäßigkeiten in der Emission können direkt auf Instabilitäten des Tropfenstrahls zurückgeführt werden.

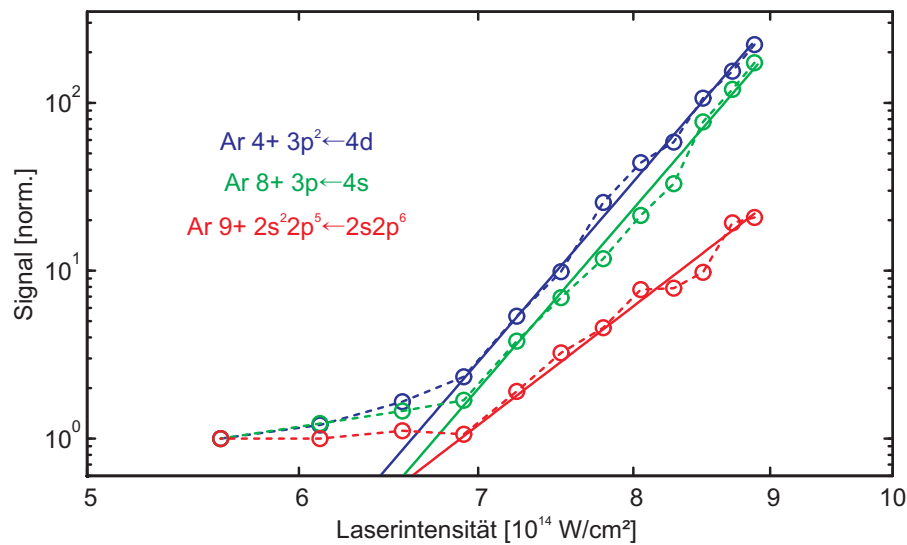


Abbildung 4.10.: Intensitätsabhängigkeit einzelner Übergänge. Die Verläufe sind normiert. Es ist ein nichtlineares Verhalten erkennbar. Die einzelnen Übergänge zeigen gegenüber dem aufintegriertem Gesamtsignal in Abbildung 4.8 eine deutlich stärkere Dynamik. Der abweichende Verlauf von Ar9+ kann auf den Schalenabschluss zurückgeführt werden. Die gestrichelten Kurven folgen den Messpunkten und dienen der Führung des Auges. Die durchgezogenen Kurven veranschaulichen den nichtlinearen Anstieg einer Potenzfunktion $y = ax^b + c$.

4.3.3. Analyse einzelner Übergänge

In der zu Beginn vorgestellten Form der Auswertung wird die Signalstärke anhand des gesamten Spektrums bestimmt. Dabei werden strahlungslose Bereiche einbezogen, die keinen Beitrag zur EUV-Emission liefern. Die Emission der einzelnen Übergänge kann dadurch unterschätzt werden. Im Folgenden wird zu einer individuellen Betrachtung der Emissionslinien übergegangen. Dazu werden die Linienprofile in den hintergrundfreien Spektren durch Gaußkurven dargestellt. Die Höhen der Gaußkurven dienen als Maß für die Emissionsstärken. Abbildung 4.10 zeigt das Ergebnis exemplarisch für die Übergänge Ar 4+ $3p^2 \leftarrow 4d$, Ar 8+ $3p \leftarrow 4s$ und Ar 9+ $2s^2 2p^5 \leftarrow 2s 2p^6$ im Intensitätsbereich $I_1 = 5.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bis $I_2 = 8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Die Kurven sind auf I_1 normiert dargestellt. Der nichtlineare Potenzverlauf der Intensitätsabhängigkeit bleibt in dieser Form der Auswertung erhalten. Allerdings werden Unterschiede im Anstieg und in der Emissionsschwelle beobachtet. Das Emissionssignal der Übergänge Ar 4+ $3p^2 \leftarrow 4d$ und Ar 8+ $3p \leftarrow 4s$ erhöht sich im gemessenen Intensitätsbereich um Faktoren 220 bzw. 170. Im Vergleich dazu steigt das Gesamtsignal in Abbildung 4.8 nur um einen Faktor 30. Einzelne Übergänge zeigen wie erwartet eine erhöhte Emission. Für Ar 9+ $2s^2 2p^5 \leftarrow 2s 2p^6$ steigt das Signal allerdings nur um einen Faktor 20. Die Emission ist gegenüber dem Gesamtsignal reduziert.

Ein ähnlicher Zusammenhang wird in den Intensitätsschwellen beobachtet. Für das Gesamtsignal wird eine Schwelle von $I \approx 7.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ identifiziert, s. Abbildung 4.8. Die Emission der Übergänge $\text{Ar } 4+ \ 3p^2 \leftarrow 4d$ und $\text{Ar } 8+ \ 3p \leftarrow 4s$ setzt bei geringeren Intensitäten ein, für $\text{Ar } 9+ \ 2s^2 2p^5 \leftarrow 2s 2p^6$ bleibt die Schwelle erhalten. Darüber hinaus ist die Emission aus dem Ladungszustand $\text{Ar } 9+$ gegenüber $\text{Ar } 4+$ und $\text{Ar } 8+$ deutlich reduziert. Die Beobachtung kann auf den Schalenabschluss und den sprunghaften Anstieg des Ionisationspotentials bei $q = 8$ zurückgeführt werden, s. Abbildung 2.1. Der Ionisationsschritt von $\text{Ar } 8+$ zu $\text{Ar } 9+$ erfordert eine wesentlich höhere Anregungsenergie. Der Unterschied von $\text{Ar } 4+$ zu $\text{Ar } 8+$ ist weniger stark ausgeprägt.

Generell zeigen alle beobachteten Übergänge aus Tabelle 4.1 ein qualitativ ähnliches Verhalten. Der nichtlineare Potenzverlauf ist lediglich unterschiedlich stark ausgebildet. Die einzelnen Intensitätsabhängigkeiten lassen sich unkorreliert zwischen die Verläufe von $\text{Ar } 4+$ und $\text{Ar } 9+$ in Abbildung 4.10 einordnen. Die Emissionsstärken nehmen im gemessenen Intensitätsbereich um Faktoren zwischen 60 und 220 zu. Allein der Übergang $\text{Ar } 7+ \ 3p \leftarrow 4d$ zeigt eine um den Faktor 400 erhöhte Emission. Es wird keine Emissionslinie beobachtet, die ein signifikant abweichendes Verhalten zeigt und einen gesonderten Anregungsmechanismus vermuten lässt. Die Beobachtungen unterstützen die Annahme, dass die Ladungszustände im Plasma zusammenhängend erzeugt werden.

Bei diesen Aussagen ist zu berücksichtigen, dass die Messungen nicht zeitaufgelöst erfolgen. Das anfangs aufgestellte Modell der Laser-Tropfen-Wechselwirkung geht davon aus, dass sich die Expansion des Plasmas und die Entwicklung der Ladungszustände bis in den Nanosekundenbereich erstrecken und die Emission der EUV-Strahlung verzögert erfolgt. Abbildung 2.6 rechts zeigt, dass hohe Ladungszustände vorrangig in der Anfangsphase der Expansion auftreten, niedrige Ladungszustände dagegen bei abnehmender Temperatur. Das Spektrometer ist jedoch über die Reaktionszeit des CCD-Detektors auf den Mikrosekundenbereich beschränkt. Es liefert Daten, die über die Dauer der Wechselwirkung integriert sind. Wann die EUV-Emission einsetzt und ob zeitliche Unterschiede einzelner Ladungszustände vorliegen, kann im Experiment nicht bestimmt werden.

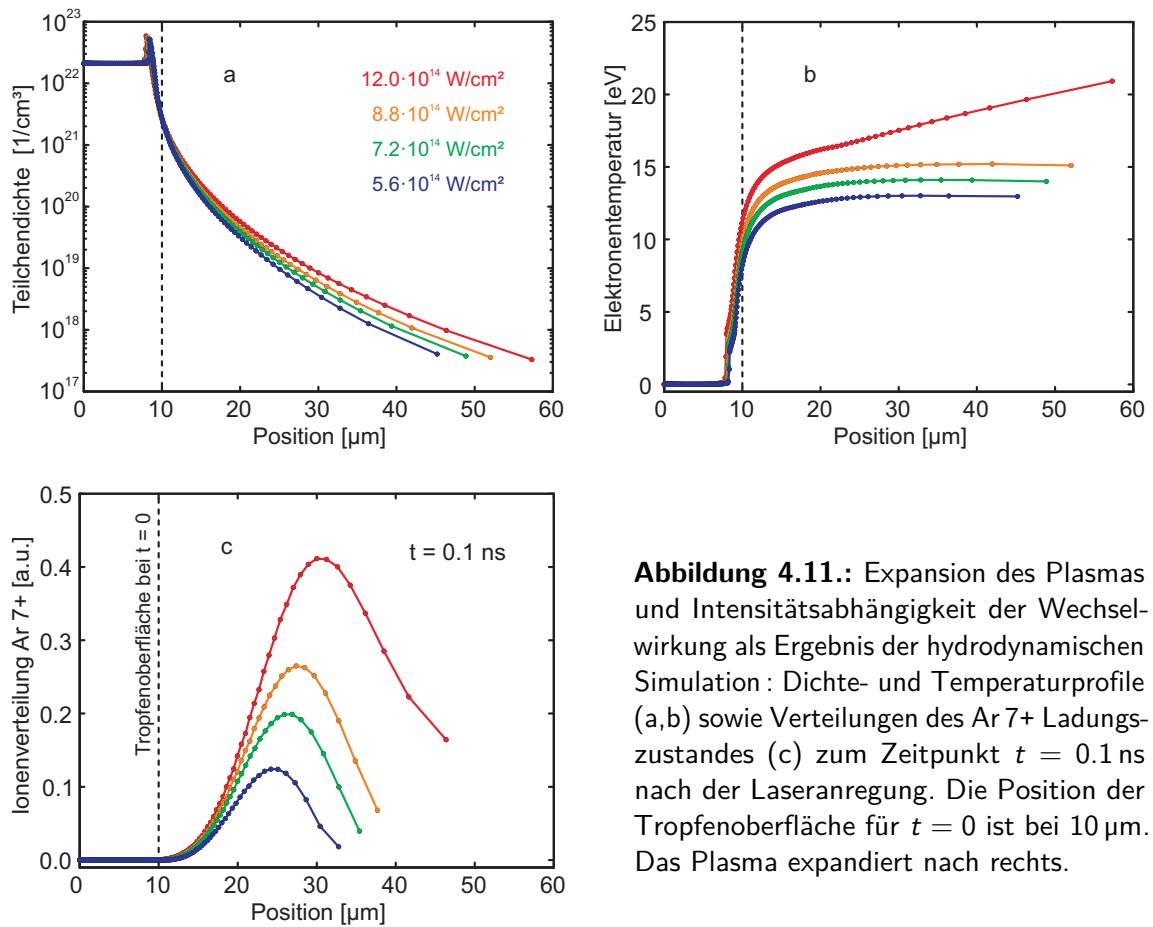


Abbildung 4.11.: Expansion des Plasmas und Intensitätsabhängigkeit der Wechselwirkung als Ergebnis der hydrodynamischen Simulation: Dichte- und Temperaturprofile (a,b) sowie Verteilungen des Ar 7+ Ladungszustandes (c) zum Zeitpunkt $t = 0.1 \text{ ns}$ nach der Laseranregung. Die Position der Tropfenoberfläche für $t = 0$ ist bei $10 \mu\text{m}$. Das Plasma expandiert nach rechts.

4.3.4. Vergleich der Emission mit der Simulation

Das Modell der Plasmaexpansion und der zeitversetzten EUV-Fluoreszenz wird durch die hydrodynamische Simulation unterstützt, die im Abschnitt 2.2.3 vorgestellt wird. Dort wird in Abbildung 2.6 die zeitliche Entwicklung des Plasmas diskutiert. Abbildung 4.11 zeigt an dieser Stelle lokal aufgelöste Dichte- und Temperaturprofile sowie Verteilungen der Ar 7+ Ladungszustände. Die verwendeten Laserintensitäten zwischen $5.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $12.0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und Pulslängen von 100 fs orientieren sich an den experimentellen Werten. Die Simulation wurde für einen $10 \mu\text{m}$ großen, flüssigen Argon-Tropfen durchgeführt. Die Position der Tropfenoberfläche zum Zeitpunkt der Laseranregung ist in den Abbildungen markiert. Die gezeigten Verläufe stellen den Zustand des Plasmas 0.1 ns nach der Anregung dar. Anhand der Dichteverteilung (a) ist deutlich erkennbar, dass die ionisierte Tropfenoberfläche in dieser Zeit um mehrere zehn Mikrometer nach außen expandiert. Die Teilchendichte von 10^{22} cm^{-3} im Tropfeninneren¹⁷ fällt mit zunehmendem Abstand um mehrere Größenordnungen. Mit zunehmender Laserintensität

¹⁷ Die Teilchendichte $2 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ entspricht der Massendichte 1.4 g/cm^3 von Argon in flüssiger Phase.

ist die Expansion tendenziell stärker ausgeprägt. Der Zusammenhang ist linear. Am Übergang von der flüssigen zur expandierenden Phase wird eine Kompression beobachtet, die durch die nach innen gerichtete Komponente des Plasmadrucks entsteht, s. Abschnitt 2.1.3. Stöße zwischen Elektronen und Ionen bewirken gleichermaßen einen Energie- und Massetransport von der Oberfläche in das Tropfenvolumen. Das Plasma hat sich innerhalb der 0.1 ns um 1 bis 2 μm in den Tropfen ausgebreitet. Der Effekt zeigt sich auch im Profil der Elektronentemperatur (b). Das Innere des Tropfens ist mit $T_e = 0$ kalt. Hier erfolgt noch keine Ionisation. Im Bereich der Kompression steigt die Elektronentemperatur sprunghaft an. In der äußeren, expandierenden Schicht dagegen bilden sich Werte zwischen 10 eV und 20 eV aus. Das bedeutet, dass die anfangs mehrere hundert eV heiße Plasmaschicht in der Expansion deutlich abkühlt, s. Abbildung 2.6. Für Intensitäten zwischen $5.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ergibt sich dabei mit zunehmendem Abstand ein konstanter Temperaturverlauf. Es liegt allerdings kein Gleichgewichtszustand vor, da die Dichte weiterhin kontinuierlich abnimmt. Im Fall einer starken Anregung, $I = 12.0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, steigt die Elektronentemperatur mit zunehmendem Abstand. Die Abhängigkeit von der Intensität ist für die Elektronentemperatur nicht linear.

Der Bezug zur EUV-Strahlung ergibt sich aus der Präsenz der Ionen als Quelle für Rekombination und Fluoreszenz. Abbildung 4.11 c zeigt am Beispiel von Ar^{7+} , dass die Ladungszustände einige zehn Mikrometer außerhalb des Tropfens in der expandierenden Plasmaschicht gebildet werden. Das bedeutet, dass sie zeitverzögert zur Laseranregung auftreten. Die Ionenverteilung hängt dabei vorrangig von der Elektronentemperatur ab. Die Intensitätsabhängigkeiten von T_e und $n_{\text{Ar}^{7+}}$ skalieren in gleichem Maße. Der Einfluss der Dichte, die sich hier über mehrere Größenordnung ändert, ist vergleichsweise gering. Es zeigt sich, dass über eine stärkere Laseranregung die Ausbildung der Ladungszustände begünstigt wird. Damit stützen die Ergebnisse der Simulation weitgehend die experimentellen Beobachtungen. Allerdings wird die Intensitätsabhängigkeit des gemessenen EUV-Signals unterschätzt. Der stark nichtlineare Verlauf zwischen $5.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und $8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und die Emissionsschwelle von $7.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ in Abbildung 4.10 wird in der Simulation nicht wiedergegeben. In dem Bereich zeigen die Rechnungen ein lineares Verhalten. Erst für eine höhere Intensität von $12.0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ tritt ein nichtlinearer Anstieg der Elektronentemperatur auf. Darüber hinaus wird in der Simulation kein Ar^{9+} beobachtet, und die Elektronentemperatur erreicht maximal 250 eV, s. Abbildung 2.6.

Im Experiment kann von höheren Temperaturen im Plasma ausgegangen werden. Die Existenz von Ar^{9+} im Spektrum lässt auf mindestens 400 eV vor dem Beginn der Abkühlphase schließen.

Die Abweichungen können auf die Beschränkung der Simulation auf eine Dimension zurückgeführt werden. Unter realen Bedingungen erfolgt die Wechselwirkung in drei Dimensionen, so dass sich hier ein Volumeneffekt ergibt. Die Ionisation durch das Laserfeld erstreckt sich über den gesamten Tropfenquerschnitt und der Energieübertrag über inverse Bremsstrahlung ist stärker ausgeprägt. Elektronen können sich lateral zur Laserpropagationsrichtung bewegen. Es treten überproportional mehr Stöße auf und die Anzahl der Ionen als Quelle der Emission steigt.

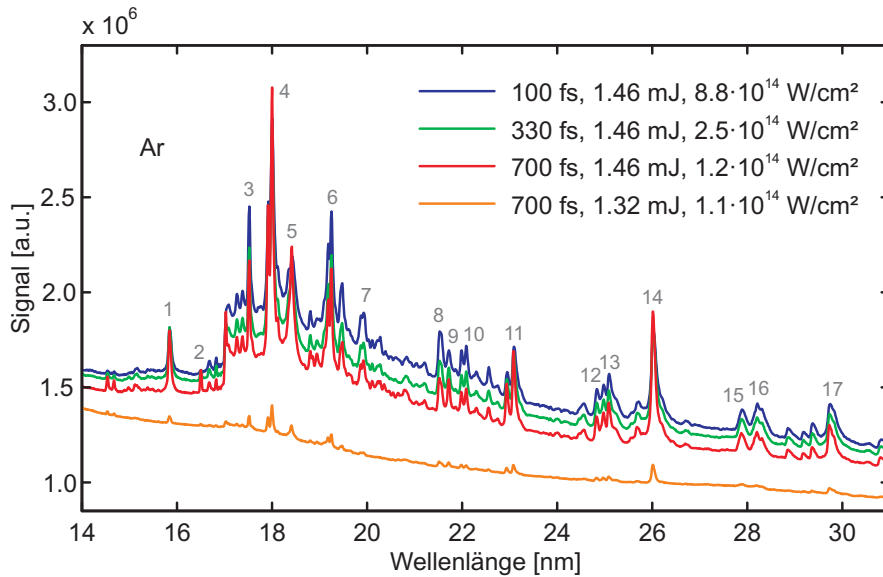


Abbildung 4.12.: EUV-Fluoreszenzspektren von Argon nach Anregung mit unterschiedlich gestreckten Laserpulsen. Trotz reduzierter Intensität sind die Spektren vergleichbar. Erst die Verringerung der Pulsenergie führt zu einer Abnahme des Signals. Die Emissionslinien sind entsprechend Tabelle 4.1 nummeriert.

4.4. Anpassung der Laseranregung durch Pulsformung

Die bisher diskutierten Ergebnisse basieren auf Messungen mit konstanter Pulslänge. Dabei zeigt sich über die Pulsintensität eine deutliche Abhängigkeit von der Form bzw. Amplitude der Pulse. Im Folgenden wird untersucht, wie die Laserpulse weiter an die Dynamik des Plasmas angepasst werden können. Dazu werden sowohl gestreckte Einzelpulse als auch komplexe Multipulsstrukturen eingesetzt. Die experimentelle Umsetzung erfolgt über die Modulation der Phase des Laserfeldes, s. Abschnitt 3.1.3. Die Länge von einzelnen Pulsen wird über die zeitliche Phase $\varphi''(t)$ gesteuert. Die Formung der spektralen Phase $\phi(\omega)$ erzeugt *colored double pulses* und *colored triple pulses*.

4.4.1. Einfluss der Pulslänge

In einem ersten Schritt wird die Pulslänge variiert. Je nach Einstellung ergeben sich unterschiedliche Laserintensitäten. Für einen 100 fs kurzen Puls mit einer Pulsenergie von 1.46 mJ ist $I = 8.8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Für eine Pulslänge von 700 fs reduziert sich die Intensität bei gleicher Pulsenergie auf $1.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Das ist unterhalb der bisher ermittelten Intensitätsschwelle. Trotzdem kann eine EUV-Emission beobachtet werden. Abbildung 4.12 zeigt Ergebnisse für Pulslängen von 100 fs, 330 fs sowie 700 fs. Die Spektren weisen unabhängig von der Pulslänge die typische Linienstruktur auf. Die Emissionsstärke der

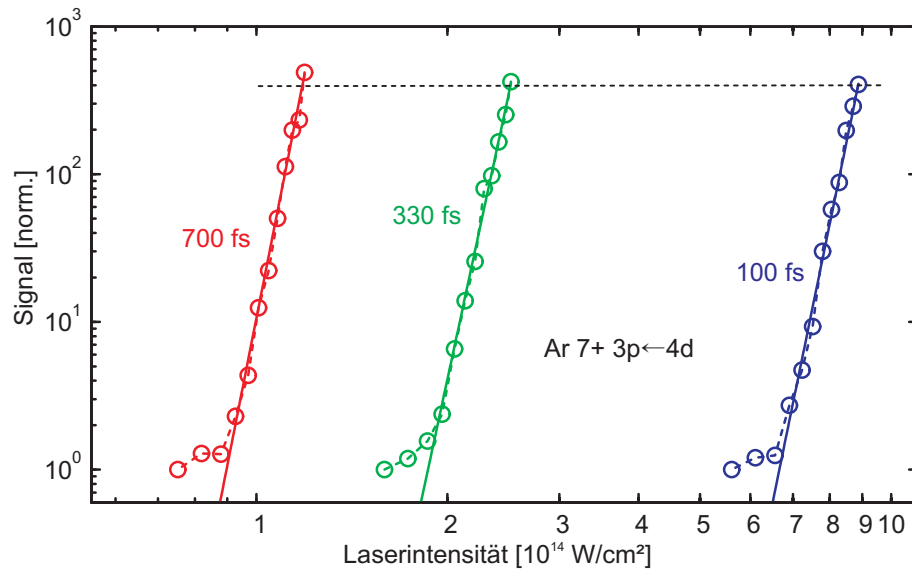


Abbildung 4.13.: Intensitätsabhängigkeit des Überganges Ar 7+ 3p←4d. Für alle Pulslängen wird trotz reduzierter Intensität ein EUV-Signal beobachtet. Mit zunehmender Pulslänge steigt die Signalstärke. Die durchgezogenen Kurven zeigen den nichtlinearen Anstieg $y = ax^b + c$ mit $x = I$.

Linien ist für alle drei Pulslängen vergleichbar. Zum Vergleich ist in der Abbildung ein Spektrum dargestellt, dass mit einem 700 fs langen Puls bei einer reduzierten Pulsenergie von 1.32 mJ aufgenommen wurde. Das entspricht einer Intensität von $1.1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. In diesem Fall wird eine wesentlich geringere Emission beobachtet. Der Effekt wird in einer detaillierten Messung der Intensitätsabhängigkeit deutlich. Dazu werden Pulsenergien im Bereich von 0.92 mJ bis 1.46 mJ bei Pulslängen von 100 fs, 330 fs und 700 fs untersucht. Das entspricht Intensitätsbereichen ($I_{\min} \dots I_{\max}$) von

$$I = (5.6 \dots 8.8) \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2 \quad \text{für } \tau = 100 \text{ fs}$$

$$I = (1.6 \dots 2.5) \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2 \quad \text{für } \tau = 330 \text{ fs}$$

$$I = (0.7 \dots 1.2) \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2 \quad \text{für } \tau = 700 \text{ fs}.$$

Die aufgenommenen Spektren werden anhand einzelner Übergänge analysiert. Abbildung 4.13 zeigt an dieser Stelle das Ergebnis exemplarisch für den Übergang Ar 7+ 3p←4d. Der Einfluss der Pulslänge ist offensichtlich. Die Signalverläufe sind entsprechend der Intensitätsbereiche voneinander separiert. Für lange Pulse wird die EUV-Emission bei geringen Intensitäten beobachtet. Die Emissionsschwelle ist reduziert. Im Bereich von I_{\min} bis I_{\max} wird für $\tau = 100 \text{ fs}$ eine Zunahme um den Faktor 400, für $\tau = 330 \text{ fs}$ um 420 und für $\tau = 700 \text{ fs}$ um 490 beobachtet. Das kann bereits als Anzeichen für eine

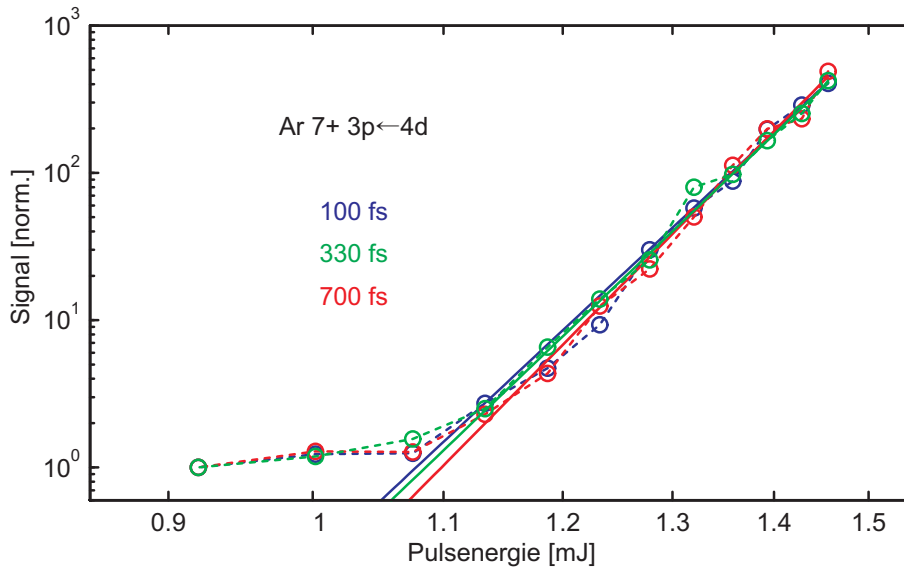


Abbildung 4.14.: Energieabhängigkeit des Überganges Ar 7+ 3p←4d. Im Gegensatz zu Abbildung 4.13 überlagern sich die Verläufe. Die Emissionsschwellen liegen einheitlich bei etwa 1.1 mJ. Die durchgezogenen Kurven veranschaulichen den nichtlinearen Anstieg einer Potenzfunktion $y = ax^b + c$ mit $x = E_p$.

effiziente Anregung durch eine längere Wechselwirkungszeit gedeutet werden. Der stark nichtlineare Verlauf $y = ax^b + c$ wird durch alle drei Pulslängen wiedergegeben, wobei b zwischen 17 und 20 liegt¹⁸.

Der Versatz der Kurven in Abbildung 4.13 lässt vermuten, dass die Intensität der Laserpulse nicht der entscheidende Parameter im Experiment ist. Das Auftragen der Messergebnisse als Funktion der Laserintensität ist für eine Auswertung nicht optimal. Einerseits ist die Emissionsstärke bei $1.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ höher als bei $5.6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, andererseits unterscheiden sich die Emissionsschwellen. Die Spektren in Abbildung 4.12 zeigen vielmehr, dass das EUV-Signal vorrangig durch die Pulsenergie beeinflusst wird. In dem Sinne werden die Messergebnisse erneut in Abhängigkeit von der Pulsenergie $E_p = 0.92 \dots 1.46 \text{ mJ}$ betrachtet, s. Abbildung 4.14. Es ist offensichtlich, dass diese Form wesentlich geeigneter ist. Die Emissionsschwelle liegt für alle drei Pulslängen bei etwa 1.1 mJ, die Anstiege sind vergleichbar. Das nichtlineare Verhalten $y = ax^b + c$ bleibt für $x = E_p$ erhalten. Damit wird die Pulsenergie gegenüber der Pulsintensität als relevanter Parameter für die Emission identifiziert. Eine ähnliche Beobachtung wird von [37] berichtet. Der Einfluss der Pulslänge ist nach wie vor in der Emissionsstärke erkennbar. Für längere Pulse ist das EUV-Signal bei $E_{p,\text{max}}$ erhöht.

¹⁸ Mit $b \cdot \hbar\omega = 20 \cdot 1.5 \text{ eV} = 30 \text{ eV}$ ist Multiphotonionisation auch hier unwahrscheinlich. Das Ionisationspotential von 152 eV für den Ladungszustand Ar 7+ wird nicht erreicht.

Die Beobachtungen können in das Bild der Wechselwirkung zwischen Laserpuls und Tropfen eingeordnet werden, s. Abschnitt 2.1.1. Das Modell geht davon aus, dass durch das Laserfeld zuerst eine Ionisation in geringe Ladungszustände erfolgt. Mit zunehmender Elektronendichte setzt inverse Bremsstrahlung als Heizmechanismus der Elektronen ein. Die steigende Elektronenenergie ermöglicht die Erzeugung hoher Ladungszustände über Stoßionisation. Zusammenfassend können folgende Aussagen getroffen werden :

1. Die Intensität der Laserpulse muss ausreichend hoch sein, um Atome im Laserfeld zu ionisieren und eine initiale Elektronendichte zu produzieren. Das ist in diesen Messungen für alle Intensitätsbereiche gegeben [77, 83--86].
2. Die Energie der Laserpulse muss hoch genug sein, damit sich der Heizprozess über inverse Bremsstrahlung effizient ausbilden kann. Die Elektronenenergie muss soweit ansteigen, dass über Stoßionisation ein Kaskadeneffekt ausgelöst wird. Hier wird eine Schwelle von etwa 1.1 mJ beobachtet.
3. Für Pulsenergien oberhalb der Schwelle ist es effizienter, die Pulse zu strecken und die Wechselwirkungszeit zugunsten einer längeren Heizperiode zu erhöhen. Die Anregung ist damit die Dynamik des Plasmas angepasst und die Ausbildung hoher Ladungszustände wird unterstützt, s. Abschnitt 2.1.3.

4.4.2. Einzel- vs. Doppelpulse

Die ersten Messungen mit gestreckten Pulsen zeigen, dass die EUV-Emission mit zunehmender Pulslänge trotz reduzierter Intensität steigt. Hier stellt sich die Frage, wie sich im Vergleich dazu eine sequentielle Anregung mit Doppelpulsen auswirkt. Sie bieten keinen kontinuierlichen Heizprozess, aber die Intensität bleibt unabhängig vom Pulsabstand erhalten, s. Abbildung 4.15. Das Ergebnis einer Messungen mit $\tau = \Delta t_{\text{cdp}}$ ist in Abbildung 4.16 dargestellt. Als charakteristische Größe wird wieder die Signalstärke des Überganges $\text{Ar } 7+ 3p \leftarrow 4d$ betrachtet. Die Messungen werden bei einer konstanten Pulsenergie von 1.3 mJ durchgeführt. Die Zeitachse der Darstellung verläuft linear bis $t = 800$ fs und gibt gleichermaßen Pulslänge und Pulsabstand wieder. Die Verläufe sind auf die minimale Pulslänge $\tau = 100$ fs bzw. den minimalen Pulsabstand $\Delta t_{\text{cdp}} = 0$ normiert. Sowohl für Einzelpulse als auch für Doppelpulse wird mit zunehmender Zeit ein Anstieg des EUV-Signals beobachtet. Die Verläufe entwickeln sich jedoch grundlegend verschieden. Bis etwa $t = 300$ fs ist die Emission der Doppelpulsanregung geringfügig stärker ausgeprägt. Hier wird eventuell ein Intensitätseffekt beobachtet, da sich die Doppelpulse

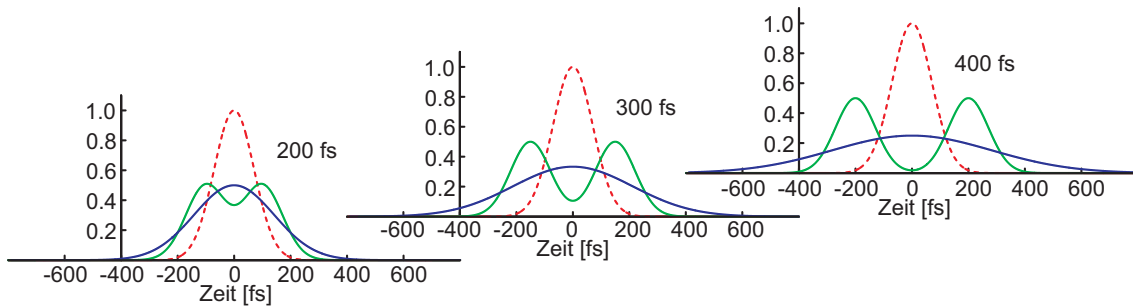


Abbildung 4.15.: Vergleich von Einzel- und Doppelpulsen für $\tau = \Delta t_{\text{cdp}}$. Die rote Pulsform entspricht der Einstellung $\tau = 100$ fs bzw. $\Delta t_{\text{cdp}} = 0$.

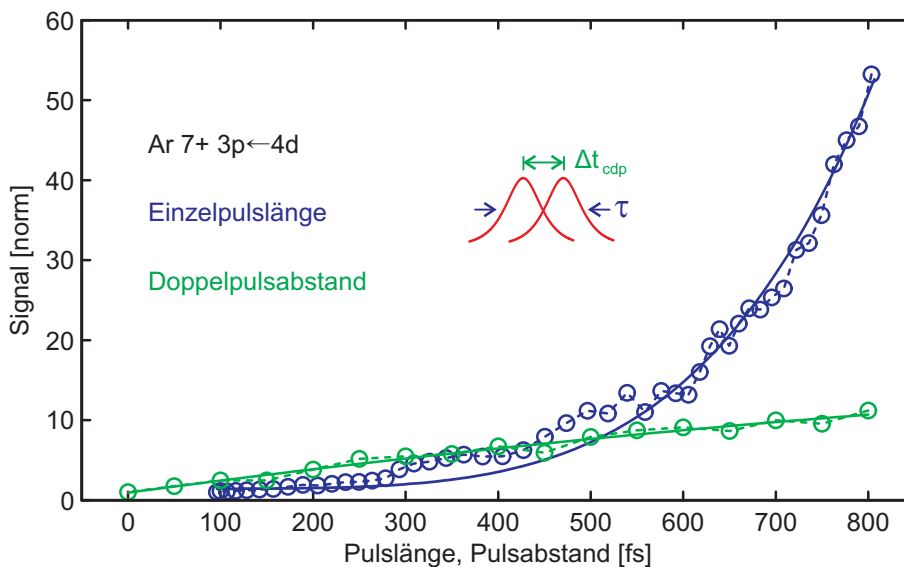


Abbildung 4.16.: Emissionsstärken bei Einzel- und Doppelpulsanregung. Die Verläufe sind auf $\tau = 100$ fs bzw. $\Delta t_{\text{cdp}} = 0$ normiert. Für große Zeiten dominiert die kontinuierliche Anregung.

noch weitgehend überlagern und eine zusammenhängende, gestreckte Pulsform bilden, s. Abbildung 4.15. Es gibt zwei Pulsspitzen mit steilen Flanken und einer Intensität von jeweils $I_0/2$. Bei Einzelpulsen wirkt sich die $1/\tau$ -Abhängigkeit aus, die Spitzenintensität sinkt auf $I_0/3$. Die geringere Intensität kann ein Grund für die schwächere Emission sein.

Für große Zeiten, $t \gg 300$ fs, steigt die Emission der Einzelpulsanregung deutlich an. Die Abhängigkeit von der Pulslänge ist nicht linear. Der Verlauf spiegelt die Verknüpfung von Heizrate und Elektronendichte wieder. Einerseits nimmt die Effizienz der inversen Bremsstrahlung mit steigendem Ionisationsgrad zu, andererseits steigt der Wirkungsquerschnitt für Stoßionisation mit der Elektronenenergie, s. Abschnitt 2.1.1. Mit der Erhöhung der Pulslänge auf $\tau = 800$ fs steigt das normierte EUV-Signal um einen Faktor > 50 . Die Beobachtungen aus den Abbildungen 4.13 und 4.14 werden bestätigt. Die Pulsenergie von

1.3 mJ liegt oberhalb der Emissionsschwelle, und die Intensität $I_{\min} = 0.9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ über der Ionisationsschwelle. In dem Fall dominiert die längere Wechselwirkungszeit gegenüber der Intensitätsabnahme. Die gestreckte Pulsform ist an die Dynamik der Plasmaentwicklung angepasst. Über die gesamte Pulsdauer ist ein kontinuierlicher Energieübertrag aus dem Laserfeld in die expandierende Plasmaschicht möglich [65,66], und es wird ein höherer Ionisationsgrad erreicht. Die steigende Elektronendichte führt wiederum zu einer verstärkten Absorption der Laserstrahlung, s. Abbildung 4.5. Der Resonanzfall $n_e \approx 3n_{\text{krit}}$ als Folge der Plasmaexpansion wird in den Messungen nicht beobachtet. Für μm große Tropfen wird er im Pikosekundenbereich erwartet, s. Abschnitt 2.1.3.

Im Vergleich zu Einzelpulsen ist die sequentielle Anregung mit großen Pulsabständen weniger effizient. Für $\Delta t_{\text{cdp}} \gg 300 \text{ fs}$ sind die Doppelpulse deutlich separiert und es wird beobachtet, dass der Anstieg des EUV-Signals abnimmt. Die erreichte Emissionsstärke bei $\Delta t_{\text{cdp}} = 800 \text{ fs}$ entspricht einer Zunahme um einen Faktor 10. Die Unterbrechung der Anregung hat scheinbar unmittelbar Einfluss auf die Plasmadynamik. Der Aspekt wird im nächsten Abschnitt genauer untersucht.

Die Aussagen sind qualitativ auf die anderen Übergänge übertragbar. Die Daten geben keinen Hinweis auf eine abweichende Anregungsdynamik.

Die Ergebnisse der hydrodynamischen Simulation zur Einzel- und Doppelpuls-Anregung sind in Abbildung 4.17 dargestellt. Gezeigt werden Temperaturprofile im Plasma 1 ns nach der Laseranregung für $\tau = \Delta t_{\text{cdp}} = 1 \text{ ps}$ und $\tau = 5 \text{ ps}$ bei konstanter Pulsenergie, d.h.

$$I = 1.0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2 \quad \text{für } \tau = 1 \text{ ps}$$

$$I = 2 \times 5.0 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2 \quad \text{für } \Delta t_{\text{cdp}} = 1 \text{ ps und } \tau = 100 \text{ fs}$$

$$I = 0.2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2 \quad \text{für } \tau = 5 \text{ ps}.$$

Es ist deutlich erkennbar, dass sich das Plasma innerhalb einer Nanosekunde im gesamten Tropfen ausgebreitet hat. Die Elektronentemperatur im Inneren ist auf mehrere eV angestiegen. In der nach außen expandierenden Plasmaschicht bildet sich für $\tau = 1 \text{ ps}$ und $\Delta t_{\text{cdp}} = 1 \text{ ps}$ mit zunehmendem Abstand eine annähernd konstante Temperatur von $T_e = 11 \text{ eV}$ aus. Trotz unterschiedlicher Pulsformen und -intensitäten ergibt sich hier ein identischer Verlauf. An dieser Stelle wird das Experiment unterschätzt, s. Abbildung 4.16. Als mögliche Ursache wird in den Abschnitten 2.2.3 und 4.3.4 die Beschränkung der

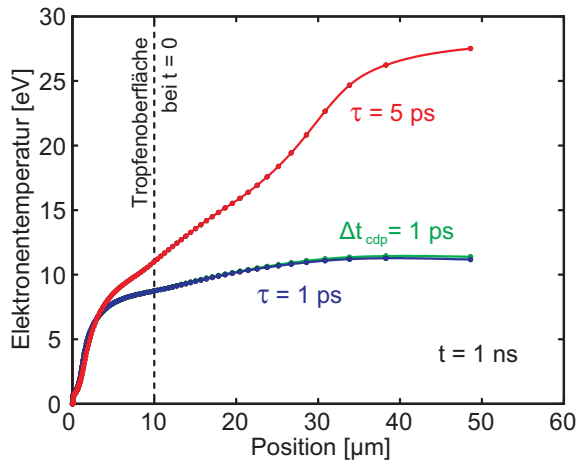


Abbildung 4.17: Temperaturprofile im Plasma als Ergebnis der hydrodynamischen Simulation für unterschiedliche Pulsformen zum Zeitpunkt $t = 1 \text{ ns}$ nach der Laseranregung. Die Position der Tropfenoberfläche für $t = 0$ ist bei $10 \mu\text{m}$. Das Plasma expandiert nach rechts.

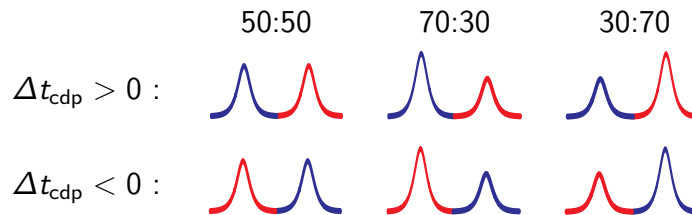
Simulation auf eine Dimension diskutiert. Für $\tau = 5 \text{ ps}$ steigt die Temperatur mit zunehmendem Abstand kontinuierlich an. Mit der deutlich reduzierten Intensität kann der Effekt auf die längere Wechselwirkungszeit zurückgeführt werden. Hier bestätigt die Tendenz die experimentellen Beobachtungen, dass eine Anregung mit gestreckten Pulsen effizienter ist.

4.4.3. Asymmetrische Doppelpulsanregung

In Abbildung 4.16 wird der Verlauf der EUV-Emission für eine Doppelpulsanregung in Abhängigkeit vom Pulsabstand Δt_{cdp} gezeigt. Die Messungen werden bei einer Pulsenergie von $E_p = 1.3 \text{ mJ}$ durchgeführt, so dass jeder Teilpuls eine Energie von $E_p/2 = 0.65 \text{ mJ}$ hat. Das ist unterhalb der beobachteten Emissionsschwelle von 1.1 mJ . Dennoch wird ein EUV-Signal beobachtet, das darüber hinaus mit zunehmendem Pulsabstand ansteigt. Das bedeutet, dass über mehrere hundert Femtosekunden eine Korrelation zwischen den beiden Teilpulsen besteht. In einem vereinfachten Bild der sequentiellen Anregung kann angenommen werden, dass der erste Puls die Tropfenoberfläche ionisiert und eine initiale Elektronendichte erzeugt. Über Elektronenstoß erhöht sich der Ionisationsgrad im Plasma und die Dichte der Elektronen steigt mit der Zeit an. Für den zweiten, verzögerten Puls ist über inverse Bremsstrahlung ein effizienter Energieübertrag in das Plasma möglich, so dass trotz geringer Teilpulsenergie hohe Ladungszustände entstehen können.

Im Folgenden soll dieses Bild überprüft werden. Dazu wird die spezielle Eigenschaft der *colored double pulses* genutzt, die neben dem Abstand der verschiedenfarbigen Doppelpulse auch eine Aufteilung der Pulsenergien $E_{p,\text{blau}} : E_{p,\text{rot}}$ ermöglicht, s. Abschnitt 3.1.3. Damit kann gezielt der Einfluss des Laserfeldes auf die Ionisation und den Heizprozess untersucht werden. Die Messungen werden mit den Einstellungen 50:50, 70:30 und 30:70

durchgeführt. Um die Abhängigkeit von der Pulsenergie weiter hervorzuheben, wird die Gesamtenergie $E_p = E_{p,\text{blau}} + E_{p,\text{rot}}$ auf 1.2 mJ reduziert. Die Energie der Teilpulse beträgt damit 0.4 mJ, 0.6 mJ und 0.8 mJ für 30 %, 50 % und 70 % der Gesamtenergie. Das ist in jedem Fall deutlich unterhalb der Emissionsschwelle. Durch negative Separationszeiten kann die Reihenfolge der Pulse vertauscht werden, so dass der Einfluss der Photonenenergie auf die Wechselwirkung einbezogen wird. Das entspricht in Analogie dem positiven und negativen linearen Chirp gestreckter Pulse. Insgesamt ergeben sich 6 Messreihen :



In dem Schema ist jeweils links der erste und rechts der zweite Puls dargestellt. Abbildung 4.18 zeigt die Ergebnisse der EUV-Emission für den Übergang $\text{Ar } 7+ \text{ } 3p \leftarrow 4d$. Die Verläufe sind jeweils auf $\Delta t_{\text{cdp}} = 0$ normiert. Für alle Pulsformen wird eine EUV-Emission beobachtet. Das ist ein erstes Indiz für eine korrelierte Anregung. Mit zunehmendem Pulsabstand erhöht sich die Signalstärke in allen Messreihen. Dabei wird beobachtet, dass sich die Verläufe entsprechend dem Teilungsverhältnis der Pulsenergie gruppieren. Die Pulsreihenfolge spielt eine untergeordnete Rolle. Das ist nachvollziehbar, da hier im Experiment die Teilchendichte hoch und die Unterschiede in der Photonenenergie gering sind. Mit der Laserwellenlänge $\lambda_0 = 810 \text{ nm}$ kann für die Teilpulse z.B. $\lambda_{0,\text{blau}} = 800 \text{ nm}$ und $\lambda_{0,\text{rot}} = 820 \text{ nm}$ angenommen werden, d.h. $\hbar\omega_{0,\text{blau}} = 1.55 \text{ eV}$ und $\hbar\omega_{0,\text{rot}} = 1.51 \text{ eV}$. Auf die Ausbildung hoher Ladungszustände über Stoßionisation hat der Unterschied wenig Auswirkung. In den Impulsüberträgen der Elektronenbewegung hebt sich die Energiedifferenz auf. Gleiches gilt für Messungen mit gestreckten Pulsen. Eine Diskrepanz zwischen positivem und negativem linearem Chirp wird nicht beobachtet. In kleineren Systemen dagegen ist der Effekt durchaus messbar. In der Literatur wird von der Chirp-Abhängigkeit in Atomen [224--227], Gasjets [228--230] und Clustern [231--233] berichtet. Teilweise werden dabei few-cycle Laserpulse eingesetzt, die durch ein breiteres Frequenzspektrum und größere Unterschiede in den Photonenenergien gekennzeichnet sind [2, 234].

Anders als die Pulsreihenfolge macht sich das Energieverhältnis in den Messungen deutlich bemerkbar. Eine gleichmäßige Aufteilung der Pulsenergie (50:50) liefert die höchste Emission. Abhängig vom Abstand der Pulse zeigt sich, dass bis $\Delta t_{\text{cdp}} = 300 \text{ fs}$ der Anstieg des EUV-Signals am größten ist. In dem Bereich überlagern sich die Pulse, s. Abbildung 4.15. Mit zunehmenden Abständen erfolgt die Anregung sequentiell und der Anstieg des Signals

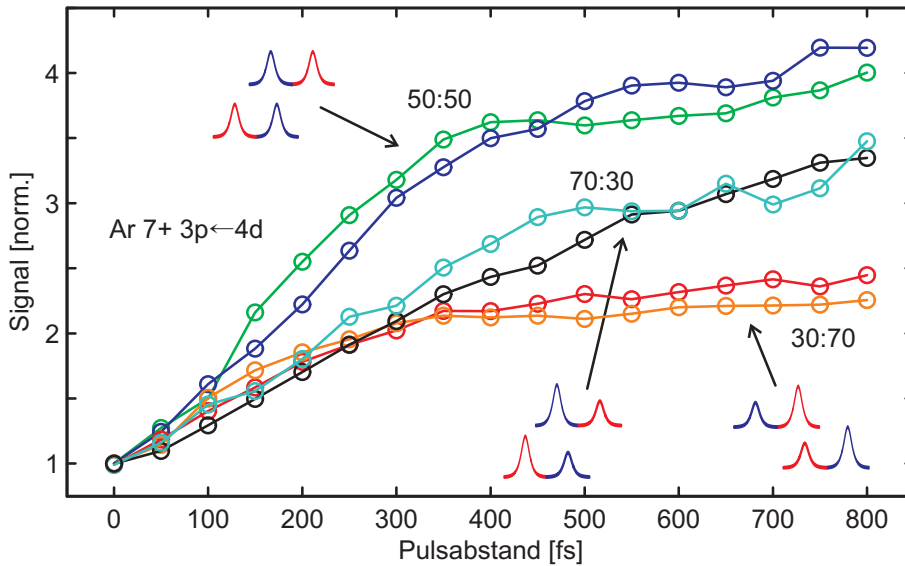


Abbildung 4.18.: Einfluss unterschiedlich geformter *colored double pulses* auf die EUV-Emission. Die Pulsformen variieren zwischen einer symmetrischen Anregung (50:50) und einem starken (70:30) bzw. schwachen (30:70) Vorpuls. Die verschiedenen Photonenenergien der Teilpulse haben auf die Wechselwirkung keine Auswirkung.

nimmt ab. Das entspricht den Beobachtung der Doppelpulsanregung in Abbildung 4.16. Allerdings ist hier als Folge der geringen Pulsenergie die Emissionsstärke reduziert. Die Ionisation und der Heizprozess des Laserfeldes sind weniger effizient. Für $\Delta t_{\text{cdp}} = 800$ fs wird nur noch eine Erhöhung um den Faktor 4 erreicht.

Im Fall einer asymmetrischen Aufteilung sinkt das EUV-Signal ein weiteres Mal. Im Bereich der Überlagerung bis $\Delta t_{\text{cdp}} = 300$ fs sind die Verläufe für 70:30 und 30:70 noch vergleichbar. In der zusammenhängenden Pulsstruktur scheint es unerheblich zu sein, in welcher Reihenfolge die Pulse angeordnet sind. Mit zunehmendem Pulsabstand bilden sich jedoch deutliche Unterschiede aus. Das Signal der 30:70 Anregung bleibt annähernd konstant. Das lässt vermuten, dass der erste Puls zu schwach ist um eine effiziente Wechselwirkung auszulösen. Die Elektronendichte steigt nur geringfügig und erreicht innerhalb von 800 fs nicht den Wert, dass der zweite Puls signifikant wirken kann. Anders verhält es sich bei der 70:30 Anregung. In diesem Fall erzeugt der erste Puls eine ausreichend hohe Elektronendichte. Je größer der Abstand der Pulse, desto länger kann sich die Elektronendichte ausbilden, und das EUV-Signal steigt mit Δt_{cdp} durch den Heizprozess des zweiten Pulses kontinuierlich an. Allerdings ist der zweite Puls nun schwächer, so dass die Signalstärke im Vergleich zur 50:50 Anregung reduziert ist. Eine gleichmäßige Aufteilung der Pulsenergie scheint hier optimal zu sein. Das kann als Ergebnis der reduzierten Gesamtenergie interpretiert werden. In der 30:70 Anregung zeigt sich, dass für eine effiziente

Ionisation eine gewisse Pulsenergie erforderlich ist. In der Pulsumkehr (70:30) ist dagegen der Heizprozess reduziert. Die geringe Energie des schwachen Pulses ($0.3 \cdot E_p$) kann durch die hohe Energie des starken Pulses ($0.7 \cdot E_p$) nicht kompensiert werden. In jedem Fall wird hier das Bild der sequentiellen Anregung bestätigt. Die EUV-Emission und damit die Plasmadynamik reagieren auf die Anregung beider Pulse. Einerseits liegt die Energie eines einzelnen Pulses mit maximal 0.8 mJ unterhalb der Emissionsschwelle, s. Abbildung 4.14. Andererseits wird für eine Einzelpuls-Anregung keine Abhängigkeit von Δt_{cdp} erwartet. Eine Ausnahme stellt hier die Autokorrelationsspur dar, die durch ein Maximum im Bereich der Pulsüberlagerung gekennzeichnet ist. Abbildung 4.18 zeigt ein gegenteiliges Verhalten.

Ist die Energie des ersten Pulses ausreichend zur Erzeugung einer signifikanten Elektronendichte, profitiert die Plasmadynamik über einen *pump-pump* bzw. *pump-heat*-Effekt vom Heizprozess des zweiten Pulses. Das Schema der Doppelpulsanregung wird in der Literatur in verschiedenen Konfigurationen genutzt [38, 45, 72, 73, 109, 120, 142, 235--237], teilweise zur Untersuchung der Plasmaresonanz bei n_{krit} . Mit Blick auf die reduzierte Pulsenergie der *colored double pulses*-Anregung stellt sich hier die Frage, wie das Experiment im Fall einer hohen Gesamtpulsenergie reagiert. Sie wird im nächsten Abschnitt mit dem Übergang zu *colored triple pulses* diskutiert.

4.4.4. Optimierung der EUV-Emission

Die Ergebnisse der Doppelpulsanregung in Abbildung 4.18 resultieren aus systematischen Messungen mit fest vorgegebenen Parametern der *colored double pulses*-Phasenfunktion. Der Einfluss von Pulsabstand, Pulsreihenfolge und Energieverhältnis auf die Wechselwirkung wird anhand einer repräsentativen Auswahl betrachtet. In einem zweiten Ansatz wird nun versucht, die Parameter der Phasenfunktion frei zu variieren und über einen Algorithmus auf eine maximale EUV-Emission zu optimieren. Das bietet die Möglichkeit, Pulsformen abseits der bisher untersuchten Strukturen zu generieren. Der Phasenraum wird über die *colored triple pulses*-Technik auf vier Dimensionen erweitert, so dass bis zu drei Pulse mit frei einstellbaren Abständen und Amplituden geformt werden können, s. Abschnitt 3.1.3. Eine Änderung der Pulslänge ist in dieser Form der Phasenmodulation nicht möglich. Auf diesen Aspekt wird bewusst verzichtet. Die Einschränkung der Pulsenergie in Abbildung 4.18 wird aufgehoben und der maximal mögliche Wert von $E_p = 1.46$ mJ verwendet. Mit dem Bild der sequentiellen Anregung sind mehrere Varianten einer optimalen Pulsform denkbar, die sich auf unterschiedliche Art und Weise auf die Wechselwirkung auswirken können :

- Eine symmetrisch geformte Doppelpulsstruktur im Verhältnis 50:50 ist auch für hohe Pulsenergien ideal. Die Ionisation durch den ersten Puls und der Heizprozess des zweiten Pulses werden gleichermaßen unterstützt.
- Für eine hohe Pulsenergie ist es vorteilhafter, eine Doppelpulsstruktur asymmetrisch aufzuteilen. Ein starker erster Puls erhöht die Ionisation durch das Laserfeld und verbessert die Ausgangsbedingung für einen effizienten Heizprozess des zweiten Pulses. Auf der anderen Seite kann der Heizprozess durch einen starken zweiten Puls gegenüber der Ionisation dominieren.
- Die Ausbildung von drei Pulsen mit geringen Abständen ermöglicht eine kontinuierliche Anregung über einen langen Zeitraum. Das entspricht dem Äquivalent eines gestreckten Pulses.
- Die EUV-Emission profitiert von einer wesentlich komplexeren Pulsstruktur. Mit drei frei einstellbaren Pulsen kann die Wechselwirkung des Laserfeldes besser an die Dynamik des Plasmas angepasst werden. Es resultieren verschieden starke, separierte Pulse.
- Die *colored triple pulses*-Phasenmodulation lässt es zu, dass ein einzelner, kurzer Puls entsteht. Diese Pulsform wird aber aufgrund der bisherigen Beobachtungen nicht als Optimum erwartet.

Generell ist es die Frage, wie die zur Verfügung stehende Pulsenergie aufgeteilt wird. Sowohl Intensität als auch Dauer der Wechselwirkung beeinflussen den Ionisationsgrad des Plasmas und damit die Stärke der EUV-Emission. Als Maß für die Effizienz einer Pulsform wird wie in den Abbildungen 4.16 und 4.18 die Emissionslinie des Überganges $\text{Ar } 7+ 3p \leftarrow 4d$ genutzt. Die Optimierung wird mit dem Downhill-Simplex Algorithmus nach Nelder und Mead [174] durchgeführt, s. Abschnitt 3.1.3. Der Algorithmus erwartet eine direkte Antwort auf eine Pulsform, so dass die Signalstärke in situ aus den Rohdaten extrahiert werden muss. Dazu wird der systematische Hintergrund der Spektren näherungsweise durch eine Trapezfunktion angepasst und das Verhältnis aus Signal und Hintergrund als Funktionswert übergeben. Die Verhältnisbildung minimiert in gewissem Rahmen Schwankungen, die durch den instabilen Tropfenstrahl auftreten. Andererseits wird die Signalstärke der Emissionslinie in Bezug auf den Hintergrund und die Effizienz der Pulsform hervorgehoben.

Abbildung 4.19 zeigt die Entwicklung des Funktionswertes für mehrere Durchgänge der Optimierung bei identischen Startparametern. Es ist in jedem Fall eine Zunahme der

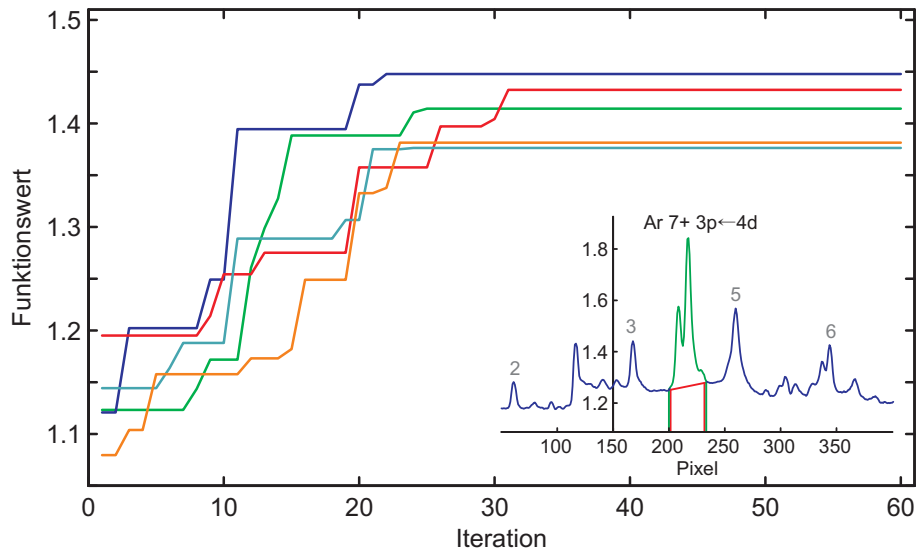


Abbildung 4.19.: Durchläufe der Optimierung bei identischen Startparametern. Innerhalb von 30 Iterationen wird jeweils ein Anstieg des Funktionswertes um 20 % bis 30 % erreicht. Die unterschiedlichen Trajektorien resultieren aus den Instabilitäten des Tropfenstrahls und der folglich unregelmäßigen Überlagerung mit den Laserpulsen. Inset : Bestimmung des Funktionswertes über das Verhältnis aus Hintergrund und Signalstärke einer Emissionslinie.

Emission um 20 % bis 30 % erkennbar. Die jeweils optimale Pulsform wird innerhalb von 30 Iterationen gefunden. Dabei fällt auf, dass der Verlauf der Funktionswerte trotz deterministischem Algorithmus in jedem Durchgang unterschiedlich ist. Bereits die erste Iteration mit identischen Startparametern liefert verschiedene Ergebnisse. Der Effekt kann direkt auf einen instabilen Tropfenstrahl zurückgeführt werden. Schon geringe Abweichung in der Überlagerung zwischen Laser und Tropfen führen über die starke Intensitätsabhängigkeit der Wechselwirkung zu Schwankungen im EUV-Signal. Darüber hinaus muss davon ausgegangen werden, dass nur 70 % der Laserpulse einen Tropfen treffen, s. Abbildung 4.4. Die experimentellen Bedingungen sind nicht konstant. Hier zeigt sich, dass der Downhill-Simplex Algorithmus weitgehend unempfindlich gegenüber derartigen Störungen ist. In allen Durchgängen wird eine optimale Pulsform gefunden und das EUV-Signal maximiert. Abbildung 4.20 zeigt die Ergebnisse der Pulsrekonstruktion aus THG-Frog-Messungen, s. Anhang A.1. Die Pulsformen konvergieren einheitlich in eine Doppelpulsstruktur mit einem starken Vorpuls, der 70 % bis 80 % der Pulsenergie enthält. Der Abstand zum zweiten Puls variiert zwischen 300 fs und 600 fs.

Mit der eingestellten Gesamtenergie von 1.46 mJ liegt die Vorpulsenergie zwischen 1.0 mJ und 1.2 mJ. Das entspricht dem Bereich der Energieschwelle für die EUV-Emission, s. Abbildung 4.14. Mit dem Erreichen der Schwelle ist es offenbar effizienter, die zusätzlich

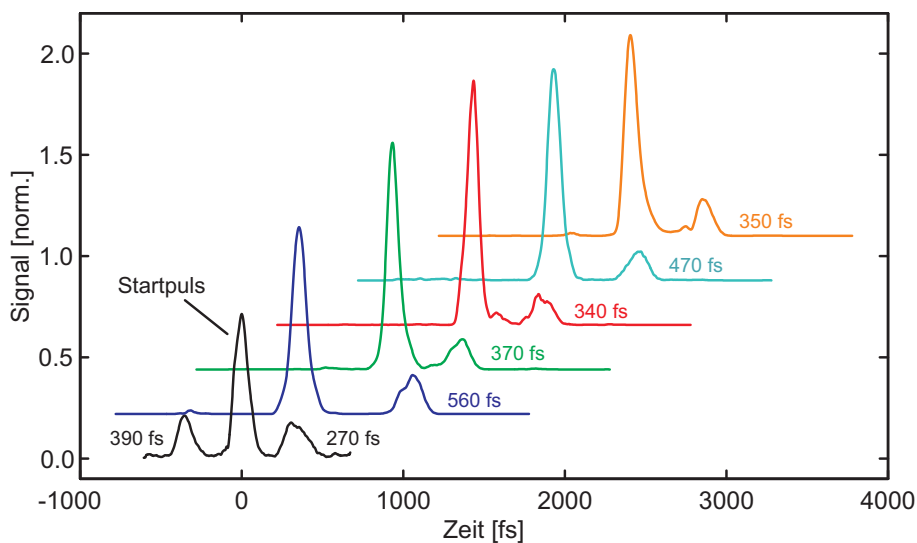


Abbildung 4.20.: Rekonstruktion der Pulsformen $A(t)$ aus THG-Frog-Messungen. Die Dreipulsstruktur des Startwertes (schwarz) konvergiert einheitlich in eine asymmetrische Doppelpulsform mit starkem Vorpuls. Die Vorpulse haben eine Pulsenergie zwischen 1.0 mJ und 1.2 mJ. Zur besseren Visualisierung sind die Verläufe gegeneinander verschoben dargestellt. Die angegebenen Zahlenwerte entsprechen den Pulsabständen. Die Farbzuzuordnung ist mit Abbildung 4.19 identisch.

zur Verfügung stehende Pulsenergie auf einen zweiten Puls aufzuteilen. Die Wechselwirkung profitiert dann von dem zeitversetzt einsetzenden Heizprozess, der an die Dynamik der Plasmaentwicklung und die sich verzögert ausbildende Elektronendichte angepasst ist. Die Messungen mit *colored double pulses* in Abbildung 4.18 zeigen, dass ein großer Pulsabstand die EUV-Emission begünstigt. Hier ergeben sich Abstände zwischen 300 fs und 600 fs, allerdings ohne dass die Erhöhung des EUV-Signals mit dem Pulsabstand korreliert :

Pulsabstand	:	560 fs	470 fs	370 fs	350 fs	340 fs
Signalerhöhung	:	30 %	20 %	26 %	28 %	19 %

Für 370 fs und 350 fs ist beispielsweise die Signalzunahme höher als mit dem größeren Pulsabstand von 470 fs. Die Resultate können durch Instabilitäten des Experimentes bedingt sein. Je nach Überlagerung der Laserpulse mit den Tropfen verläuft die Optimierung unterschiedlich. Eine aussagekräftige Systematik ist nicht erkennbar. In jedem Fall wird die zusätzliche Pulsenergie in einem einzelnen Puls konzentriert. Das kann bedeuten, dass der Heizprozess ebenfalls eine gewisse Intensität erfordert. Eine Aufspaltung in zueinander versetzte Pulse zugunsten einer längeren Heizperiode wird nicht beobachtet.

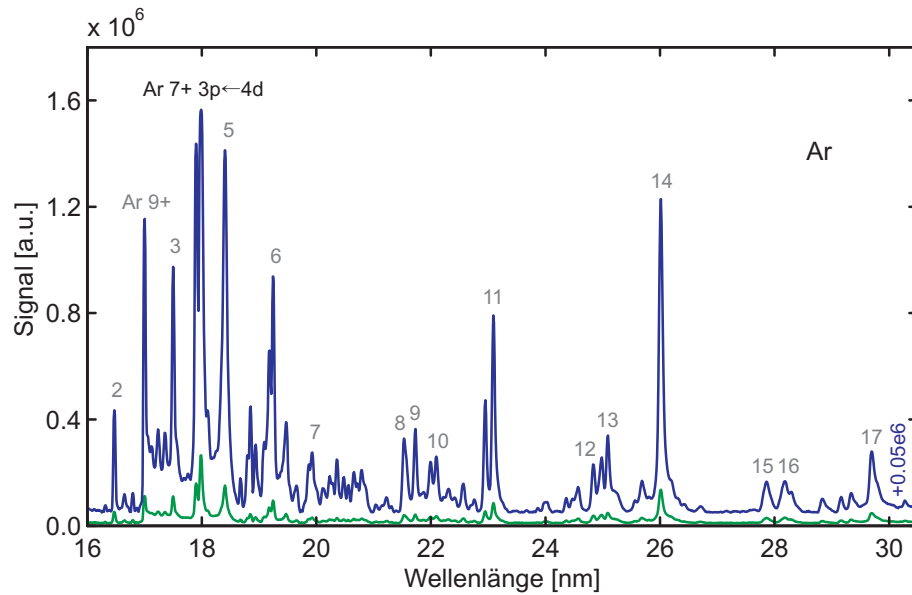


Abbildung 4.21.: Argon-Fluoreszenzspektrum vor (grün) und nach (blau) der Optimierung der Phasenfunktion bei konstanter Pulsenergie. Die Darstellung ist hintergrundfrei. Die Emission nimmt im gesamten Spektralbereich zu. Die Übergänge reagieren zusammenhängend auf die optimierte Pulsform. Die Beschriftung der Übergänge erfolgt nach Tabelle 4.1.

Abbildung 4.21 zeigt das Emissionsspektrum vor und nach der Optimierung bei konstanter Pulsenergie von 1.46 mJ. Die Zunahme der Emission ist offensichtlich. Es stellt sich heraus, dass sich die optimierte Pulsform auf das gesamte Spektrum auswirkt. Durchgehend alle bekannten Emissionslinien sind in der Signalstärke erhöht. Darüber hinaus treten Beiträge auf, die bisher nur schwach oder gar nicht beobachtet wurden. Insbesondere ist das eine Emissionslinie bei $\lambda = 17$ nm, die sich mit der Absorptionskante des Aluminiumfilters überlagert. Über die NIST-Datenbank [131] kann sie einem weiteren Ar 9+ Übergang zugeordnet werden. Die Zunahme der Emission ist je nach Übergang unterschiedlich stark ausgeprägt, der Trend ist jedoch eindeutig. Das gleiche Verhalten wird beobachtet, wenn andere Übergänge als Referenz für die Optimierung eingesetzt werden. In jedem Fall steigt die Emission im gesamten Spektralbereich. Die einheitliche Response auf die optimierte Pulsform lässt vermuten, dass eine Korrelation zwischen der Anregung der unterschiedlichen Ladungszustände besteht. Die Beobachtung kann direkt auf das anfangs aufgestellte Modell der Wechselwirkung zwischen Laserpuls und Tropfen zurückgeführt werden, s. Abschnitt 2.1.3, 2.1.4 und 2.2.3. Das Modell beruht darauf, dass das Laserfeld zu Beginn der Anregung ein Plasma mit geringen Ladungszuständen erzeugt und über inverse Bremsstrahlung ein nachträglicher Energieübertrag erfolgen kann. Die Dauer der Wechselwirkung ist auf einige hundert Femtosekunden begrenzt. Die hohen Ladungszustände als Quelle der EUV-Emission resultieren dagegen aus Stößen zwischen Elektronen

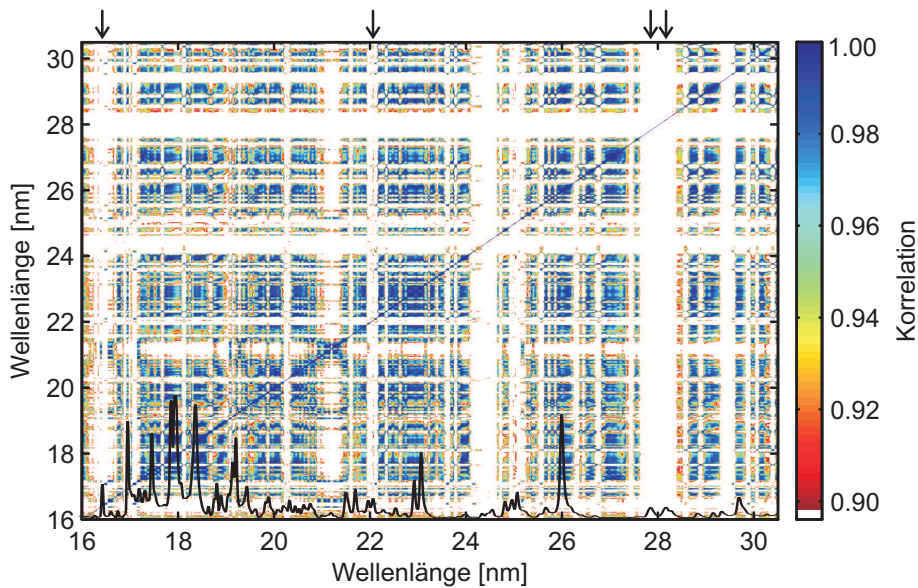


Abbildung 4.22.: Korrelationsmatrix der EUV-Emission bei Anregung mit unterschiedlich geformten Laserpulsen. Es sind Koeffizienten von 0.9 bis 1.0 dargestellt. Die hohen Korrelationen erstrecken sich über den gesamten Spektralbereich. Die Emissionslinien zeigen überwiegend eine vergleichbare Reaktion auf die verschiedenen Pulsformen.

und Ionenrumpfen in der Expansionsphase des Plasmas. Die Ladungszustände können sich auf Zeitskalen bis in den Nanosekundenbereich entwickeln und umformen. Sie sind also über die komplexe Plasmadynamik miteinander verknüpft und entstehen nicht unabhängig voneinander. Dementsprechend profitieren alle Ladungszustände von einer optimierten, effizienten Laseranregung, und die Emission nimmt im gesamten Spektralbereich zu.

4.4.5. Korrelationen im Emissionsspektrum

Das Experiment und die Simulation lassen vermuten, dass die Rekombinations- und Fluoreszenzkanäle der hohen Ladungszustände korreliert im expandierenden Plasma entstehen. Das gesamte Emissionsspektrum reagiert auf die Form der Laserpulse, und die selektive Optimierung eines einzelnen Überganges ist nicht möglich. Diese Beobachtung kann mit einer detaillierten Analyse der Korrelation überprüft werden. Der Optimierungsalgorithmus bietet dazu ideale Voraussetzungen. Das sukzessive Ausprobieren verschiedener Phasenfunktionen liefert zahlreiche Variationen der Anregung. Die Auswertung der Spektren einer Optimierung erfolgt über die Matlab-Funktion *corrcoef*. Abbildung 4.22 zeigt das Ergebnis. Die beiden Achsen der Darstellung entsprechen der Wellenlänge des Emissionsspektrums. Die Farbskala gibt die Stärke der Korrelation K zwischen den einzelnen Punkten der x - und y -Achse wieder. Ein Korrelationskoeffizient von 1 bedeutet eine identische Reaktion auf die unterschiedlichen Pulsformen. Für $K = 0$ ist das Verhalten voneinander unabhän-

In Abbildung 4.22 sind Korrelationskoeffizienten zwischen 0.9 und 1.0 dargestellt. Die Grafik bestätigt die Vermutungen. Über den gesamten Spektralbereich ist eine hohe Korrelation erkennbar, die auf eine vergleichbare Reaktion der einzelnen Ladungszustände auf die verschiedenen Pulsformen hindeutet. Es wird kein Übergang beobachtet, der ein signifikant abweichendes Verhalten zeigt und auf einen gesonderten Anregungsmechanismus schließen lässt. Lediglich vier Zustände zeigen eine leicht reduzierte Korrelation: $\text{Ar } 9^+ 2s^2 2p^5 \leftarrow 2s 2p^6$ (16.5 nm), $\text{Ar } 7^+ 4p \leftarrow 10s$ (22.1 nm), $\text{Ar } 6^+ 3p \leftarrow 4s$ (27.9 nm) und $\text{Ar } 5^+ 3p^2 \leftarrow 4s$ (28.2 nm). Die Wellenlängenbereiche sind in der Abbildung markiert. Durch die Skalierung der Farbachse sind sie weiß dargestellt. Die Korrelation liegt minimal bei $K \approx 0.6$. Eine einheitliche Systematik in Bezug auf Ladungszustand oder Elektronenkonfiguration ist nicht erkennbar. Im Fall von $\text{Ar } 7^+ 4p \leftarrow 10s$ kann möglicherweise mit einem Rydberg-ähnlichen Zustand argumentiert werden, da das 10s-Niveau für diese Arbeit verhältnismäßig weit vom Atomkern entfernt ist, s. Tabelle 4.1 und Abschnitt 2.1.5. Rydberg-Zustände sind durch besonders geringe Übergangswahrscheinlichkeiten gekennzeichnet. Eventuell wird dieser Effekt hier beobachtet. Für den Ladungszustand $\text{Ar } 9^+$ dagegen kann der Schalenabschluss die Ursache für die reduzierte Korrelation sein.

In der Literatur wird von Korrelationsanalysen berichtet, die deutlich differenzierter ausfallen. In [205] und [218] wird z.B. in ähnlichen Experimenten die Emission kurzwelliger Strahlung aus Xenon Clustern betrachtet. Die Cluster werden dabei mit einem Freie-Elektronen-Laser (FEL) bei einer Wellenlänge von 13.5 nm angeregt, so dass Multiphotonionisation stattfindet und hohe Ladungszustände teilweise direkt durch das Laserfeld erzeugt werden. Anhand von Korrelation in den Spektren konnte dort eine Vielzahl bis dahin unbestimmter Emissionslinien identifiziert und Ladungszuständen zugeordnet werden.

4.5. Bestimmung der Plasmaparameter

Die Linienstruktur der EUV-Emissionsspektren kann zu einer weitgehenden Charakterisierung des Plasmas genutzt werden. Über die Wellenlänge der Spektrallinien sind einerseits die Ladungszustände und damit die ionische Zusammensetzung bekannt. Es werden Beiträge bis Ar 9+ beobachtet, wobei Ar 6+ und Ar 7+ im Messbereich dominieren, s. Tabelle 4.1. Andererseits skaliert die Emissionsstärke der Linien mit der Dichte n_e und der Energie respektive Temperatur T_e der Elektronen zum Zeitpunkt der Emission in der Expansionsphase des Plasmas. In dieser Arbeit werden zwei Ansätze genutzt, um aus den Signalstärken der Spektrallinien die Plasmaparameter zu bestimmen, s. Abschnitt 2.2.1 und 2.2.2. Für Beide gilt die Annahme eines lokalen thermodynamischen Gleichgewichtes. Wird die Besetzungsdichte der Elektronen durch eine Boltzmann-Verteilung beschrieben, kann mit Gleichung (2.42)

$$\ln \left[\frac{I_k}{A_k g_k \nu_k} \right] = \ln \left[\frac{c_k h n_0}{g_0} \right] - \frac{E_k}{k_B T_e}$$

eine Regression über mehrere Übergänge k eines Ladungszustandes q durchgeführt werden. Dazu werden die Signalstärken I_k aus den hintergrundfreien Spektren in der Form $\ln [I_k / A_k g_k \nu_k]$ über der Photonenenergie $E_k = h \nu_k$ aufgetragen. Die Signalstärken sind in Bezug auf die wellenlängenabhängige Sensitivität des Spektrometers¹⁹ entsprechend Abbildung 3.13 korrigiert. Die Parameter der Übergänge sind im Anhang in Tabelle A.3.1 angegeben. Aus dem Anstieg der Geradengleichung wird die Elektronentemperatur bestimmt. Der zweite Ansatz basiert auf der Saha-Gleichung und einer Verhältnisbildung der Signalstärken zweier Übergänge i, k in den Ladungszuständen q und $q + 1$. Mit Gleichung (2.45)

$$\ln \left[\frac{I_k}{I_i} \right] - \ln \left[\frac{A_k g_k \nu_k}{A_i g_i \nu_i} \right] = \ln \left[\frac{2(2\pi m_e k_B T_e)^{3/2}}{n_e h^3} \right] - \frac{E_k - E_i + E_{IP,i}}{k_B T_e}$$

ist ebenfalls eine Regression möglich, die zusätzlich zur Elektronentemperatur über den Schnittpunkt die Elektronendichte liefert. Für Gleichung (2.42) werden die Übergänge in den Ladungszuständen Ar 6+ und Ar 7+ verwendet, für Gleichung (2.45) die Coulomb-verschobenen Übergänge Ar 5+..Ar 8+, s. Abbildung 4.6.

In der Auswertung zeigt sich, dass die Signalstärken der EUV-Emission erheblich durch die Instabilitäten des Experimentes beeinflusst sind. Schwankungen in der Überlagerung

¹⁹ Transmission des Filters, Reflektivität des Gitters, Quanteneffizienz des Detektors.

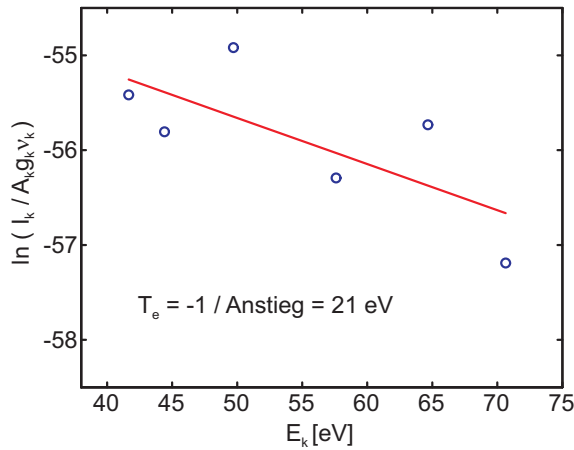


Abbildung 4.23: Boltzmann-Plot nach Gleichung (2.42) für die Ar 6+ Übergänge. Das zugehörige Spektrum wurde mit $\tau = 100$ fs und $E_p = 1.36$ mJ aufgenommen. Der Anstieg der Geraden entspricht einer Elektronentemperatur im Plasma von 21 eV zum Zeitpunkt der Emission.

zwischen Laserpuls und Tropfen führen zu starken Fluktuationen des Messsignals, s. Abschnitt 4.3.2. Geringe Streuungen sollten hier durch die Regression ausgeglichen werden. Es stellt sich jedoch heraus, dass die Abweichungen teilweise deutlich stärker ausgeprägt sind und die Signalstärken nicht der Form (2.42) bzw. (2.45) folgen. Für einen Großteil der aufgenommenen Spektren versagt die Analyse und liefert unrealistische Ergebnisse. Auf der anderen Seite dagegen führen einzelne Messreihen zu beeindruckenden Resultaten, die im Folgenden vorgestellt werden.

In Abbildung 4.23 ist exemplarisch das Ergebnis einer Analyse für Ar 6+ dargestellt. Aus dem Anstieg der Regressionsgeraden ergibt sich eine Elektronentemperatur im Plasma von $T_{e,\text{exp}} = 21$ eV zum Zeitpunkt der Emission²⁰. Das stimmt mit dem Temperaturbereich der hydrodynamischen Simulation überein, s. Abbildung 2.6, 4.11 und 4.17, und bestätigt das Bild der Plasmadynamik dieser Arbeit: In der Wechselwirkung mit dem Laserpuls und über nachfolgende Elektronenstöße wird ein heißes Plasma erzeugt, in dem hohe Ladungszustände entstehen. Wie bereits diskutiert ist für Ar 9+ eine Temperatur von 400 eV erforderlich. Die Emission der EUV-Strahlung dagegen erfolgt stark verzögert in der Expansions- und Abkühlphase des Plasmas. Die Temperatur muss soweit gesunken sein, dass Elektronenstöße nicht mehr zur Ionisation sondern zur Rekombination führen, s. Abschnitt 2.1.4. In diesem Fall sind das 21 eV. Mit der erfolgreichen Analyse des Emissionsspektrums nach Gleichung (2.42) kann angenommen werden, dass die Besetzungsdichten der Elektronen in der expandierenden Plasmaschicht einer Boltzmann-Verteilung entsprechen und ein lokales thermisches Gleichgewicht vorliegt.

²⁰ Die experimentell bestimmten Elektronentemperaturen $T_{e,\text{exp}}$ und -dichten $n_{e,\text{exp}}$ entsprechen alle dem Zustand 'im Plasma zum Zeitpunkt der Emission'. Zugunsten der Lesbarkeit wird auf das Mitführen dieses Zusatzes im Folgenden zum Großteil verzichtet.

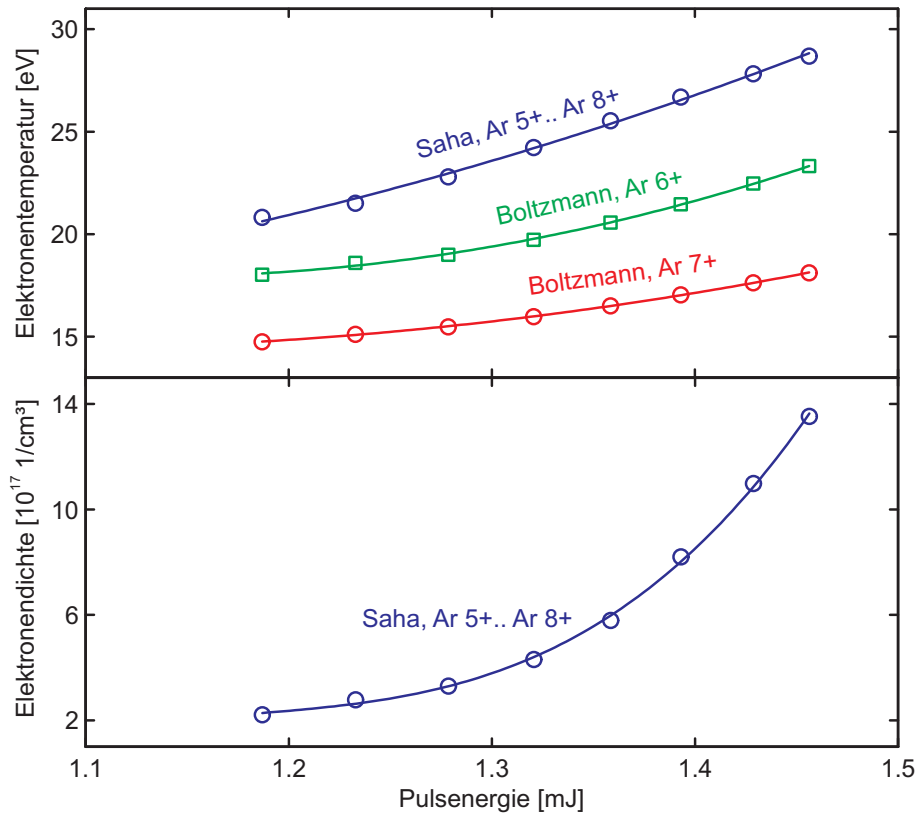


Abbildung 4.24.: Experimentell bestimmte Elektronentemperaturen (oben) und -dichten (unten) im Plasma zum Zeitpunkt der Emission in Abhängigkeit von der Pulsenergie. Die Pulslänge beträgt 300 fs (○) bzw. 100 fs (□).

Aufbauend auf diesen Ergebnissen wird die Auswertung fortgesetzt und auf Messungen mit variierenden Laserparametern ausgedehnt. Abbildung 4.24 oben stellt die Entwicklung von $T_{e,\text{exp}}$ in Abhängigkeit von der Pulsenergie dar. Aufgrund der inkonsistenten Datenlage bedingt durch die experimentellen Schwankungen wird an dieser Stelle auf Messungen mit unterschiedlichen Pulslängen zurückgegriffen. Für den Verlauf von Ar 6+ ist $\tau = 100$ fs, für Ar 7+ und Ar 5+..Ar 8+ 300 fs. Abbildung 4.16 zeigt, dass für diese Werte noch keine großen Unterschiede in der EUV-Signalstärke zu erwarten sind und von vergleichbaren Bedingungen ausgegangen werden kann. Die ermittelten Verläufe von $T_{e,\text{exp}}$ bewegen sich in einem Bereich zwischen 15 eV und 30 eV. Mit zunehmender Pulsenergie steigt die Temperatur in den drei Verläufen annähernd gleichförmig. Eine Abhängigkeit von der Pulslänge ist nicht erkennbar. Die Kurven sind um einige eV zueinander verschoben, wobei dieser Aspekt vernachlässigt werden kann. Unter Verwendung unterschiedlicher Spektrallinien und Analyseverfahren ergibt sich ein übereinstimmender Temperaturbereich, der durch die Simulation bestätigt wird.

In Abbildung 4.24 unten sind experimentell bestimmte Elektronendichten $n_{e,\text{exp}}$ für die Variation von E_p dargestellt. Die Werte liegen zwischen $2 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$ und $14 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3}$. Das ist unterhalb der kritischen Dichte $n_{\text{krit}} = 1.7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$, so dass sich hier der Bezug zur Rekombination ergibt. Der Anstieg mit der Pulsenergie ist stärker ausgeprägt als bei der Temperatur. Mit Blick auf die Simulation in Abbildung 4.11 kann auch hier von einer guten Übereinstimmung ausgegangen werden. Allerdings ist zu beachten, dass in der Simulation die Teilchendichten berechnet sind, also die Anzahl der Atome pro cm^3 . Sowohl im Experiment als auch in der Simulation stellt sich heraus, dass eine erhöhte EUV-Emission mit einer stärkeren Laseranregung und einem heißerem und dichterem Plasma verknüpft ist. Dabei wird beobachtet, dass die Elektronendichte stärker auf die Laseranregung reagiert als die Temperatur. In den gemessenen EUV-Spektren bzw. den gerechneten Ionendichten als Quelle der EUV-Emission ergibt sich ein Verhalten, dass deutlich mit der Temperatur skaliert. Änderungen um Größenordnungen wie in der Dichte werden nicht beobachtet. Das lässt darauf schließen, dass die Stoßionisation im Plasma und die Erzeugung der Ladungszustände vorrangig von der Energie und weniger von der Dichte der Elektronen abhängen.

Eine Literaturrecherche zeigt, dass in ähnlichen Experimenten mit μm großen Tropfen vergleichbare Plasmatemperaturen bestimmt werden [40, 71--74, 120]. Für kleinere Targets in Edelgas-Jets wird teilweise von höheren Elektronentemperaturen und -dichten berichtet [128, 238--240]. Hier kann eine abweichende Plasmadynamik entstehen, da kleine Targets unter Umständen vom Laserpuls vollständig durchionisiert werden können. Der Effekt zeigt sich beispielsweise in der Ausbildung der Plasmaresonanz, s. Abschnitt 2.1.3.

Darüber hinaus bietet die hydrodynamische Simulation eine weitere Vergleichsmöglichkeit. Aus den Elektronentemperaturen und -dichten der *Helios*-Rechnungen können über *Spec3D* [241] Emissionsspektren simuliert werden. In Abbildung 4.25 sind ein berechnetes und ein gemessenes Spektrum gegenübergestellt. Die Emissionslinien werden nahezu ideal wiedergegeben. Das bedeutet, dass in beiden Fällen nicht nur die Ladungszustände im Plasma übereinstimmen, sondern über die Emissionsstärke auch Temperatur und Dichte. Die bisherigen Beobachtungen werden hier nochmals bestätigt. Die Abweichungen in den Spektren unterhalb von 17 nm können auf die reduzierte Transmission des Aluminiumfilters zurückgeführt werden, s. Abbildung 3.13.

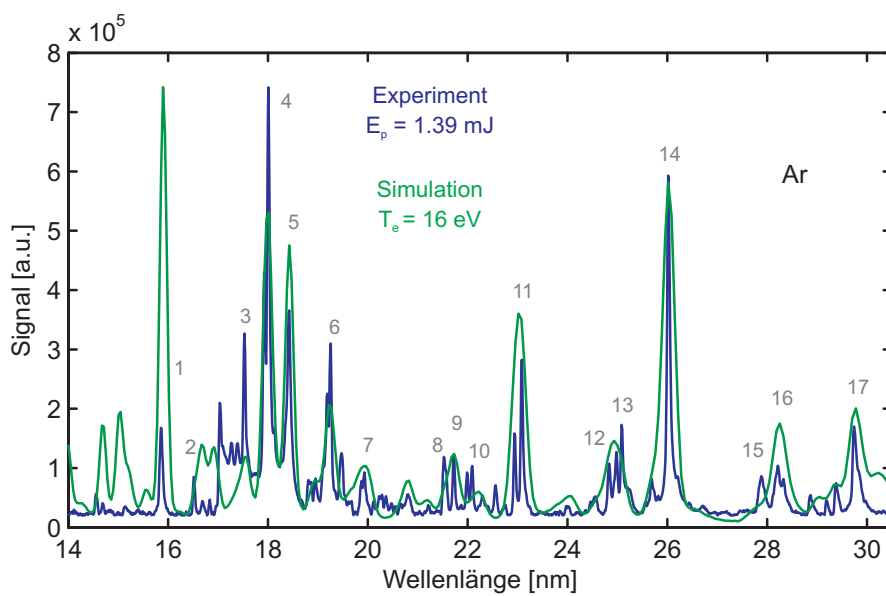


Abbildung 4.25.: Experimentelles und berechnetes Argon-Fluoreszenzspektrum. Die Übereinstimmung lässt auf vergleichbare Plasmaparameter schließen. Für $\lambda < 17 \text{ nm}$ ist die reduzierte Transmission des Aluminiumfilters erkennbar. Die Beschriftung der Übergänge erfolgt nach Tabelle 4.1.

4.6. Absolute EUV Photonenzahl und Konversionseffizienz

Abschließend soll eine Einschätzung des Laser-Tropfen-Experimentes als potentielle EUV-Strahlungsquelle in der Anwendung erfolgen. Es hat sich gezeigt, dass mit Mikrometer großen Tropfen eine starke Emission im extrem-ultravioletten Wellenlängenbereich erzeugt werden kann. Das Themengebiet ist von großem Interesse für die Industrie und wird vielseitig untersucht [58--64, 242--247]. Der Vergleich unterschiedlicher Quellentypen erfolgt häufig über die absolut emittierte Photonenzahl und die Konversionseffizienz. Beide Größen können in dieser Arbeit aus den Spektren abgeschätzt werden²¹. Die Dispersionskurve des Spektrometers, s. Abbildung 3.13, gibt das Verhältnis aus emittierten N_v^0 und detektierten N_v Photonen an :

$$N_v(\lambda) = N_v^0(\lambda) \cdot T_F(\lambda) \cdot R_G(\lambda) \quad (4.2)$$

T_F ist die Filtertransmission und R_G die Gitterreflektivität. Der Zusammenhang der detektierten Photonenzahl mit der Signalstärke I_k einer Emissionslinie als Observable ist über die Quanteneffizienz des Detektors

$$QE(\lambda) = \frac{I_k(\lambda)}{N_v(\lambda)} \quad (4.3)$$

gegeben, also

$$N_v^0(\lambda) = \frac{I_k(\lambda)}{QE(\lambda) \cdot T_F(\lambda) \cdot R_G(\lambda)} \cdot \frac{4\pi}{\Omega} \cdot \frac{1}{N_p} \quad (4.4)$$

Mit $\Omega = 1.6 \cdot 10^{-4}$ sr und $N_p = 1000$ erfolgt hier die Umrechnung der Emission auf den vollen Raumwinkel und die Anregung mit einem einzelnen Laserpuls, s. Abschnitt 3.3.1 und 4.3.2. Aus der absoluten EUV-Photonenzahl N_v^0 und der NIR-Photonenzahl $N_\omega = E_p/\hbar\omega$ pro Puls kann schließlich die Konversionseffizienz bestimmt werden :

$$CE(\lambda) = \frac{N_v^0(\lambda)}{N_\omega} \quad (4.5)$$

Die Rechnung wird für die Pulsenergie- und Pulslängen-Abhängigkeit des Überganges Ar 7+ 3p←4 durchgeführt, vgl. Abbildung 4.14 und 4.16. Die Pulsenergie wird hier bei $\tau = \text{konst.} = 100$ fs variiert, die Pulslänge bei $E_p = \text{konst.} = 1.4$ mJ. Abbildung 4.26 zeigt die Ergebnisse kombiniert in einer Darstellung. Die Achsen sind dabei wie folgt beschriftet : unten = Pulsenergie, oben = Pulslänge, links = EUV-Photonenzahl, rechts

²¹ Die Abschätzung erfolgt unter der Annahme idealer, verlustfreier Bedingungen.

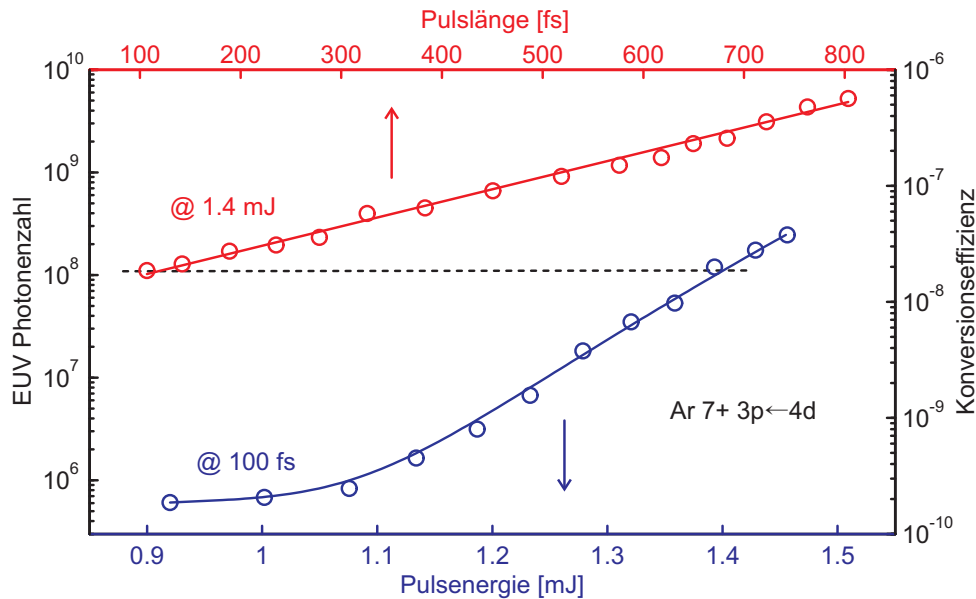


Abbildung 4.26.: Absolute EUV-Photonenzahl (links) und Konversionseffizienz (rechts) in Abhängigkeit von der Pulsenergie (unten) und der Pulslänge (oben). Die gestrichelte Linie markiert vergleichbare Photonenzahlen und Konversionseffizienzen für jeweils $E_p = 1.4 \text{ mJ}$ und $\tau = 100 \text{ fs}$.

= Konversionseffizienz. Beginnend mit der Pulsenergie zeigt sich, dass Photonenzahl und Konversionseffizienz im Messbereich von 0.92 mJ bis 1.46 mJ um etwa $2^{1/2}$ bzw. 2 Größenordnungen ansteigen. Die Emissionsschwelle und der stark nichtlineare Verlauf sind deutlich erkennbar. Für $E_p = 1.4 \text{ mJ}$ wird $N_v^0 \approx 1 \cdot 10^8$ und $CE \approx 2 \cdot 10^{-8}$ erreicht. Das ist an dieser Stelle mit dem Ergebnis der Pulslängen-Messung vergleichbar, die auf der oberen Achse dargestellt ist. Die gestrichelte Linie zeigt die Verbindung und verknüpft beide Messungen miteinander. Hier kann eine der Kernaussagen dieser Arbeit beobachtet werden: Mit dem Übergang von der Pulsenergie zur Pulslänge steigen EUV-Photonenzahl und Konversionseffizienz mit der Streckung der Pulse weiter an. Die Pulsenergie respektive NIR-Photonenzahl bleibt in diesem Fall konstant, die Pulsintensität sinkt. Die Erhöhung der Pulslänge von 100 fs auf 800 fs liefert einen zusätzlichen Faktor 30. Der Effekt kann auf die verlängerte Wechselwirkungszeit des Laserpulses mit dem Plasma zurückgeführt werden, s. Abschnitt 4.4.1 und 4.4.2. Neben der Erhöhung der Pulsenergie profitiert die Plasmadynamik maßgeblich von einer ausgedehnten Heizperiode.

In den Messungen dieser Arbeit werden maximale EUV-Photonenzahlen und Konversionseffizienzen von etwa $5 \cdot 10^9$ bzw. $6 \cdot 10^{-7}$ erreicht. Im Vergleich mit ähnlichen Experimenten ist das gering. In der Literatur wird von CE -Werten im Promill- und Prozent-Bereich berichtet, also vier bis fünf Größenordnungen höher [37, 60, 242--245]. Die Unterschiede

können z.B. in der Form der Auswertung begründet sein, da die Bestimmung der Emissionsstärken aus den Spektren nicht standardisiert ist. Durch die Analyse einer größeren Bandbreite oder das Aufsummieren mehrerer Spektrallinien erhöht sich die Signalstärke und damit die Konversionseffizienz. Sehr wahrscheinlich ist in diesem Experiment die Limitierung der Pulsenergie auf $E_p = 1.46 \text{ mJ}$ eine weitere Ursache. Der stark nicht-lineare Verlauf der E_p -Abhängigkeit in Abbildung 4.26 zeigt, dass die Emissionsstärke mit einer geringfügigen Erhöhung der Pulsenergie deutlich zunimmt. In Verbindung mit gestreckten Pulsen bietet sich hier eventuell ein Ansatz, die EUV-Photonenzahl und die Konversionseffizienz signifikant zu steigern.

5. Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wird die Plasmafluoreszenz aus der Wechselwirkung intensiver Laserpulse mit Mikrometer großen Argon-Tropfen untersucht. Es wird gezeigt, dass die Effizienz der Laseranregung über eine Anpassung der Pulsform an die Mikroplasmadynamik signifikant gesteigert werden kann. Es hat sich bestätigt, dass die Ausbildung des Plasmas wesentlich durch die hohe Dichte der Tropfen bestimmt ist. Die Aussage stützt sich vor allem auf die Beobachtung hoher Ladungszustände bis Ar^{9+} in den Fluoreszenzspektren, die in einer vergleichbaren Laseranregung atomarer Systeme nicht erreicht werden können. Das wird auf eine effektive Plasmaheizung durch das Laserfeld zurückgeführt. Messungen mit gestreckten Pulsen zeigen eine deutliche Zunahme der EUV-Emission mit der Wechselwirkungszeit. Für Pulslängen zwischen 100 fs und 800 fs wird beobachtet, dass eine ausgedehnte kontinuierliche Anregung gegenüber der Intensitätsabnahme dominiert.

Interessant ist, dass im Experiment anstelle der Intensitätsabhängigkeit vielmehr eine Energieabhängigkeit beobachtet wird. Bei $E_p \approx 1.1$ mJ wird eindeutig eine Emissionsschwelle identifiziert. Oberhalb der Schwelle ist die Abhängigkeit der Emissionsstärke stark nichtlinear. Eine Erhöhung der Pulsenergie um 20% führt zu einem Anstieg des EUV-Signals um bis zu einen Faktor 500. Die Schwelle wird in einer Referenzmessung basierend auf einem Optimierungsalgorithmus reproduziert. Hier zeigt sich in der Doppelpulsanregung ein *pump-pump*-Effekt: Ein zweiter, um einige hundert Femtosekunden verzögerter Puls kann die Emission aus dem Mikroplasma deutlich steigern.

Die komplexe Dynamik des Mikroplasmas ist mit bloßem Auge erkennbar. Beobachtungen der Plasmaemission aus Ar^{1+} , Ar^{2+} , Ar^{3+} im sichtbaren Spektralbereich haben gezeigt, dass Ionen um Millimeter propagieren können, bevor Rekombination und Fluoreszenz einsetzen. Die Verknüpfung von Experiment und Simulation impliziert eine langlebige Dynamik auch für hohe Ladungszustände. Eine Reihe von Analysen dieser Arbeit, z.B. die Bestimmung der Elektronentemperatur und -dichte anhand Ar^{5+} bis Ar^{8+} , werden durch hydrodynamische Rechnungen unterstützt, die auf einer Expansionsphase des Mikroplasmas bis in den Nanosekundenbereich basieren.

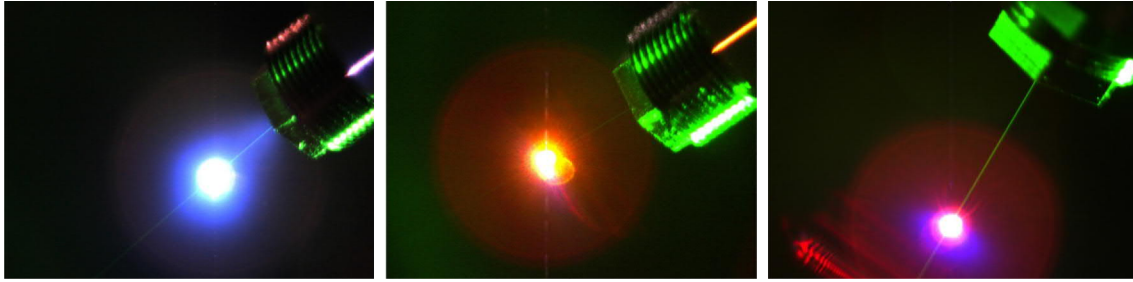


Abbildung 5.1.: Steuerung der Plasmaemission im sichtbaren Spektralbereich durch Doppelpulsanregung mit Nanosekunden-Abständen. rot: $\Delta t \approx 1/2$ ns, orange: $\Delta t \approx 1$ ns. Die Emission kann auf Fluoreszenz aus niedrigen Ladungszuständen Ar 1+ und Ar 2+ zurückgeführt werden [131]. Das blaue Plasmaleuchten entspricht dem bekannten Bild dieser Arbeit.

Die Beobachtungen lassen sich in einer Doppelpulsanregung auf Basis eines interferometrischen Aufbaus überprüfen. Mit dieser Methode sind Pulsabstände mit Piko- und Nanosekunden realisierbar. Abbildung 5.1 zeigt, dass in diesen Experimenten spannende Effekte zu erwarten sind. Unter Umständen kann die Plasmaresonanz beobachtet werden. Das würde eine Vielzahl der Annahmen dieser Arbeit bestätigen. Daneben hat sich klar herausgestellt, dass die Anregung mit einer höheren Pulsenergie in Verbindung mit gestreckten Pulsen das Potential für eine weitere Steigerung der EUV-Emission bietet.

Die Analyse der Transmission der Laserpulse kann auf eine Analyse der Wellenfronten der Laserpulse erweitert werden. Das Mikroplasma verursacht eine Reduktion des Brechungsindex, so dass eine Phasenverschiebung im Strahlprofil beobachtet werden kann. Anhand räumlicher Interferenz ist damit z.B. auf alternativem Weg die Elektronendichte bestimmbar [248--251]. Auf der anderen Seite ist es wünschenswert, mehr über die Ionenzustände im Mikroplasma zu erfahren. Speziell die Frage, wann genau in der Expansionsphase die Emission einsetzt und inwieweit sich Unterschiede zwischen Ladungszuständen ausbilden, ist von Interesse. Korrelationsanalysen der Fluoreszenz zeigen zwar eine eindeutige Verknüpfung der Emissionen einzelner Übergänge. Aber die Simulation lässt vermuten, dass hohe Ladungszustände vorrangig in der Anfangsphase der Expansion auftreten, niedrige Ladungszustände dagegen mit abnehmender Temperatur. Hier bietet sich eine Zeit- und Ladungsaufgelöste Spektroskopie der Argon-Ionen an, z.B. [252].

~

A. Anhang

A.1. Charakterisierung der Laserpulse

Der Einsatz geformter Laserpulse erfordert die präzise Charakterisierung der Pulsstrukturen. Die Problematik der Vermessung von Signalen im Femtosekundenbereich wird z.B. von Trebino [253] ausführlich behandelt. Eine einfache Möglichkeit bietet eine Autokorrelation [254], die die Form der Einhüllenden $A(t)$ des elektrischen Feldes wiedergibt und bereits Aussagen über Pulslängen und -abstände ermöglicht. Mit dem Einsatz einer Phasenmodulation ist jedoch die Kenntnis des vollständigen elektrischen Feldes entsprechend Gleichung (3.13)

$$E(t) = A(t) \exp[-i(\omega_0 t - \varphi(t))]$$

und (3.16)

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{A}(\omega) \exp[-i\phi(\omega)]$$

in Amplitude und Phase notwendig. Dabei kann auf etablierte Techniken wie *Frog* [255], *Spider* [256], *Vampire* [257] oder *Grenouille* [258, 259] zurückgegriffen werden. Das gemeinsame Grundprinzip der unterschiedlichen Methoden basiert darauf, dass ein Laserpuls mit einem Referenzpuls überlagert und abgetastet wird. Unter Ausnutzung von räumlicher und zeitlicher Kohärenz wird abhängig von einer Verzögerung δt über lineare (Interferenz) oder nichtlineare Prozesse (Frequenzmischung) ein Messsignal

$$S_n(t, \delta t) \sim \int E^{n-1}(t) E(t - \delta t) dt \quad (\text{A.1.1})$$

generiert, aus dem die Pulsstruktur rekonstruiert werden kann [253, 260]. Je nach Ordnung n des Prozesses und der Komplexität des Aufbaus können detaillierte Informationen über den Verlauf von Amplitude und Phase des Laserpulses im Zeit- und im Frequenzraum gewonnen werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein THG-Frog-System zur Pulscharakterisierung aufgebaut: In einem Interferometer wird über Frequenzverdopplung (*second harmonic generation*, SHG) ein 2ω -Referenzpuls erzeugt und mit dem ω -Laserpuls für eine Fre-

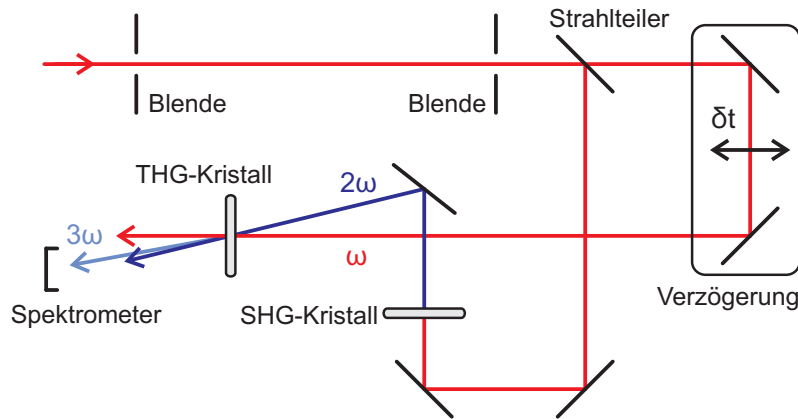


Abbildung A.1.1.: Schematische Darstellung des THG-Frog. In einem Interferometer-Aufbau wird der zu vermessende Laserpuls mit seiner frequenzverdoppelten Kopie (SHG) in einem THG-Kristall nicht-kollinear überlagert. Das Spektrum des erzeugten 3ω -Signals wird in Abhängigkeit von der Verzögerung δt detektiert, so dass eine zweidimensionale Frog-Spur $F(\lambda, \delta t)$ resultiert. Die Verzögerung wird über einen Linearpositionierer (*SLC2445*, SmarAct) mit sub-fs Auflösung realisiert. Das Spektrum wird mit einem Faserspektrometer (*SM442-UVN005*, SpectralProducts) aufgenommen. Für die Frequenzmischung werden BBO-Kristalle mit $100\ \mu\text{m}$ (SHG) bzw. $20\ \mu\text{m}$ (THG) Dicke verwendet.

quenzverdreifachung (*third harmonic generation*, THG) überlagert: $\omega + 2\omega \rightarrow 3\omega$. Die Erweiterung auf den $n = 3$ Prozess löst das bekannte Problem der Zeitinvarianz [185, 253, 261]: In einem SHG-Prozess $\sim E^2(t)$ ist das Messsignal $S_2(t, \delta t)$ für die Phasen $\varphi(t)$ und $-\varphi(t)$ identisch. In der Rekonstruktion des elektrischen Feldes existieren beide Lösungen gleichwertig. Als Folge kann nicht zwischen positivem und negativem Chirp unterschieden werden. Ebenso ist die Reihenfolge von Multipulsstrukturen unbestimmt. In einem THG-Prozess $\sim E^3(t)$ wird die Symmetrie aufgehoben, und die Rekonstruktion der Phase ist eindeutig.

Abbildung A.1.1 zeigt den Aufbau schematisch. Abhängig von der eingestellten Verzögerung δt wird das Spektrum des 3ω -Pulses detektiert und zu einer Frog-Spur $F(\lambda, \delta t)$ zusammengesetzt. Zur Rekonstruktion des elektrischen Feldes des Laserpulses aus $F(\lambda, \delta t)$ wird eine kommerzielle Software (*FrogX*, Femtosoft Technologies) eingesetzt. Abbildung A.1.2 veranschaulicht das Messprinzip am Beispiel eines Doppelpulses. Die Pulsstruktur wird über die *colored double pulses*-Methode mit $\Delta t_{\text{cdp}} = 600\ \text{fs}$ und $\lambda_{\text{brk}} = 2\pi c / \omega_{\text{brk}} = 815\ \text{nm}$ erzeugt. Abbildung A.1.2 a zeigt die experimentelle Frog-Spur $F_{\text{exp}}(\lambda, \delta t)$, Abbildung A.1.2 b eine entsprechend simulierte Frog-Spur $F_{\text{sim}}(\lambda, \delta t)$ als Erwartungswert²². Abgesehen von einer geringen Abweichung in der Skalierung der

²² Die Simulation wird mit *Lab2* für LabView durchgeführt [262].

spektralen Achse²³ wird die experimentelle Frog-Spur durch die Simulation wiedergegeben. Die markante 4er-Struktur, die zeitlichen Abstände sowie die zentrale Wellenlänge $\lambda_{0,3\omega} = 810 \text{ nm}/3 = 270 \text{ nm}$ stimmen überein und bestätigen die Funktion des THG-Frog. Die Projektion der Frog-Spur auf die Zeitachse liefert die Autokorrelation eines Doppelpulses mit $\Delta t_{\text{cdp}} = 600 \text{ fs}$, und analog bezüglich der Wellenlängenachse das cdp-modulierte Spektrum. Die 4er-Struktur selbst kann wie folgt interpretiert werden: Die Signale bei $t = -600 \text{ fs}$ und $t = 600 \text{ fs}$ sind zueinander spektral verschoben und entsprechen dem blauen und roten Teilpuls. Für $t = 0$ überlagern sich die Teilpulse. Aufgrund der speziellen Form der cdp-Modulation und der Phasen Anpassung im THG-Kristall resultiert eine spektrale Lücke bei $\lambda_{\text{brk},3\omega} = 815 \text{ nm}/3 \approx 272 \text{ nm}$. Der Effekt wird in der Rekonstruktion deutlich. In Abbildung A.1.2 c und A.1.2 d sind die aus den experimentellen Daten $F_{\text{exp}}(\lambda, \delta t)$ bestimmten Pulsformen $A(t)$, $\tilde{A}(\lambda)$ und Phasen $\varphi(t)$, $\phi(\lambda)$ des Laserpulses dargestellt. Für $A(t)$ ist neben der Separationszeit und der Reihenfolge auch das Teilungsverhältnis der Pulse gegeben. Die Phase $\varphi(t)$ des blauen Teilpulses ist etwa konstant. Der rote Teilpuls weist einen linear ansteigenden Phasenverlauf auf. Das entspricht einem konstanten zeitlichen Versatz. Die Pulslänge bleibt in der Modulation erhalten. $\tilde{A}(\lambda)$ auf der anderen Seite zeigt einen deutlichen Einbruch des Spektrums bei $\lambda_{\text{brk}} = 815 \text{ nm}$. In der spektralen Phase $\phi(\lambda)$ kann die Dreieckform der cdp-Modulation wiedergefunden werden. Die eingestellten Parameter Δt_{cdp} und λ_{brk} werden in der Rekonstruktion eindeutig wiedergegeben. Der Laserpuls ist damit vollständig charakterisiert.

²³ Die Simulation geht von einem breiteren Pulsspektrum aus.

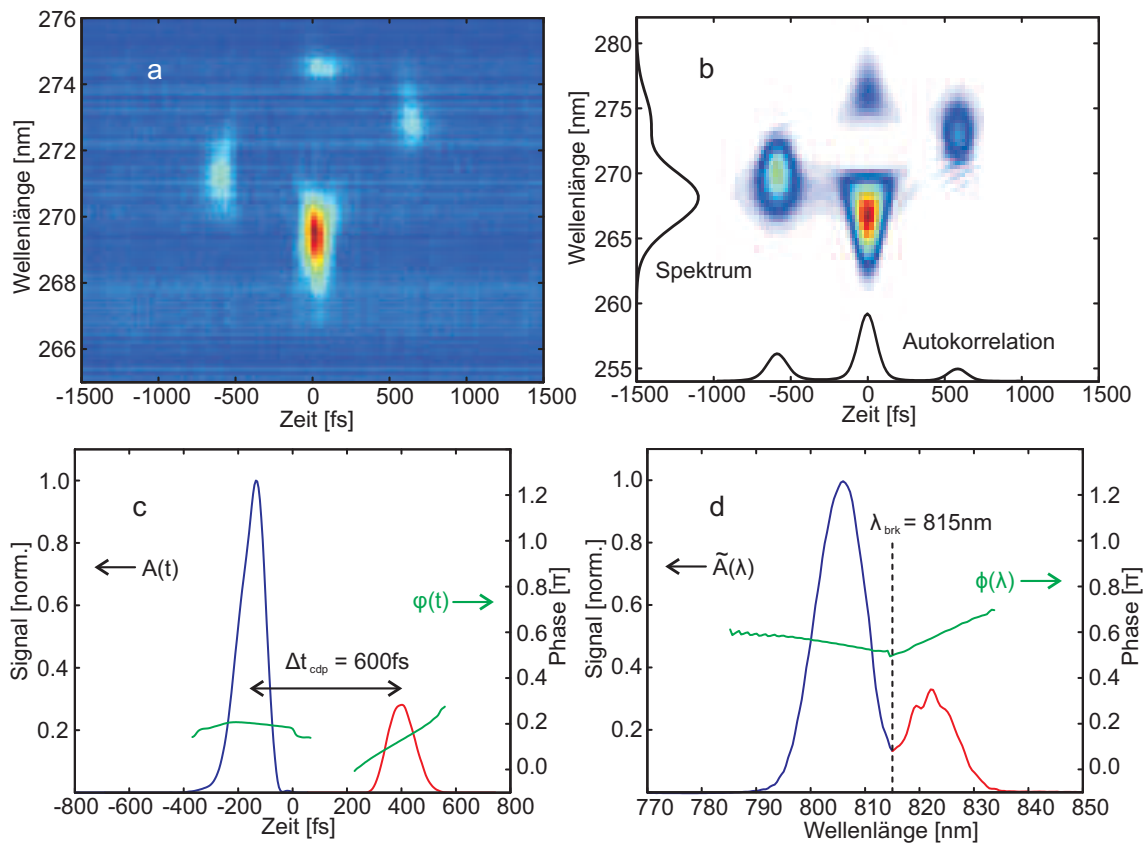


Abbildung A.1.2.: Charakterisierung eines Doppelpulses mit einem THG-Frog. Die Pulsstruktur wird über die cdp-Phasenmodulation mit $\Delta t_{\text{cdp}} = 600\text{fs}$ und $\lambda_{\text{brk}} = 2\pi c/\omega_{\text{brk}} = 815\text{nm}$ erzeugt. (a) Experimentell bestimmte Frog-Spur. (b) Simulierte Frog-Spur. (c,d) Rekonstruierte Pulsformen $A(t)$, $\tilde{A}(\lambda)$ und Phasen $\phi(t)$, $\phi(\lambda)$ im Zeit- und Spektralbereich auf Basis der experimentellen Frog-Spur. Die Zeitinformation ist in relativer Darstellung gegeben, d.h. der blaue Puls befindet sich zeitlich vor dem roten Puls.

A.2. Überprüfung der Linearität des Pulsformers

Ein wesentlicher Aspekt bei der Verwendung von Pulsformern ist ein lineares Schaltverhalten. Im vorliegenden Fall bedeutet das, dass unabhängig von der eingestellten Pulslänge bzw. Separationszeit die Konversionseffizienz und damit die Energie der geformten Pulse erhalten bleibt. Eine einfache aber aussagekräftige Möglichkeit zur Überprüfung bietet eine Frequenzverdopplung und -verdreifung cdp-geformter Doppelpulse [169,263]: Der SHG-Prozess entspricht einer Autokorrelation. Für große Separationszeiten sind die Pulse a, b getrennt und erzeugen separat ein frequenzverdoppeltes Signal: $\omega_a + \omega_a \rightarrow 2\omega_a$ und $\omega_b + \omega_b \rightarrow 2\omega_b$. Mit abnehmender Separationszeit beginnen die Pulse zu überlagern, so dass zusätzlich $\omega_a + \omega_b \rightarrow 2\omega_{ab}$ möglich ist und das integrierte SHG-Signal $2\omega_a + 2\omega_b + 2\omega_{ab}$ steigt. Aufgrund der Dispersion des SHG-Kristalls sind die 2ω -Pulsen gegenüber den ω -Pulsen verzögert [158]. Die Konversion $\omega_a + 2\omega_a \rightarrow 3\omega_a$ bzw. $\omega_b + 2\omega_b \rightarrow 3\omega_b$ in einem THG-Kristall direkt nach der SHG ist wenig effizient. An dieser Stelle setzt die vorgeschlagene Methode zur Überprüfung der Justage ein: Nach dem SHG-Prozess durchlaufen die Pulse zunächst eine Glasplatte, und anschließend den THG-Kristall. Abbildung A.2.1 zeigt den Aufbau schematisch. Die Dispersion des Glases vergrößert den zeitlichen Versatz zwischen den ω - und 2ω -Pulsen um t_{disp} . Damit ergibt sich ein optimaler Abstand Δt_{cdp} , bei dem der 2ω -Anteil des ersten Pulses a mit dem ω -Anteil des zweiten Pulses b überlagert und der THG-Prozess $2\omega_a + \omega_b \rightarrow 3\omega_{ab}$ möglich ist. Die Autokorrelationsfunktion des SHG-Prozesses bleibt erhalten. Die verschiedenen Frequenzsignale $\omega, 2\omega, 3\omega$ können simultan in einem einzelnen Spektrometer detektiert werden, so dass eine zusammenhängende Kontrolle bis zur dritten Ordnung $\sim E^3(t)$ erreicht wird. Die Messung kann wie folgt interpretiert werden: Die Signalstärke von

- ω entspricht der Energie der Laserpulse.
- 2ω ist direkt intensitätsabhängig und somit sensitiv auf die Pulslänge.
- 3ω gibt den Pulsabstand und damit die aufmodulierte Phasenfunktion wieder.

Im Fall eines linearen Schaltverhaltens bleiben Pulsenergie und Pulslänge unabhängig von der eingestellten Separationszeit erhalten. Abgesehen von der Überlagerung der Pulse bei $\Delta t_{cdp} = 0$ (für ω und 2ω) bzw. $\Delta t_{cdp} = \pm t_{disp}$ (für 3ω) sind die Signalstärken konstant. Abbildung A.2.2 zeigt das Ergebnis am Beispiel einer 2 mm dicken Glasplatte. Bei $\Delta t_{cdp} = 0$ ist für den Verlauf von ω ein gaußförmiges Minimum und für 2ω ein gaußförmiges Maximum erkennbar. Das entspricht der Autokorrelationsfunktion. Mit der Konversion $\omega + \omega \rightarrow 2\omega$ nimmt die Photonenzahl in der Fundamentalen ω ab. Aufgrund der Intensitätsabhängigkeit des Prozesses ist die Halbwertsbreite des 2ω -Signals

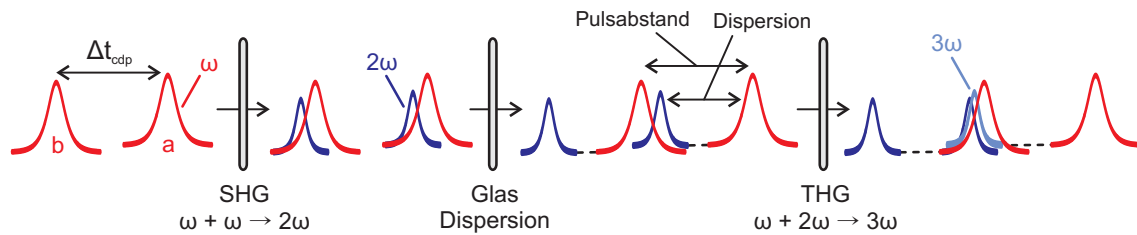


Abbildung A.2.1.: Schema zur Überprüfung der Linearität des Pulsformers [169,263]. Über die cdp-Modulation werden Doppelpulse (a,b) im Abstand Δt_{cdp} erzeugt und in einem SHG-Kristall frequenzverdoppelt. In einer Glasplatte wird das 2ω -Signal in Bezug zum ω -Signal verzögert. Die Dispersion der Glasplatte ist konstant. Damit ergibt sich ein optimaler Pulsabstand, bei dem das 2ω -Signal des ersten Pulses (a) mit dem ω -Signal des zweiten Pulses (b) überlagert und in einem THG-Kristall die Frequenzverdreifung $2\omega_a + \omega_b \rightarrow 3\omega_{ab}$ möglich ist.

reduziert²⁴. Die Dispersion des SHG-Kristalls bewirkt einen zeitlichen Versatz zwischen den ω - und 2ω -Anteilen eines Pulses, so dass das 3ω -Signal für $\Delta t_{cdp} = 0$ minimal ist. Erst mit zunehmender Separationszeit überlagern sich $2\omega_a$ und ω_b , und das $3\omega_{ab}$ -Signal steigt auf ein Maximum bei $\Delta t_{cdp} = \pm t_{disp}$. Mit der verwendeten 2 mm dicken Glasplatte ist $t_{disp} \approx 300$ fs.

Es ist zu beachten, dass in Abbildung A.2.2 exemplarisch ein stückweise fehlerhaftes Schaltverhalten des Pulsformers dargestellt ist. Zum Einen sind die Maxima im 3ω -Signal für $\Delta t_{cdp} = \pm t_{disp}$ asymmetrisch stark ausgeprägt. Zum Anderen weicht das 3ω -Signal bei $\Delta t_{cdp} = 0$ vom erwarteten Verlauf ab. Da in den ω - und 2ω -Signalen ein derartiges Verhalten nicht beobachtet wird, kann von einer korrekten Justage des Pulsformers ausgegangen werden. Die Konversionseffizienz und die Pulslänge bleiben erhalten. Das Fehlverhalten beschränkt sich auf die spektrale Phase. Das kann darauf zurückgeführt werden, dass die Form der Schallwelle für diese Phasenlage im Pulsformer eventuell nicht richtig umgesetzt wird. Hier kann es helfen, die Position der Phasenanpassung im Kristall geringfügig zu verschieben, also einen konstanten Versatz $\varphi'(t)$ zur zeitlichen Phase zu addieren. Die Pulsform bleibt dabei erhalten. Im Experiment wird eine Einstellung für ein fehlerfreies Schaltverhalten verwendet.

²⁴ Die Frequenzverdopplung ist in der intensiven Pulsspitze effizienter als in den Pulsflanken.

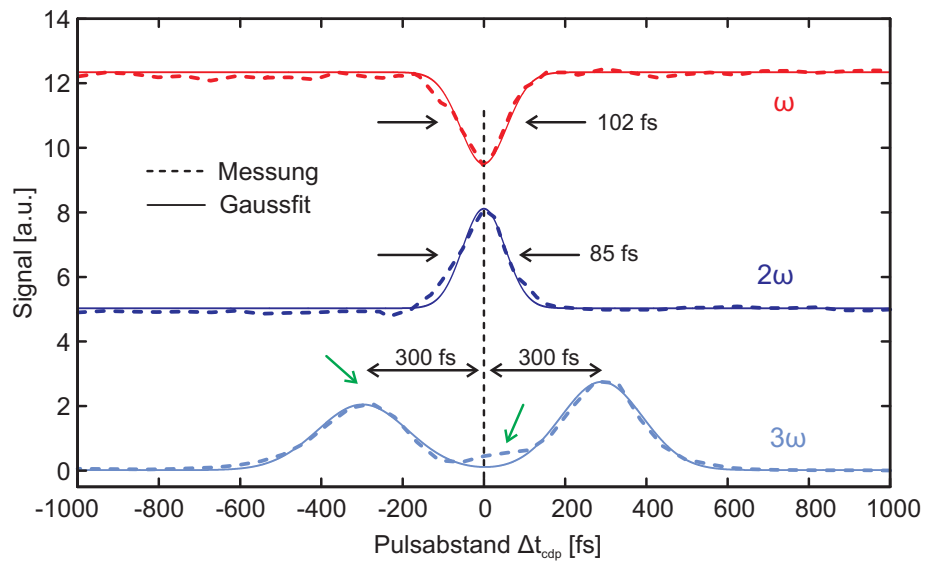


Abbildung A.2.2.: Experimentelles Ergebnis zur Überprüfung des Pulsformers nach Abbildung A.2.1. Die ω - und 2ω -Signale zeigen ein korrektes Schaltverhalten. Konversionseffizienz und Pulslänge bleiben unabhängig vom eingestellten Pulsabstand erhalten. Im Bereich der Überlagerung, $\Delta t_{cdp} \rightarrow 0$, ist die Autokorrelationsspur zu erkennen. Im 3ω -Signal werden Abweichung vom erwarteten Verlauf beobachtet (grüne Pfeile), was auf eine fehlerhafte Umsetzung der spektralen Phasenmodulation schließen lässt. Die Störung kann korrigiert werden.

A.3. Parameter zur Bestimmung von Elektronendichte und -temperatur

Nr.	Übergang	E_k [eV]	ν_k [10^{16} s^{-1}]	g_k	f_k	A_k [10^{10} s^{-1}]
1	Ar 7+ 3s \leftarrow 4p	78.016	1.887	4	0.083	1.095
2	Ar 9+ 2s ² 2p ⁵ \leftarrow 2s2p ⁶	74.898	1.818	2	0.067	3.273
3	Ar 6+ 3s ² \leftarrow 4p	70.646	1.705	3	0.203	1.457
4	Ar 7+ 3p \leftarrow 4d	69.113	1.676	4	0.126	1.312
5	Ar 7+ 3d \leftarrow 5f	67.289	1.630	4	0.170	1.675
6	Ar 6+ 3p \leftarrow 4d	64.658	1.563	3	0.085	0.515
7	Ar 8+ 3p \leftarrow 4s	65.210	1.579	3	0.078	2.402
8	Ar 6+ 3p \leftarrow 4d	57.600	1.395	5	0.076	0.659
9	Ar 5+ 3p \leftarrow 4d	56.382	1.370	4	0.041	0.285
10	Ar 7+ 4p \leftarrow 10s	55.915	1.357	1	-	-
11	Ar 7+ 3p \leftarrow 4s	54.040	1.310	2	0.088	1.124
12	Ar 6+ 3p \leftarrow 4s	49.715	1.205	3	0.087	0.312
13	Ar 4+ 3p ² \leftarrow 4d	49.069	1.186	7	0.010	0.076
14	Ar 7+ 3d \leftarrow 4f	47.640	1.154	6	0.929	6.111
15	Ar 6+ 3p \leftarrow 4s	44.410	1.075	1	0.074	1.902
16	Ar 5+ 3p ² \leftarrow 4s	43.979	1.064	4	0.167	0.700
17	Ar 6+ 3d \leftarrow 4f	41.655	1.010	5	0.859	3.897

Tabelle A.3.1.: Parameter zur Bestimmung von Elektronendichte und -temperatur.

Die Energien $E_k = h\nu_k$ und statistischen Gewichte $g_k = 2J_k + 1$ sind in der NIST-Datenbank [131] angegeben. Die Oszillatorstärken f_k werden *Spec3D* [241] entnommen. Die Übergangswahrscheinlichkeiten A_k können über $A_k [\text{s}^{-1}] = 6.67 \cdot 10^{13} g_k f_k / (\lambda_k [\text{nm}])^2$ berechnet werden [264]. Für den Übergang Ar 7+ 4p \leftarrow 10s liegen keine Informationen über die Oszillatorstärke bzw. Übergangswahrscheinlichkeit vor.

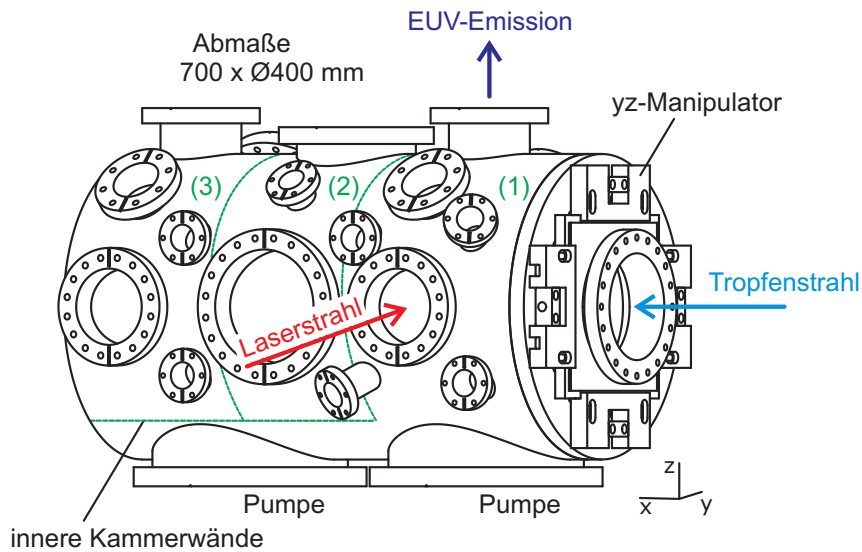


Abbildung A.4.1.: Schematische Ansicht der Vakuumpumpe. Im Inneren ist sie in drei Bereiche (1)-(2)-(3) aufgeteilt, die durch Skimmer getrennt sind. An der rechten Stirnseite befindet sich ein y,z-Manipulator zur Montage der Tropfenquelle. Die Tropfen propagieren in x-Richtung. Die Laserpulse werden horizontal entlang der y-Achse eingekoppelt. Das EUV-Spektrometer ist in z-Richtung nach oben ausgerichtet.

A.4. Konstruktion der Vakuumpumpe

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Vakuumpumpe für das Experiment entworfen und konstruiert. Die Kammer ist in Abbildung A.4.1 schematisch dargestellt. Das Design orientiert sich an kompakten Abmaßen und ist für eine langfristige, über das Experiment dieser Arbeit hinausgehende Nutzung ausgelegt. Die Gesamtlänge beträgt 700 mm, der Durchmesser 400 mm. Im Inneren ist die Kammer in drei separate Bereiche (1)-(2)-(3) aufgeteilt. In der Quellkammer (1) erfolgt die Erzeugung des Tropfenstrahls. Die Tropfenquelle ist an einem y,z-Manipulator montiert und frei justierbar. In Kammer (2) ist eine Dotierung der Tropfen möglich, Kammer (3) dient der Spektroskopie der dotierten Tropfen, z.B. [265, 266]. Die Bereiche sind über Skimmer voneinander getrennt, so dass eine Propagation des Tropfenstrahls (1) → (2) → (3) bei gleichzeitiger Reduzierung des Hintergrunddruckes möglich ist. Darüber hinaus existieren weitere Anschlussmöglichkeiten für zusätzliche Diagnostik. In dieser Arbeit wird nur die Quellkammer (1) verwendet. Auf den nächsten drei Seiten sind technische Zeichnungen und Maße der Kammer angegeben. Die Fertigung erfolgte extern.

1		2		3		4		5		6		7		8	
A	Flansch-Nr.	Größe	Bezugspunkt	Abstand [mm] zum Bezugspunkt	Theta [°]	Phi [°]	B		C		D		E		F
							Flansch	Größe	Flansch	Größe	Flansch	Größe	Flansch	Größe	
	1	CF250	A+75x	235	180	0									
	2	CF250	C-5x	235	180	0									
	3	CF35	A+100x-90z	215	90	270									
	4	CF35	C	260	115	245									
	5	CF35	C+90x-100z	215	90	270									
	6	CF100	A	235	90	270									
	7	CF150	B	235	90	270									
	8	CF100	C	235	90	270									
	9	CF35	A+100x+90z	215	90	270									
	10	CF35	C-80x+90z	215	90	270									
	11	CF35	C	260	65	295									
	12	CF63	A	235	45	270									
	13	CF35	B	235	45	270									
	14	CF63	C	235	45	270									
	15	CF100	A	300	0	0									
	16	CF150	B	235	0	0									
	17	CF100	C	300	0	0									
	18	CF250*	A	90	90	180									
	19	CF250*	C	150	90	0									
	20	CF35	C+90x-100z	215	90	90									
	21	CF35	C	260	115	115									
	22	CF35	A+100x-90z	215	90	90									
	23	CF35	A	260	115	90									
	24	CF100	C	235	90	90									
	25	CF150	B	235	90	90									
	26	CF63	A	300	90	90									
	27	CF35	C	260	65	65									
	28	CF35	C-80x+90z	215	90	90									
	29	CF63	C	235	45	90									
	30	CF35	B	235	45	90									
	31	CF150	A+37x	235	45	90									

Winkel Theta von der z-Achse zur x-Achse	
Winkel Phi in der x-y-Ebene um z-Achse	
Flansch 18 und 19 Sackgewinde, sonst Bohrungen	
Flansch 18 und 19 Sondermaß :	
CF250 mit Außendurchmesser 394mm	

Material : Edelstahl, 3mm	
Vakuummutter	
Uni Rostock	
Physik, AG Cluster	
3/3	

Literaturverzeichnis

- [1] G. Steinmeyer, D.H. Sutter, L. Gallmann, N. Matuschek, and U. Keller. Frontiers in Ultrashort Pulse Generation: Pushing the Limits in Linear and Nonlinear Optics. *Science*, 286:1507--1512, 1999.
- [2] Th. Brabec and F. Krausz. Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. *Rev. Mod. Phys.*, 72:545--591, 2000.
- [3] A.H. Zewail. Femtochemistry: Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond Using Ultrafast Lasers (Nobel Lecture). *Angew. Chem. Int. Ed.*, 39:2586, 2000.
- [4] P. Salieres, A. L'Huillier, and M. Lewenstein. Coherence control of high-order harmonics. *Phys. Rev. Lett.*, 74:3776, 1995.
- [5] P.M. Paul, E.S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, Ph. Balcou, H.G. Muller, and P. Agostini. Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. *Science*, 292:1689--1692, 2001.
- [6] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G.A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Attosecond metrology. *Nature*, 414:509--513, 2001.
- [7] N. Dudovich, O. Smirnova, J. Levesque, Y. Mairesse, M.Y. Ivanov, D.M. Villeneuve, and P.B. Corkum. Measuring and controlling the birth of attosecond XUV pulses. *Nat. Phys.*, 2:781--786, 2006.
- [8] P.B. Corkum and F. Krausz. Attosecond science. *Nat. Phys.*, 3:381--387, 2007.
- [9] F. Krausz and M. Ivanov. Attosecond physics. *Rev. Mod. Phys.*, 81:163, 2009.
- [10] M. Protopapas, C.H. Keitel, and P.L. Knight. Atomic physics with super-high intensity lasers. *Rep. Prog. Phys.*, 60:389, 1997.
- [11] J.W.G. Tisch, N. Hay, K.J. Mendham, E. Springate, D.R. Symes, A.J. Comley, M.B. Mason, E.T. Gumbrell, T. Ditmire, R.A. Smith, J.P. Marangos, and M.H.R. Hutchinson. Interaction of intense laser pulses with atomic clusters: Measurements of ion emission, simulations and applications. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, 205:310--323, 2003.
- [12] J.H. Posthumus. The dynamics of small molecules in intense laser fields. *Rep. Prog. Phys.*, 67:623, 2004.
- [13] I.V. Hertel and W. Radloff. Ultrafast dynamics in isolated molecules and molecular clusters. *Rep. Progr. Phys.*, 69:1897, 2006.

- [14] V.P. Krainov and M.B. Smirnov. Cluster beams in the super-intense femtosecond laser pulse. *Phys. Rep.*, 370:237–331, 2002.
- [15] U. Saalmann, Ch. Siedschlag, and J.M. Rost. Mechanisms of cluster ionization in strong laser pulses. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 39:R39, 2006.
- [16] Th. Fennel, K.H. Meiwes-Broer, J. Tiggesbäumker, P.G. Reinhard, P. M. Dinh, and E. Suraud. Laser-driven nonlinear cluster dynamics. *Rev. Mod. Phys.*, 82:1793, 2010.
- [17] H.M. Milchberg, I. Lyubomirsky, and C.G. Durfee III. Factors controlling the x-ray pulse emission from an intense femtosecond laser-heated solid. *Phys. Rev. Lett.*, 67:2654, 1991.
- [18] P. Gibbon and E. Förster. Short-pulse laser-plasma interactions. *Plas. Phys. Contr. Fus.*, 38:769, 1996.
- [19] E. G. Gamaly. The physics of ultra-short laser interaction with solids at non-relativistic intensities. *Phys. Rep.*, 508:91–243, 2011.
- [20] H. Kawashima, M.M. Wefers, and K.A. Nelson. Femtosecond Pulse Shaping, Multiple-Pulse Spectroscopy, and Optical Control. *Ann. Rev. Phys. Chem.*, 46:627–656, 1995.
- [21] T. Brixner and G. Gerber. Quantum Control of Gas-Phase and Liquid-Phase Femtochemistry. *Chem. Phys. Chem.*, 4:418, 2003.
- [22] D. Goswami. Optical pulse shaping approaches to coherent control. *Phys. Rep.*, 374:385–481, 2003.
- [23] P. Nuernberger, G. Vogt, T. Brixner, and G. Gerber. Femtosecond quantum control of molecular dynamics in the condensed phase. *Phys. Chem. Chem. Phys.*, 9:2470–2497, 2007.
- [24] A.M. Weiner. Ultrafast optical pulse shaping: A tutorial review. *Opt. Comm.*, 284:3669–3692, 2011.
- [25] T.D. Donnelly, M. Rust, I. Weiner, M. Allen, R.A. Smith, C.A. Steinke, S. Wilks, J. Zweiback, T.E. Cowan, and T. Ditmire. Hard x-ray and hot electron production from intense laser irradiation of wavelength-scale particles. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 34:L313, 2001.
- [26] J. Zheng, Z.M. Sheng, X.Y. Peng, and J. Zhang. Energetic electrons and protons generated from the interaction of ultrashort laser pulses with microdroplet plasmas. *Phys. Plas.*, 12:113105, 2005.
- [27] M. Anand, P. Gibbon, and M. Krishnamurthy. Hot electrons produced from long scale-length laser-produced droplet plasmas. *Laser Physics*, 17:408–414, 2007.

- [28] S. Karsch, S. Düsterer, H. Schwoerer, F. Ewald, D. Habs, M. Hegelich, G. Pretzler, A. Pukhov, K. Witte, and R. Sauerbrey. High-intensity laser induced ion acceleration from heavy-water droplets. *Phys. Rev. Lett.*, 91:015001, 2003.
- [29] M. Schnürer, D. Hilscher, U. Jahnke, S. Ter-Avetisyan, S. Busch, M. Kalachnikov, H. Stiel, P.V. Nickles, and W. Sandner. Explosion characteristics of intense femtosecond-laser-driven water droplets. *Phys. Rev. E*, 70:056401, 2004.
- [30] D.R. Symes, A.J. Comley, and R.A. Smith. Fast-ion production from short-pulse irradiation of ethanol microdroplets. *Phys. Rev. Lett.*, 93:145004, 2004.
- [31] S. Ter-Avetisyan, M. Schnürer, S. Busch, and P.V. Nickles. Negative ions from liquid microdroplets irradiated with ultrashort and intense laser pulses. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 37:3633, 2004.
- [32] A.J. Kemp and H. Ruhl. Multispecies ion acceleration off laser-irradiated water droplets. *Phys. Plas.*, 12:033105, 2005.
- [33] A. Macchi, M. Borghesi, and M. Passoni. Ion acceleration by superintense laser-plasma interaction. *Rev. Mod. Phys.*, 85:751, 2013.
- [34] L. Di Lucchio, A.A. Andreev, and P. Gibbon. Ion acceleration by intense, few-cycle laser pulses with nanodroplets. *Phys. Plas.*, 22:053114, 2015.
- [35] A. Flettner, T. Pfeifer, D. Walter, C. Winterfeldt, C. Spielmann, and G. Gerber. High-harmonic generation and plasma radiation from water microdroplets. *Appl. Phys. B*, 77:747--751, 2003.
- [36] H.G. Kurz, D.S. Steingrube, D. Ristau, M. Lein, U. Morgner, and M. Kovačev. High-order-harmonic generation from dense water microdroplets. *Phys. Rev. A*, 87:063811, 2013.
- [37] S. Düsterer, H. Schwoerer, W. Ziegler, C. Ziener, and R. Sauerbrey. Optimization of EUV radiation yield from laser-produced plasma. *Appl. Phys. B*, 73:693--698, 2001.
- [38] S.J. McNaught, J. Fan, E. Parra, and H.M. Milchberg. A pump-probe investigation of laser-droplet plasma dynamics. *Appl. Phys. Lett.*, 79:4100--4102, 2001.
- [39] M. Wieland, T. Wilhein, M. Faubel, Ch. Ellert, M. Schmidt, and O. Sublemontier. EUV and fast ion emission from cryogenic liquid jet target laser-generated plasma. *Appl. Phys. B*, 72:591--597, 2001.
- [40] C. Keyser, G. Schriever, M. Richardson, and E. Turcu. Studies of high-repetition-rate laser plasma EUV sources from droplet targets. *Appl. Phys. A*, 77:217--221, 2003.
- [41] B.A.M. Hansson and H.M. Hertz. Liquid-jet laser-plasma extreme ultraviolet sources: from droplets to filaments. *J. Phys. D: Appl. Phys.*, 37:3233, 2004.

- [42] L. Rymell and H.M. Hertz. Droplet target for low-debris laser-plasma soft X-ray generation. *Opt. Comm.*, 103:105--110, 1993.
- [43] L. Malmqvist, L. Rymell, M. Berglund, and H. M. Hertz. Liquid-jet target for laser-plasma soft x-ray generation. *Rev. Sci. Instr.*, 67:4150--4153, 1996.
- [44] L. C. Mountford, R. A. Smith, and M. H. R. Hutchinson. Characterization of a sub-micron liquid spray for laser-plasma x-ray generation. *Rev. Sci. Instr.*, 69:3780--3788, 1998.
- [45] E. Parra, S.J. McNaught, J. Fan, and H.M. Milchberg. Pump-probe studies of EUV and X-ray emission dynamics of laser-irradiated noble gas droplets. *Appl. Phys. A*, 77:317--323, 2003.
- [46] M. Anand, C.P. Safvan, and M. Krishnamurthy. Hard X-ray generation from microdroplets in intense laser fields. *Appl. Phys. B*, 81:469--477, 2005.
- [47] T.P. Yu, L.X. Hu, Y. Yin, F.Q. Shao, H.B. Zhuo, Y.Y. Ma, X.H Yang, W. Luo, and A. Pukhov. Bright tunable femtosecond x-ray emission from laser irradiated micro-droplets. *Appl. Phys. Lett.*, 105:114101, 2014.
- [48] W.P. Acker, D.H. Leach, and R.K. Chang. Third-order optical sum-frequency generation in micrometer-sized liquid droplets. *Opt. Lett.*, 14:402--404, 1989.
- [49] J.Z. Zhang and R.K. Chang. Generation and suppression of stimulated Brillouin scattering in single liquid droplets. *J. Opt. Soc. Am. B*, 6:151--153, 1989.
- [50] D.H. Leach, W.P. Acker, and R.K. Chang. Effect of the phase velocity and spatial overlap of spherical resonances on sum-frequency generation in droplets. *Opt. Lett.*, 15:894--896, 1990.
- [51] A.S. Kwok, J.B. Gillespie, A. Serpengüzel, W.F. Hsieh, and R.K. Chang. Two-photon-pumped lasing in microdroplets. *Opt. Lett.*, 17:1435--1437, 1992.
- [52] D.H. Leach, R.K. Chang, W.P. Acker, and S.C. Hill. Third-order sum-frequency generation in droplets: experimental results. *J. Opt. Soc. Am. B*, 10:34--45, 1993.
- [53] Y.E. Geints, A.M. Kabanov, G.G. Matvienko, V.K. Oshlakov, A.A. Zemlyanov, S.S. Golik, and O.A. Bukin. Broadband emission spectrum dynamics of large water droplets exposed to intense ultrashort laser radiation. *Opt. Lett.*, 35:2717--2719, 2010.
- [54] D. Bleiner, F. Staub, V. Guzenko, Y. Ekinici, and J.E. Balmer. Evaluation of lab-scale EUV microscopy using a table-top laser source. *Opt. Comm.*, 284:4577--4583, 2011.
- [55] P.W. Wachulak, A. Bartnik, H. Fiedorowicz, D. Pánek, and P. Brůža. Imaging of nanostructures with sub-100 nm spatial resolution using a desktop EUV microscope. *Appl. Phys. B*, 109:105--111, 2012.

- [56] G. Tallents, E. Wagenaars, and G. Pert. Optical lithography: Lithography at EUV wavelengths. *Nat. Photon.*, 4:809--811, 2010.
- [57] C. Wagner and N. Harned. EUV lithography: Lithography gets extreme. *Nat. Photon.*, 4:24--26, 2010.
- [58] L. Rymell, L. Malmqvist, M. Berglund, and H.M. Hertz. Liquid-jet target laser-plasma sources for EUV and X-ray lithography. *Micr. Eng.*, 46:453--455, 1999.
- [59] C.S. Koay, S. George, K. Takenoshita, R. Bernath, E. Fujiwara, M. Richardson, and V. Bakshi. High conversion efficiency microscopic tin-doped droplet target laser-plasma source for EUVL. *Proc. SPIE*, 5751:279--292, 2005.
- [60] G. O'Sullivan, D. Kilbane, and R. D'Arcy. Recent progress in source development for extreme UV lithography. *J. Mod. Opt.*, 59:855--872, 2012.
- [61] T. Sizyuk and A. Hassanein. Extending the path for efficient extreme ultraviolet sources for advanced nanolithography. *Phys. Plas.*, 22:093101, 2015.
- [62] L. Rymell, M. Berglund, and H.M. Hertz. Debris-free single-line laser-plasma x-ray source for microscopy. *Appl. Phys. Lett.*, 66:2625--2627, 1995.
- [63] M. Richardson, D. Torres, C. DePriest, F. Jin, and G. Shimkaveg. Mass-limited, debris-free laser-plasma EUV source. *Opt. Comm.*, 145:109--112, 1998.
- [64] K. Takenoshita, C.S. Koay, S. Teerawattansook, M. Richardson, and V. Bakshi. Debris characterization and mitigation from microscopic laser-plasma tin-doped droplet EUV sources. *Proc. SPIE*, 5751:563--571, 2005.
- [65] T. Ditmire, T. Donnelly, A.M. Rubenchik, R.W. Falcone, and M.D. Perry. Interaction of intense laser pulses with atomic clusters. *Phys. Rev. A*, 53:3379, 1996.
- [66] H.M. Milchberg, S.J. McNaught, and E. Parra. Plasma hydrodynamics of the intense laser-cluster interaction. *Phys. Rev. E*, 64:056402, 2001.
- [67] M. Roth. The diagnostics of ultra-short pulse laser-produced plasma. *J. Instr.*, 6:R09001, 2011.
- [68] A.P. Thorne. *Spectrophysics*. Chapman and Hall, 1988.
- [69] H.R. Griem. *Principles of Plasma Spectroscopy*. Cambridge University Press, 1997.
- [70] A. Höll, Th. Bornath, L. Cao, T. Döppner, S. Düsterer, E. Förster, C. Fortmann, S.H. Glenzer, G. Gregori, T. Laarmann, K.-H. Meiwes-Broer, A. Przystawik, P. Radcliffe, R. Redmer, H. Reinholz, G. Röpke, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, N.X. Truong, T. Tschentscher, I. Uschmann, and U. Zastra. Thomson scattering from near-solid density plasmas using soft x-ray free electron lasers. *High Energ. Dens. Phys.*, 3:120--130, 2007.

- [71] R. R. Fäustlin, Th. Bornath, T. Döppner, S. Düsterer, E. Förster, C. Fortmann, S. H. Glenzer, S. Göde, G. Gregori, R. Irsig, T. Laarmann, H. J. Lee, B. Li, K.-H. Meiwes-Broer, J. Mithen, B. Nagler, A. Przystawik, H. Redlin, R. Redmer, H. Reinholz, G. Röpke, F. Tavella, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, I. Uschmann, S. M. Vinko, T. Whitcher, U. Zastrau, B. Ziaja, and Th. Tschentscher. Observation of Ultrafast Nonequilibrium Collective Dynamics in Warm Dense Hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 104:125002, 2010.
- [72] S. Toleikis, T. Bornath, T. Döppner, S. Düsterer, R.R. Fäustlin, E. Förster, C. Fortmann, S.H. Glenzer, S. Göde, G. Gregori, R. Irsig, T. Laarmann, H.J. Lee, B. Li, K.H. Meiwes-Broer, J. Mithen, B. Nagler, A. Przystawik, P. Radcliffe, H. Redlin, R. Redmer, H. Reinholz, G. Röpke, F. Tavella, R. Thiele, J. Tiggesbäumker, I. Uschmann, S.M. Vinko, T. Whitcher, U. Zastrau, B. Ziaja, and T. Tschentscher. Probing near-solid density plasmas using soft x-ray scattering. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 43:194017, 2010.
- [73] U. Zastrau, P. Sperling, M. Harmand, A. Becker, T. Bornath, R. Bredow, S. Dziarhytski, T. Fennel, L.B. Fletcher, E. Förster, S. Göde, G. Gregori, V. Hilbert, D. Hochhaus, B. Holst, T. Laarmann, H.J. Lee, T. Ma, J.P. Mithen, R. Mitzner, C.D. Murphy, M. Nakatsutsumi, P. Neumayer, A. Przystawik, S. Roling, M. Schulz, B. Siemer, S. Skruszewicz, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, T. Tschentscher, T. White, M. Wöstmann, H. Zacharias, T. Döppner, S.H. Glenzer, and R. Redmer. Resolving Ultrafast Heating of Dense Cryogenic Hydrogen. *Phys. Rev. Lett.*, 112:105002, 2014.
- [74] U. Zastrau, P. Sperling, C. Fortmann-Grote, A. Becker, T. Bornath, R. Bredow, T. Döppner, T. Fennel, L.B. Fletcher, E. Förster, S. Göde, G. Gregori, M. Harmand, V. Hilbert, T. Laarmann, H.J. Lee, T. Ma, K.H. Meiwes-Broer, J.P. Mithen, C.D. Murphy, M. Nakatsutsumi, P. Neumayer, A. Przystawik, S. Skruszewicz, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, T.G. White, S.H. Glenzer, R. Redmer, and T. Tschentscher. Ultrafast electron kinetics in short pulse laser-driven dense hydrogen. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 48:224004, 2015.
- [75] K. Burnett, V.C. Reed, and P.L. Knight. Atoms in ultra-intense laser fields. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 26:561, 1993.
- [76] P. Gibbon. *Short pulse laser interactions with matter*. World Scientific, 2004.
- [77] 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. *Phys. Rev. Lett.*, 63:2212, 1989.
- [78] M.V. Ammosov, N.B. Delone, and V.P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Sov. Phys. JETP*, 64:1191, 1986.
- [79] A. Scrinzi, M. Geissler, and T. Brabec. Ionization Above the Coulomb Barrier. *Phys. Rev. Lett.*, 83:706, 1999.

- [80] L.V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov. Phys. JETP*, 20:1307, 1965.
- [81] V.S. Popov. Tunnel and multiphoton ionization of atoms and ions in a strong laser field (Keldysh theory). *Physics-Uspekhi*, 47:855, 2004.
- [82] T.A. Carlson, C.W. Nestor Jr., N. Wasserman, and J.D. McDowell. Calculated ionization potentials for multiply charged ions. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 2:63--99, 1970.
- [83] K.G.H. Baldwin and B.W. Boreham. Investigation of tunneling processes in laser-induced ionization of argon. *J. Appl. Phys.*, 52:2627--2633, 1981.
- [84] F. Yergeau, S.L. Chin, and P. Lavigne. Multiple ionisation of rare-gas atoms by an intense CO₂ laser (10^{14} W cm⁻²). *J. Phys. B: At. Mol. Phys.*, 20:723, 1987.
- [85] M. D. Perry, A. Szoke, O. L. Landen, and E. M. Campbell. Nonresonant Multiphoton Ionization of Noble Gases: Theory and Experiment. *Phys. Rev. Lett.*, 60:1270, 1988.
- [86] S. Larochelle, A. Talebpour, and S.L. Chin. Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti:Sapphire laser field. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 31:1201, 1998.
- [87] E. Krishnakumar and S.K. Srivastava. Ionisation cross sections of rare-gas atoms by electron impact. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 21:1055, 1988.
- [88] H.C. Straub, P. Renault, B.G. Lindsay, K.A. Smith, and R.F. Stebbings. Absolute partial and total cross sections for electron-impact ionization of argon from threshold to 1000 eV. *Phys. Rev. A*, 52:1115, 1995.
- [89] R. Rejoub, B.G. Lindsay, and R.F. Stebbings. Determination of the absolute partial and total cross sections for electron-impact ionization of the rare gases. *Phys. Rev. A*, 65:042713, 2002.
- [90] V.P. Krainov, B.M. Smirnov, and M.B. Smirnov. Femtosecond excitation of cluster beams. *Physics-Uspekhi*, 50:907, 2007.
- [91] A Bondi. van der Waals volumes and radii. *J. Phys. Chem.*, 68:441--451, 1964.
- [92] F. Brunel. Not-so-resonant, resonant absorption. *Phys. Rev. Lett.*, 59:52, 1987.
- [93] J.C. Kieffer, P. Audebert, M. Chaker, J.P. Matte, H. Pepin, T.W. Johnston, P. Maine, D. Meyerhofer, J. Delettrez, D. Strickland, P. Bado, and G. Mourou. Short-pulse laser absorption in very steep plasma density gradients. *Phys. Rev. Lett.*, 62:760, 1989.
- [94] A.A. Andreev, K.Y. Platonov, and J.C. Gauthier. Skin effect in strongly inhomogeneous laser plasmas with weakly anisotropic temperature distribution. *Phys. Rev. E*, 58:2424, 1998.

- [95] P. Mora. Theoretical model of absorption of laser light by a plasma. *Phys. Fl.*, 25:1051--1056, 1982.
- [96] D. Batani, C.J. Joachain, S. Martellucci, and A.N. Chester. *Atoms, Solids and Plasmas in Super-Intense Laser Fields*. Springer, 2001.
- [97] J.G. Ferreira and M.T. Ramos. *X-ray spectroscopy in atomic and solid state physics*, volume 187. Plenum Press, 1988.
- [98] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, Vierzehnte Auflage, 2005.
- [99] M.B. Smirnov and W. Becker. X-ray generation in laser-heated cluster beams. *Phys. Rev. A*, 74:013201, 2006.
- [100] Ch. Ziener, P.S. Foster, E.J. Divall, C.J. Hooker, M.H.R. Hutchinson, A.J. Langley, and D. Neely. Specular reflectivity of plasma mirrors as a function of intensity, pulse duration, and angle of incidence. *J. Appl. Phys.*, 93:768--770, 2003.
- [101] B. Dromey, S. Kar, M. Zepf, and P. Foster. The plasma mirror - A subpicosecond optical switch for ultrahigh power lasers. *Rev. Sci. Instr.*, 75:645--649, 2004.
- [102] G. Doumy, F. Quéré, O. Gobert, M. Perdrix, Ph. 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. *Phys. Rev. E*, 69:026402, 2004.
- [103] C. Thauray, F. Quéré, J.P. Geindre, A. Levy, T. Ceccotti, P. Monot, M. Bougeard, F. Réau, P. d'Oliveira, P. Audebert, R. Marjoribanks, and Ph. Martin. Plasma mirrors for ultrahigh-intensity optics. *Nat. Phys.*, 3:424--429, 2007.
- [104] T.V. Liseykina and D. Bauer. Plasma-formation dynamics in intense laser-droplet interaction. *Phys. Rev. Lett.*, 110:145003, 2013.
- [105] P. Sperling, T. Liseykina, D. Bauer, and R. Redmer. Time-resolved Thomson scattering on high-intensity laser-produced hot dense helium plasmas. *New J. Phys.*, 15:025041, 2013.
- [106] I. Last and J. Jortner. Quasiresonance ionization of large multicharged clusters in a strong laser field. *Phys. Rev. A*, 60:2215, 1999.
- [107] M. Arbeiter and Th. Fennel. Rare-gas clusters in intense VUV, XUV and soft x-ray pulses: signatures of the transition from nanoplasma-driven cluster expansion to Coulomb explosion in ion and electron spectra. *New J. Phys.*, 13:053022, 2011.
- [108] M. Lezius, S. Dobosz, D. Normand, and M. Schmidt. Explosion dynamics of rare gas clusters in strong laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 80:261, 1998.

- [109] J. Zweiback, T. Ditmire, and M.D. Perry. Femtosecond time-resolved studies of the dynamics of noble-gas cluster explosions. *Phys. Rev. A*, 59:R3166--R3169, 1999.
- [110] Y.B. Zeld'ovich and Y.P. Raizer. *Physics of shock waves and high-temperature hydrodynamic phenomena*. Academic Press, 1966.
- [111] M. Shihab, G.H. Abou-Koura, and N.M. El-Siragy. Energy relaxation of intense laser pulse-produced plasmas. *Appl. Phys. B*, 122:1--7, 2016.
- [112] P.V. Bulat, K.N. Volkovb, and E.Y. Ilyinaa. Model of Interaction of Laser Radiation with a Drop of Liquid. *Int. Electr. J. Math. Ed.*, 11:3009--3020, 2016.
- [113] E. Parra, I. Alexeev, J. Fan, K.Y. Kim, S.J. McNaught, and H.M. Milchberg. X-ray and extreme ultraviolet emission induced by variable pulse-width irradiation of Ar and Kr clusters and droplets. *Phys. Rev. E*, 62:R5931, 2000.
- [114] J.Y. Lin, H.H. Chu, M.Y. Shen, Y.F. Xiao, C.H. Lee, S.Y. Chen, and J. Wang. High-brightness soft X-ray generation under optimized laser-cluster interaction. *Opt. Comm.*, 231:375--381, 2004.
- [115] E. Lamour, C. Prigent, J.P. Rozet, and D. Vernhet. Physical parameter dependence of the X-ray generation in intense laser-cluster interaction. *Nucl. Instr. Meth. Phys. Res. B*, 235:408--413, 2005.
- [116] A. Gupta, T.M. Antonsen, T. Taguchi, and J. Palastro. Effect of pulse duration on resonant heating of laser-irradiated argon and deuterium clusters. *Phys. Rev. E*, 74:046408, 2006.
- [117] C. Prigent, C. Deiss, E. Lamour, J.P. Rozet, D. Vernhet, and J. Burgdörfer. Effect of pulse duration on the x-ray emission from Ar clusters in intense laser fields. *Phys. Rev. A*, 78:053201, 2008.
- [118] T. Ditmire, R.A. Smith, J.W.G. Tisch, and M.H.R. Hutchinson. High intensity laser absorption by gases of atomic clusters. *Phys. Rev. Lett*, 78:3121, 1997.
- [119] J.S. Zweiback, T. Ditmire, and M. Perry. Resonance in scattering and absorption from large noble gas clusters. *Opt. Expr.*, 6:236--242, 2000.
- [120] F. Courvoisier, V. Boutou, C. Favre, S.C. Hill, and J.P. Wolf. Plasma formation dynamics within a water microdroplet on femtosecond time scales. *Opt. Lett.*, 28:206--208, 2003.
- [121] K.Y. Kim, I. Alexeev, V. Kumarappan, E. Parra, T. Antonsen, T. Taguchi, A. Gupta, and H.M. Milchberg. Gases of exploding laser-heated cluster nanoplasmas as a nonlinear optical medium. *Phys. Plas.*, 11:2882--2889, 2004.
- [122] S. Sailaja, R.A. Khan, P.A. Naik, and P.D. Gupta. Efficient absorption and intense soft X-ray emission from gas cluster plasmas irradiated by 25-ps laser pulses. *IEEE Trans. Plas. Sci.*, 33:1006--1012, 2005.

- [123] M. Anand, P. Gibbon, and M. Krishnamurthy. Laser absorption in microdroplet plasmas. *Europhys. Lett.*, 80:25002, 2007.
- [124] Y. Liu, Q. Dong, X. Peng, Z. Jin, and J. Zhang. Soft x-ray emission, angular distribution of hot electrons, and absorption studies of argon clusters in intense laser pulses. *Phys. Plas.*, 16:043301, 2009.
- [125] F. Dorchies, T. Caillaud, F. Blasco, C. Bonté, H. Jouin, S. Micheau, B. Pons, and J. Stevefelt. Investigation of laser-irradiated Ar cluster dynamics from K-shell X-ray emission measurements. *Phys. Rev. E*, 71:066410, 2005.
- [126] F. Dorchies, F. Blasco, C. Bonté, T. Caillaud, C. Fourment, and O. Peyrusse. Observation of subpicosecond X-ray emission from laser-cluster interaction. *Phys. Rev. Lett.*, 100:205002, 2008.
- [127] E. Parra, I. Alexeev, J. Fan, K.Y. Kim, S.J. McNaught, and H.M. Milchberg. Hydrodynamic time scales for intense laser-heated clusters. *J. Opt. Soc. Am. B*, 20:118--124, 2003.
- [128] S.V. Garnov, V.V. Bukin, A.A. Malyutin, and V.V. Strelkov. Ultrafast Space-time and Spectrum-time Resolved Diagnostics of Multicharged Femtosecond Laser Microplasma. *AIP Conf. Proc.*, 1153:37--48, 2009.
- [129] D. Attwood. *Soft X-rays and extreme ultraviolet radiation: principles and applications*. Cambridge University Press, 2007.
- [130] H. Haken und H.C. Wolf. *Atom- und Quantenphysik: Einführung in die experimentellen und theoretischen Grundlagen. Siebte Auflage*. Springer, 2000.
- [131] A. Kramida, Yu. Ralchenko, J. Reader, and and NIST ASD Team. NIST Atomic Spectra Database (ver. 5.4), [Online]. Available: <http://physics.nist.gov/asd> National Institute of Standards and Technology, Gaithersburg, MD., 2016.
- [132] G. Fußmann. *Einführung in die Plasmaphysik*. Humboldt Universität Berlin, 2001.
- [133] Ş. Yalçın, D.R. Crosley, G.P. Smith, and G.W. Faris. Influence of ambient conditions on the laser air spark. *Appl. Phys. B*, 68:121--130, 1999.
- [134] J.P. Singh and S.N. Thakur. *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*. Elsevier, 2007.
- [135] C. Aragón and J.A. Aguilera. Characterization of laser induced plasmas by optical emission spectroscopy: A review of experiments and methods. *Spectrochim. Acta B*, 63:893--916, 2008.
- [136] D.W. Hahn and N. Omenetto. Laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS), part I: review of basic diagnostics and plasma-particle interactions: still-challenging issues within the analytical plasma community. *Appl. Spectr.*, 64:335A--366A, 2010.

- [137] D.W. Hahn and N. Omenetto. Laser-induced breakdown spectroscopy (LIBS), part II: review of instrumental and methodological approaches to material analysis and applications to different fields. *Appl. Spectr.*, 66:347--419, 2012.
- [138] S. Musazzi and U. Perini. *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy: Theory and Applications*. Springer, 2014.
- [139] C.A. Bye and Alexander S. Saha-Boltzmann Statistics for Determination of Electron Temperature and Density in Spark Discharges Using an Echelle/CCD System. *Appl. Spectr.*, 47:2022--2030, 1993.
- [140] J.B. Simeonsson and A.W. Miziolek. Time-resolved emission studies of ArF-laser-produced microplasmas. *Appl. Opt.*, 32:939--947, 1993.
- [141] J.A. Aguilera and C. Aragón. Multi-element Saha-Boltzmann and Boltzmann plots in laser-induced plasmas. *Spectrochim. Acta B*, 62:378--385, 2007.
- [142] I.B. Gornushkin and U. Panne. Radiative models of laser-induced plasma and pump-probe diagnostics relevant to laser-induced breakdown spectroscopy. *Spectrochim. Acta B*, 65:345--359, 2010.
- [143] V.K. Unnikrishnan, K. Alti, V.B. Kartha, C. Santhosh, G.P. Gupta, and B.M. Suri. Measurements of plasma temperature and electron density in laser-induced copper plasma by time-resolved spectroscopy of neutral atom and ion emissions. *Pramana*, 74:983--993, 2010.
- [144] A. Mohmoud E. Sherbini, A.A. Saad A. Aamer, et al. Measurement of plasma parameters in laser-induced breakdown spectroscopy using Si-lines. *World Journal of Nano Science and Engineering*, 2:206, 2012.
- [145] J.J. MacFarlane, I.E. Golovkin, and P.R. Woodruff. HELIOS-CR - a 1-D radiation-magnetohydrodynamics code with inline atomic kinetics modeling. *J. Quant. Spectr. Rad. Transf.*, 99:381--397, 2006.
- [146] L.A. Artsimowitsch and R.S. Sagdejew. *Plasmaphysik*. Teubner, 1983.
- [147] W.L. Kruer. *The physics of laser plasma interactions*. Addison-Wesley, 1988.
- [148] U. Stroth. *Plasmaphysik: Phänomene, Grundlagen, Anwendungen*. Vieweg & Teubner, 2011.
- [149] P.W. Barber and S.C. Hill. *Light scattering by particles: computational methods*, volume 2. World Scientific, 1990.
- [150] C.F. Bohren and D.R. Huffman. *Absorption and scattering of light by small particles*. Wiley, 2008.
- [151] J. Kasparian, B. Krämer, T. Leisner, P. Rairoux, V. Boutou, B. Vezin, and J. P. Wolf. Size dependence of nonlinear mie scattering in microdroplets illuminated by ultrashort pulses. *J. Opt. Soc. Am. B*, 15:1918--1922, 1998.

- [152] S. Bareiss, B. Bork, S. Bakić, C. Tropea, R. Irsig, J. Tiggesbäumker, and A. Dreizler. Application of femtosecond lasers to the polarization ratio technique for droplet sizing. *Meas. Sci. Techn.*, 24:025203, 2013.
- [153] L. Seiffert, F. Süßmann, S. Zherebtsov, P. Rupp, C. Peltz, E. Rühl, M.F. Kling, and T. Fennel. Competition of single and double rescattering in the strong-field photoemission from dielectric nanospheres. *Appl. Phys. B*, 122:1--9, 2016.
- [154] P. Sperling. *Wechselwirkung intensiver Laserpulse mit dichten Plasmen – Ultrakurzzeitkinetik und Diagnostik*. Dissertation, Universität Rostock, 2014.
- [155] D. Meschede. *Optik, Licht und Laser*. Teubner, 1999.
- [156] M. Bass, E. Van Stryland, D. Williams, and W. Wolfe. *Handbook of Optics, Volume I: Fundamentals, Techniques and Design*. McGraw-Hill, 1995.
- [157] C. Rulliere. *Femtosecond Laser Pulses, Principles and Experiments, 2nd*. Springer, 2003.
- [158] J.-C. Diels and W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena, Second Edition*. Elsevier, 2006.
- [159] A.M. Weiner. Femtosecond optical pulse shaping and processing. *Prog. Quant. Electr.*, 19:161--237, 1995.
- [160] C. W. Hillegas, J. X. Tull, D. Goswami, D. Strickland, and W. S. Warren. Femtosecond laser pulse shaping by use of microsecond radio-frequency pulses. *Opt. Lett.*, 19:737--739, 1994.
- [161] A. Efimov, M.D. Moores, N.M. Beach, J.L. Krause, and D.H. Reitze. Adaptive control of pulse phase in a chirped-pulse amplifier. *Opt. Lett.*, 23:1915--1917, 1998.
- [162] A.M. Weiner. Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators. *Rev. Sci. Instr.*, 71:1929--1960, 2000.
- [163] A. Präkelt, M. Wollenhaupt, A. Assion, Ch. Horn, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, and T. Baumert. Compact, robust, and flexible setup for femtosecond pulse shaping. *Rev. Sci. Instr.*, 74:4950--4953, 2003.
- [164] A. Monmayrant, S. Weber, and B. Chatel. A newcomer's guide to ultrashort pulse shaping and characterization. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 43:103001, 2010.
- [165] A. Fettweis. *Elemente Nachrichtentechnischer Systeme*. Teubner, 1990.
- [166] R.N. Bracewell. *The Fourier Transform and its Applications*. McGraw-Hill, 2000.
- [167] P. Nuernberger. Differences and analogies between linearly chirped and colored double pulses in the femtosecond regime. *Opt. Comm.*, 282:227, 2009.

- [168] M. Renard, R. Chaux, B. Lavorel, and O. Faucher. Pulse trains produced by phase-modulation of ultrashort optical pulses: tailoring and characterization. *Opt. Expr.*, 12:473, 2004.
- [169] N.X. Truong, J. Tiggesbäumker, and K.H. Meiwes-Broer. Intense colored pulse trains: generation, characterization, and applications. *J. Opt.*, 12:115201, 2010.
- [170] H. Pohlheim. *Evolutionäre Algorithmen*. Springer, 2000.
- [171] R.S. Judson and H. Rabitz. Teaching lasers to control molecules. *Phys. Rev. Lett.*, 68:1500--1503, 1992.
- [172] T. Brixner, M. Strehle, and G. Gerber. Feedback-controlled optimization of amplified femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. B*, 68:281--284, 1999.
- [173] T. Brixner, A. Oehrlein, M. Strehle, and G. Gerber. Feedback-controlled femtosecond pulse shaping. *Appl. Phys. B*, 70:S119--S124, 2000.
- [174] J.A. Nelder and R. Mead. A Simplex Method for Function Minimization. *Computer Journal*, 7:308--313, 1965.
- [175] J.C. Lagarias, J.A. Reeds, M.H. Wright, and P.E. Wright. Convergence Properties of the Nelder-Mead Simplex Method in Low Dimensions. *SIAM Journal of Optimization*, 9:112--147, 1998.
- [176] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Comm.*, 56:219, 1985.
- [177] P.M.W. French. The generation of ultrashort laser pulses. *Rep. Progr. Phys.*, 58:169, 1995.
- [178] S. Backus, C.G. Durfee III, M.M. Murnane, and H.C. Kapteyn. High power ultrafast lasers. *Rev. Sci. Instr.*, 69:1207--1223, 1998.
- [179] Fastlite, Dazzler, www.fastlite.com, 2006.
- [180] P. Tournois. Acousto-optic programmable dispersive filter for adaptive compensation of group delay time dispersion in laser systems. *Opt. Comm.*, 140:245--249, 1997.
- [181] 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. *Opt. Lett.*, 25:575, 2000.
- [182] F. Verluise, V. Laude, J.P. Huignard, P. Tournois, and A. Migus. Arbitrary dispersion control of ultrashort optical pulses with acoustic waves. *J. Opt. Soc. Am. B*, 17:138, 2000.

- [183] D. Kaplan and P. Tournois. Theory and performance of the acousto optic programmable dispersive filter used for femtosecond laser pulse shaping. *J. Phys. IV France*, 12:69--75, 2002.
- [184] D. Kaplan and P. Tournois. *Acousto-Optic Spectral Filtering of Femtosecond Laser Pulses*, volume 4. Springer, 2004.
- [185] N. X. Truong, J. Tiggesbäumker, and T. Döppner. Shaper-assisted removal of the direction-of-time ambiguity in second-harmonic generation frequency-resolved optical gating. *Meas. Sci. Technol.*, 21:085303, 2010.
- [186] L.N. Brillouin. Diffusion de la lumière et des rayons X par un corps transparent homogène: Influence de l'agitation thermique. *Ann. Phys.*, 17:88--122, 1922.
- [187] P. Debye and F.W. Sears. On the Scattering of Light by Supersonic Waves. *Proc. Natl. Acad. Sci.*, 18:409--414, 1932.
- [188] A. Yariv and P. Yeh. *Optical Waves in Crystals*. Wiley, 1984.
- [189] M. Bass, C. DeCusatis, J. Enoch, V. Lakshminarayanan, G. Li, C. Macdonald, V. Mahajan, and E. Van Stryland. *Handbook of Optics, Volume V: Atmospheric Optics, Modulators, Fiber Optics, X-Ray and Neutron Optic*. McGraw-Hill, 2010.
- [190] J.P. Toennies. Helium clusters and droplets: microscopic superfluidity and other quantum effects. *Mol. Phys.*, 111:1879--1891, 2013.
- [191] M. Berglund, L. Rymell, H.M. Hertz, and T. Wilhein. Cryogenic liquid-jet target for debris-free laser-plasma soft x-ray generation. *Rev. Sci. Instr.*, 69:2361--2364, 1998.
- [192] B.A.M. Hansson, M. Berglund, O. Hemberg, and H.M. Hertz. Stabilization of liquified-inert-gas jets for laser-plasma generation. *J. Appl. Phys.*, 95:4432--4437, 2004.
- [193] E. Parra, S.J. McNaught, and H.M. Milchberg. Characterization of a cryogenic, high-pressure gas jet operated in the droplet regime. *Rev. Sci. Instr.*, 73:468--475, 2002.
- [194] M. Grams, B. Stasicki, and J.P. Toennies. Production and characterization of micron-sized filaments of solid argon. *Rev. Sci. Instr.*, 76:3904, 2005.
- [195] R.A. Costa Fraga, A. Kalinin, M. Kühnel, D.C. Hochhaus, A. Schottelius, J. Polz, M.C. Kaluza, P. Neumayer, and R.E. Grisenti. Compact cryogenic source of periodic hydrogen and argon droplet beams for relativistic laser-plasma generation. *Rev. Sci. Instr.*, 83:025102, 2012.
- [196] J. W. S. Rayleigh. On the Instability of Jets. *Proc. London Math. Soc.*, 10:4, 1878.
- [197] S.P. Lin and R.D. Reitz. Drop and Spray Formation from a Liquid Jet. *Ann. Rev. Fl. Mech.*, 30:85--105, 1998.

- [198] E.G Loewen and E. Popov. *Diffraction Gratings and Applications*. Dekker, 1997.
- [199] J. James. *Spectrograph design fundamentals*. Cambridge University Press, 2007.
- [200] N. Yamaguchi, Y. Sato, J. Katoh, T. Aota, K. Ikeda, A. Mase, and T. Tamano. Space-Resolving Flat-Field Grazing-Incidence Spectrograph for Large Plasma Diagnostics. *J. Plas. Fus. Res.*, 71:867, 1995.
- [201] P. Beiersdorfer, M. Bitter, L. Roquemore, J.K. Lepson, and M.F. Cu. Grazing-incidence spectrometer for soft x-ray and extreme ultraviolet spectroscopy on the National Spherical Torus Experiment. *Rev. Sci. Instr.*, 77:10F306, 2006.
- [202] A. Lapierre, J.R.C. López-Urrutia, T.M. Baumann, S.W. Epp, A. Gonchar, A.J. G. Martínez, G. Liang, A. Rohr, R.S. Orts, M.C. Simon, H. Tawara, R. Versteegen, and J. Ullrich. Compact soft x-ray spectrometer for plasma diagnostics at the Heidelberg Electron Beam Ion Trap. *Rev. Sci. Instr.*, 78:123105, 2007.
- [203] J.P. Farrell, B.K. McFarland, P.H. Bucksbaum, and M. Gühr. Calibration of a high harmonic spectrometer by laser induced plasma emission. *Opt. Expr.*, 17:15134--15144, 2009.
- [204] U. Zastra, T. Burian, J. Chalupsky, T. Döppner, T. Dzelzainis, R.R. Fäustlin, C. Fortmann, E. Galtier, S.H. Glenzer, G. Gregori, L. Juha, H.J. Lee, R.W. Lee, C.L.S. Lewis, N. Medvedev, B. Nagler, A.J. Nelson, D. Riley, F.B. Rosmej, S. Toleikis, T. Tschentscher, I. Uschmann, S.M. Vinko, J.S. Wark, T. Whitcher, and E. Förster. XUV spectroscopic characterization of warm dense aluminum plasmas generated by the free-electron-laser FLASH. *Laser and Part. Beams*, 30:45--56, 2012.
- [205] A. Przystawik, L. Schroedter, M. Müller, M. Adolph, C. Bostedt, L. Flückiger, T. Gorkhover, A. Kickermann, M. Krikunova, L. Nösel, T. Oelze, Y. Ovcharenko, D. Rupp, M. Sauppe, S. Schorb, S. Usenko, T. Möller, and T. Laarmann. Ionization dynamics of Xe nanoplasma formation studied with XUV fluorescence spectroscopy. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 48:184002, 2015.
- [206] Hitachi, Flatfield Grating 001-0437, www.hitachi-hightech.com, 2008.
- [207] T. Kita, T. Harada, N. Nakano, and H. Kuroda. Mechanically ruled aberration-corrected concave gratings for a flat-field grazing-incidence spectrograph. *Appl. Opt.*, 22:512--513, 1983.
- [208] N. Nakano, H. Kuroda, T. Kita, and T. Harada. Development of a flat-field grazing-incidence XUV spectrometer and its application in picosecond XUV spectroscopy. *Appl. Opt.*, 23:2386--2392, 1984.
- [209] Andor, Newton 940 [DO], www.andor.com, 2010.
- [210] M. Banyay, S. Brose, and L. Juschkin. Line image sensors for spectroscopic applications in the extreme ultraviolet. *Meas. Sci. Techn.*, 20:105201, 2009.

- [211] Hitachi / Lambda Advanced Technology, Datenblatt theoretical grating efficiency, www.lambda-at.com, 2014.
- [212] B.L. Henke, E.M. Gullikson, and J.C. Davis. X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission, and reflection at $e=50\text{--}30000$ eV, $Z=1\text{--}92$. *Atomic Data and Nuclear Data Tables*, 52:181--342, 1993.
- [213] T. Dzelzainis. Flatfield Focal Planes, Matlab Skript zur Raytracing-Simulation, priv. comm., 2006.
- [214] T. Harada, K. Takahashi, H. Sakuma, and A. Osyczka. Optimum design of a grazing-incidence flat-field spectrograph with a spherical varied-line-space grating. *Appl. Opt.*, 38:2743--2748, 1999.
- [215] E.A. Vishnyakov, A.O. Kolesnikov, E.N. Ragozin, and A.N. Shatokhin. Soft X-ray flat-field VLS spectrographs. *Quant. Electr.*, 46:953, 2016.
- [216] R.R. Fäustlin, U. Zastra, S. Toleikis, I. Uschmann, E. Förster, and Th. Tschentscher. A compact soft X-ray spectrograph combining high efficiency and resolution. *J. Instr.*, 5:P02004, 2010.
- [217] U. Zastra, V. Hilbert, C. Brown, T. Döppner, S. Dziarzhytski, E. Förster, S.H. Glenzer, S. Göde, G. Gregori, M. Harmand, D. Hochhaus, T. Laarmann, H.J. Lee, K.H. Meiwes-Broer, P. Neumayer, A. Przystawik, P. Radcliffe, M. Schulz, S. Skruszewicz, F. Tavella, J. Tiggesbäumker, S. Toleikis, and T. White. In-situ determination of dispersion and resolving power in simultaneous multiple-angle XUV spectroscopy. *J. Instr.*, 6:P10001, 2011.
- [218] L. Schroedter. *Extreme Ultraviolet Fluorescence Spectroscopy of Pure and Core-Shell Rare Gas Clusters at FLASH*. Dissertation, Universität Hamburg, 2013.
- [219] E. T. Gumbrell, A. J. Comley, M. H. R. Hutchinson, and R. A. Smith. Intense laser interactions with sprays of submicron droplets. *Phys. Plas.*, 8:1329--1339, 2001.
- [220] R.L. Kelly. Atomic and Ionic Spectrum Lines below 2000 Angstroms : Hydrogen through Krypton. *J. Phys. Chem. Ref. Data*, 16, 1987.
- [221] A. McPherson, T.S. Luk, B.D. Thompson, K. Boyer, and C.K. Rhodes. Multiphoton-induced X-ray emission and amplification from clusters. *Appl. Phys. B*, 57:337--347, 1993.
- [222] T. Mocek, C.M. Kim, H.J. Shin, D.G. Lee, Y.H. Cha, K.H. Hong, and C.H. Nam. Enhancement of soft x-ray emission from a cryogenically cooled Ar gas jet irradiated by 25 fs laser pulse. *Appl. Phys. Lett.*, 76:1819, 2000.
- [223] E.R. Kieft, J.J.A.M. Van der Mullen, G.M.W. Kroesen, and V. Banine. Time-resolved pinhole camera imaging and extreme ultraviolet spectrometry on a hollow cathode discharge in xenon. *Phys. Rev. E*, 68:056403, 2003.

- [224] A. Assion, T. Baumert, J. Helbing, V. Seyfried, and G. Gerber. Coherent control by a single phase shaped femtosecond laser pulse. *Chem. Phys. Lett.*, 259:488–494, 1996.
- [225] M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, and T. Baumert. Quantum control by selective population of dressed states using intense chirped femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. B*, 82:183–188, 2006.
- [226] J. Park, J.H. Lee, and C.H. Nam. Laser chirp effect on femtosecond laser filamentation generated for pulse compression. *Opt. Expr.*, 16:4465–4470, 2008.
- [227] M. Krug, T. Bayer, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, S.S. Ivanov, and N.V. Vitanov. Coherent strong-field control of multiple states by a single chirped femtosecond laser pulse. *New J. Phys.*, 11:105051, 2009.
- [228] D.G. Lee, J.H. Kim, K.H. Hong, and C.H. Nam. Coherent control of high-order harmonics with chirped femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 87:243902, 2001.
- [229] H.T. Kim, I.J. Kim, V. Tosa, Y.S. Lee, and C.H. Nam. High brightness harmonic generation at 13 nm using self-guided and chirped femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. B*, 78:863–867, 2004.
- [230] C.A. Froud, E.T. Rogers, D.C. Hanna, W.S. Brocklesby, M. Praeger, A.M. de Paula, J.J. Baumberg, and J.G. Frey. Soft-x-ray wavelength shift induced by ionization effects in a capillary. *Opt. Lett.*, 31:374–376, 2006.
- [231] J. Zhou, J. Peatross, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn, and I.P. Christov. Enhanced high-harmonic generation using 25 fs laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 76:752, 1996.
- [232] Y. Fukuda, K. Yamakawa, Y. Akahane, M. Aoyama, N. Inoue, H. Ueda, and Y. Kishimoto. Optimized energetic particle emissions from Xe clusters in intense laser fields. *Phys. Rev. A*, 67:061201, 2003.
- [233] N.X. Truong, S. Göde, J. Tiggesbäumker, and K.H. Meiwes-Broer. A study of the global chirp dependence on the interaction of intense colored double pulses with clusters. *Eur. Phys. J. D*, 63:275–280, 2011.
- [234] F.X. Kärtner. *Few-Cycle Laser Pulse Generation and Its Applications*. Springer, 2004.
- [235] S. Düsterer, H. Schwoerer, W. Ziegler, D. Salzmann, and R. Sauerbrey. Effects of a prepulse on laser-induced euv radiation conversion efficiency. *Appl. Phys. B*, 76:17–21, 2003.
- [236] M. Krikunova, M. Adolph, T. Gorkhover, D. Rupp, S. Schorb, C. Bostedt, S. Roling, B. Siemer, R. Mitzner, H. Zacharias, and T. Möller. Ionization dynamics in expanding clusters studied by xuv pump–probe spectroscopy. *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.*, 45:105101, 2012.

- [237] W.F. Hsieh, J Zheng, and R.K. Chang. Transmission through plasma created by laser-induced breakdown of water droplets. *Opt. Lett.*, 14:1014--1016, 1989.
- [238] S.B. Hansen, K.B. Fournier, A.Y. Faenov, A.I. Magunov, T.A. Pikuz, I.Y. Skobelev, Y. Fukuda, Y. Akahane, M. Aoyama, N. Inoue, H. Ueda, and K. Yamakawa. Measurement of 2l-nl' x-ray transitions from $\approx 1\mu\text{m}$ Kr clusters irradiated by high-intensity femtosecond laser pulses. *Phys. Rev. E*, 71:016408, 2005.
- [239] V.V. Bukin, N.S. Vorob'ev, S.V. Garnov, V.I. Konov, V.I. Lozovoi, A.A. Malyutin, M.Y. Shchelev, and I.S. Yatskovskii. Formation and development dynamics of femtosecond laser microplasma in gases. *Quant. Electr.*, 36:638, 2006.
- [240] M. Müller, F.C. Kühl, P. Großmann, P. Vrba, and K. Mann. Emission properties of ns and ps laser-induced soft x-ray sources using pulsed gas jets. *Opt. Expr.*, 21:12831--12842, 2013.
- [241] J.J. MacFarlane, I.E. Golovkin, P. Wang, P.R. Woodruff, and N.A. Pereyra. SPECT3D - A multi-dimensional collisional-radiative code for generating diagnostic signatures based on hydrodynamics and PIC simulation output. *High Energ. Dens. Phys.*, 3:181--190, 2007.
- [242] H. Fiedorowicz, A. Bartnik, M. Szczurek, H. Daido, N. Sakaya, V. Kmetik, Y. Kato, M. Suzuki, M. Matsumura, J. Tajima, T. Nakayama, and T. Wilhein. Investigation of soft X-ray emission from a gas puff target irradiated with a Nd:YAG laser. *Opt. Comm.*, 163:103--114, 1999.
- [243] S. Ter-Avetisyan, M. Schnürer, H. Stiel, U. Vogt, W. Radloff, W. Karpov, W. Sandner, and P.V. Nickles. Absolute extreme ultraviolet yield from femtosecond-laser-excited Xe clusters. *Phys. Rev. E*, 64:036404, 2001.
- [244] T. Higashiguchi, C. Rajyaguru, S. Kubodera, W. Sasaki, N. Yugami, T. Kikuchi, S. Kawata, and A. Andreev. Efficient soft X-ray emission source at 13.5 nm by use of a femtosecond-laser-produced Li-based microplasma. *Appl. Phys. Lett.*, 86:231502, 2005.
- [245] T. Cummins, T. Otsuka, N. Yugami, W. Jiang, A. Endo, B. Li, C. O'Gorman, P. Dunne, E. Sokell, G. O'Sullivan, and T. Higashiguchi. Optimizing conversion efficiency and reducing ion energy in a laser-produced Gd plasma. *Appl. Phys. Lett.*, 100:061118, 2012.
- [246] W. Ballard, L. Bernardez II, R. Lafon, R. Anderson, Y. Perras, A. Leung, H. Shields, M. Petach, R. Pierre, and R. Bristol. High-power laser-produced-plasma EUV source. In *SPIE's 27th Annual International Symposium on Microlithography*, pages 302--309. International Society for Optics and Photonics, 2002.
- [247] N.R. Farrar, D.C. Brandt, I.V. Fomenkov, A.I. Ershov, N.R. Bowering, W.N. Partlo, D.W. Myers, A.N. Bykanov, G.O. Vaschenko, O.V. Khodykin, J.R. Hoffman, and C.P. Chrobak. Euv laser produced plasma source development. *Micr. Eng.*, 86:509--512, 2009.

- [248] R.E. Russo, X.L. Mao, H.C. Liu, J.H. Yoo, and S.S. Mao. Time-resolved plasma diagnostics and mass removal during single-pulse laser ablation. *Appl. Phys. A*, 69:S887--S894, 1999.
- [249] G.C. Junkel-Vives, J. Abdallah Jr, T. Auguste, P. D'Oliveira, S. Hulin, P. Monot, S. Dobosz, A.Y. Faenov, A.I. Magunov, T.A. Pikuz, I.Y. Skobelev, A.S. Boldarev, and V.A. Gasilov. Spatially resolved x-ray spectroscopy investigation of femtosecond laser irradiated Ar clusters. *Phys. Rev. E*, 65:036410, 2002.
- [250] V.V. Bukin, S.V. Garnov, A.A. Malyutin, and V.V. Strelkov. Interferometric diagnostics of femtosecond laser microplasma in gases. *Phys. Wav. Phen.*, 20:91--106, 2012.
- [251] P. Chizhov, V. Bukin, and S. Garnov. Interferometry in Femtosecond Laser Plasma Diagnostics. *Phys. Proc.*, 71:222--226, 2015.
- [252] D. Komar, K.H. Meiwes-Broer, and J. Tiggesbäumker. High performance charge-state resolving ion energy analyzer optimized for intense laser studies on low-density cluster targets. *Rev. Sci. Instr.*, 87:103110, 2016.
- [253] R. Trebino. *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*. Kluwer, 2002.
- [254] F. Salin, P. Georges, G. Roger, and A. Brun. Single-shot measurement of a 52-fs pulse. *Appl. Opt.*, 26:4528--4531, 1987.
- [255] R. Trebino, K.W. DeLong, D.N. Fittinghoff, J.N. Sweetser, M.A. Krumbügel, B.A. Richman, and D.J. Kane. Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating. *Rev. Sci. Instr.*, 68:3277--3295, 1997.
- [256] C. Iaconis and I. A. Walmsley. Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. *Opt. Lett.*, 23:792--794, 1998.
- [257] B. Seifert and H. Stolz. A method for unique phase retrieval of ultrafast optical fields. *Meas. Sci. Techn.*, 20:015303, 2009.
- [258] P. O'Shea, M. Kimmel, X. Gu, and R. Trebino. Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement. *Opt. Lett.*, 26:932, 2001.
- [259] P. O'Shea, S. Akturk, M. Kimmel, and R. Trebino. Practical issues in ultra-short-pulse measurements with GRENOUILLE. *Appl. Phys. B*, 79:683, 2004.
- [260] K.W. DeLong, B. Kohler, K. Wilson, D.N. Fittinghoff, and R. Trebino. Pulse retrieval in frequency-resolved optical gating based on the method of generalized projections. *Opt. Lett.*, 19:2152--2154, 1994.
- [261] E. Zeek, A.P. Shreenath, P. O'Shea, M. Kimmel, and R. Trebino. Simultaneous automatic calibration and direction-of-time removal in frequency-resolved optical gating. *Appl. Phys. B*, 74:s265--s271, 2002.

- [262] B.Schmidt, M.Hacker, G.Stobrawa, and T.Feurer. Lab2 - A virtual femtosecond laser lab, www.lab2.de, 2016.
- [263] G. Vogt, P. Nuernberger, R. Selle, F. Dimler, T. Brixner, and G. Gerber. Analysis of femtosecond quantum control mechanisms with colored double pulses. *Phys. Rev. A*, 74:033413, 2006.
- [264] P.H. Heckmann and E. Trabert. *Einführung in die Spektroskopie der Atomhülle*. Vieweg, 1980.
- [265] S. Göde, R. Irsig, J. Tiggesbäumker, and K.H. Meiwes-Broer. Time-resolved studies on the collapse of magnesium atom foam in helium nanodroplets. *New J. Phys.*, 15:015026, 2013.
- [266] G. Galinis, L.G. Mendoza Luna, M.J. Watkins, A.M. Ellis, R.S. Minns, M. Mladenovic, M. Lewerenz, R. T. Chapman, I.C.E. Turcu, C. Cacho, E. Springate, L. Kazak, S. Göde, R. Irsig, S. Skruszewicz, J. Tiggesbäumker, K.H. Meiwes-Broer, A. Rouzee, J.G. Underwood, M. Siano, and K. von Haeften. Formation of coherent rotational wavepackets in small molecule-helium clusters using impulsive alignment. *Faraday Discuss.*, 171:195–218, 2014.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei allen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ein besonderer Dank geht an

- Prof. Karl-Heinz Meiwes-Broer und PD Dr. Josef Tiggesbäumker für dieses interessante und vielseitige Thema und die umfangreiche Unterstützung bei der Umsetzung.
- Prof. Ronald Redmer, PD Dr. Thomas Bornath und Dr. Mohammed Shihab für die Durchführung der Simulation und die hilfreichen Diskussionen.
- Frank Richter & die Feinmechanische Werkstatt, ohne die weder das Spektrometer noch die Vakuum-Kammer entstanden wären.
- Jan Dittrich, der bei den kleineren und größeren Reparaturen am Lasersystem geholfen hat.
- Dr. Sebastian Göde und Lev Kazak für die tatkräftige Mitarbeit im Labor und den Support an der Tropfenquelle.
- alle Leute der AG Cluster für die tolle Arbeitsatmosphäre.
- und schließlich an family&friends für die Ablenkung.

Selbständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig angefertigt und ohne fremde Hilfe verfasst habe, keine außer den von mir angegebenen Hilfsmitteln und Quellen dazu verwendet habe und die den benutzten Werken inhaltlich und wörtlich entnommenen Stellen als solche kenntlich gemacht habe.

Rostock, Januar 2017

Robert Irsig