

**Entwicklung hochauflösender röntgenoptischer
Verfahren für Hohe-Harmonische-Strahlung im extrem
ultravioletten Spektralbereich**

Dissertation

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von

Marek Wieland

aus

Achim

Bonn 2004

Angefertigt mit Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

1. Referent: Prof. Dr. Dieter Meschede
 2. Referent: Prof. Dr. Karsten Buse
- Tag der Dissertation: 04.03.04

Kurzfassung

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Entwicklung röntgenoptischer Komponenten und deren Anwendung an einer Hohe-Harmonische-Quelle im extrem-ultravioletten Spektralbereich um 13 nm Wellenlänge. Die durch Frequenzvervielfachung erzeugten Harmonischen hoher Ordnung eines gepulsten Titan:Saphir-Lasers weisen laserähnliche Eigenschaften auf, die sie für verschiedenste Anwendungsgebiete interessant machen. Die Emission der untersuchten Harmonischen erfolgt in einen Strahlungskegel geringer Divergenz von typischerweise 1 mrad und weist mit dem Fundamentalpuls vergleichbare räumliche Kohärenzeigenschaften auf. Der Emissionsprozess ist auf ein Zeitintervall beschränkt, das kleiner als die Laserpulsdauer ist, so dass die Pulsdauer der Harmonischen-Strahlung im Bereich einiger fs oder darunter liegt. Diese Eigenschaften machen diese Form von elektromagnetischer Strahlung in Verbindung mit der relativ kleinen Wellenlänge zu einer erfolgversprechenden Sonde für die zeitaufgelöste Untersuchung sehr schneller, z.B. elektronischer Prozesse in Materie. Statische röntgenoptische Verfahren für hohe räumliche oder spektrale Auflösungen zur Aufklärung der mikroskopischen Struktur von Materie können unter Verwendung der hohen Harmonischen so um die Zeitdimension erweitert und auf die Analyse dynamischer Prozesse auf einer fs-Skala ausgedehnt werden.

Als ein erster Schritt in diese Richtung konnten mit dafür entwickelten optischen Komponenten Verfahren aus den Bereichen Mikroskopie, Interferometrie und Spektroskopie mit Hohe-Harmonische-Strahlung erfolgreich umgesetzt werden. So wurde ein räumlich hochauflösender röntgenmikroskopischer Aufbau realisiert, der aus einem sphärischem Multilayer-Spiegel als Kondensator und einer Zonenplatte als Objektiv besteht. Mit diesem Aufbau gelang es, in Kieselalgen Strukturen von bis zu 160 nm aufzulösen. Weiter wurde die Funktionsfähigkeit eines Interferometers basierend auf zwei Zonenplatten demonstriert, die als Strahlteiler und als rekombinierendes optisches Element fungieren. Mit diesem Interferometer wurde erstmalig eine direkte Bestimmung der komplexen Brechzahl bei 13 nm Wellenlänge an einer Laborröntgenquelle durchgeführt. Im Rahmen der Absorptionsspektroskopie wurden Messungen der chemischen Verschiebung an den L-Absorptionskanten von Aluminium und Silizium durchgeführt, mit denen die Eignung der hohen Harmonischen für diesen Zweck gezeigt werden konnte. An Silizium-Proben wurde darüber hinaus in einem Pump-Probe-Experiment mit Zeitauflösung die photoinduzierte Änderung der Absorption an der Si-L-Kante untersucht.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Eigenschaften der Hohe-Harmonische-Strahlung	5
2.1	Strahlungserzeugung und -ausbreitung	5
2.1.1	Strahlungserzeugung: Atom-Licht-Wechselwirkung	5
2.1.2	Strahlungsausbreitung	8
2.2	Zeitstruktur hoher Harmonischer	11
2.3	Zeitliche und räumliche Kohärenzeigenschaften	14
3	Experimentelle Verfahren der XUV-Diagnostik	19
3.1	Wechselwirkung von XUV-Strahlung mit Materie	19
3.2	Röntgenoptische Elemente	21
3.2.1	Optische Filter	21
3.2.2	Grenzen konventioneller Optik	22
3.2.3	Diffraktive Optik	23
3.2.4	Multilayer-Spiegel	28
3.3	Detektoren	30
4	Charakterisierung der Hohe-Harmonische-Strahlung	35
4.1	Experimenteller Aufbau	35
4.1.1	Lasersystem und XUV-Quelle	35
4.1.2	Vakuumsystem	37
4.1.3	Monochromator	39
4.2	Strahlprofil	42
4.3	Spektrum	46
4.4	Räumliche Kohärenz	51
4.5	Fokussierbarkeit	55
5	Röntgenoptische Verfahren mit Hohe-Harmonische-Strahlung im XUV	61
5.1	Mikroskopie	61
5.1.1	Vergrößerte Abbildung mit Zonenplatten	62
5.1.2	XUV-Mikroskopie	65
5.1.3	Diskussion	68

Inhaltsverzeichnis

5.2	Interferometrie	71
5.2.1	Zonenplatteninterferometer	72
5.2.2	Messungen der komplexen Brechzahl bei 100 eV	78
5.2.3	Diskussion	79
5.3	Spektroskopie	82
5.3.1	Absorptionsspektroskopie	82
5.3.2	Pump-Probe Spektroskopie an Si	89
6	Zusammenfassung und Ausblick	93
A	Abkürzungsverzeichnis	96
B	Optikspezifikationen	97
C	Veröffentlichungen	98
	Literaturverzeichnis	99

1 Einleitung

Das bereits 1917 von *Einstein* postulierte physikalische Prinzip der stimulierten Emission ermöglicht nicht nur die Erzeugung und Verstärkung von Licht, sondern ist auch der Schlüssel zur vollständigen Kontrolle eines Lichtfeldes, also von dessen Amplitude und Phase. Die experimentelle Umsetzung dieses Konzeptes mit der Entwicklung des Lasers (Light amplification by stimulated emission of radiation) für sichtbare Strahlung durch *Maiman* im Jahre 1960 stellt einen Meilenstein optischer Technologien dar.

Die vielen verschiedenen, seitdem entwickelten Lasertypen haben eine Fülle neuer Anwendungsfelder in vielen Bereichen der Physik entstehen lassen. Extrem kurze Laserpulse mit Pulsdauern weniger fs ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) haben die zeitaufgelöste Untersuchung schneller Prozesse in Atomen oder Molekülen und damit das Gebiet der fs-Spektroskopie ermöglicht [128]. Ebenso konnte die Erzeugung ultrakalter Materie in Form des theoretisch schon lange vorhergesagten Materiezustandes des *Bose-Einstein-Kondensates* erst durch den Einsatz von Lasern und den Prozess der Laserkühlung erreicht werden [27]. Aber auch klassische lichtmikroskopische Verfahren sind durch den Einsatz von Lasern revolutioniert worden. Die Verwendung von Laserscan-Mikroskopen erlaubt heutzutage bildgebende Verfahren mit räumlichen Auflösungen, die unter der Beugungsgrenze der optischen Systeme liegen [46].

Der Trend zur vollständigen Kontrolle von Lichtfeldern und deren Anwendung als vielfältiges Werkzeug setzt sich zunehmend auch in den Bereich kürzerer Wellenlängen fort und prägt für das gerade begonnene Jahrhundert den Begriff *Jahrhundert des Photons*. Dies verdeutlicht, welche Erwartungen in Verfahren und Techniken gesetzt werden, die auf der Verwendung von Photonen, also Licht im weitesten Sinne, basieren. Dabei spielt die Erweiterung der aus dem sichtbaren Spektralbereich (VIS) bekannten Verfahren und Technologien auf den Bereich der extrem ultravioletten Strahlung (XUV) mit Wellenlängen λ von 10 – 60 nm, aber auch für die Spektralbereiche der weichen ($1 \text{ nm} < \lambda < 10 \text{ nm}$) und härteren Röntgenstrahlung ($\lambda < 1 \text{ nm}$), eine wichtige Rolle.

Insbesondere gilt dies für die Realisierung von Lasern oder laserartigen Lichtquellen in diesen Spektralbereichen, die jedoch nicht ohne weiteres möglich ist. Zum einen ist die Auswahl geeigneter aktiver Medien zur Erzeugung der Besetzungsinversion stark eingeschränkt, zum anderen skaliert die dazu benötigte Pumpenergie mit $\lambda^{-4} - \lambda^{-5}$ [3], was entsprechende Pumpemechanismen erfordert. Die heutzutage kurzweiligsten, kommerziell verfügbaren Laser mit hohen mitt-

1 Einleitung

leren Leistungen sind F₂-Excimer-Laser, die bei einer Wellenlänge von 157 nm emittieren und von großem Interesse für technologische Anwendungen in der Halbleiterlithographie sind.

Im XUV und weichen Röntgenbereich fehlte es bis vor wenigen Jahren an einer mit einem Laser vergleichbaren Quelle, die eine Umsetzung lichtoptischer Verfahren unter Ausnutzung der speziellen Eigenschaften der Strahlung erlaubte. Auch bis heute sind nur einige Röntgenlaserschemata erfolgreich umgesetzt worden, bei denen die benötigte Pumpenergie über Gasentladungen oder VIS-Pumplaser mit sehr hohen Pulsenergien zugeführt wird. Die Vorteile dieser Röntgenlaser liegen in der relativ hohen Anzahl der pro Puls emittierten Photonen und der schmalbandigen Emission, die aus der Besetzungsinversion eines angeregten Zustandes im Plasma resultiert. Gasentladungs-gepumpte Systeme weisen gute Strahlqualitäten bei vergleichsweise langen Pulsdauern im ns-Bereich auf, emittieren derzeit aber nur bis zu Wellenlängen von etwa 40 nm [88]. Die auch bei kleineren Wellenlängen arbeitenden Röntgenlaser zeigen häufig Strahlprofile mit einer Art Filamentierung. Die Emission erfolgt aus mehreren unabhängigen Regionen des gepumpten Plasmas. Die Pulsdauern dieser Laser liegen im Bereich einiger ps [25]. Ein Durchstimmen der Wellenlänge der Laseremission ist meist nur sehr eingeschränkt möglich.

Eine alternative laserartige Strahlungsquelle im XUV beruht auf der direkten Frequenzkonversion optischer ps- oder fs-Laserpulse. Dabei wird die Frequenzvervielfachung der Laserfundamentalen in einem nicht-linearen Medium, zumeist ein Gas, in höhere Harmonische der Grundfrequenz ausgenutzt. Dieser Prozess wird auch *high-harmonic generation* (HHG) genannt. Die Emission der Hohe-Harmonische-Strahlung (HH) oder auch hohen Harmonischen erfolgt in einen Strahl geringer Divergenz, dem ein großer Teil der Eigenschaften der Laserfundamentalen aufgeprägt wird. Durch die gleichzeitige Emission vieler harmonischer Ordnungen wird Strahlung über eine große Bandbreite erzeugt, die von der Fundamentalen im sichtbaren Spektralbereich bis weit in den Bereich weicher Röntgenstrahlung reichen kann. Der Emissionsprozess der hohen Harmonischen ist auf ein Zeitintervall beschränkt, das kleiner als die Dauer des Laserpulses ist. Bei der Verwendung eines wenige fs kurzen Laserpulses kann so ein XUV-Puls erzeugt werden, dessen Pulsdauer unter 1 fs liegt [48]. Die Konversionseffizienz der Umsetzung von sichtbarer Strahlung in Harmonische im XUV ist jedoch relativ gering und liegt in der Größenordnung $10^{-7} - 10^{-9}$.

Der Prozess der HHG liefert kurzweilige Strahlungspulse, die in Verbindung mit spektroskopischen oder mikroskopischen Techniken als Sonde zur zeitaufgelösten Untersuchung mikroskopischer Eigenschaften von Materie eingesetzt werden können. Das dazu in der Regel verwendete Verfahren basiert auf der Pump-Probe-Technik, bei der die zu untersuchende Probe mit einem VIS-Laserpuls angeregt und anschließend mit einem XUV-Puls analysiert wird. In verschiedenen Gebieten konnte dies bisher mit HH-Strahlung umgesetzt werden, wie z.B. in der Photo- und *Auger*-Elektronenspektroskopie [36, 105] oder zur Untersuchung chemischer

oder physikalischer Prozesse wie der Photodissoziation von Br₂ [81, 82], Kristallgitterdynamik [102] oder Oberflächenuntersuchungen [6, 119]. Darüber hinaus wurden die räumlichen Kohärenzeigenschaften der HH zur Fokussierung und Anregung von Röntgenfluoreszenz [99] oder in Experimenten zur XUV-Holographie [5] ausgenutzt. Die meisten dieser Experimente werden bis heute mit Harmonischen im Wellenlängenbereich von 17 – 50 nm durchgeführt. Optische Elemente zur Strahlformung bzw. -führung werden dabei kaum eingesetzt, auch kommen abbildende Verfahren selten zur Anwendung.

Die vorliegende Arbeit befasst sich mit der Entwicklung und Implementierung abbildender, spektroskopischer und interferometrischer Verfahren an einer HH-Quelle im bisher schwierig zugänglichen Spektralbereich um 13 nm Wellenlänge (≈ 100 eV)¹. Die durchgeführten Experimente beinhalten den Aufbau und Betrieb eines Röntgenmikroskopes für räumlich hochauflösende Abbildungen, die Erprobung eines Interferometers basierend auf *Fresnelschen* Zonenplatten und die Durchführung von XAFS (X-ray Absorption Fine Structure)-Messungen im Bereich der L_{2p}-Absorptionskanten von Aluminium und Silizium. Die Motivation für diese Experimente ist, Messwerkzeuge zu entwickeln, die unter Verwendung der HH-Strahlung neben einer hohen räumlichen bzw. spektralen Auflösung oder Phasensensitivität zusätzlich eine hohe zeitliche Auflösung bieten. Bevor dieses Ziel erreicht werden kann, bedarf es der Implementierung der statischen Experimente, die in dieser Arbeit beschrieben werden. Im Rahmen der Absorptionsspektroskopie konnte darüber hinaus ein erstes Pump-Probe-Experiment durchgeführt werden.

Der gezielte Einsatz einer Strahlungsquelle für eine spezifische Anwendung erfordert zunächst eine präzise Charakterisierung der emittierten Strahlung. Im Fall der hohen Harmonischen sind insbesondere die spektrale Verteilung sowie das Strahlprofil und dessen zeitliche und räumliche Stabilität von Interesse. Außerdem sind hinsichtlich der Fokussierung der hohen Harmonischen zur Erzeugung hoher Intensitäten im XUV die räumlichen Kohärenzeigenschaften von Bedeutung. Neben den Anwendungsexperimenten stellt die Erfassung dieser Parameter der HH-Strahlung einen Schwerpunkt der durchgeführten Arbeiten dar.

¹ $1239.84/\lambda[\text{nm}] = E_{\text{phot}}[\text{eV}]$

2 Eigenschaften der Hohe-Harmonische-Strahlung

Die Erzeugung von hohen Harmonischen im XUV durch Frequenzvervielfachung eines Laserpulses in einem atomaren Gas und der experimentelle Nachweis im Labor gelangen vor gut 10 Jahren unter Einsatz von gepulsten Lasersystemen mit Pulsdauern im ps- bzw. fs-Bereich [59, 67, 68, 73]. In den erzeugten Harmonischen-Spektren wurde ein starker Abfall der Intensität innerhalb der ersten Harmonischen der Fundamentalen beobachtet, dem ein sehr breites Plateau in etwa gleich intensiver Harmonischer folgte. Das Plateau endete an der kurzwelligen Seite in einem steilen Abfall, dem sogenannten *cut-off*. Mit der Entwicklung immer leistungsstärkerer Laser mit Pulsdauern von nur noch wenigen fs wurde die kurzwellige Grenze der Harmonischen bis in den Bereich weicher Röntgenstrahlung ausgedehnt [19, 98, 110]. Den Experimenten gingen theoretische Arbeiten voraus, die die Möglichkeit der Frequenzvervielfachung von sichtbaren Laserpuls bis zu sehr hohen Harmonischen der Fundamentalfrequenz voraus sagten [7]. Der zunächst semiklassischen Theorie des Erzeugungsprozesses [23, 61, 70] folgte schnell eine quantenmechanische Beschreibung der zugrunde liegenden Mechanismen [66].

Von Anfang an standen die besonderen Eigenschaften der Strahlung im Mittelpunkt der Untersuchungen. Bedingt durch den Erzeugungsprozess durch Fokussieren eines Laserpulses in ein Gastarget, weisen die Harmonischen-Pulse laserähnliche Eigenschaften auf. Die Emission erfolgt in einen Strahl geringer Divergenz, der kollinear mit dem anregenden Laserpuls propagiert [90] und einen hohen Grad an räumlicher Kohärenz aufweist [5, 32]. Die zur Erzeugung der hohen Harmonischen notwendigen Intensitäten beschränken die Emissionsdauer auf einen Bruchteil der Laserpulsdauer, so dass mit den hohen Harmonischen gepulste XUV-Laborquellen mit Pulsdauern kleiner als 100 fs zur Verfügung standen.

2.1 Strahlungserzeugung und -ausbreitung

2.1.1 Strahlungserzeugung: Atom-Licht-Wechselwirkung

Die Entstehung von hohen Harmonischen kann aufgrund der Wechselwirkung eines einzelnen Atoms mit Ionisationspotential I_p mit einem intensiven Laserfeld der Zentralfrequenz ω_0 und elektrischer Feldstärke E_L verstanden werden. Eine einfache, qualitative Erklärung liefert das sogenannte 3-Stufen-Modell, das von *Corkum* entwickelt wurde [23] und mit einem semi-klassischen Ansatz die Harmonischen-Erzeugung anhand von drei sequentiell ablaufenden

2 Eigenschaften der Hohe-Harmonische-Strahlung

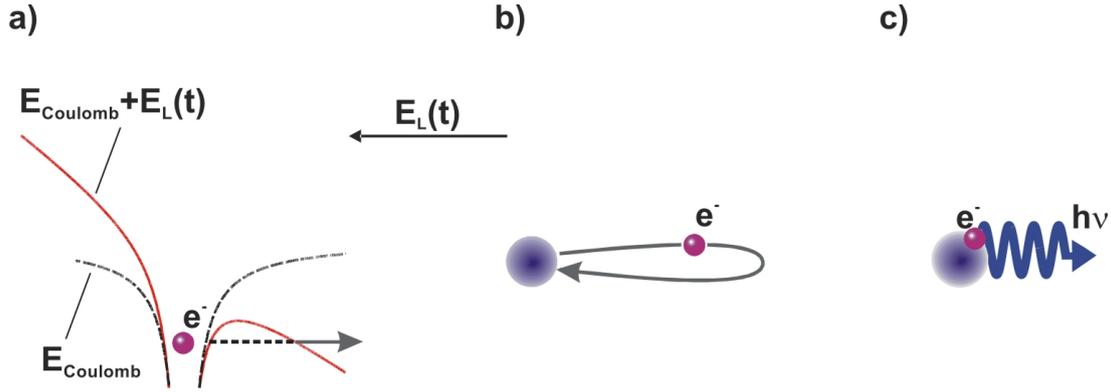


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung des 3-Stufen-Modells: a) Tunnelionisation des Elektrons aufgrund der hohen, lokalen Feldstärke, b) Propagation des Elektrons/Wellenpaketes im Laserfeld und c) Wechselwirkung des zurückkehrenden Elektrons mit dem Atomrumpf unter Emission eines harmonischen Photons.

Prozessen beschreibt (Abb. 2.1a-c). Der Wechselwirkungsprozess beginnt mit der Freisetzung eines Elektrons zum Zeitpunkt t_b aufgrund von Tunnelionisation, die durch die vorhandenen hohen Laserfeldstärken ermöglicht wird (a).

Die Beschreibung der Elektronenbewegung im elektrischen Feld des Lasers mittels klassischer Mechanik liefert die wesentliche Aussage, dass nur im Fall von linear polarisiertem Licht die Trajektorie des Elektrons zum Atomrumpf zurückführen kann, was die Voraussetzung für eine weitere Wechselwirkung von Elektron und Ursprungsatom ist (b). Dementsprechend ist mit zunehmender Elliptizität der Laserpolarisation ein starker Abfall der Effizienz der Harmonischen-Erzeugung zu erwarten, was sich im Experiment bestätigt [14, 101]. Je nach Zeitpunkt der Freisetzung des Elektrons, kann dieses unterschiedlich viel kinetische Energie durch das Laserfeld aufnehmen, deren Maximum $3.17 U_p$ beträgt. U_p wird als ponderomotives Potential bezeichnet und entspricht der mittleren kinetischen Energie des Elektrons im Laserfeld, die durch

$$U_p = \frac{e^2 E_L^2}{m_e \omega_0^2} = \text{const } I_L \lambda_0^2 \quad (2.1)$$

gegeben ist. Hierbei steht e für die Elementarladung und m_e für die Ruhemasse des Elektrons, I_L ist die Intensität des fokussierten Lasers und λ_0 die ω_0 entsprechende Zentralwellenlänge.

Kehrt ein freigesetztes Elektron nach einer halben Laserperiode zu seinem Ursprungsatom zurück, können drei konkurrierende Prozesse auftreten. Zum einen ist ein weiterer Ionisationsprozess möglich, bei dem ein zweites Elektron durch Stoßionisation freigesetzt wird, zum anderen kann das Elektron elastisch gestreut werden. Rekombiniert das Elektron hingegen in seinen ursprünglichen Zustand, wird die kinetische Energie plus die Ionisationsenergie in ein hochenergetisches Photon umgesetzt (c). Hieraus ergibt sich direkt die maximale Energie eines harmonischen Photons zu [23]

$$\hbar\omega_{max} = 3.17 U_p + I_p. \quad (2.2)$$

Diese Abhängigkeit stimmt mit den experimentellen Ergebnissen grundlegend überein [67, 69, 73]. Aufgrund der Periodizität des treibenden Laserfeldes ist das resultierende Harmonischen-Spektrum diskret und besteht aus ungeraden Vielfachen der fundamentalen Laserfrequenz ω_0 . Streng genommen gilt Gleichung (2.2) nur für längere Laserpulse mit hinreichend vielen optischen Zyklen, bei denen U_p genau definiert ist. Im Fall sehr kurzer Laserpulse kann das emittierte Spektrum auch gerade Harmonische enthalten bzw. im Bereich des *cut-off* ein Quasi-Kontinuum ausbilden (vgl. Kap. 4.3), wenn nur noch ein einzelner optischer Zyklus zur Strahlungserzeugung beiträgt. Das 3-Stufen-Modell beschreibt nur die Wechselwirkung einzelner Atome mit dem Laserfeld. Kollektive Effekte bei der Entstehung bzw. Ausbreitung der Harmonischen bleiben unberücksichtigt.

Die quantenmechanische Beschreibung der Harmonischen-Erzeugung basiert auf der Lösung der nichtrelativistischen, zeitabhängigen Schrödingergleichung des Elektronenwellenpaketes im E-Feld des Lasers, hier in atomaren Einheiten [21]:

$$i\partial_t|\Psi(\mathbf{x}, t)\rangle = \left(-\frac{1}{2}\nabla^2 + V(\mathbf{x}) - \mathbf{x}E(\mathbf{x}, t)\right)|\Psi(\mathbf{x}, t)\rangle. \quad (2.3)$$

$|\Psi(\mathbf{x}, t)\rangle$ steht für die Wellenfunktion des Elektrons. Der erste Teil des Hamiltonoperators repräsentiert den Coulomb-Anteil des atomaren Feldes, der zweite Teil die Wechselwirkung mit dem E-Feld des Lasers ($E(t) = E_L$). Zur Lösung der Schrödingergleichung wird häufig die *strong field approximation* verwendet, die für $U_p > I_p \gg \hbar\omega_0$ gültig ist [67] und folgende Näherungen macht:

- i) Nach der Freisetzung des Elektrons wird dieses als freies Teilchen betrachtet, also der Einfluß des Coulomb-Potentials des Atoms vernachlässigt. Die Coulomb-Eigenfunktionen der Kontinuumszustände können dann mit ebenen Wellen als Kontinuumseigenfunktionen genähert werden.
- ii) Alle gebundenen Zustände außer dem des Grundzustandes, aus dem der beobachtete Prozess hervorgeht, werden vernachlässigt.

Die Lösung der Schrödingergleichung hat die Bestimmung des zeitabhängigen atomaren Dipolmomentes $D(t)$ zum Ziel. Aus diesem kann mit der Berechnung des Betragsquadrates der Fouriertransformierten $|D(\omega)|^2$ das Spektrum der Harmonischen-Emission bestimmt werden [61].

Die quantenmechanische Beschreibung der Erzeugung von hohen Harmonischen und das Bild des 3-Stufen-Modells können über die Darstellung des Erwartungswertes $\langle D(t) \rangle$ des atomaren Dipolmomentes als Produkt von drei Wahrscheinlichkeitsamplituden verknüpft werden [13]:

$$\langle D(t) \rangle = \sum_{t_b} \frac{1}{\sqrt{i}} a_{\text{ion}}(t_b) a_{\text{prop}}(t_b, t) a_{\text{rec}}(t_b). \quad (2.4)$$

Zum Zeitpunkt t_b wird ein Wellenpaket mit der Wahrscheinlichkeit $a_{\text{ion}}(t_b)$ erzeugt, propagiert im Feld des Lasers und kehrt zum Zeitpunkt t mit der Wahrscheinlichkeit $a_{\text{prop}}(t_b, t)$ zum

2 Eigenschaften der Hohe-Harmonische-Strahlung

Ursprungsatom zurück, wo es mit der Wahrscheinlichkeit $a_{\text{rec}}(t_b)$ zur Rekombination in den Grundzustand und Emission eines harmonischen Photons kommt. Die Energie des emittierten Photons ergibt sich wiederum als Summe der kinetischen Energie des Elektrons und der Ionisationsenergie des Atoms. Da nicht nur eine einzelne Elektronentrajektorie für die Emission einer bestimmten harmonischen Energie in Frage kommt, muss in (2.4) über alle möglichen Geburtszeitpunkte t_b des Elektrons summiert werden.

2.1.2 Strahlungsausbreitung

Während die genaue Kenntnis der Atom-Licht-Wechselwirkung zum Verständnis der Harmonischen-Entstehung ausreicht, sind für die experimentelle Erzeugung und Anwendung der Strahlung weitere Effekte zu berücksichtigen, die durch die Propagation der Harmonischen und der Laserstrahlung im Targetmedium bedingt sind. Als Target bezeichnet man das in den meisten Fällen quasistatische Teilchenreservoir, in das der Treiberlaser fokussiert wird. Das zur Frequenzkonversion eingesetzte nicht-lineare Medium kann als Atom, Molekül oder aber auch als Cluster vorliegen, wobei wegen Gleichung (2.2) meistens Atome mit hohem Ionisationspotential eingesetzt werden. Dies sind in der Regel die Edelgase. Die weitere Betrachtung beschränkt sich hier auf die Kombination von statischem Edelgas-Target und fs-Laserpuls zur Harmonischen-Erzeugung. Weitere mögliche Targetsysteme sind gepulste Gasdüsen [39] oder mit dem Targetgas gefüllte Hohlfasern [90]. Die Möglichkeit der Harmonischen-Erzeugung an Festkörperoberflächen sei ebenso der Vollständigkeit halber erwähnt [71].

Je nach Geometrie des Targets und verwendetem Gas können die Gasdrücke innerhalb des Reservoirs einige 100 mbar erreichen. Die vorhandene Gasatmosphäre beeinflusst sowohl die Propagation der Harmonischen als auch der fundamentalen Laserstrahlung und folgende Effekte sind dabei von Bedeutung [13]:

- i) Reabsorption der XUV-Strahlung innerhalb des Targets oder der umgebenden Gasatmosphäre.
- ii) Defokussierung des Lasers aufgrund eines Brechzahlgradienten im Laserfokus.
- iii) Verlust der Phasenanpassung von Harmonischen und Fundamentalpuls.

i) Die Absorptionsquerschnitte für weiche Röntgen- und XUV-Strahlung sind für die meisten Elemente relativ groß [118]. Die Absorptionslänge l_{abs} liegt im Bereich weniger μm , so dass schon dünne Materialschichten oder geringe Gaspartialdrücke zu hoher Absorption führen (vgl. Kap. 3.1). Aus diesem Grund müssen die Strahlungserzeugung und die anschließenden Experimente im Vakuum stattfinden. Neben der Absorption im Target selbst verursacht das aus dem Target ausströmende Gas einen Druckanstieg im umgebenden Vakuum, der durch den Einsatz einer saugstarken Vakuumpumpe kompensiert werden muss. Drücke unter 10^{-1} mbar in der Umgebung des Targets sollten dabei zur Vermeidung zu hoher Absorption erreicht werden.

ii) Bedingt durch die im Laserfokus erzeugten Intensitäten in der Größenordnung von 10^{13} – 10^{15} W/cm² kommt es zur Defokussierung des Lasers durch die Ionisation des Targetgases. Dabei wird eine Elektronendichteverteilung im Plasma erzeugt, die in der geometrischen Mitte des Fokus ihren Maximalwert erreicht und in Richtung der Flanken kontinuierlich abfällt. Dieses Dichteprofil entspricht einer lokalen Brechzahländerung Δn , die Brechzahl nimmt von der Mitte des Fokus nach außen hin zu. Der Laser erfährt eine Defokussierung, die zu einer Reduzierung der lokalen Intensität führt. Dadurch kommt es zu einer Verminderung der effektiven Interaktionslänge, innerhalb der die Harmonischen-Erzeugung stattfindet, und somit zu einer verminderten Erzeugungseffizienz.

iii) Größeren Einfluss auf die Erzeugungseffizienz hat die Phasenanpassung von Laserpuls und erzeugten Harmonischen, da nur auf einer Interaktionslänge, innerhalb der die akkumulierte Phasendifferenz kleiner als π ist, ein kohärentes Anwachsen des harmonischen Signals möglich ist. Die entsprechende Länge wird auch als Kohärenzlänge bezeichnet. Die Phasendifferenz von fundamentalem und harmonischem Puls ist von mehreren Parametern abhängig:

- (a) Die im Fokus erzeugten freien Ladungsträger beeinflussen die Phasengeschwindigkeiten im Targetgas (Plasmadispersion). Freie Elektronen resultieren in einem negativen Beitrag zur Brechzahl, der von der Elektronendichte N_e und somit von der Plasmafrequenz des erzeugten Plasmas

$$\omega_p = \sqrt{\frac{e^2 N_e}{\epsilon_0 m_e}} \quad (2.5)$$

bestimmt ist. Die daraus resultierende Kohärenzlänge l_{fe} hängt auch von der Ordnung N der Harmonischen ab und ergibt sich nach [31] zu

$$l_{fe} = \frac{2\pi c \omega_0}{\omega_p(t)^2 N}. \quad (2.6)$$

Für eine Zentralwellenlänge des Lasers von $\lambda_0 = 790$ nm, einen Ionisationsgrad von 10%, also einem Verhältnis $N_e/N_n = 0.1$ ($N_n =$ Neutraltelchendichte) und einen typischen Druck im Target von $p_T = 150$ mbar ergibt sich eine Plasmafrequenz von $\omega_p = 3.44 \times 10^{15}$ Hz und eine entsprechende Kohärenzlänge von $l_{fe} \approx 62$ μ m.

- (b) Zum Verlust der Phasenanpassung führt auch ein geometrischer Effekt, der sogenannte *Guoy phase shift*. Damit wird der Phasensprung bezeichnet, den der fokussierte Laser im Fokus erfährt und der einem negativen Beitrag zur Brechzahl entspricht. Die daraus resultierende Kohärenzlänge ist

$$l_{\text{Guoy}} = \frac{\pi z_0}{N} = \frac{\pi w_0^2}{N \lambda_0}, \quad (2.7)$$

mit dem konfokalen Parameter z_0 und w_0 als Radius der Strahltaile im Fokus. Ein typischer Wert für w_0 von 50 μ m ergibt $l_{\text{Guoy}} \approx 500$ μ m für die 61. Harmonische bei 13 nm Wellenlänge.

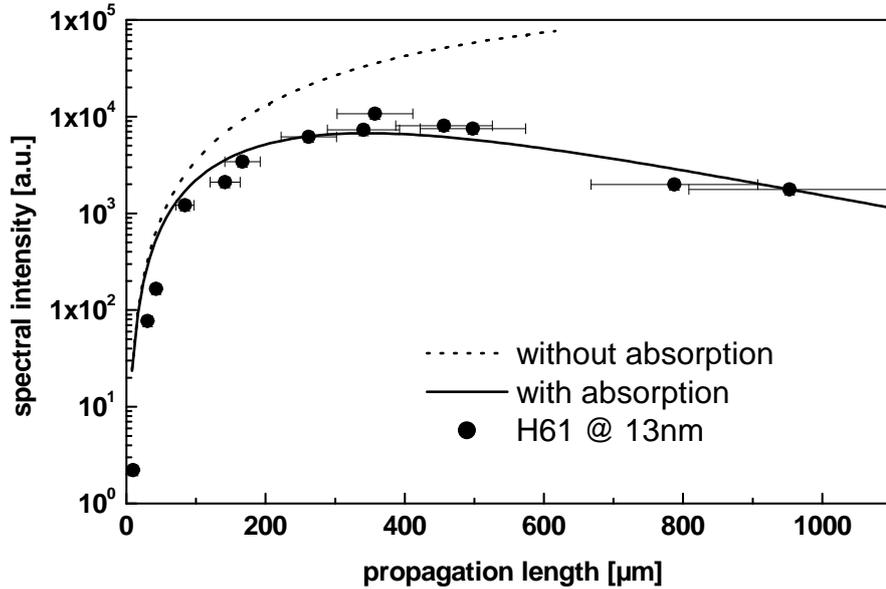


Abbildung 2.2: Vergleich von Theorie (Linien) und Experiment (Symbole) zur Erzeugung der 61. Harmonischen eines Ti:Saphir-Lasers im Bereich der Absorptionsbegrenzung (aus [97]). Dargestellt ist die Intensität der 61. Harmonischen in Abhängigkeit von der Propagationslänge im Targetmedium.

- (c) Ein dritter die Phasenanpassung beeinflussender Effekt ist die Intensitätsabhängigkeit des atomaren Dipolmomentes. Dieser Effekt ist klein gegenüber den beiden zuerst genannten und kann in der Regel vernachlässigt werden.

Defokussierung (ii) und *Guoy phase shift* (iiib) hängen direkt vom konfokalen Parameter z_0 des Lasers ab und können im Experiment durch Variation von Fokusgröße und -position beeinflusst werden. Als günstig erweist sich eine Positionierung des Targets hinter dem Laserfokus [92]. Der Verlust der Phasenanpassung durch die Plasmadispersion im Target ist nicht ohne weiteres zu kompensieren. Durch den Einsatz ultrakurzer Laserpulse mit nur noch wenigen optischen Zyklen kann diese experimentelle Schwierigkeit aber überwunden werden [97]. Die Dispersion des Targetgases ist bei den vorliegenden geringen Drücken vernachlässigbar klein.

Ionisationsprozesse sind die Basis für die Erzeugung der hohen Harmonischen, jedoch sind die Wahrscheinlichkeiten für die nachfolgende Emission eines HH-Photons sehr gering ($a_{\text{prop}}(t_b, t) \cdot a_{\text{rec}}(t_b) \ll 1$), d.h. der Hauptteil der erzeugten Ladungsträger trägt vielmehr zur Reduzierung der HH-Effizienz bei. Wird der ionisierte Anteil des Targetgases N_e/N_n zum Zeitpunkt der Harmonischen-Erzeugung deutlich reduziert, kann die Erzeugungseffizienz signifikant gesteigert werden. Während für längere fs-Pulse mit Pulsdauern größer als 30 fs der ionisierte Anteil des Targetgases zum Zeitpunkt der zur Harmonischen-Erzeugung notwendigen Feldstärken etwa 10% beträgt, liegt dieser Wert für einen 10 fs-Puls bei nur etwa 0.5-1.0% [97].

In diesem Fall ist es möglich, dass sich die negativen Beiträge zur Brechzahl aus (iiia) und (iiib) und der positive Anteil der Neutralatome gerade kompensieren. Man spricht dann von Phasenanpassung oder auch *phase matching*, was durch geeignete Wahl der Teilchendichte über den Gasdruck im Target erreicht werden kann. Im phasengepassten Regime gilt $l_{\text{coh}} \gg l_{\text{abs}}$ und die Erzeugung der Harmonischen ist durch die Absorption begrenzt [22, 97]. In Abbildung 2.2 ist dieser Effekt anhand von experimentellen und theoretischen Daten gezeigt. Mit zunehmender Propagationslänge im Targetmedium wächst das Harmonischen-Signal zunächst an und geht dann in den Bereich der Sättigung über. Die Propagationslänge ergibt sich aus Gasdichte im Target und dessen Länge.

Für den Wellenlängenbereich $\lambda > 10$ nm, für den als Targetgase meistens Argon und Neon eingesetzt werden, kann durch die Variation des Targetdrucks in der Regel $l_{\text{coh}} > l_{\text{abs}}$ erreicht werden. In diesem Spektralbereich dominiert die Absorption die Erzeugung der hohen Harmonischen. Für kürzere Wellenlängen hingegen wird die Phasenanpassung immer schwieriger, da $l_{\text{fe}} \sim 1/N$ und außerdem höhere Intensitäten zur Erzeugung der Harmonischen notwendig sind, was wiederum eine erhöhte Erzeugung freier Elektronen bedeutet.

Da die Brechzahl im XUV-Spektralbereich nur wenig von eins abweicht und außerdem die relative Änderung der Brechzahl sehr gering ist, spielen die diesbezüglich beschriebenen Effekte für die Harmonischen selbst nur eine untergeordnete Rolle und können in den meisten Fällen vernachlässigt werden.

2.2 Zeitstruktur hoher Harmonischer

Die Entwicklung des Lasers, insbesondere von Lasersystemen mit Pulsdauern kleiner als 100 fs, hat viele Bereiche physikalischer Untersuchungen revolutioniert. Atomare Vibrationen, das Entstehen und Aufbrechen chemischer Bindungen sowie nachfolgende Neuordnungen der atomaren Gefüge z.B. in Molekülen können heutzutage mit hoher zeitlicher Präzision untersucht werden, da Sonden in Form von Laserpulsen zur Verfügung stehen, die kürzer sind als die zu untersuchenden Prozesse, die auf typischen Zeitskalen von 10 – 1000 fs ablaufen. Der direkte Zugang zu Prozessen höherer Bindungsenergien, wie z.B. Innerschalenübergängen war bisher aufgrund der eingeschränkten Verfügbarkeit von XUV-Quellen mit Pulsdauern von einigen fs schwierig oder nicht möglich.

Die Emissionscharakteristik von Synchrotronstrahlung aus Ablenkmagneten oder Undulatoren ist zunächst durch die zeitliche Struktur der gespeicherten Elektronenpakete bestimmt. Die erreichbare Zeitauflösung in Pump-Probe-Experimenten liegt im Bereich einiger 10 ps. Durch den Einsatz des sogenannten *fs-slicing*, bei dem fs-Laserpulse zur Modifikation der Zeitstruktur eines Elektronenpaketes benutzt werden, sind Auflösungen bis zu 300 fs demonstriert [100]. Jedoch erfordert diese Art von Experiment eine aufwändige Synchronisation von Lasersystem

2 Eigenschaften der Hohe-Harmonische-Strahlung

und gespeicherten Elektronenpaketen. Außerdem kann meist nur ein Bruchteil der Synchrotronstrahlung benutzt werden, deren typische, durch die Hochfrequenz-Resonatoren der Speicherringe bedingte Wiederholrate bei 500 MHz liegt. Die Pump-Probe-Wiederholrate ist in der Regel durch die verwendeten Lasersysteme beschränkt.

Im Gegensatz dazu besitzen lasergetriebene Laborquellen wie laserinduzierte Plasmen (LIP), Röntgenlaser (XRL) oder HHG die Synchronisation als grundlegende Quelleigenschaft. Die erreichbaren Brillanzen, also die pro Raumwinkel, Wellenlängenintervall, Bandbreite und in Beobachtungsrichtung projizierte Quellfläche emittierte Anzahl an Photonen, sind hingegen um Größenordnungen kleiner. Die Zeitstruktur der XUV-Emission aus LIP oder XRL aufgrund von Rekombinations- oder Relaxationsprozessen ist im Wesentlichen durch die Plasmadynamik bestimmt. Typische Pulsdauern liegen auch beim Einsatz von fs-Lasern im Bereich einiger ps [8, 25, 76]. Charakteristische Linienstrahlung der Innerschalenübergänge wie z.B. K_α -Emission kann deutlich kürzere Pulsdauern aufweisen, jedoch liegen nur die Übergänge der leichtesten Elemente ($Z < 8$) im XUV-Bereich, und die Fluoreszenz ist im Gegensatz zu Auger-Prozessen stark unterdrückt [62].

Ein erfolgversprechender Ansatz zur Erzeugung kurzer XUV-Pulse ist die HHG. Neben der laserähnlichen Kollimierung und Ausbreitung der hohen Harmonischen ist deren zeitliche Struktur ihre herausragende Eigenschaft. Die Emissionsdauer eines HH-Pulses ist auf einen Bruchteil der Laserpulsdauer beschränkt, da erst ab einer notwendigen Schwellintensität der nichtlineare Erzeugungsprozess einsetzt, was insbesondere für höhere Ordnungen der Harmonischen in der Nähe des *cut-off* gilt. Im Bereich der XUV-Quellen stellen die lasergetriebenen HH somit prinzipiell eine Zeitauflösung zur Verfügung, die heutzutage bei entsprechenden Photonenflüssen mit keiner anderen Quelle erreicht werden kann.

In Abhängigkeit vom verwendeten fundamentalen Laserpuls ändert sich die Zeitstruktur der erzeugten Strahlung. Für längere fs-Pulse mit vielen optischen Zyklen kommt es zur Entstehung von XUV-Pulszügen, da jede E-Feld-Spitze des Laserfeldes zur HHG beiträgt. Die Pulszüge bestehen aus aufeinander folgenden Pulsen, die durch die halbe Laseroszillationsperiode $T_0/2$ separiert sind [21]. Die Dauer der Einzelpulse im Pulszug liegt zwischen 200 – 300 as ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) [2]. Da die Detektion der Einzelpulse bei einer Repetitionsrate von $\nu_0/2$ abgeschlossen ist, bleibt die bei diesen Pulsen erzielbare Zeitauflösung auf die Größenordnung der Laserpulsdauer beschränkt.

Ziel vieler Experimente ist es dementsprechend, isolierte as-Pulse zu erzeugen, um die erreichbare Zeitauflösung zu verbessern. Eine notwendige Voraussetzung dafür ist die Verwendung von Laserpulsen weniger optischer Zyklen. Damit kann erreicht werden, dass die Emission sehr hoher Harmonischer im Bereich des *cut-off* auf eine einzelne halbe Oszillationsperiode beschränkt bleibt, da nur dort die notwendige Intensität vorliegt (siehe Abb. 2.3). Die Quasi-Periodizität des Erzeugungsprozesses geht dabei verloren. Das resultierende Harmonischen-Spektrum weist

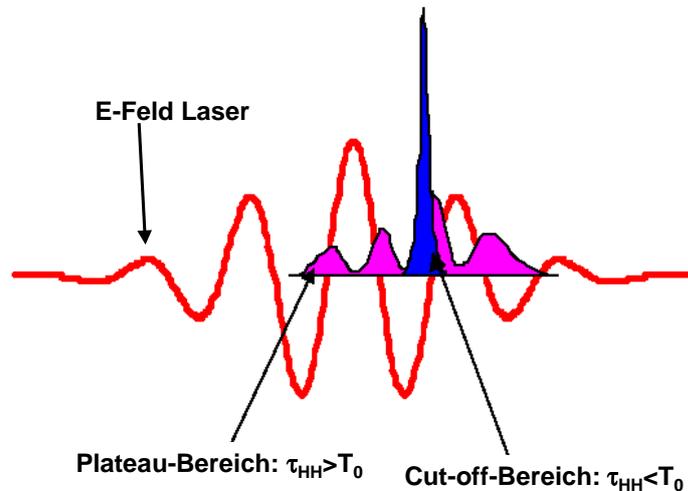


Abbildung 2.3: Prinzip der Erzeugung eines isolierten as-Pulses (blau) im Bereich des *cut-off* im Vergleich zu as-Pulszügen im Plateau-Bereich (magenta). Nur im mittleren Zyklus des ≈ 5 fs langen Laserpulses reicht die Intensität zur Erzeugung eines hochenergetischen Photons aus, während in den Zyklen davor und danach Harmonische des Plateau-Bereiches entstehen. Gezeigt sind in Abhängigkeit von der Zeit das elektrische Feld des Lasers und die resultierende Intensität des XUV-Pulses (aus [54]).

nur noch wenig Modulation auf und geht im Idealfall in ein Kontinuum über. Harmonische aus dem Bereich des Plateaus entstehen auch innerhalb der optischen Zyklen davor und danach und formen so einen Pulszug. Im Fall längerer fs-Laserpulse tragen mehrere optische Zyklen auch im Bereich des *cut-off* zur Harmonischen-Emission mit resultierendem Pulszug bei. Bleibt die Emission der hohen Harmonischen auf einen halben optischen Zyklus beschränkt, bestimmt die nutzbare Bandbreite der Strahlung die resultierende Pulsdauer. Bei einer typischen Bandbreite von 0.4 nm einer einzelnen Harmonischen bei 13 nm Wellenlänge ergibt sich eine bandbreitenbegrenzte Pulsdauer von $\tau = 0.62$ fs = 620 as unter Annahme eines Gauß-Pulses mit $\tau \times \Delta\nu = 0.44$. Zur Erzeugung noch kürzerer Pulse ist eine entsprechend größere Bandbreite notwendig. Experimentelle Ergebnisse der Pulsdauerbestimmung lassen darauf schließen, dass die Harmonischen im Regelfall nicht bandbreitenbegrenzt sind, sondern einen Chirp mit resultierender Pulsverlängerung aufweisen [55].

Da die Erzeugung der sehr kurzen VIS-Pulse < 10 fs mit relativ großem experimentellen Aufwand verbunden ist, gibt es andere Ansätze, die Harmonischen-Emission auf einen optischen Zyklus zu beschränken, wie z.B. *Polarization-Gating*. Dabei wird mit Hilfe von Polarisationsoptiken die Laserpolarisation derart beeinflusst, dass nur für eine oder wenige der Lichtoszillationen die für die Erzeugung der Harmonischen notwendige lineare Polarisation vorliegt und so die Emissionsdauer der Harmonischen begrenzt ist [24]. Bisher ist diese Technik jedoch erst im Bereich der niederenergetischen Harmonischen demonstriert [60].

2 Eigenschaften der Hohe-Harmonische-Strahlung

Während die Zeitstruktur der durch HHG erzeugten Pulse durch theoretische Beschreibungen frühzeitig vorausgesagt wurde [2, 21], konnten die ersten experimentellen Nachweise erst vor kurzem geliefert werden [48, 84]. Ursache dafür sind die Schwierigkeiten, die bei der Umsetzung bekannter lichtoptischer Verfahren zur Pulsdauerbestimmung, wie z.B. Autokorrelationsmessungen, in den XUV-Spektralbereich entstehen. Die Wechselwirkung der XUV-Strahlung mit Materie schränkt die Anzahl verfügbarer optischer Elemente zur Strahlteilung und Fokussierung stark ein (vgl. Kap. 3.2). Weiter erschweren geringe Intensitäten und wenige geeignete, nicht-lineare Prozesse derartige Messungen bei kurzen Wellenlängen. Lediglich im Bereich der 9. Harmonischen eines Titan:Saphir-Lasers bei 90 nm konnte diese Technik über 2-Photonen-Ionisation von He bisher erfolgreich angewendet werden [58]. Pulsdauermessungen im Bereich von 13 nm Wellenlänge basieren bisher auf Kreuzkorrelationsmessungen von XUV- und Laserpuls. Dazu werden die XUV-Pulse in ein Edelgas fokussiert, wo sie Photoelektronen erzeugen. Wird gleichzeitig ein Anteil der Fundamentalpuls in die Wechselwirkungszone fokussiert, kommt es je nach Verzögerung zwischen Harmonischem- und Fundamentalpuls zu einem Impulsübertrag auf die erzeugten Photoelektronen, die mittels eines *time-of-flight* (TOF) Photoelektronenspektrometers detektiert werden. Die aus den Spektren für viele verschiedene Verzögerungen bestimmten Pulsdauern einzelner XUV-Pulse einer Bandbreite von etwa 5 eV liegen bei 650 as [35, 48].

2.3 Zeitliche und räumliche Kohärenzeigenschaften

Unter Kohärenz versteht man die Eigenschaft von Wellenfeldern, Interferenzerscheinungen zu erzeugen, sie ist ein Maß für den Grad der Korrelation der Wellenfelder untereinander. Aus dem Prinzip der Superposition folgt für die durch die Überlagerung zweier Wellen mit Phasendifferenz ϕ in einer Beobachtungsebene resultierende, lokale Intensität

$$I = I_1 + I_2 + 2\sqrt{I_1 I_2} \cos \phi. \quad (2.8)$$

Für den Fall nicht-korrelierter Wellen mit einer statistisch verteilten Phasendifferenz ϕ verschwindet der Phasenterm $2\sqrt{I_1 I_2} \cos \phi$ im zeitlichen Mittel. Die beobachtete Intensität ergibt sich aus der Addition der Einzelintensitäten. Im Gegensatz dazu sind Interferenzerscheinungen dann zu beobachten, wenn durch eine wohldefinierte Phasenbeziehung der Teilwellen der Phasenterm im zeitlichen Mittel von Null verschieden ist.

Die Kohärenztheorie basiert auf Korrelationsfunktionen der Wellenfelder, wobei grundlegend in zeitliche (longitudinale) Kohärenz und räumliche (transversale) Kohärenz unterschieden wird. Die Kohärenzfunktion einer beliebigen Lichtquelle ist durch die räumliche und zeitliche Korrelation des zeitabhängigen, komplexen E-Feldes $\mathbf{E}(\mathbf{r}, \mathbf{t})$ an den Orten \mathbf{r}_1 und \mathbf{r}_2 zu den

Zeitpunkten t und $t + \Delta t$ gegeben [12]:

$$\Gamma_{12}(\Delta t) = \Gamma(\mathbf{r}_1, \mathbf{r}_2, \Delta t) = \langle \mathbf{E}(\mathbf{r}_1, t + \Delta t) \mathbf{E}^*(\mathbf{r}_2, t) \rangle \quad (2.9)$$

$$= \lim_{t \rightarrow \infty} \frac{1}{t} \int_{-t/2}^{t/2} \mathbf{E}(\mathbf{r}_1, t' + \Delta t) \mathbf{E}^*(\mathbf{r}_2, t') dt' \quad (2.10)$$

Die normierte Kohärenzfunktion

$$\gamma_{12}(\Delta t) = \frac{\Gamma_{12}(\Delta t)}{\sqrt{\Gamma_{11}(0) \Gamma_{22}(0)}} = \frac{\Gamma_{12}(\Delta t)}{\sqrt{I_1 I_2}} \quad (2.11)$$

wird als komplexer Kohärenzgrad bezeichnet, wobei $\Gamma_{nn}(0)$ der Intensität I_n entspricht. Es gilt immer $0 \leq |\gamma_{12}| \leq 1$.

Die in einem Beugungs- oder Interferenzexperiment zugängliche Größe ist die Intensitätsverteilung eines Interferenzmusters in der Beobachtungsebene. Über die Intensitätsverhältnisse benachbarter heller und dunkler Streifen wird der Kontrast

$$K = \frac{I_{\max} - I_{\min}}{I_{\max} + I_{\min}} \quad (2.12)$$

definiert, der mit dem komplexen Kohärenzgrad verknüpft ist:

$$K = \frac{2\sqrt{I_1 I_2}}{I_1 + I_2} |\gamma_{12}(\Delta t)| \quad (2.13)$$

Informationen über den Kohärenzgrad der Beleuchtung des optischen Systems können somit aus der Messung der Kontrastfunktion gewonnen werden.

Vollständig kohärente Beleuchtung ergibt sich nur im Fall einer unendlich entfernten bzw. einer Punktquelle, die einen monochromatischen Wellenzug emittiert, für den eine feste Phasenbeziehung aller Teilwellen zu jeder Zeit an jedem Ort existiert. Reale Quellen mit endlicher Bandbreite und einer räumlichen Ausdehnung liefern in der Regel partiell kohärente Beleuchtung.

Zeitliche Kohärenz

Die zeitliche Kohärenz beschreibt die Interferenzfähigkeit von Partialwellen mit unterschiedlichen zurückgelegten optischen Wegen, Gleichung (2.11) vereinfacht sich zu $\gamma_{11}(\Delta t) = \Gamma_{11}(\Delta t)/I_1$. Die Kohärenzzeit t_{coh} und die longitudinale Kohärenzlänge $l_{\text{coh}} = c/t_{\text{coh}}$ sind direkt mit der Monochromasie bzw. Bandbreite verknüpft und ausschließlich von der spektralen Zusammensetzung der Strahlung bestimmt. Anschaulich entspricht l_{coh} der Strecke, die zwei Wellenzüge mit Wellenlängen λ und $\lambda + \Delta\lambda$ propagieren können, bevor ihre Phasendifferenz π beträgt. Sie ist gegeben durch

$$l_{\text{coh}} = \frac{\lambda^2}{2\Delta\lambda} = \frac{hc}{\Delta E} \quad (2.14)$$

2 Eigenschaften der Hohe-Harmonische-Strahlung

Der hier auftretende Faktor $1/2$ wird in der Literatur unterschiedlich angegeben und hängt von der Linienform der betrachteten spektralen Verteilung ab [3].

Interferenzerscheinungen mit hohem Kontrast können im Experiment nur dann beobachtet werden, wenn die z.B. durch Strahlteilung und -rekombination erzeugten Wegunterschiede der interferierenden Partialwellen kleiner als die Kohärenzlänge sind. Diese Anforderung stellt insbesondere im XUV aufgrund der kleinen Wellenlängen hohe Anforderungen an Interferenzexperimente, da die vorhandenen Kohärenzlängen in der Regel sehr klein sind. Eine spektrale Breite von $\Delta\lambda = 0.2$ nm bei $\lambda = 13$ nm Wellenlänge entspricht einer Kohärenzlänge von nur 420 nm.

Räumliche Kohärenz

Im Gegensatz zur zeitlichen Kohärenz ist die räumliche Kohärenz ein Maß für die Korrelation innerhalb des Strahlungsfeldes senkrecht zu dessen Ausbreitungsrichtung. Die Korrelationsfunktion für $\Delta t = 0$ wird als komplexer Kohärenzfaktor oder komplexe, räumliche Kohärenzfunktion bezeichnet:

$$\mu_{12} = \gamma_{12}(0). \quad (2.15)$$

Diese hängt neben der Wellenlänge wesentlich von den räumlichen Eigenschaften der Strahlungsquelle und der Geometrie der Beleuchtung ab. Diesen Zusammenhang beschreibt das *van-Cittert-Zernike*-Theorem [12], welches besagt, dass die komplexe räumliche Kohärenzfunktion in einer Beobachtungsebene durch die zweidimensionale Fouriertransformation der Intensitätsverteilung in der Ebene der Lichtquelle gegeben ist. Dies bedeutet, dass das von einer ausgedehnten, quasi-monochromatischen Lichtquelle in der Beobachtungsebene erzeugte Beugungsmuster dem einer am Quellort angebrachten Apertur gleicher Dimension äquivalent ist, aus der eine im Zentrum des Beugungsmusters konvergierende sphärische Welle austritt, deren Intensitätsverteilung der der Quelle proportional ist.

Eine homogen leuchtende Fläche unkorrelierter Emitter der Ausdehnung q_s beleuchtet eine Fläche mit Durchmesser d im Abstand l mit einem Kohärenzgrad $|\mu_{12}| \geq 0.88$, wenn

$$q_s \vartheta \approx q_s d/2l \leq 0.16 \lambda \quad (2.16)$$

erfüllt ist, $\vartheta \approx d/2l$ ist hierbei der halbe Öffnungswinkel der Beobachtungsapertur [12]. Für einen „Beobachter“ erscheint die Quelle unter dieser Bedingung als Punktquelle. Eine räumlich kohärent beleuchtete, aberrationsfreie Optik erzeugt ein beugungsbegrenztes Punktbild, dessen Intensitätsverteilung durch die Airy-Funktion gegeben ist.

Kohärenzeigenschaften hoher Harmonischer

Im Vergleich zu einer thermischen Quelle untereinander nicht korrelierter Emitter impliziert die Erzeugung der hohen Harmonischen mittels eines Lasers vergleichbare räumliche Kohärenzeigenschaften der Strahlung im XUV. Eine über das gesamte Strahlprofil korrelierte Phase φ_L des Lasers sollte eine ebenso korrelierte Harmonischen-Phase $q \cdot \varphi_L$ der Harmonischen q -ter Ordnung erzeugen. Dies bedeutet aber auch, dass im Fall einer zeitlich oder räumlich variierenden Phasenfront des Lasers sich dies als verstärkte Störung der Phasenfront der Harmonischen bemerkbar macht.

Die im Laserfokus erzeugten freien Elektronen des Plasmas beeinflussen zwar nicht direkt die Phasenlage der Harmonischen, jedoch in verstärktem Maße die der Fundamentalen, was sich entsprechend auf die Harmonischen auswirkt. Weiter ist die Harmonischen-Phase selber direkt von der Phase des intensitätsabhängigen Dipolmomentes abhängig. Dies bedeutet, dass Fluktuationen der Intensität über das Erzeugungsgebiet zu einer Verschlechterung der räumlichen Kohärenzeigenschaften des HH-Strahls führen können [33].

Die gute Kollimierung des HH-Strahls lässt zwar auf einen hohen Grad räumlicher Kohärenz schließen, eine einfache Abschätzung zeigt aber, dass die Emission nicht zwangsläufig beugungsbegrenzt erfolgt. Mit einer angenommenen Quellgröße von $100 \mu\text{m}$ und einer Wellenlänge von $\lambda=15 \text{ nm}$ ergibt sich als Öffnungswinkel des Airy-Scheibchens einer beugenden Apertur gleicher Dimension $\vartheta = 0.2 \text{ mrad}$, was unter den gemessenen Divergenzen der HH liegt (vgl. Kap. 4.2).

Genauen Aufschluß über die tatsächlichen Kohärenzeigenschaften können nur direkte Messungen geben. Eine einfache Methode ist die des klassischen Doppelspaltexperimentes [117], bei dem aus dem Beugungsbild der Doppelspalte auf die Kohärenz der Beleuchtung geschlossen wird. Nachteilig ist dabei jedoch, dass pro Spaltabstand nur eine Messung möglich ist und zum Abtasten eines größeren Gebietes eine Vielzahl von Doppelspalten gebraucht wird. Darüber hinaus kann die Interpretation der Beugungsmuster bei nicht-monochromatischer Beleuchtung oder nicht vorhandenem *Fraunhofer*-Fall problematisch sein, wie die Ergebnisse in Kapitel 4.4 zeigen. Da außer Doppelspalt und Detektor aber keine weiteren optischen Elemente benötigt werden, wird diese Methode häufig verwendet. Elegantere Verfahren basieren auf interferometrischen Methoden, die z.T. eine vollständige Bestimmung der Kohärenzfunktion mit einer Messung ermöglichen. Im XUV ist die Verwendung von Interferometern jedoch insbesondere durch die begrenzte Anzahl optischer Elemente erschwert (vgl. Kap. 3.2). Kapitel 5.2 geht auf die Verwendung eines Interferometers hinsichtlich dieser Fragestellung ein.

3 Experimentelle Verfahren der XUV-Diagnostik

Das elektromagnetische Spektrum stellt je nach Frequenz- oder Wellenlängenbereich sehr unterschiedliche Anforderungen an optische Elemente zur Strahlführung und -manipulation sowie an Detektoren zur Diagnose oder Bildgebung. Die Wechselwirkung der Strahlung mit der Materie bestimmt dabei, inwiefern refraktive, diffraktive oder reflektive Optiken eingesetzt werden können bzw. welche Art von Detektor sich zum Nachweis der Strahlung eignet. Insbesondere im XUV-Bereich ergeben sich deutliche Unterschiede zu den aus dem sichtbaren Spektralbereich bekannten Verfahren. Die Ursache dafür liegt hauptsächlich in der verhältnismäßig starken Absorption der Strahlung in Materie.

3.1 Wechselwirkung von XUV-Strahlung mit Materie

Die Beschreibung der makroskopischen Wechselwirkung von weicher Röntgenstrahlung ($\lambda \approx 1 - 10$ nm) oder XUV-Strahlung ($\lambda \approx 10 - 60$ nm) mit Materie erfolgt mit der stark frequenzabhängigen, komplexen Brechzahl

$$n(\omega) = 1 - \delta(\omega) + i\beta(\omega), \quad (3.1)$$

die den phasenschiebenden Einfluss (δ) und die Absorption (β) der Materie berücksichtigt. Die beiden Größen δ und β sind über die mikroskopischen Eigenschaften der Materie bestimmt und können direkt aus Real- und Imaginärteil des atomaren Streufaktors

$$f(\omega) = f_1(\omega) - if_2(\omega) \quad (3.2)$$

berechnet werden [3]:

$$\delta = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_1(\omega) \quad \beta = \frac{n_a r_e \lambda^2}{2\pi} f_2(\omega) \quad (3.3)$$

Hierbei ist r_e der klassische Elektronenradius und n_a die mittlere Atomdichte des betrachteten Materials. Für die meisten Materialien liegen f_1 und f_2 tabelliert für einen großen Spektralbereich vor [47]. Diese Daten basieren auf Absorptionsmessungen zur Bestimmung von f_2 und anschließender Berechnung von f_1 unter Verwendung der Kramers-Kronig-Relation [3], da die direkte experimentelle Bestimmung von f_1 schwierig ist. Dies gilt insbesondere für Bereiche

3 Experimentelle Verfahren der XUV-Diagnostik

in der Nähe von Absorptionskanten, in denen beide Größen starken Schwankungen unterliegen. Für Photonenenergien oberhalb der energiereichsten Resonanz an der K-Absorptionskante nähert sich der Wert des Realteils f_1 dem Wert der Kernladungszahl Z des entsprechenden Materials, da zum Streuquerschnitt alle Elektronen des Atoms beitragen. Der Streuquerschnitt eines einzelnen, freien Elektrons beträgt gerade $f_1 = 1$.

Einer von eins abweichenden Brechzahl entspricht einer von c abweichenden Phasengeschwindigkeit v_Φ und der komplexen Dispersionsrelation

$$v_\Phi = \frac{\omega}{k} = \frac{c}{n(\omega)} = \frac{c}{(1 - \delta + i\beta)}. \quad (3.4)$$

Für eine ebene Welle der Form¹

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 e^{-i(\omega t - \mathbf{k} \cdot \mathbf{r})}$$

ergibt sich in Ausbreitungsrichtung ($\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} = kr$) so

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0 e^{-i\omega(t-r/c)} e^{-i(2\pi\delta/\lambda)r} e^{-(2\pi\beta/\lambda)r}. \quad (3.5)$$

Der erste Term beschreibt die Propagation im Vakuum, der zweite die Phasenschiebung und der dritte die Absorption. Innerhalb einer Materialschicht der Dicke r beträgt die Phasenschiebung

$$\Delta\phi = \frac{2\pi\delta}{\lambda} r \quad (3.6)$$

und nach der Absorptionslänge

$$l_{\text{abs}} = \frac{\lambda}{4\pi\beta}, \quad (3.7)$$

ist die Intensität auf $1/e$ des anfänglichen Wertes abgefallen. Eine experimentell einfach zugängliche Größe ist der lineare Absorptionskoeffizient μ_L , der sich nach dem *Lambert-Beerschen-Gesetz*

$$\frac{I}{I_0} = \exp(-\mu_L r) = \exp\left(-\frac{4\pi\beta}{\lambda} r\right) \quad (3.8)$$

bestimmen lässt.

Generell gilt für den Bereich der extrem ultravioletten Strahlung, dass n nur wenig von eins abweicht. Für die meisten Elemente liegen δ und β in der Größenordnung 10^{-1} – 10^{-4} . In Tabelle 3.1 sind diese beiden Größen am Beispiel von Zirkonium (Zr) und Parylen-N (C_8H_8) zum Vergleich für verschiedene Photonenenergien des Röntgenspektralbereiches aufgelistet. Im Gegensatz zu harter Röntgenstrahlung ist im XUV die Absorption in Materie um einige Größenordnungen stärker, so dass in Transmission arbeitende, optische Elemente in der Regel sehr dünn sind. Weiter ist der phasenschiebende Anteil der Brechzahl meistens größer als die Absorption ($\delta/\beta > 1$). Dies macht insbesondere die Entwicklung bzw. den Einsatz von phasensensitiven Messverfahren, wie z.B. Interferometrie sinnvoll (vgl. Kap. 5.2). Weiter ist ersichtlich, dass

¹Die Vorzeichenwahl des Phasenfaktors ergibt sich aus der Konsistenz mit Gleichung (3.1)

Tabelle 3.1: Werte von δ und β und deren Verhältnis für Zirkonium und den Kunststoff Parylen-N im XUV, weichen und härteren Röntgenbereich [47].

Zirkonium Zr	λ [nm]	$h\nu$ [eV]	δ	β	δ/β
XUV	12.4	100	3.4×10^{-2}	3.2×10^{-3}	10.6
Wasserfenster	2.5	500	2.8×10^{-3}	2.2×10^{-4}	12.7
härtere Röntgenstrahlung	0.25	5000	4.8×10^{-5}	6.1×10^{-6}	7.9
Parylen-N C ₈ H ₈	λ [nm]	$h\nu$ [eV]	δ	β	δ/β
XUV	12.4	100	1.9×10^{-2}	2.6×10^{-3}	7.3
Wasserfenster	2.5	500	1.0×10^{-3}	2.8×10^{-4}	3.6
härtere Röntgenstrahlung	0.25	5000	1.0×10^{-5}	3.8×10^{-8}	263

Absorption mit zunehmender Wellenlänge in verstärktem Maße eine Rolle spielt. Die hohen Absorptionsquerschnitte sind u.a. durch die in diesem Spektralbereich liegenden Innerschalenresonanzen leichterer Elemente begründet. So absorbiert z.B. schon eine 100 nm dicke Folie des Kunststoffes Parylen-N bei 13 nm Wellenlänge 22% der einfallenden Strahlung und bewirkt eine Phasenschiebung von 0.3π . Je nach experimentellen Anforderungen ist somit auch der Verzicht auf sonst häufig eingesetzte stabilisierende Trägerfolien optischer Elemente sinnvoll.

Die starke Absorption von XUV-Strahlung in Materie ist eine wesentliche Eigenschaft dieses Spektralbereiches. Strahlungserzeugung, -führung und Detektion müssen, wie bereits erwähnt, im Vakuum stattfinden, um Absorptionsverluste zu vermeiden. Drücke kleiner als 10^{-3} mbar sind dafür meistens ausreichend.

3.2 Röntgenoptische Elemente

Die im vorangegangenen Abschnitt beschriebenen Wechselwirkungseigenschaften bestimmen, was für optische Elemente zur Strahlmanipulation im XUV eingesetzt werden können. Der wesentliche, limitierende Aspekt ist dabei die nur wenig von eins abweichende Brechzahl bei gleichzeitig hoher Absorption.

3.2.1 Optische Filter

Die Anwendung der durch HHG erzeugten XUV-Strahlung setzt eine effiziente Filterung der aus dem Targetbereich austretenden Strahlung voraus. Zum einen muss der um Größenordnungen stärkere Anteil des Laserlichts unterdrückt werden, zum anderen ist auch eine Reduzierung bzw. vollständige Absorption niederenergetischer Harmonischer wünschenswert. Zu diesem Zweck werden im allgemeinen dünne Metallfolien von wenigen 100 nm Dicke verwendet, die eine

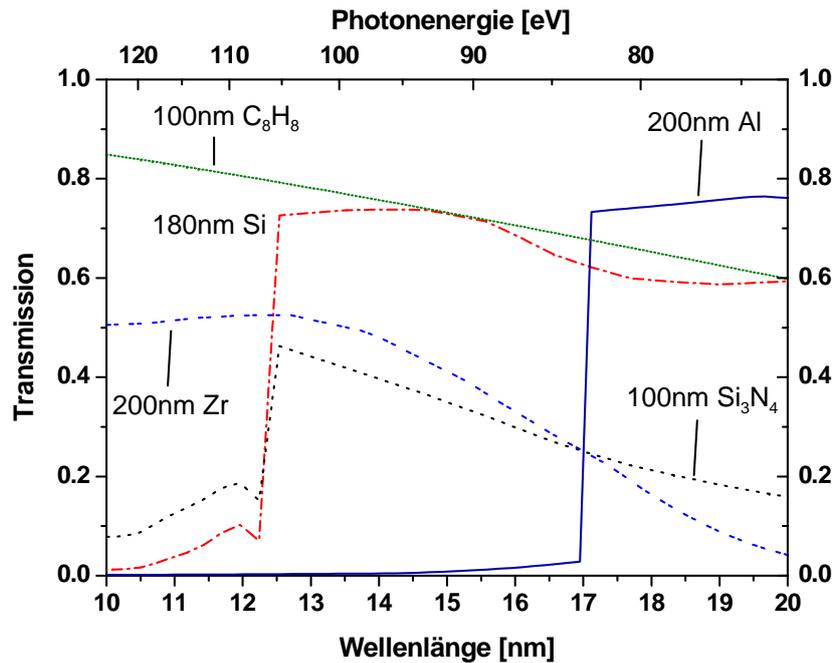


Abbildung 3.1: Transmission verschiedener im Rahmen dieser Arbeit eingesetzter Folien im Spektralbereich um 13 nm Wellenlänge (Daten aus [16]).

gute Unterdrückung der sichtbaren Strahlungsanteile bei gleichzeitig hoher XUV-Transmission ermöglichen. Abbildung 3.1 zeigt Transmissionskurven verschiedener in dieser Arbeit verwendeter Folien (Al, Zr, Si, Si₃N₄ und Parylen-N (C₈H₈)) für den Spektralbereich zwischen 10 und 20 nm Wellenlänge. Für das Arbeiten mit Strahlung von ≈ 13 nm ist ausschließlich die Verwendung von Zr-Filtern zweckmäßig, da alle weiteren als Filter verfügbare Materialien deutlich schlechtere Transmissionen aufweisen oder nicht als dünne Folien herzustellen sind. Die mechanische Stabilität dünner Metallfolien ist sehr gering, so dass sie sich z.B. zur Präparation von Objekten oder als Fenster zur Trennung zweier Vakua nicht eignen. Hierzu bieten sich dünne Fenster aus Si oder Si₃N₄ an, deren Transmissionseigenschaften ebenfalls in Abbildung 3.1 dargestellt sind. Diese Fenster sind zum Teil kommerziell erhältlich und im Gegensatz zu den Metallfolien mechanisch stabiler.

3.2.2 Grenzen konventioneller Optik

Brechungslinsen, die im sichtbaren Spektralbereich die wichtigste Form von Optik darstellen, finden im XUV praktisch keine Verwendung. Zwar ist es prinzipiell möglich, solche Linsen herzustellen, jedoch weisen sie neben geringer Transmissionen relativ kleine numerische Aperturen NA auf. Da die erreichbare räumliche Auflösung eines abbildenden optischen Systems

$$d_x = k \frac{\lambda}{\text{NA}} = k \frac{\lambda}{n \sin \alpha} \quad (3.9)$$

wesentlich von diesem Parameter abhängt [12], ist der Einsatz von refraktiver Optik für Wellenlängen oberhalb von 1 nm nicht sinnvoll. α ist hierbei der halbe Öffnungswinkel der Optik, n die Brechzahl des umgebenden Mediums und k eine numerische Konstante, die vom Kohärenzgrad der Beleuchtung der abzubildenden Ebene abhängt². Erst im Bereich härterer Strahlung kann durch Aneinanderreihen mehrerer Konkavlinen ($|n| < 1$), sogenannter *compound refractive lenses*, Brechung erfolgreich zur Fokussierung angewendet werden [65, 107].

Auch konventionelle, reflektive Optiken sind aus demselben Grund wie Brechungsinsen nur eingeschränkt nutzbar. Für unter kleinen Winkeln zum Lot einfallende Strahlung mit Polarisation senkrecht zur Einfallsebene (s-Polarisation) ist die Reflektivität durch

$$R_{\perp} = \frac{|n - 1|^2}{|n + 1|^2} \simeq \frac{\delta^2 + \beta^2}{4} \quad (3.10)$$

gegeben. Wegen $\delta, \beta \ll 1$ ergeben sich im XUV Reflektivitäten von typischerweise $R = 10^{-5} - 10^{-6}$. Für p-polarisiertes Licht gilt Analoges. Da Materie im Röntgenbereich optisch dünner ist als das Vakuum, kommt es bei Einfallswinkeln³ kleiner als dem Grenzwinkel

$$\alpha_{\text{gr}} = \sqrt{2\delta} \quad (3.11)$$

zur Totalreflexion [74]. Dementsprechend stellen Spiegelsysteme im streifenden Einfall eine wichtige Klasse von Optiken für diesen Spektralbereich dar. Bei 13 nm Wellenlänge liegen typische Werte für den Grenzwinkel von z.B. Gold (Palladium) als reflektierender Oberfläche bei $23.7^\circ (25.9^\circ)$. Bei 5° Einfallswinkel ergeben sich theoretische Reflektivitäten von 86% bzw. sogar 91% [16]. Zu einer erheblichen Verminderung der Reflektivität kommt es jedoch durch große Oberflächenrauigkeiten. Darüber hinaus weisen Einspiegelsysteme Abbildungsfehler wie Koma oder Astigmatismus auf, was durch den Einsatz von mehrkomponentigen Systemen kompensiert werden kann, diese sind in der Regel schwierig zu justieren.

Alternativ entwickelte Optikkonzepte basieren auf Beugung (Diffraktive Optik) oder Interferenz an Vielfachschichten, auf die in den folgenden Abschnitten eingegangen wird.

3.2.3 Diffraktive Optik

Diffraktive optische Elemente stellen sowohl im weichen Röntgen- als auch im XUV-Bereich eine weitere wichtige Optikklasse dar. Im Gegensatz zu refraktiver Optik können sie in Reflexion und Transmission konzipiert werden und haben dementsprechend ein breites Anwendungsfeld. Neben Lineargittern werden vor allem *Fresnelsche* Zonenplatten verwendet, die z. B. als Kondensoren und Objektive in Röntgenmikroskopen im weichen Röntgenbereich eingesetzt werden [77, 78].

² k variiert von $k = 0.61$ für inkohärente Beleuchtung bis $k = 0.82$ für kohärente Beleuchtung.

³Für streifenden Einfall erfolgt die Angabe des Einfallswinkels zur Substratebene.

Zonenplatten

Zonenplatten sind Radialgitter mit nach außen abnehmender Gitterkonstante. Der Radius der n -ten Zone r_n ergibt sich aus dem Zonenplattenbildungsgesetz [108]

$$r_n = n \lambda f_{\text{ZP}} + \frac{n^2 \lambda^2}{4} \approx n \lambda f_{\text{ZP}} \quad (3.12)$$

mit f_{ZP} als Brennweite der Zonenplatte. Diese ist aufgrund des diffraktiven Charakters der Optik von der Wellenlänge der verwendeten Strahlung abhängig:

$$f_{\text{ZP}} = \frac{2r \Delta r}{\lambda}, \quad (3.13)$$

Δr ist hierbei die Breite der äußersten Zone und r der Zonenplattenradius. Eine Abbildung mit einer dünnen Zonenplatte folgt der bekannten Abbildungsgleichung

$$\frac{1}{f_{\text{ZP}}} = \frac{1}{g_g} + \frac{1}{b}. \quad (3.14)$$

Ein Objekt im Abstand g_g wird von einer Zonenplatte mit Brennweite f_{ZP} in die Bildebene b mit einer Vergrößerung von $M = b/g_g$ abgebildet. Auch für die Abbildung mit einer Zonenplatte ist Gleichung (3.9) gültig und mit der numerischen Apertur der Zonenplatte

$$\text{NA}_{\text{ZP}} \approx \frac{r}{f_{\text{ZP}}} = \frac{\lambda}{2\Delta r} \quad (3.15)$$

ergibt sich die mit einer Zonenplatte erreichbare Auflösung bei inkohärenter Beleuchtung der Objektebene zu

$$\delta_{\text{ZP}} = 0.61 \frac{\lambda}{\text{NA}} \approx 0.61 \frac{\lambda f_{\text{ZP}}}{r} = 1.22 \Delta r. \quad (3.16)$$

Dies gilt wegen der Wellenlängenabhängigkeit der Brennweite nur für monochromatische Strahlung. Beugungstheoretische Rechnungen zeigen jedoch, dass bei einer Bandbreite von $\lambda/\Delta\lambda = 1/N_{\text{ZP}}$ ($N_{\text{ZP}} =$ Gesamtzahl der Zonen der Zonenplatte) sich die Abbildungsbedingungen nicht wesentlich ändern [116].

Als diffraktive Optik beugt eine Zonenplatte einfallende Strahlung in ihre verschiedenen Beugungsordnungen (BO) (+1,-1), (+2,-2), usw. Für die meisten Anwendungen sind nur die +1./-1. Ordnung interessant, da die Beugungswirkungsgrade, also das Verhältnis von auftretender zu der in die jeweilige Ordnung gebeugter Strahlung, in der Regel in diesen Ordnungen maximal sind. Mit optimierten Phasenzonenplatten können im XUV Beugungswirkungsgrade von etwa 10% erreicht werden. Transmissionszonenplatten für diesen Spektralbereich müssen aufgrund der hohen Absorption freitragend oder auf dünnen Folien hergestellt werden. Die in Abschnitt 5.1 und 5.2 vorgestellten Experimente wurden mit für 13 nm optimierten Phasenzonenplatten durchgeführt, die mittels Mikrostrukturierungsverfahren auf 200 nm Si-Folien hergestellt wurden. Detaillierte Angaben der Zonenplattenparameter befinden sich im Anhang B.

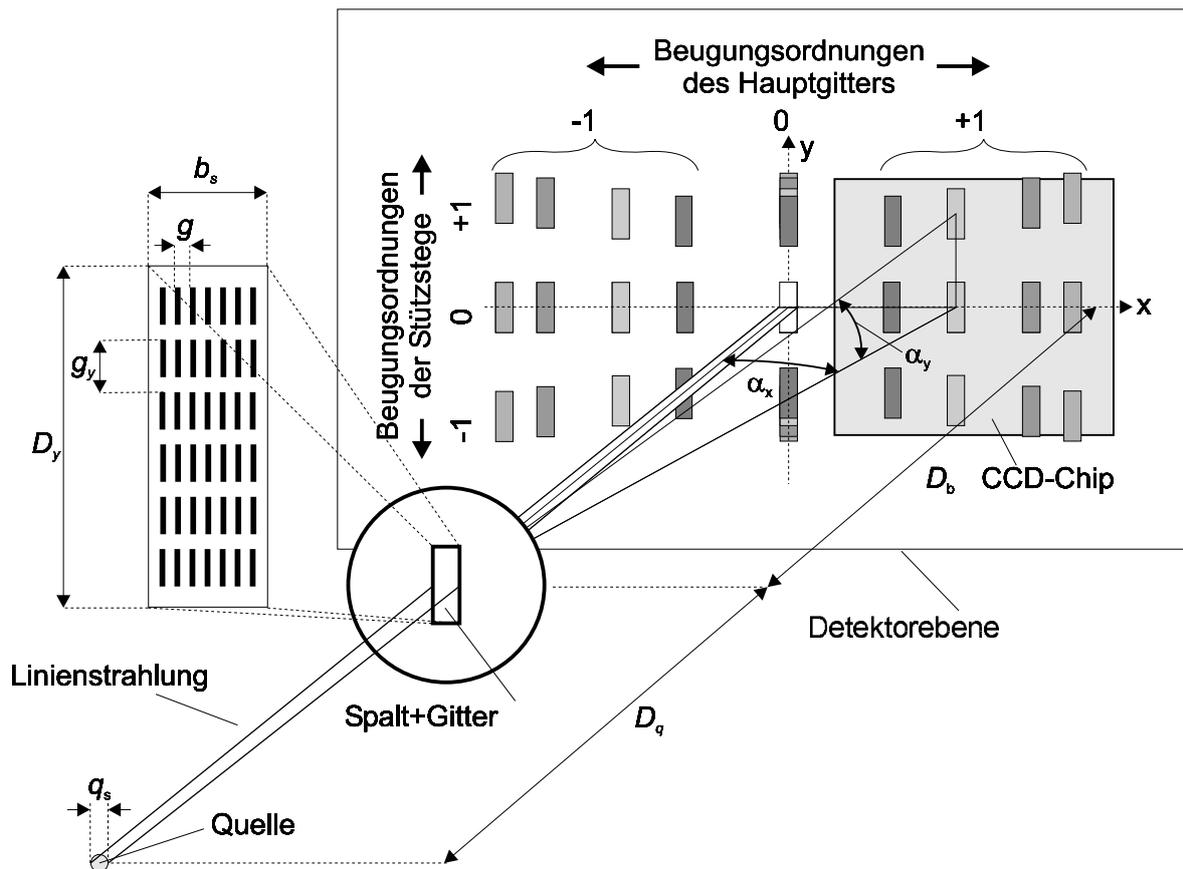


Abbildung 3.2: Funktionsweise des TGS-Spektrographen. Der vom Spalt erzeugte Schattenwurf wird vom Gitter spektral aufgespalten. Das Beugungsmuster setzt sich aus den Hauptgitterbeugungsordnungen (horizontal) und den Stützstegebeugungsordnungen (vertikal) zusammen (nach [45]).

Gitter

Die einfachste Form diffraktiver optischer Elemente stellen Lineargitter dar. Im XUV werden sie vielfach als Reflexionsgitter im streifenden Einfall zur spektralen Charakterisierung oder Monochromatisierung eingesetzt. Zur Erhöhung der Flüsse in der Detektorebene werden häufig auch Kombinationen von Gittern und sphärischen Spiegeln benutzt.

Die spektrale Charakterisierung der HH-Quelle und Teile der Experimente zur Absorptionsspektroskopie wurden mit einem Transmissionsgitterspektrographen (TGS) durchgeführt, dessen Funktionsprinzip in Abbildung 3.2 skizziert ist. Der aus einem $50 \mu\text{m}$ -Eintrittsspalt und einem Transmissionsgitter⁴ mit $g = 100 \text{ nm}$ Gitterkonstante bestehende Spektrograph zeichnet sich durch seine einfache Justierbarkeit und relativ hohe erreichbare spektrale Auflösung aus. Als Detektor wird eine rückseitig belichtbare XUV-CCD eingesetzt. Für die Beugung am

⁴Material: Ni, Dicke $120 \pm 10 \text{ nm}$, Trägerfolie $< 50 \text{ nm}$ Si

3 Experimentelle Verfahren der XUV-Diagnostik

Transmissionsgitter gilt die allgemeine Gitterformel

$$\sin \alpha = \frac{\lambda}{g}. \quad (3.17)$$

Die beugungsbegrenzte Auflösung eines Gitters ist durch die Anzahl der ausgeleuchteten Gitterstriche N_b und die verwendete Beugungsordnung m gegeben:

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_b} = m N_b. \quad (3.18)$$

Für den TGS ergibt sich demnach $\lambda/\Delta\lambda_b = 500$ in der ersten Beugungsordnung. Die erreichbare Auflösung ist darüber hinaus durch die Geometrie des Aufbaus eingeschränkt. Der vom Eintrittsspalt erzeugte Schattenwurf wird durch das Gitter spektral aufgespalten. Zwei benachbarte Wellenlängen können noch voneinander getrennt detektiert werden, wenn sich ihre Spaltbilder nicht überlagern. Für die geometrische Begrenzung der Auflösung gilt näherungsweise [127]:

$$\Delta\lambda_{\text{geom}} = \frac{g}{m} \left(\frac{b_s + q_s}{D_q} + \frac{b_s}{D_b} \right) \quad (3.19)$$

Hierbei ist g die Gitterkonstante, b_s die Breite des Eintrittsspalt, q_s die Quellgröße und D_q, D_b der Abstand Gitter-Quelle bzw. Gitter-Detektor. Das Auflösungsvermögen im Experiment ergibt sich aus der Überlagerung der Beugungsgrenze und der Geometrie zu

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_{\text{exp}}} = \sqrt{\frac{1}{\frac{\Delta\lambda_{\text{geom}}^2}{\lambda} + \frac{\Delta\lambda_b^2}{\lambda}}}. \quad (3.20)$$

Das Gitter wird von Stützstegen getragen, die im Abstand von $1.5 \mu\text{m}$ senkrecht zum Hauptgitter verlaufen und so eine weitere Gitterstruktur (Gitterkonstante g_y) darstellen, an der die einfallende Strahlung ebenso gebeugt wird. Diese Stützstegbeugungsordnungen können bei bekanntem Abstand des Gitters zum Detektor zur Wellenlängenkalibrierung der Spektren benutzt werden. Die Höhe des Gitters ist begrenzt durch die Größe der zur Erzeugung der Gitterstruktur benutzten Si-Trägerfolien und beträgt $D_y = 1 \text{ mm}$. Dies bedeutet, dass das Gitter in den meisten Fällen nur von einem Teil des HH-Strahlprofils ausgeleuchtet wird und ein großer Teil der erzeugten Strahlung nicht genutzt werden kann. Im Fall der Charakterisierungsexperimente ist dies noch unproblematisch, für Anwendungen kann dies jedoch einen limitierenden Faktor darstellen.

Um dieses Problem zu beheben, wurde ein weiterer Spektrograph an der HH-Quelle getestet und im Rahmen der Spektroskopie-Experimente eingesetzt. Er besteht aus einer einzelnen Optik, die die Eigenschaften eines diffraktiven und abbildenden optischen Elements vereint, einer *Off-Axis Reflexionszonenplatte* (ORZ) [124]. Die ORZ arbeitet in Reflexion im streifenden Einfall, ihre Struktur besteht aus dem außer-axialen Teil einer Zonenplatte. Genauer betrachtet sind die Zonen nicht-konzentrische Ellipsenabschnitte, die sich aus der Anordnung der Optik bzgl. der optischen Achse und dem Zonenplattenbildungsgesetz ergeben [45]. In Abbildung 3.3

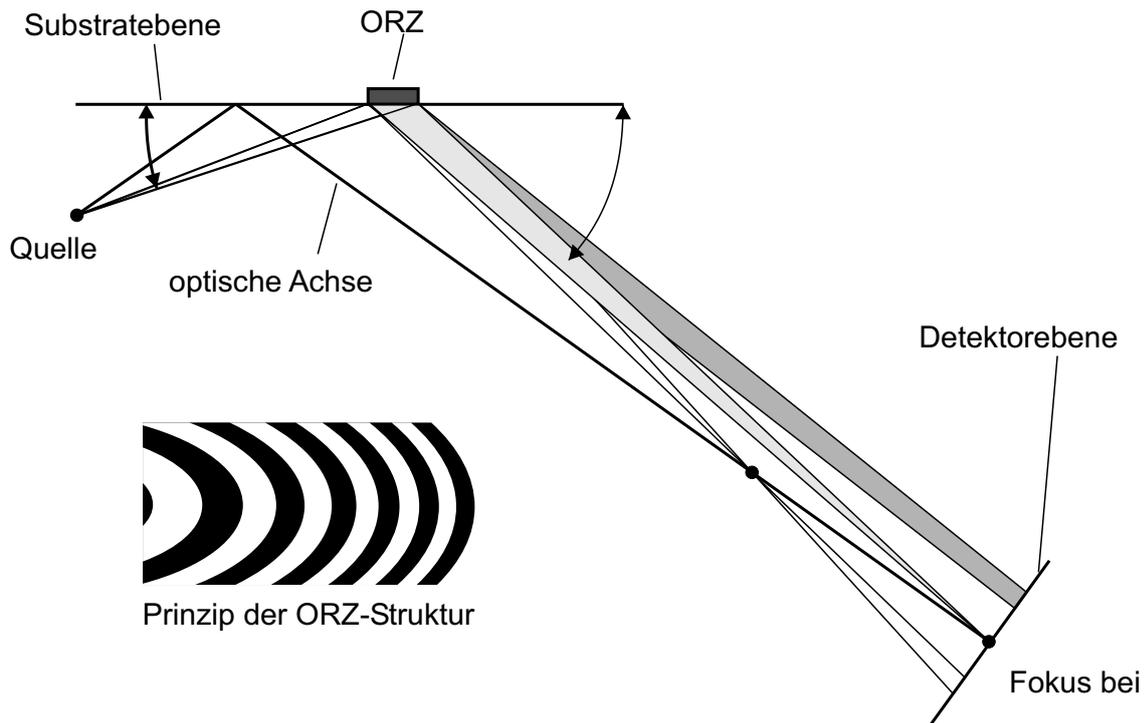


Abbildung 3.3: Funktionsweise des ORZ-Spektrographen und Prinzipskizze der Zonenplattenstruktur. Aufgrund der wellenlängenabhängigen Brennweite erscheint nur das Bild für die Wellenlänge λ_0 fokussiert, die Fokalebene der Wellenlängen λ_1 und λ_2 liegen vor bzw. hinter der Detektorebene (nach [123]).

ist die Funktionsweise des ORZ-Spektrographen und ein Ausschnitt aus der ORZ-Struktur skizziert. Die ORZ bildet die Quelle auf den Detektor ab. Aufgrund der wellenlängenabhängigen Brennweite der ORZ kann immer nur für eine Wellenlänge (λ_0) die Abbildungsgleichung 3.14 erfüllt werden, für diese erscheint das Bild fokussiert. Alle anderen Wellenlängen $\lambda_1 > \lambda_0 > \lambda_2$ erscheinen defokussiert und wegen der außer-axialen Anordnung der ORZ räumlich vom Fokus von λ_0 getrennt. Im Prinzip ist es so möglich, im Fokus spektrale Eigenschaften und die Quellgröße, also die Brillanz einer Quelle, mit einer Messung zu bestimmen, was der ursprüngliche Einsatzzweck dieses Spektrographen war [123].

Da die lokale Gitterkonstante nur sehr schwach variiert, kann die ORZ näherungsweise als lineares Reflexionsgitter mit mittlerer Gitterkonstante \bar{g} betrachtet werden und es gilt

$$\cos \alpha - \cos \beta = \frac{m \lambda}{\bar{g}}. \quad (3.21)$$

α und β sind dabei Einfallswinkel bzw. Beugungswinkel, die zur Substratoberfläche angegeben werden. Bei festem Einfallswinkel ergibt sich daraus die Winkeldispersion zu

$$\frac{d\lambda}{d\beta} = \frac{\bar{g}}{m} \sin \beta. \quad (3.22)$$

3 Experimentelle Verfahren der XUV-Diagnostik

Da der ORZ-Spektrograph die Quelle in die Detektorebene abbildet, ist die erreichbare Auflösung in der Regel nicht durch Beugung begrenzt⁵, sondern durch die Größe des erzeugten Quellbildes b_s in spektraler Richtung bestimmt. Das Bildfeld der ORZ ist konstruktionsbedingt relativ klein, und es kommt für außer-axiale Strahlen sowie bei Dejustierung zu Abbildungsfehlern, die die Bildgröße bestimmen. Aus der Winkeldispersion und dem vom Quellbild überdeckten Winkelintervall b_s/D_b in der Detektorebene ergibt sich die geometrische Begrenzung der Auflösung zu

$$\Delta\lambda_{\text{geom}} = \frac{d\lambda}{d\beta} \frac{b_s}{D_b}. \quad (3.23)$$

Je nach Anforderungen kann die ORZ in +1. oder -1. Ordnung betrieben werden. In der -1. Ordnung sind Dispersion und aufgefangener Raumwinkel größer, jedoch kann dies nur im Fall geringer Quellgrößen kleiner als $20 \mu\text{m}$ ausgenutzt werden. Bei größeren Quellen ist die Verwendung der +1. Ordnung aufgrund reduzierter Abbildungsfehler sinnvoll, wie Raytracing-Rechnungen zeigen [45]. Für die in Kapitel 5.3 beschriebenen Experimente an der Si-L-Kante wurde eine ORZ mit $\lambda_0 = 12.3 \text{ nm}$ und $f_{\lambda_0} = 500 \text{ mm}$ in der +1. BO verwendet. Die ORZ wurde auf einem Glassubstrat mit Mikrostrukturierungsverfahren hergestellt und anschließend zur Erhöhung des Beugungswirkungsgrades mit Palladium bedampft [45].

Im Gegensatz zum Transmissionsgitterspektrographen kann die Fläche der in Reflexion arbeitenden Optik sehr groß gewählt werden, sie beträgt für die benutzte Optik $15 \times 1 \text{ mm}^2$, was für die +1. BO in Projektion einer Fläche von $1 \times 1 \text{ mm}^2$ entspricht. Dies ist etwa ein Faktor 20 mehr als beim Transmissionsgitter, und bei geeigneter Wahl des experimentellen Aufbaus kann der HH-Strahl zum größten Teil aufgefangen werden. In der -1. BO würde sich der aufgefangene Raumwinkel nochmals mehr als verdoppeln.

3.2.4 Multilayer-Spiegel

Multilayer-Spiegel funktionieren nach dem Prinzip der Vielschichtinterferenz. Sie bestehen aus einem periodischen Schichtsystem aus Material abwechselnd hoher und niedriger Brechzahl, wobei eine Doppelschicht einer Periode entspricht. Die Anordnung der Schichten erfolgt so, dass die an den aufeinander folgenden Doppelschichten reflektierten Teilbündel konstruktiv interferieren, der Gangunterschied der Teilbündel also gerade λ beträgt. Unter Berücksichtigung der Brechung in den Multilayerschichten ist dies der Fall, wenn

$$m \lambda = 2 d_{\text{ML}} \sin \vartheta \sqrt{1 - \frac{2\Delta - \Delta^2}{\cos^2 \vartheta}} \quad (3.24)$$

erfüllt ist [111]. Hierbei ist d_{ML} die Dicke einer Doppelschicht, ϑ der Einfallswinkel zur Substratnormalen und $\Delta = \frac{d_1 \delta_1 + d_2 \delta_2}{d_1 + d_2}$ der mit der Einzelschichtdicke $d_{1,2}$ gewichtete Realteil der

⁵Die ORZ-Struktur besteht aus 16000 Gitterstrichen, siehe auch Anhang B.

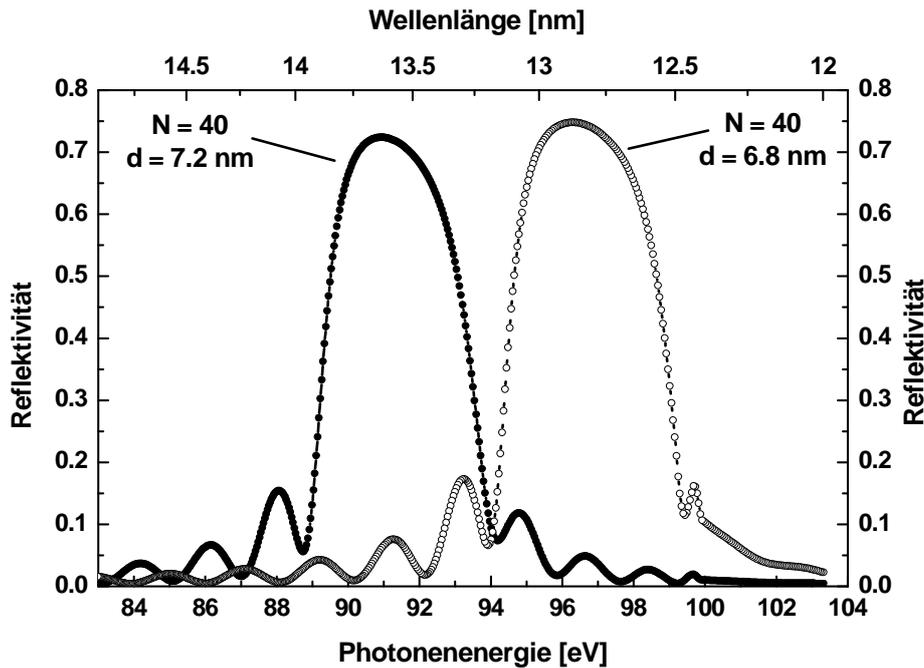


Abbildung 3.4: Berechnete Reflektivitätsprofile von Mo/Si-Multilayerspiegel für s-polarisiertes Licht mit einem Einfallswinkel von 15° zur Substratnormalen. Die Spiegelparameter sind $N_{ML} = 40$, $d_{ML} = 7.2$ nm und $\Gamma = 0.3$ (links) sowie $N_{ML} = 40$, $d_{ML} = 6.8$ nm und $\Gamma = 0.4$ (rechts) (Nach [15]).

Brechzahl. Dies entspricht grundlegend der Bragg-Bedingung für konstruktive Interferenz m -ter Ordnung. Die Wahl der Schichtmaterialien erfolgt so, dass die Absorption in der Schicht mit niedrigem n , dem sogenannten Spacer, möglichst klein wird. Unter Optimierung der Reflektivität wird das passende, optisch dichtere Material wiederum mit möglichst kleiner Absorption gewählt. Die Dicke des Spacers ist in der Regel größer, das Verhältnis der Schichtdicken wird als Γ angegeben. Die Monochromasie der von einem Multilayer reflektierten Strahlung ergibt sich aus der Anzahl der effektiven Anzahl von Doppelschichten N_{ML}

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} \simeq N_{ML}, \quad (3.25)$$

entsprechendes gilt für die Bandbreite.

Multilayer-Spiegel sind nicht für jede beliebige Wellenlänge verfügbar, da nur bestimmte Materialkombinationen ausreichend hohe Reflektivitäten ermöglichen [93]. Die heutzutage am erfolgreichsten eingesetzte Kombination besteht aus Molybdän als Material mit hohem n und Silizium als Spacer mit geringer Absorption. Diese Spiegel sind für den Spektralbereich um 13 nm Wellenlänge kurz unterhalb der Si-L-Kante konzipiert und erreichen durch optimierte Herstellungsverfahren fast die theoretisch möglichen Reflektivitäten von etwa 74%. In Abbildung 3.4 sind theoretische Reflektivitätskurven von Mo/Si-Multilayer-Spiegeln dargestellt. Zur Berechnung wurden die Daten der im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Spiegel benutzt (Anhang B). Die Halbwertsbreite der Reflektivitätskurven ist für beide Spiegel etwa 0.6 nm,

3 Experimentelle Verfahren der XUV-Diagnostik

das Reflektivitätsmaximum verschiebt sich aufgrund des etwas unterschiedlichen Schichtdickenverhältnisses.

Spiegel dieses Typs eignen sich aufgrund ihrer hohen Reflektivitäten im senkrechten Einfall für den Einsatz insbesondere an Laborquellen, wie z.B. hohen Harmonischen. Im Rahmen dieser Arbeit wurde in Kooperation mit dem Institut für Molekül- und Oberflächenphysik der Universität Bielefeld an der HH-Quelle ein Multilayer-Monochromator aufgebaut und getestet, der eine effiziente Selektion einer einzelnen Harmonischen für Experimente mit Anforderungen an die Monochromasie der verwendeten Strahlung erlaubt (vgl. Kap. 4.1.2).

3.3 Detektoren

Eine Schlüsselrolle fällt der Detektion der im Experiment verwendeten XUV-Strahlung zu. Bildgebende Verfahren wie Mikroskopie, aber auch Interferometrie oder spektroskopische Anwendungen verlangen zweidimensionale, ortsauflösende Detektoren. Weitere Anforderungen an das Detektionssystem sind

- i) eine hohe Empfindlichkeit bei hoher Dynamik,
- ii) Linearität,
- iii) ein geringes Eigenrauschen und
- iv) eine hohe *Detective Quantum Efficiency* (DQE).

Als DQE wird das Quadrat des Verhältnisses des Signal-Rausch-Verhältnisses (SNR) der Aufzeichnung zum SNR der Quelle bezeichnet, es gilt immer $DQE \leq 1$. Diese Bedingungen werden weitestgehend von *Charged Coupled Device* (CCD-Kameras) erfüllt, die seit einigen Jahren auch speziell für den XUV Spektralbereich erhältlich sind. Eindimensionale Halbleiterdetektoren, also Photodioden, erfüllen die oben genannten Bedingungen z.T. auch, da ihre Funktionsweise der der CCDs ähnelt. Auch hier werden seit einiger Zeit explizit für den XUV-Bereich entwickelte Dioden angeboten.

Rückseitig gedünnte CCDs

CCD-Kameras für den sichtbaren Spektralbereich haben sich im wissenschaftlichen Bereich, aber auch für alltägliche Zwecke etabliert. Ihr Einsatz zur Detektion von XUV-Strahlung ist jedoch unzuweckmäßig. Eine frontseitige Belichtung muß durch die Gatestruktur und die isolierende SiO_2 Schicht hindurch erfolgen, was aufgrund der hohen Absorption der Strahlung zu einer deutlichen Reduzierung der Empfindlichkeit führen würde. Die in der SiO_2 Schicht absorbierten Photonen erzeugen Elektron-Loch-Paare, die durch schnell erfolgende Ladungstrennung

zu Strahlenschäden und einer Beeinflussung der Feldverteilung an den Potentialtöpfen führen, was die Funktion der CCD erheblich stört. Aus diesem Grund sind rückseitig belichtbare CCDs entwickelt worden, bei denen die Belichtung von hinten durch das Si-Substrat erfolgt. Das Substrat wird auf wenige μm gedünnt, um die dicht an der Oberfläche erzeugten Photoelektronen auch mit geringen Spannungen in den Gate-Strukturen sammeln zu können. Diese rückseitig belichtbaren, gedünnten CCDs eignen sich für den Spektralbereich von 1 – 30 nm.

Für viele Experimente ist die genaue Kenntnis der von einer Quelle emittierten Anzahl von Photonen entscheidend und somit auch die Möglichkeit, diesen Parameter experimentell bestimmen zu können. Zu diesem Zweck eignen sich rückseitig belichtbare CCDs, da eine Absolutkalibrierung möglich ist und die Kameras eine gute Strahlenbeständigkeit aufweisen. Die Funktion als integrierender Detektor und das sehr geringe Dunkelrauschen machen den Einsatz insbesondere an gepulsten Quellen sinnvoll und stellen gegenüber der Nutzung von Photodioden Vorteile dar [122].

Für die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente wurde eine *slow-scan* Kamera CH350 der Firma Photometrics mit 1024×1024 Pixeln eingesetzt. Zur Reduzierung des Ausleserausens kann der CCD-Chip mittels thermoelektrischer Kühlung auf etwa 65 K unter Raumtemperatur gekühlt werden. Der dazu notwendige Betrieb im Vakuum, um ein Ausfrieren von z.B. Luftfeuchtigkeit auf dem Chip zu verhindern, ist für einen XUV-Detektor obligat. Die Kamera wurde im Wellenlängenbereich um 13 nm am Elektronenspeicherring *BESSY II (Berlin)* und im Wasserfenster, so wird der Spektralbereich von 2.3 – 4.3 nm zwischen den K-Absorptionskanten von Sauerstoff und Kohlenstoff bezeichnet, am Elektronenspeicherring *ELSA (Universität Bonn)* kalibriert und ist somit zur Bestimmung absoluter Photonenzahlen geeignet. Abbildung 3.5 zeigt die an *BESSY II* gewonnenen Messdaten. Die Kalibrierung wurde an der von der Universität Bielefeld betriebenen Beamline U125-1/ML durchgeführt. Die spektrale Selektion erfolgte über einen Multilayer-Monochromator, woraus der eingeschränkte Messbereich resultiert. Der Sprung der Antwortfunktion der Kamera an der Si-L-Kante ist durch die verstärkte Absorption im Chipmaterial bedingt. Die Steigung der Ausgleichsgerade beträgt $0.014 \frac{\text{Counts}}{\text{Photon eV}}$, mit der aus dem Kamera-Signal direkt die detektierte Anzahl an Photonen bestimmt werden kann. Der Fehler der Kalibrierdaten, der durch Ungenauigkeiten der Messdaten verursacht wird, beträgt etwa 10%. Die Kalibrierung wurde mit einer typkalibrierten Referenzdiode durchgeführt, was eine zusätzliche Unsicherheit der Daten verursacht. Unter Berücksichtigung weiterer, nicht quantifizierbarer Einflüsse auf die Messdaten, kann der Fehler der anhand dieser Daten bestimmten Photonenzahlen auf etwa 50% abgeschätzt werden.

Phosphore

Außer der direkten Belichtung eines Halbleiterdetektors besteht die Möglichkeit der Konversion der XUV-Strahlung in das VIS mittels sogenannter Phosphore oder Quantenkonverter und

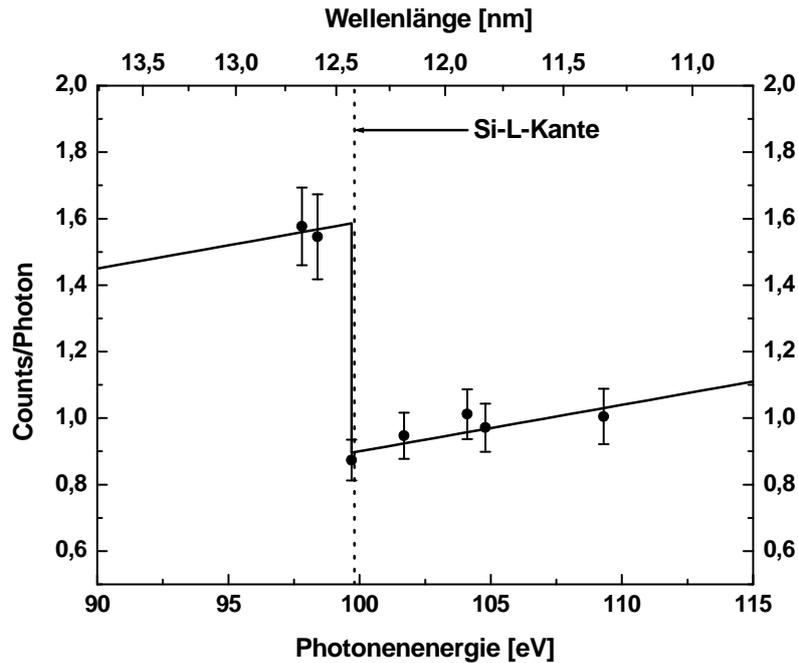


Abbildung 3.5: Kalibrierdaten der benutzten XUV-CCD. Angegeben ist die Antwortfunktion c/p der Kamera in Counts pro Photon in Abhängigkeit von der Photonenergie/Wellenlänge. Diese beinhaltet alle Skalierungsfaktoren des Digitalisierungsprozesses der ausgelesenen Kameradaten. Die an die Daten angepasste Ausgleichsgerade erlaubt die Berechnung der Antwortfunktion für nicht vermessene Photonenergien.

anschließender Detektion des sichtbaren Lichtes mit einer konventionellen CCD. Es werden im wesentlichen folgende Konzepte verwendet:

- Direkte Beschichtung des CCD-Chips mit dem Phosphor.
- Abbildung des Phosphorschirms mittels Objektiv auf eine CCD-Kamera.
- Kopplung von Phosphorschirm und CCD mittels Faseroptiken.

Bei sehr schwachen Signalen können diese Systeme um ein *Microchannelplate* (MCP) erweitert werden, auf das die zu detektierende Strahlung direkt auftrifft und im MCP Photoelektronen erzeugt. Die angelegte Hochspannung führt zur Erzeugung einer Elektronenlawine, die eine Verstärkung des Ursprungssignal um bis zu 10^4 erlaubt. Die Nachteile von MCPs sind die kaum mögliche Kalibrierung, eine schlechte DQE und hohe Vakuumanforderungen. Auch die Kombination von Phosphor und VIS-CCD weist Nachteile gegenüber einer rückseitig belichteten CCD auf. Zum einen führt die Phosphorschichtdicke und -körnigkeit zu einer reduzierten räumlichen Auflösung und einer Verschlechterung des erreichbaren Kontrastes, zum anderen kann das vom Phosphor in den vollen Raumwinkel von 4π emittierte sichtbare Licht meist nicht vollständig genutzt werden.

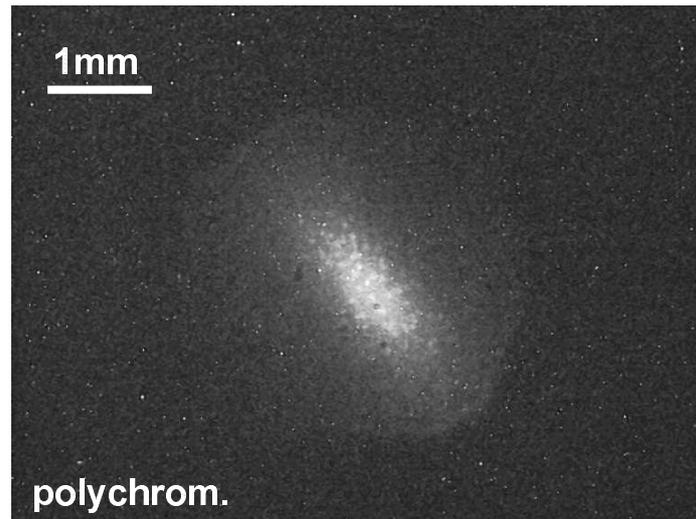


Abbildung 3.6: Strahlprofil 700 mm vom Target entfernt mit dem Monitorsystem im Integrationsmodus (16 Bilder) aufgenommen. Zur Unterdrückung der Laser-Fundamentalen und niedriger Harmonischer befinden sich vor der CCD Filterkombinationen aus Zr/Si (220/150 nm) und Zr/Parylen-N (200/100 nm).

Zur direkten Kontrolle der HH-Emission ist es notwendig, das Strahlprofil der hohen Harmonischen in Echtzeit zu detektieren. Als Alternative zu einer rückseitig belichtbaren CCD wurde ein Monitorsystem entwickelt, das platzsparend in die aufzubauende HH-Beamline integriert werden kann und außerdem deutlich kostengünstiger ist. Das aufgebaute Monitorsystem besteht aus einer SVHS-Videokamera mit 1/2"-Chip, der direkt mit dem Phosphor P43 ($\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S:Tb}$) der Firma Proxitronic beschichtet wurde. P43 besitzt eine schmalbandige Emission bei 545 nm und ist für Strahlung $h\nu > 5$ eV geeignet [87]. Das Kamerasystem ist in einer separaten Vakuumkammer montiert und lässt sich an einer Linearführung aus dem HH-Strahl bewegen. Die Kamera verfügt über einen speziellen Integrationsmodus, in dem bis zu 128 Bilder vor der Ausgabe aufsummiert werden können. Dies hat sich zur Detektion der z.T. schwachen Signale der Harmonischen als vorteilhaft erwiesen. Außer zur Optimierung der HH-Intensität können anhand des Monitorsystems auch Strahllage und -profil kontrolliert werden. Für ein mit den Harmonischen betriebenes Experiment gewährleistet dies konstante Bedingungen bzgl. der Beleuchtung. Abbildung 3.6 zeigt ein mit dem entwickelten Monitorsystem aufgenommenes Strahlprofil der Harmonischen.

4 Charakterisierung der Hohe-Harmonische-Strahlung

Die grundlegende Charakterisierung einer Strahlungsquelle hinsichtlich ihrer spektralen, räumlichen und Kohärenzeigenschaften ist Voraussetzung für eine erfolgreiche Anwendung der emittierten Strahlung. Die Kenntnis dieser Parameter ist weiterhin notwendig für eine gezielte Optimierung der Quelle, um die unterschiedlichen Anforderungen verschiedener Anwendungsexperimente erfüllen zu können. Im Rahmen dieser Arbeit wurde an der HH-Quelle des Instituts für Photonik der TU Wien ein modulares Vakuumsystem, im Folgenden als *Beamline* bezeichnet, zur Untersuchung und Anwendung der erzeugten Strahlung im Bereich um 13 nm Wellenlänge aufgebaut.

4.1 Experimenteller Aufbau

4.1.1 Lasersystem und XUV-Quelle

Das zum Betrieb der HH-Quelle verwendete Lasersystem wurde am Institut für Photonik entwickelt. Es basiert auf der verbreiteten CPA-Technik (Chirped-Pulse-Amplification) [89] zur Verstärkung kurzer Laserpulse und ist schematisch in Abbildung 4.1 dargestellt.

Die Erzeugung der Laserpulse geschieht mit einem modengekoppelten Titan:Saphir-Oszillator, der Pulse von einigen nJ Pulsenergie mit einer Zentralwellenlänge $\lambda_0 = 790$ nm bei 82 MHz Repetitionsrate emittiert. Die Bandbreite des Oszillatorspektrums beträgt typischerweise 100 nm. Die wenige fs kurzen Pulse werden zeitlich gestreckt und im nachfolgenden Verstärker in einem weiteren Titan:Saphir-Kristall in zehn Durchgängen auf bis zu 1.5 mJ verstärkt. Der Multi-Pass-Verstärker arbeitet bei 1 kHz Wiederholfrequenz, die auch der Repetitionsrate der HH-Pulse entspricht. Höhere Wiederholraten sind für Pulsenergien einiger mJ nach dem heutigen Stand der Technik problematisch, da die im Kristall deponierte thermische Energie nicht ausreichend schnell abgeführt werden kann. Höhere Kristalltemperaturen führen zur Ausbildung von thermischen Linsen im Kristall, die dem Strahlprofil Aberrationen aufprägen. Außerdem kann eine zu hohe Temperatur im gepumpten Volumen die Lebensdauer des angeregten Niveaus deutlich reduzieren, so dass Verluste beim Pumpprozess auftreten.

Im Anschluss an die Verstärkung erfolgt eine Komprimierung mittels eines Prismenkompressors, an dessen Ausgang die Pulse eine Dauer von etwa 20 fs bei bis zu 1.2 mJ Pulsenergie

4 Charakterisierung der Hohe-Harmonische-Strahlung

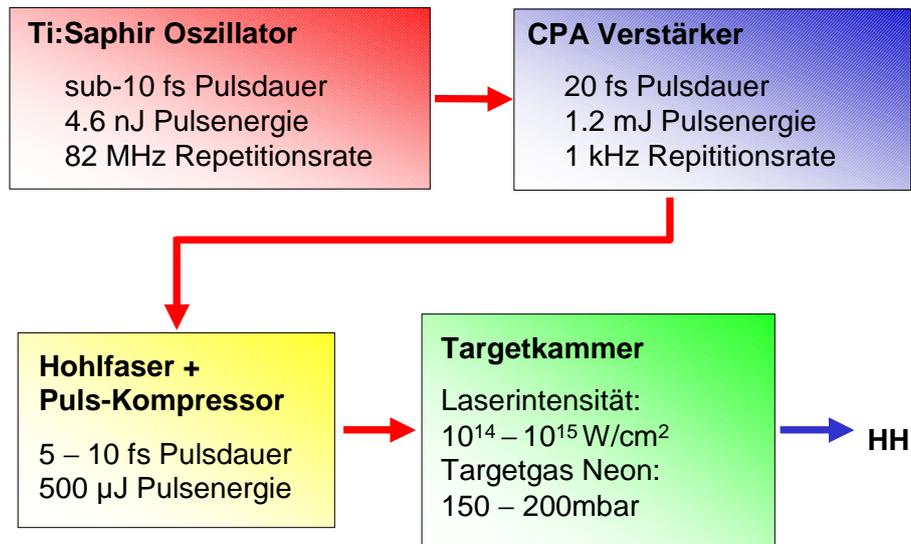


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des fs-Lasersystems und dessen technische Daten. Es besteht aus Titan:Saphir-Oszillator, CPA-Verstärker (Multi-Pass-Verstärker und Prismenkompressor) und anschließender weiterer Pulskompression über Hohlfaser und Spiegelkompressor.

besitzen. Die Pulsdauer ist nach unten auf 20 fs begrenzt, da die Bandbreite des Spektrums im Verstärker aufgrund des Effektes des *gain narrowing* auf ca. 60 nm Bandbreite reduziert wird. Zur weiteren Verkürzung der Pulse bedarf es einer spektralen Verbreiterung des Spektrums unter Erhaltung der Phasenkopplung. Dies wird durch den Einsatz einer mit Ne gefüllten Hohlfaser erreicht, in die die Laserpulse fokussiert werden. Aufgrund der hohen Intensitäten kommt es durch Selbstphasenmodulation zur Verbreiterung des Verstärkerspektrums [80]. Die Verwendung einer mit Gas gefüllten Hohlfaser als nichtlineares Medium ist dabei notwendig, da konventionelle Fasern nicht die benötigten Zerstörschwellen aufweisen. Der aus der Faser austretende Puls mit verbreitertem Spektrum durchläuft einen zweiten Kompressor aus sogenannten gechirpten Spiegeln [115], der die Pulse auf 5 – 10 fs komprimiert. Die Pulsenergie reduziert sich auf etwa 0.5 mJ.

Zur Erzeugung der Harmonischen werden die Laserpulse über einen sphärischen Silber-Spiegel in die Targetkammer fokussiert. Die kurze Pulsdauer erfordert die Nutzung reflektiver Optik, da chromatische Aberrationen refraktiver Optiken die Zeitstruktur der Pulse zerstören würde. Die Dispersion durch die Propagation an Luft und die des 0.3 mm dicken Einkoppelpfensters ins Vakuumsystem wird im Spiegelkompressor vorkompensiert. Die Brennweite des Silber-Spiegels wird je nach benötigter Intensität im Laserfokus zwischen 300–500 mm gewählt. Die so erzeugten Intensitäten liegen zwischen $10^{14} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Zur Manipulation der Fokussierung befindet sich vor dem Fokussierspiegel eine Apertur, mit der der Strahldurchmesser

eingeschränkt oder ein bestimmter Strahlausschnitt zur Fokussierung selektiert werden kann.

Wie in Kapitel 2.1 beschrieben, ist zur effizienten Erzeugung von Harmonischen linear polarisiertes Licht notwendig. Entgegen der Erwartungen hat sich im Experiment gezeigt, dass die lineare Polarisation der Pulse nach dem CPA-Verstärker in der Hohlleiter nicht erhalten bleibt. Entsprechend wird nach der Faser eine $\lambda/2$ -Platte in Nullter Ordnung zur Wiederherstellung der optimalen Polarisation unter direkter Kontrolle der Harmonischen-Emission eingesetzt.

Die in die Targetkammer fokussierten Laserpulse treffen auf das Target, ein quasistatisches Gasreservoir aus einer Ni-Kapillare, das mit einer Gaszufuhr und Regelventil versehen ist. Um eine Wechselwirkung von Laser und Targetgas zu erreichen, wird mit dem Laser ein Loch in die Kapillare gebohrt. Dies hat den Vorteil, dass die Gaslast in der Vakuumkammer durch die minimierte Lochgröße so niedrig wie möglich gehalten wird und der Einsatz eines gepulsten Düsensystems, das eine aufwändige Synchronisation mit dem Laser erfordert, nicht notwendig ist. Die Dicke der Kapillare kann zur Optimierung der Interaktionslänge verändert werden. Die Position des Targets ist variabel und wird so gewählt, dass sich der Laserfokus vor dem Target befindet. Diese Konfiguration ist zum Erreichen der Phasen Anpassung vorteilhaft. Prinzipiell ist das Targetsystem für die Verwendung jeglicher Gasart geeignet. Zur Erzeugung von hohen Harmonischen im 13 nm-Bereich ist die Verwendung von Neon als Targetgas am effizientesten und wurde im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich benutzt. Die Targetkammer wird mit einer 250 m³/h-Wälzkolbenpumpe und Drehschiebervorpumpe evakuiert, im Betrieb liegt der Druck bei $10^{-2} - 10^{-1}$ mbar. Am Ausgang der Targetkammer ist eine im Vakuum verstellbare Blende angebracht, mit der ein Großteil des defokussierten Laserstrahls zur Verringerung der thermischen Last anschließender optischer Filter abgeblockt werden kann.

4.1.2 Vakuumsystem

Die in Abbildung 4.2 schematisch dargestellte Beamline besteht aus den Abschnitten

- i) Filtersektion,
- ii) Monitorsystem zur Überwachung von Strahllage und -intensität und
- iii) Multilayer-Monochromator.

Die ersten beiden an die Targetkammer anschließenden Abschnitte der Beamline dienen der Diagnostik und Kontrolle des HH-Strahls und werden in allen durchgeführten Experimenten verwendet.

i) Zur Unterdrückung der Fundamentalen und niederenergetischen Harmonischen werden Zr-Folien eingesetzt. Diese sind in speziellen Ventilen montiert, die eine Aufnahme für die Filterfolien besitzen. Neben freitragenden Folien hat sich auch die Verwendung von Filtern auf Si-Folien oder Parylen als Trägermaterial bewährt, da diese mechanisch deutlich stabiler sind.

4 Charakterisierung der Hohe-Harmonische-Strahlung

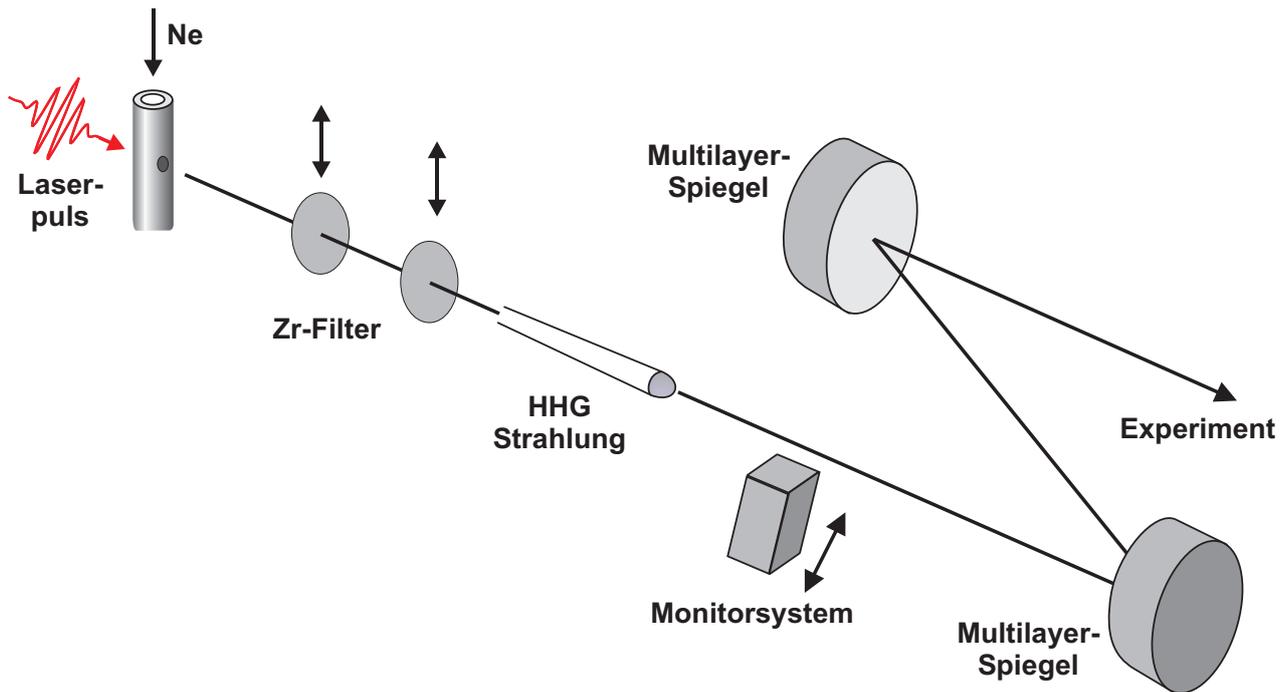


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des ersten Teils des an der HH-Quelle aufgebauten Vakuumsystems.

Eine Kombination aus 200 nm Si und 200 nm Zr filtert aus dem erzeugten Harmonischen-Spektrum einen Bandpass von etwa 5 nm Breite zwischen 17.5 und 12.5 nm heraus, der etwa acht Harmonische ($N \simeq 47 - 63$) enthält (vgl. Abbildung 3.1). Die theoretische Transmission dieser Filterkombination bei 13 nm beträgt 36.5%.

Die Haltbarkeit der Filterfolien ist ein entscheidendes Kriterium für die Durchführung aller Experimente, da eine vollständige Unterdrückung der Fundamentalen bei Verwendung der auch im sichtbaren hochempfindlichen XUV-CCD absolut notwendig ist. Wie Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit gezeigt haben, können die neben der erwünschten Strahlung entstehenden niederenergetischen Harmonischen sowie die intensive Fundamentale die eingesetzten Filter innerhalb kurzer Zeit zerstören. Bei zu geringem Abstand der ersten Filterfolie vom Target kommt es zunächst zur Degradation der Metallfolie in Form von abnehmender Transmission im XUV sowie zunehmender Transmission der sichtbaren Anteile und anschließender Zerstörung. Insbesondere freitragende Filter werden schnell unbrauchbar. Der zugrunde liegende Mechanismus ist nicht vollständig verstanden, wahrscheinlich handelt es sich um eine Oxidation der Zr-Folien¹. Filter auf Si-Folie zeigen eine erhöhte Beständigkeit, eine deutliche Verbesserung konnte jedoch erst durch die Verwendung einer separaten Si-Folie als erstes Filterelement erreicht werden, da diese einen großen Teil der erzeugten niedrigeren Harmonischen absorbiert und die thermische Last auf den folgenden Filterelementen deutlich reduziert. Dies ist allerdings nur für Experimente möglich, die unterhalb der Si-L-Kante durchgeführt werden. Außerdem

¹Zirkoniumdioxid ZrO_2 ist im VIS transparent.

erfolgt mit den eingesetzten Si-Folien eine Trennung der Vakuumsysteme Targetkammer und Beamline. So wird die Propagationslänge der Harmonischen bei relativ hohen Drücken von etwa 10^{-1} mbar, wie sie in der Targetkammer vorliegen, deutlich beschränkt.

ii) Hinter den Filterventilen befindet sich das Monitorsystem zur Kontrolle der Harmonischen-Emission in einer separaten Vakuumkammer. Das Kamerasystem lässt sich an einer Linearführung aus bzw. in den HH-Strahl bewegen. Vor der Kamera befindet sich ein weiteres 200 nm Zr-Filter, da für eine vollständige Unterdrückung der Fundamentalen insgesamt mindestens 400 nm Zr notwendig sind. Der zunächst verfolgte Ansatz, einen Teil des HH-Strahls über einen Strahlteiler auszukoppeln und eine ständige Beobachtung zu ermöglichen, konnte nicht umgesetzt werden. Die als Multilayer auf Si-Folien ausgeführten Strahlteiler wiesen zwar eine ausreichend hohe Transmission auf, die Reflexion erfolgte jedoch aufgrund unzureichender Oberflächengüte der Folien diffus.

iii) Für Anwendungsexperimente, die monochromatische Strahlung benötigen, kann als nächstes Element der Beamline ein Multilayer-Monochromator eingesetzt werden, der entweder mit zwei Planspiegeln oder einem planen und einem sphärischen Spiegel zur Rekollimation des HH-Strahls bestückt werden kann. Der Einsatz von zwei Spiegeln in Z-Konfiguration verlangt eine Reflexion mehr, als prinzipiell zur Monochromatisierung nötig ist, hat jedoch den Vorteil, dass es lediglich zu einem Strahlversatz in der Höhe und nicht zu einer Faltung des Strahlengangs kommt. Durch Drehen beider Spiegel und gleichzeitiges Verfahren eines Spiegels auf der optischen Achse bleibt die Strahlage beim Durchstimmen der Wellenlänge erhalten, was zum Betrieb eines angeschlossenen Experimentes notwendig ist. Der mit diesem Monochromator zugängliche Spektralbereich liegt dicht unterhalb der Si-L-Kante bei 100 eV (vgl. Kap. 3.2.4). Die Bandbreite der Spiegel und einer Harmonischen sind in etwa gleich groß, so dass eine effiziente Selektion einer einzelnen Harmonischen möglich ist (vgl. Kap. 4.1.3). Über motorisierte Rotations- und Translationstische können die Spiegelpositionen zum Anpassen der Wellenlänge verändert werden, der Einfallswinkel auf dem ersten Spiegel kann zwischen $15 - 40^\circ$ betragen [57].

Das gesamte Vakuumsystem der Beamline wird mit mehreren Kombinationen aus Turbo-Drag-Pumpen und Membranvorpumpen evakuiert, typische Drücke im Betrieb liegen zwischen $10^{-6} - 10^{-5}$ mbar.

4.1.3 Monochromator

Der in die Beamline integrierte Monochromator dient der effizienten Selektion einer kleinen Bandbreite aus dem Spektrum der Harmonischen. Zusätzlich kann durch den Einsatz eines sphärischen Multilayer-Spiegels eine Rekollimation des HH-Strahls zur Flusserrhöhung am Probenort vorgenommen werden. Um die genauen Bedingungen der Beleuchtung des angeschlos-

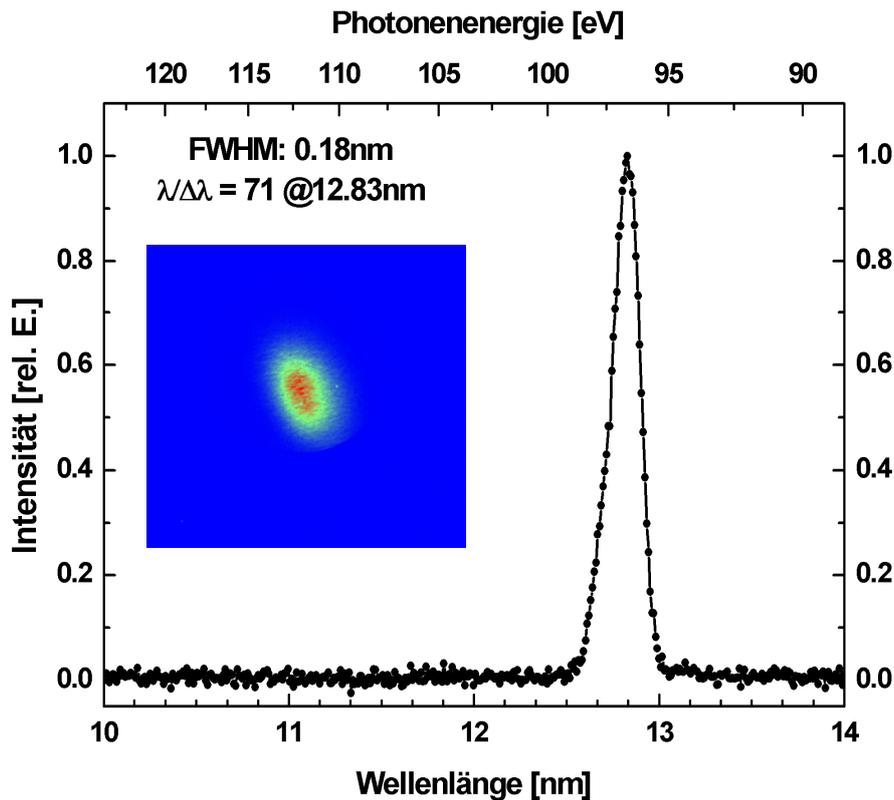


Abbildung 4.3: Strahlprofil und Spektrum des HH-Strahls nach den planen Multilayer-Spiegeln. Bei einem Abstand zur Quelle von 2300 mm beträgt der Strahldurchmesser etwa $2.5 \text{ mm} \times 4.4 \text{ mm}$.

senen Experimentes quantifizieren zu können, wurden die eingesetzten Spiegel hinsichtlich des transmittierten Strahlprofils und dessen spektraler Zusammensetzung charakterisiert. Die eingesetzten Spiegelpaare sind jeweils aufeinander optimiert, so dass beim Einsatz des sphärischen Spiegels auch der erste Spiegel im Monochromator getauscht wird. Dessen Mechanik erlaubt prinzipiell das Durchstimmen der transmittierten Zentralwellenlänge im Rahmen der möglichen Verstellwege. Die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente wurden jeweils bei einer festen Wellenlängen durchgeführt.

Die Abbildungen 4.3 und 4.4 zeigen die hinter dem Monochromator vermessenen Strahlprofile bzw. die spektrale Zusammensetzung des HH-Strahls unter vergleichbaren Erzeugungsbedingungen. Die Strahlprofile wurden direkt mit der XUV-CCD aufgenommen, zur spektralen Charakterisierung wurde der TGS benutzt. Im Fall der planen Spiegel bleiben die Eigenschaften des HH-Strahls im Wesentlichen erhalten. Zum Teil zeigt ein direkter Vergleich von vor und hinter dem Monochromator aufgenommenen Strahlprofilen *Speckle*-ähnliche Muster auf dem Strahlprofil. Dies kann bei einer Beleuchtung mit einem hohen räumlichen Kohärenzgrad durch eine nicht ausreichend gute Oberflächengüte der Spiegel bedingt sein. Die gemessene Zentralwellenlänge des transmittierten Spektrums beträgt 12.8 nm (96.9 eV) bei einer Bandbreite von 0.2 nm (1.4 eV), was einer Monochromasie von etwa 70 entspricht. Dieser Wert liegt

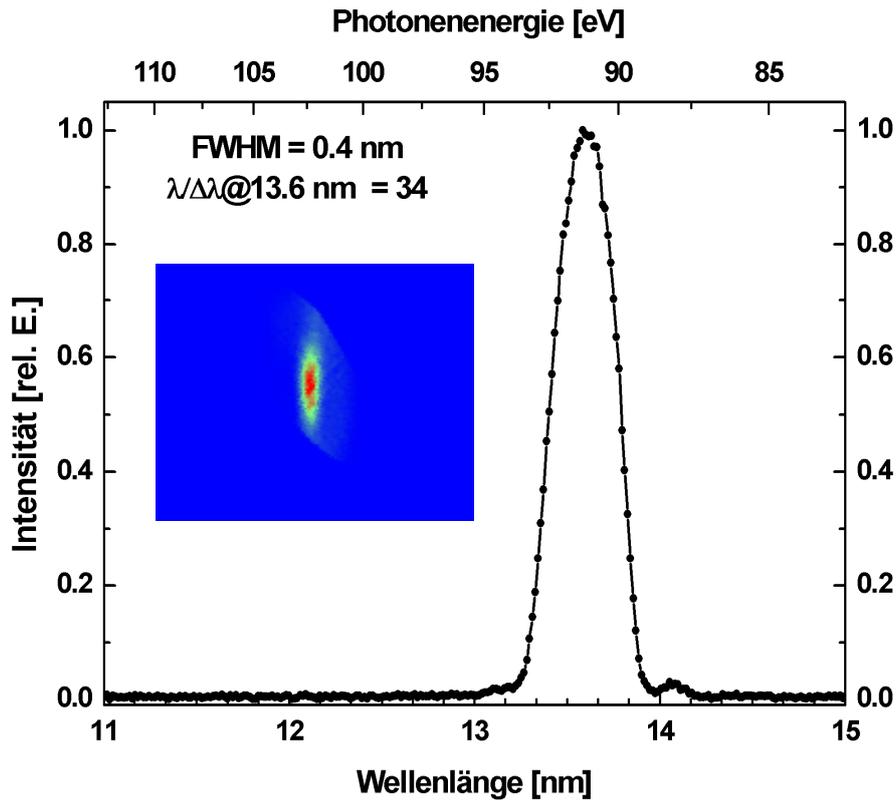


Abbildung 4.4: Strahlprofil und Spektrum des HH-Strahls nach der Kombination aus planem und sphärischem Multilayer, 1050 mm nach dem fokussierenden Spiegel. Der bereits wieder divergente Strahl misst etwa $0.8 \text{ mm} \times 2.0 \text{ mm}$.

über dem nach den Multilayer-Spezifikationen erwarteten. Eine mögliche Ursache dafür kann eine nicht vollständige Überlappung des Reflexionsprofils der Multilayer mit dem Profil einer Harmonischen sein, so dass diese nur teilweise reflektiert wird. An der kurzwelligen Seite des Reflexionsprofils liegt darüber hinaus die Si-L-Kante, oberhalb der die Si-Schichten der Spiegel und die eingesetzten Si-Folien stark absorbieren. Mittels der kalibrierten XUV-CCD ist eine Bestimmung der im Strahlprofil enthaltenen Photonenzahl möglich, typische Werte liegen bei 2×10^6 Photonen/s (FWHM). Die Messungenauigkeit der Photonenzahlen beträgt etwa 50%, was jedoch deutlich unter den Schwankungen der Quelle liegt, die mehr als einen Faktor zwei ausmachen kann. Aus diesem Grund sind diese Angaben als die im Mittel zu erwartende Anzahl an Photonen zu verstehen.

Die Monochromatisierung mit der Kombination aus planem und sphärischem Spiegel ($f = 500 \text{ mm}$) liefert ähnliche Resultate. Die reflektierte Zentralwellenlänge liegt etwas höher bei 13.60 nm (91.2 eV), die Bandbreite ist einen Faktor zwei größer (0.4 nm (2.7 eV)). Entsprechend beträgt die Monochromasie $\lambda/\Delta\lambda = 34$, was gut mit den Multilayer-Daten übereinstimmt (vgl. Tab. B.2). Auch die mittlere Photonenzahl von 4×10^6 Photonen/s (FWHM) liegt in der erwarteten Größenordnung. Das fokussierte Strahlprofil wurde für mehrere Distanzen hinter dem fokussierenden Spiegel zur Bestimmung der Lage des Fokus vermessen. Dieser liegt 575 mm

4 Charakterisierung der Hohe-Harmonische-Strahlung

hinter dem sphärischen Spiegel und somit hinter dessen Fokalebene, was sich aufgrund des leicht divergenten HH-Strahls ergibt. Bei einem Abstand von 930 mm beträgt die Strahlgröße $290 \mu\text{m} \times 770 \mu\text{m}$, die für den Betrieb des XUV-Mikroskopes geeignet erscheint (vgl. Kap. 5.1). Im Vergleich zum nicht kollimierten HH-Strahl entspricht dies bei gleicher angenommener Photonenzahl einer Flusserhöhung um einen Faktor 50. Bei einem Einfallswinkel von 15° auf dem sphärischen Spiegel kommt es bei der Fokussierung zu Astigmatismus, der die Asymmetrie des fokussierten Strahlprofils verursacht und die bereits vor dem Monochromator vorhandene leichte Elliptizität vergrößern oder verkleinern kann.

Anhand der gemessenen Photonenzahlen kann eine Abschätzung der Konversionseffizienz des HHG-Prozesses bei 13 nm vorgenommen werden. Mit den theoretischen Multilayer-Reflektivitäten und Filtertransmissionen ergibt sich bei $300 \mu\text{J}$ ins Target eingekoppelter Laserenergie eine Konversion von $\eta = 1.3 \times 10^{-9}$, wobei die Reabsorption im Target bzw. in der Restgasatmosphäre nicht berücksichtigt ist. Da die theoretischen Daten von den optischen Komponenten in der Regel nicht erreicht werden, ist der abgeschätzte Wert eine untere Grenze der tatsächlichen Effizienz. In der Literatur werden meist höhere Effizienzen angegeben, die typischerweise bei $\eta \approx 10^{-8}$ und darüber liegen [97]. Die deutlichen Abweichungen können nur teilweise durch die Ungenauigkeiten der Messungen erklärt werden. Die Kalibrierung von Detektoren für diesen Spektralbereich erfordert einen relativ großen experimentellen Aufwand, so dass häufig nur typkalibrierte Systeme verwendet werden, deren Spezifikationen aus der Kalibrierung eines baugleichen Detektors gewonnen werden. Die Messfehler dieser Systeme sind weitaus größer als die absolut kalibrierter Detektoren und die mit ihnen bestimmten Photonenzahlen oder Konversionseffizienzen entsprechend ungenau.

4.2 Strahlprofil

Die Emission der Harmonischen erfolgt in etwa kollinear zum Laser in einen kollimierten Strahl, der ähnliche Eigenschaften wie der des erzeugenden Lasers besitzt. Das Strahlprofil des Lasers wirkt sich unmittelbar auf die Strahlcharakteristik der Harmonischen aus, weiter spielen die Targetposition relativ zum Laserfokus und der Gasdruck im Target eine wichtige Rolle. Für Harmonische im untersuchten Spektralbereich liegt die Divergenz des HH-Strahls bei typischerweise $0.5 - 2$ mrad, wobei das Strahlprofil Asymmetrien aufweisen kann. Dies zeigt Abbildung 4.5 an unter vergleichbaren experimentellen Bedingungen detektierten Strahlprofilen.

Das linke und mittlere Profil bestehen aus mehreren Harmonischen nach Bandpassfilterung, rechts ist ein hinter dem Monochromator bei 12.8 nm Wellenlänge aufgenommenes Strahlprofil abgebildet. Die in den Strahlprofilen sichtbaren Beugungserscheinungen resultieren aus Inhomogenitäten oder Partikeln auf den verwendeten Zr-Filtern und deuten den hohen Grad an räumlicher Kohärenz der Beleuchtung an. Der Unterschied der beiden polychromatischen Strahlprofile

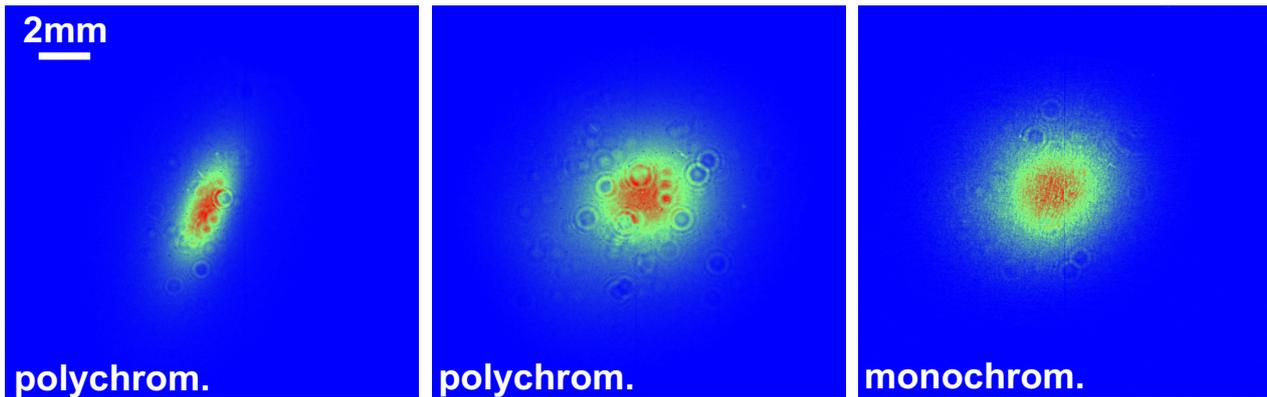


Abbildung 4.5: Strahlprofile der Harmonischen unter verschiedenen experimentellen Bedingungen. Das linke und mittlere Bild zeigen polychromatische Strahlprofile nach Bandpassfilterung, das rechte Strahlprofil wurde hinter dem Monochromator aufgenommen. Der Maßstab gilt für alle Abbildungen, in der Falschfarbendarstellung entspricht rot maximaler Intensität.

ergibt sich aus einer unterschiedlichen Öffnung der Laserstrahlapertur vor dem Fokussierspiegel, die einerseits die Pulsenergie von $300 \mu\text{J}$ (Links) auf $240 \mu\text{J}$ (Mitte) reduziert, gleichzeitig aber auch die Fokussierungsbedingungen ändert. Die Reduzierung der Apertur ergibt eine Vergrößerung des Fokus, was einer Verringerung der Intensität im Fokus entspricht. Weiter kann sich durch eine Veränderung des fokussierten Laserstrahlausschnittes, auch eine Variation in Fokusgröße und Phasenlage der Wellenfronten ergeben. Diese Parameter hängen z.T. voneinander ab, und ihr Einfluss auf den HHG-Prozess ist vielfältig, so dass zur Strahlprofileinstellung ein Monitorsystem unabdingbar ist. Zwischen poly- und monochromatischem Strahlprofil (Mitte und Rechts) lassen sich keine deutlichen Unterschiede ausmachen. Der Betrieb des Monitorsystems mit polychromatischer HH-Strahlung ist somit hinsichtlich der Optimierung von Strahlprofil und -richtung auch für ein mit monochromatischer Strahlung betriebenes Experiment ohne weiteres möglich.

Die genauen Abhängigkeiten der Elliptizität des Strahlprofils sind nicht vollständig geklärt. Beobachtet wird eine Veränderung mit der Größe der Laserapertur und der Position des Targets, wobei die Asymmetrie mit Annäherung an den Fokus zunimmt. Das Strahlprofil erscheint gleichzeitig kollimierter und das Verhältnis der beiden Ellipsenachsen weicht stärker von eins ab. Eine mögliche Ursache für diese Beobachtung ist die Einführung von Astigmatismus durch die Fokussierung über einen sphärischen Spiegel, da dieser aus geometrischen Gründen nicht im senkrechten Einfall benutzt werden kann. Die exakte Form des Laserfokus ist jedoch nicht bekannt. Nicht-symmetrische Strahlprofile werden auch an anderen Harmonischen Quellen beobachtet [40]. In den meisten Fällen sind die in Verbindung mit den asymmetrischen Strahlprofilen detektierten HH-Intensitäten am höchsten, so dass für viele Anwendungsexperimente der Kompromiss eines elliptischen Strahlprofils bei vergleichsweise hohen Photonenströmen eingegangen wurde.

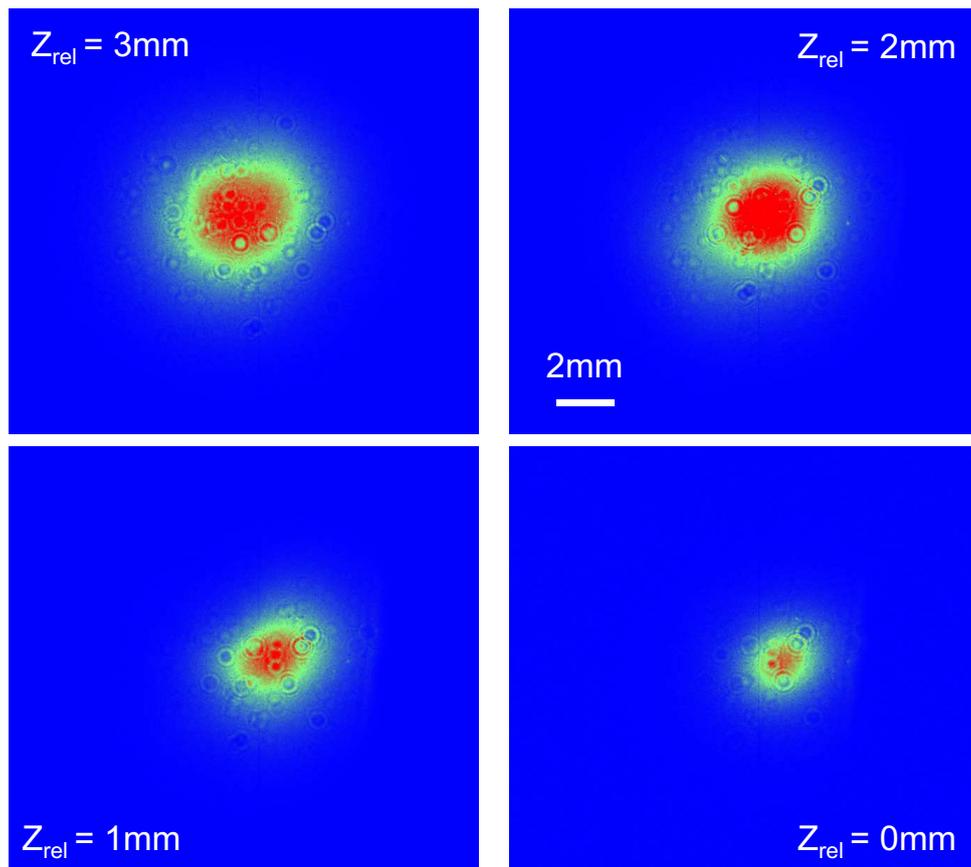


Abbildung 4.6: Strahlprofile der Harmonischen in Abhängigkeit von der Targetposition bzgl. des Laserfokus. Angegeben ist die relative Verschiebung zur Anfangsposition mit $z_{\text{rel}} = 0$ dicht am Laserfokus.

Experimentelle und theoretische Ergebnisse zeigen übereinstimmend, dass die Targetposition die Divergenz des HH-Strahls direkt beeinflusst. Bei einer Verschiebung des Targets von Positionen hinter dem Fokus ($z > 0$) zu Positionen vor dem Fokus ($z < 0$) nimmt die Divergenz, aber auch die Erzeugungseffizienz ab [79], da ebenso die Bedingungen für die Phasenanpassung von der Fokusposition abhängen. In Abbildung 4.6 ist dieser Zusammenhang an Strahlprofilen für unterschiedliche Abstände des Targets zum Laserfokus dargestellt. Die Verschiebung des Targets bezieht sich auf die Anfangsposition $z_{\text{rel}} = 0$ kurz hinter dem Laserfokus. Die aus den Strahlprofilen bestimmten Divergenzen sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst. Deren Bestimmung erfolgt unter der Annahme einer Punktquelle am Wechselwirkungsort in der Kapillare. Die tatsächliche Größe des emittierenden Gebietes ist nicht genau bekannt, kann aber anhand des Lochs im Target nach oben mit $150\ \mu\text{m}$ abgeschätzt werden. Die im Strahlprofil enthaltene Photonenzahl steigt mit zunehmendem Abstand zum Fokus an, verteilt sich aber auf eine größere Fläche. Aufgrund der nicht monochromatisierten HH-Strahlung kann in diesem Fall keine absolute Photonenzahl angegeben werden.

Für eine einzelne Harmonische nach dem Multilayer-Monochromator zeigt Abbildung 4.7 die innerhalb der vollen Halbwertsbreite (FWHM) des Strahlprofils enthaltene Photonenzahl

Tabelle 4.1: Abhängigkeit der Divergenz des HH-Strahls von der Targetposition gemessen an den in Abbildung 4.6 gezeigten polychromatischen Strahlprofilen nach Bandpassfilterung (17.5 – 12.5 nm).

z_{rel} [mm]	Divergenz horizontal [mrad]	Divergenz vertikal [mrad]
0	0.45 ± 0.03	0.43 ± 0.03
1	0.61 ± 0.03	0.58 ± 0.03
2	0.70 ± 0.03	0.61 ± 0.03
3	0.78 ± 0.03	0.75 ± 0.03

sowie die HH-Intensität (Photonenzahl normiert auf die Strahlprofilfläche) in Abhängigkeit vom Gasdruck im Target. Man erkennt ein ausgeprägtes Maximum der insgesamt erzeugten Anzahl an Photonen, bezogen auf das Strahlprofil ist das Maximum zu höheren Drücken verschoben und weniger stark ausgeprägt. Dies zeigt, dass es keine generelle optimale Einstellung der HH-Quelle gibt, sondern jeweils die Anforderungen des Experimentes überprüft und dementsprechend die Quelle angepasst werden muss. So kann ein besser kollimierter HH-Strahl bei kleinerer Anzahl an Photonen aber größerer Strahlbrillanz durchaus sinnvoll sein, da erreicht werden kann, dass alle im Strahlquerschnitt enthaltenen Photonen von der benutzten Optik aufgefangen werden. Die typische Größe einer in Transmission arbeitenden Optik, wie z.B. eine Zonenplatte, liegt im Bereich von 1 mm, so dass kleine Strahldurchmesser günstiger sind.

Zur Optimierung des Strahlprofils stehen im Experiment als direkt zugängliche Parameter Targetposition und Gasdruck im Target zur Verfügung. Weiter kann die zur Beeinflussung der Fokussierung benutzte Apertur auch der Strahlprofilmanipulation dienen. Die Abhängigkeiten des Laserstrahlprofils von den Betriebsbedingungen des Lasersystems sind vielfältig und eine direkte Beeinflussung ist nur eingeschränkt möglich.

Ein grundlegender Aspekt bei der Verwendung einer Strahlungsquelle ist deren zeitliche und räumliche Stabilität. Im Fall der HHG-Quelle kann es zu Schwankungen in der Intensität, der Ausbreitungsrichtung aber auch der spektralen Zusammensetzung kommen, wie im folgende Abschnitt näher erläutert wird. Bei den zur HHG benutzten Lasern handelt es sich in der Regel um komplexe Systeme, die schon bei geringen Schwankungen von z.B. der Umgebungstemperatur merklich reagieren. Zusätzlich ist die HHG insbesondere im Bereich des *cut-off* aufgrund ihrer höchst nicht-linearen Natur sehr empfindlich auf kleinste Änderungen der Laserparameter, die sich direkt auf die Eigenschaften der emittierten Harmonischen fortsetzen. Ein wesentlicher Fortschritt konnte diesbezüglich durch die Entwicklung phasenstabilisierter Lasersysteme erzielt werden [4]. Diese ermöglichen erstmals die reproduzierbare Erzeugung von fs-Laserpulsen mit definierter, konstanter Phasenbeziehung zwischen Einhüllender (der sogenannten *carrier phase envelope*) und Oszillationen des elektrischen Feldes und können die Eigenschaften hoher Harmonischer deutlich verbessern. Im Rahmen dieser Arbeit stand ein phasenstabilisiertes Lasersystem noch nicht zur Verfügung.

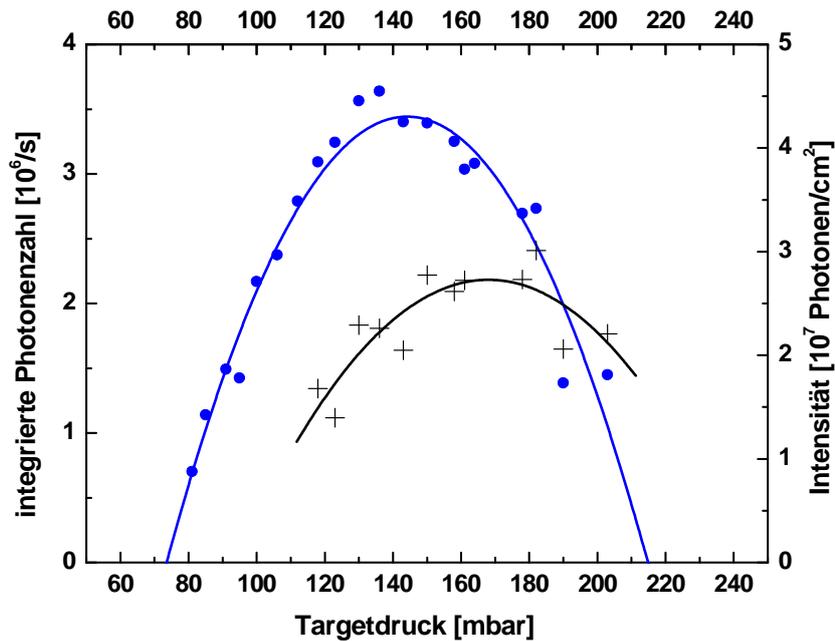


Abbildung 4.7: Abhängigkeit der Photonenzahl (Kreise) und der Intensität (Kreuze) einer einzelnen Harmonischen nach dem Monochromator ($\lambda = 12.8$ nm, $q = 61$) vom Gasdruck im Target. Die durchgezogenen Linien sind an die experimentellen Daten angepasste Kurven.

4.3 Spektrum

Die spektrale Charakterisierung der HH-Quelle beschränkt sich auf den für die Anwendungen relevanten Wellenlängenbereich um 13 nm und wurde mit dem Transmissionsgitterspektrographen durchgeführt (vgl. Kap. 3.2.3). Dazu wird die HH-Beamline ohne Monochromator betrieben, an dessen Stelle eine Vakuumkammer für den Spektrographen tritt. Um eine gleichmäßige Ausleuchtung des Gitters mit dem Harmonischen-Strahl zu gewährleisten, ist das Gitter auf einen motorisierten Translationstisch montiert und kann in der Ebene senkrecht zum Strahl positioniert werden. Abbildung 4.8 zeigt eine Skizze des Versuchsaufbaus. Der Abstand zum Detektor ist so gewählt, dass eine ausreichend hohe spektrale Auflösung erreicht wird. Für einen typischen Abstand $D_b = 500$ mm zum Detektor bzw. $D_q = 1000$ mm zur Quelle und einer Quellgröße $q < 150$ μm ergibt sich nach Gleichung (3.19) in der ersten Beugungsordnung $\Delta\lambda_{\text{geometrisch}} < 30$ pm. Unter Berücksichtigung der Beugungsgrenze entspricht dies nach Gleichung (3.20) bei 13 nm Wellenlänge einem Auflösungsvermögen von

$$\lambda/\Delta\lambda_{\text{exp}} \approx 328. \quad (4.1)$$

Die Pixelgröße der Kamera von 24 μm ergibt in der Detektorebene eine lineare Dispersion von 4.8 pm/px, was zur Erhöhung der Empfindlichkeit der Kamera ein Arbeiten im gebinnten² Mo-

²Unter *Binning* versteht man das Zusammenfassen mehrerer CCD-Pixel zu einem größeren.

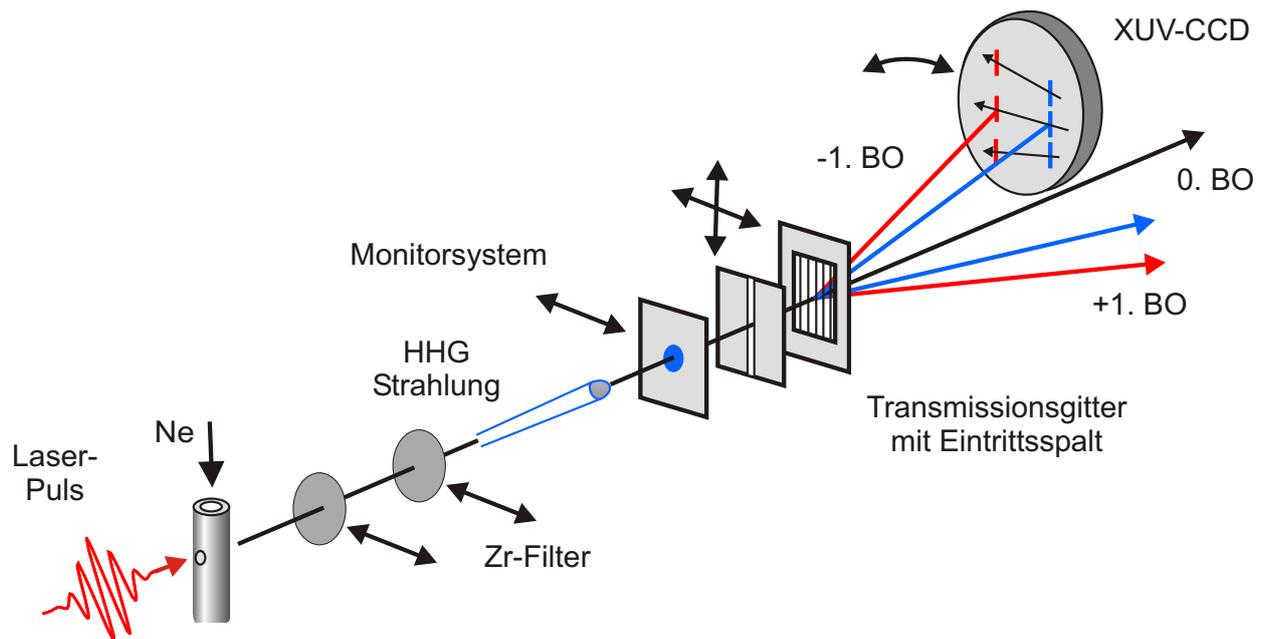


Abbildung 4.8: Schematische Darstellung des Aufbaus des TGS-Spektrographen zur spektralen Charakterisierung der HH-Emission.

das ohne Verlust an spektraler Information erlaubt. Die Zentralwellenlänge der Fundamentalen entspricht etwa 1.5 eV Photonenenergie, so dass die ungeraden Harmonischen um jeweils 3 eV voneinander getrennt sind und vom Spektrographen leicht aufgelöst werden können.

Abbildung 4.9 zeigt Spektren der Harmonischen in Abhängigkeit der fokussierten Laserpulsenergie bzw. von der Intensität im Fokus, die durch Schließen der Laserstrahlapertur verändert wurde. Die sich dadurch gleichzeitig ergebende Veränderung der Fokusgröße ist quantitativ nicht bekannt, weswegen die angegebenen Intensitäten anhand des Blendendurchmessers, der Pulsenergie und -dauer abgeschätzt sind. Mehrere Effekte der Intensitätsvariation sind in den gezeigten Spektren zu finden. Einerseits führt die abnehmende Intensität zu einer Verschiebung des *cut-off*-Bereiches in Richtung kleinerer Energien, wie es qualitativ nach Gleichung (2.2) zu erwarten ist. Weiter kommt es zu einer deutlichen Verminderung der Modulationstiefe der Harmonischen, d.h. die Differenz zwischen Intensitätsmaximum und -minimum nimmt ab. Es bildet sich ein schwach moduliertes, „quasi-kontinuierliches“ Spektrum aus, dies allerdings unter Verlust von HH-Intensität. Im Bereich des *cut-off* trägt nur noch eine einzelne Elektronenbahn zur Emission bei und der Verlust der Periodizität des Erzeugungsprozesses führt zu einer Verschmierung der Energien der emittierten Photonen, die Modulation des Spektrums nimmt ab. Die leicht variierende spektrale Lage Harmonischer gleicher Ordnung ist ein weiterer sichtbarer Effekt, der als *plasma blueshift* bezeichnet wird [103]. Die Ausbildung eines Plasmas, d.h. freier Elektronen, im Fokus durch die hohen Laserintensitäten kann zu einer instantanen Blauverschiebung der Fundamentalfrequenz innerhalb weniger optischer Zyklen führen, die sich direkt auf die Harmonischen fortsetzt. Dieser nichtlineare Effekt höherer Ordnung führt im Ge-

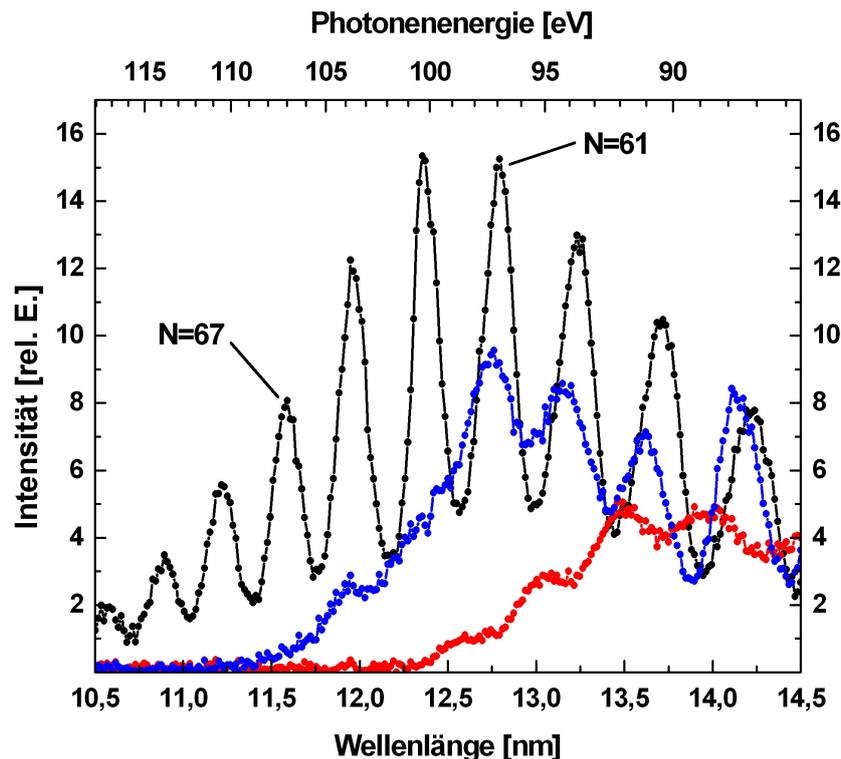


Abbildung 4.9: HH-Spektren im Bereich von 13 nm Wellenlänge in Abhängigkeit von der Laserpulsenergie bzw. Intensität im Fokus ($400 \mu\text{J}$: $6.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (schwarz), $320 \mu\text{J}$: $5.3 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (blau), $280 \mu\text{J}$: $4.6 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (rot)). Mit abnehmender Intensität verschiebt sich der *cut-off* in Richtung längerer Wellenlängen und die Modulation des Spektrums nimmt ab.

gensatz zur Selbstphasenmodulation nicht nur zu einer Verbreiterung des Spektrums, sondern zu einer substantiellen Blauverschiebung. Im Experiment werden Verschiebungen von über einer HH-Ordnung beobachtet [104].

Die gezeigten Spektren verdeutlichen, dass es prinzipiell möglich ist, das Spektrum der emittierten Harmonischen im untersuchten Bereich an die Anforderungen einer Anwendung anzupassen. So ist z.B. für absorptionsspektroskopische Messungen ein kontinuierliches Spektrum von Vorteil, während die Verwendung von Zonenplatten in abbildenden Verfahren eine gewisse Monochromasie der Strahlung voraussetzt, was durch die Selektion einer einzelnen Harmonischen aus einem durchmodulierten Spektrum möglich ist. Weiter ist die Existenz eines (quasi-)kontinuierlichen Spektrums Voraussetzung für die Erzeugung von isolierten XUV-Pulsen im as-Bereich.

Soweit möglich, sind die Spektren bezüglich der sich im Strahlengang befindenden Filter und Folien sowie der Antwortfunktion der Kamera korrigiert. Die Unsicherheiten dabei sind jedoch aus mehreren Gründen groß. Die Dicke der Si-Folie unter dem Gitter ist nicht genau bekannt, ebenso wird die Dicke der Zr-Folien mit einer Toleranz vom Hersteller mit $\pm 10\%$ angegeben. Weiter können mögliche Oxidanteile der Folien und Kontaminationen der optischen Elemente

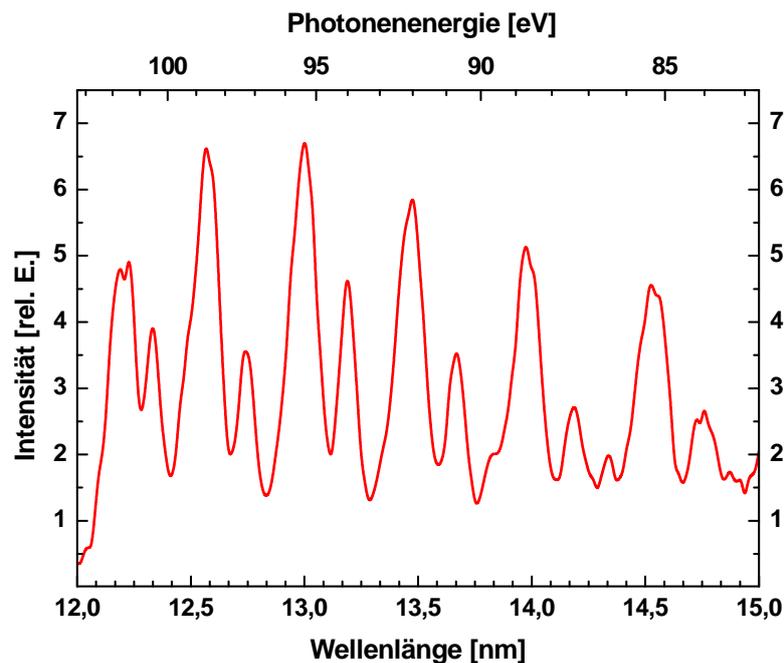


Abbildung 4.10: Spektrum der Harmonischen im Fall sehr kurzer Laserpulse, die zur Emission gerader Harmonischer führen.

mit Kohlenwasserstoffen nicht quantifiziert werden. Eine weitere Ungewissheit resultiert aus der Absorption der Restgasatmosphäre innerhalb der Targetkammer. Die leichte Intensitätsabnahme der HH in Richtung größerer Wellenlängen kann auf diese Ursachen zurückzuführen sein, da die zusätzliche Absorption sich mit kleiner werdender Wellenlänge weniger stark auswirkt. Die Beugungseffizienz des Ni-Gitters ist über den gezeigten Wellenlängenbereich nahezu konstant, jedoch liegen keine experimentellen Daten vor, die die Korrektur der Spektren diesbezüglich ermöglichen.

Wie das Profil des HH-Strahls ist auch das Spektrum zeitlichen Schwankungen unterworfen, die vielfältige Ursachen haben. Für den dauerhaften Betrieb einer HH-Quelle für Anwendungsexperimente ist demnach auch der Einsatz eines spektralen Monitoring sinnvoll, um die HH-Emission kontinuierlich überwachen und optimieren zu können.

Im Rahmen der spektralen Charakterisierung wurden zwei Beobachtungen gemacht, die auf die besonderen Eigenschaften des fs-Lasersystems zurückzuführen sind. In Abbildung 4.10 ist ein Spektrum gezeigt, in dem neben den bekannten ungeraden Harmonischen auch gerade Ordnungen zu sehen sind, wie sie bei der Verwendung extrem kurzer Laserpulse (~ 5 fs) entstehen. In diesem Fall weist die Oszillation des Laserfeldes eine hohe Asymmetrie auf, d.h. ansteigende und abfallende Flanke des E-Feldes sind u. U. nicht mehr gleich stark. Die Quasi-Periodizität des Erzeugungsprozesses geht so verloren, und das emittierte Spektrum kann im Plateau-Bereich gerade Harmonische enthalten [110].

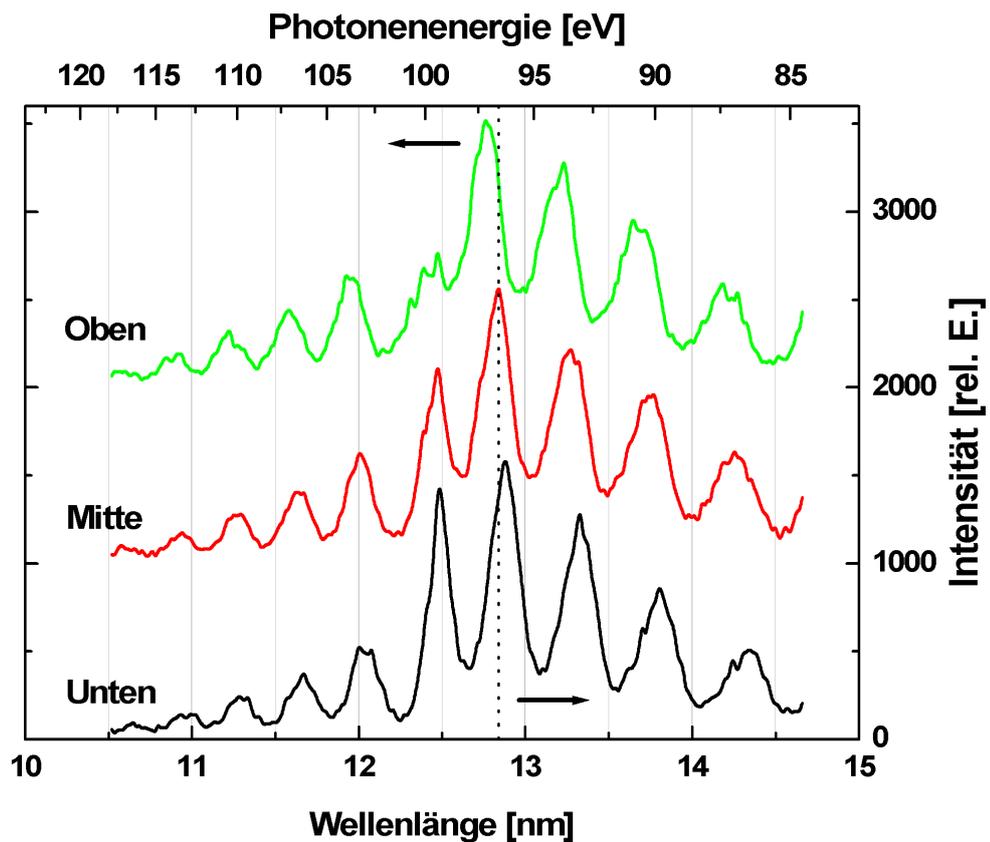
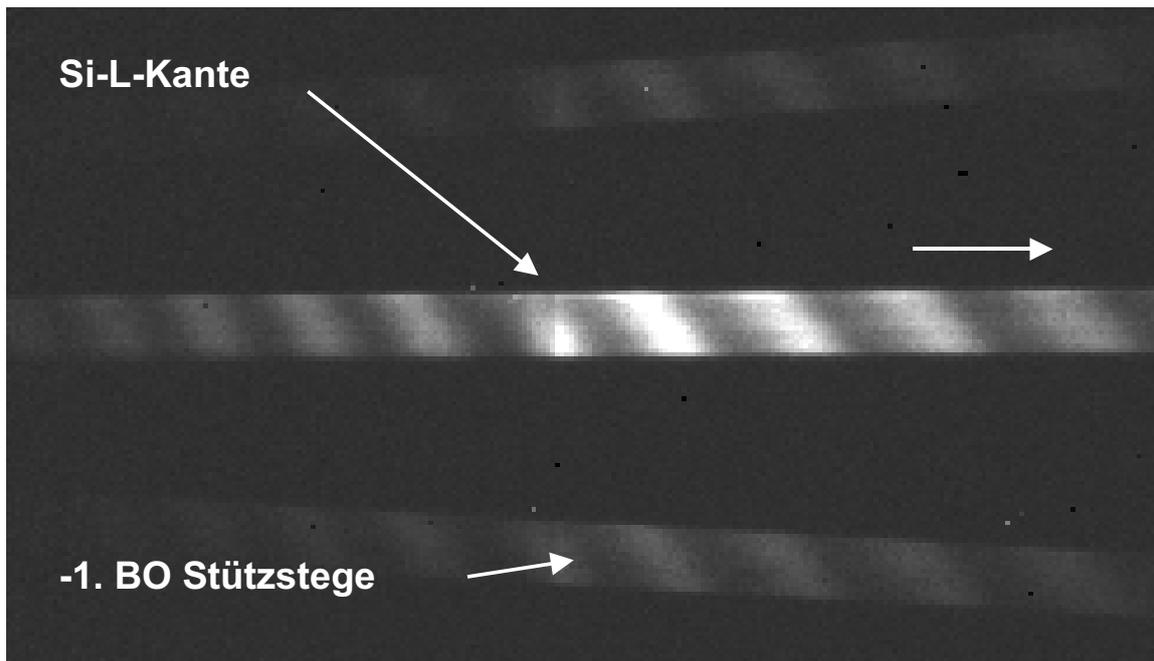


Abbildung 4.11: Bild des Spektrums auf dem Detektor (Oben) und zugehörige Intensitätsprofile (Unten) für drei verschiedene Positionen über der Spalthöhe. Zu erkennen ist eine Variation der spektralen Zusammensetzung der HH entlang des Strahlprofils.

Ein weiterer Effekt einer Asymmetrie der Fundamentalen ist in Abbildung 4.11 gezeigt. Der obere Teil der Graphik enthält ein vom Spektrographen auf dem Detektor erzeugtes Bild aus dem Bereich der Si-L-Kante. Die Hauptbeugungsordnung des Gitters verläuft in der Bildmitte, ober- und unterhalb davon sind die Beugungsordnungen der Stützstegstruktur des Gitters zu erkennen, die zur Wellenlängenkalibrierung benutzt werden können. Da das Bild dem Schattenwurf des Eintrittsspaltens entspricht, ist das HH-Strahlprofil spektral zerlegt dargestellt. Man erkennt die einzelnen, voneinander separierten harmonischen Ordnungen. Im Fall einer homogenen spektralen Verteilung über das Strahlprofil wären diese rechtwinklig zur spektralen Richtung angeordnet. Der sichtbare, schräge Verlauf über der Gitterhöhe bedeutet somit, dass die spektrale Zusammensetzung der HH über das Strahlprofil variiert. Dieser besitzt einen *räumlichen Chirp*. Dies verdeutlicht der untere Teil der Graphik, in dem drei Intensitätsprofile entlang einer Pixelzeile aus unterschiedlichen Abschnitten der Hauptbeugungsordnung gezeigt sind (Oben, Mitte, Unten). Deutlich ist die relative Verschiebung der Spektren zueinander, insbesondere an der Si-L-Kante, zu erkennen. Der spektrale Abstand der markierten Harmonischen bei 12.84 nm beträgt zwischen oberem und unterem Profil 0.13 nm, was einer relativen Verschiebung von $\lambda/\Delta\lambda \approx 100$ entspricht. Einerseits zeigt dieses Ergebnis die ausreichend hohe Auflösung des Spektrographen, andererseits wird deutlich, dass hinsichtlich möglicher Anwendungsexperimente Einschränkungen existieren, die bei deren Umsetzung berücksichtigt werden müssen (vgl. 5.3).

Um geometrische Effekte als Ursache für das Auftreten des räumlichen Chirp auszuschließen, wurden Spektren unter verschiedenen Konfigurationen aufgenommen. Eine Rotation des Gitters sowohl um 180° als auch um 90° bzgl. des Harmonischen-Strahls zur Überprüfung einer möglichen Polarisationsabhängigkeit ergab keine Änderung. Ebenso erwies sich eine Rotation des Targets um 90° als einflusslos auf den Chirp der Harmonischen, womit Effekte der turbulenten Gasströmung ausgeschlossen werden können. Der Chirp wurde an einem asymmetrischen Strahlprofil beobachtet. Entlang der kurzen Achse erscheint der Effekt stärker, da das mit dem Gitter abgetastete Gebiet relativ zum Strahldurchmesser größer ist. Dies deutet darauf hin, dass der beobachtete Effekt auf Eigenschaften der Fundamentalen zurückzuführen ist. Der durch die Fokussierung mit einem sphärischen Spiegel verursachte Astigmatismus alleine kann den beobachteten Effekt nicht erklären. Eine mögliche Ursache wäre ein räumlich gechirptes Laserstrahlprofil, was zu einem unsymmetrischen, elliptischen Fokus und zu einer räumlichen Variation des Spektrums im Fokus führen würde [109].

4.4 Räumliche Kohärenz

Zur experimentellen Bestimmung des räumlichen Kohärenzgrades bei Beleuchtung mit dem HH-Strahl wurde u.a. das in Abschnitt 2.3 beschriebene Doppelspaltexperiment mit der HH-Strahlung durchgeführt. Der experimentelle Aufbau besteht aus dem ersten Abschnitt

4 Charakterisierung der Hohe-Harmonische-Strahlung

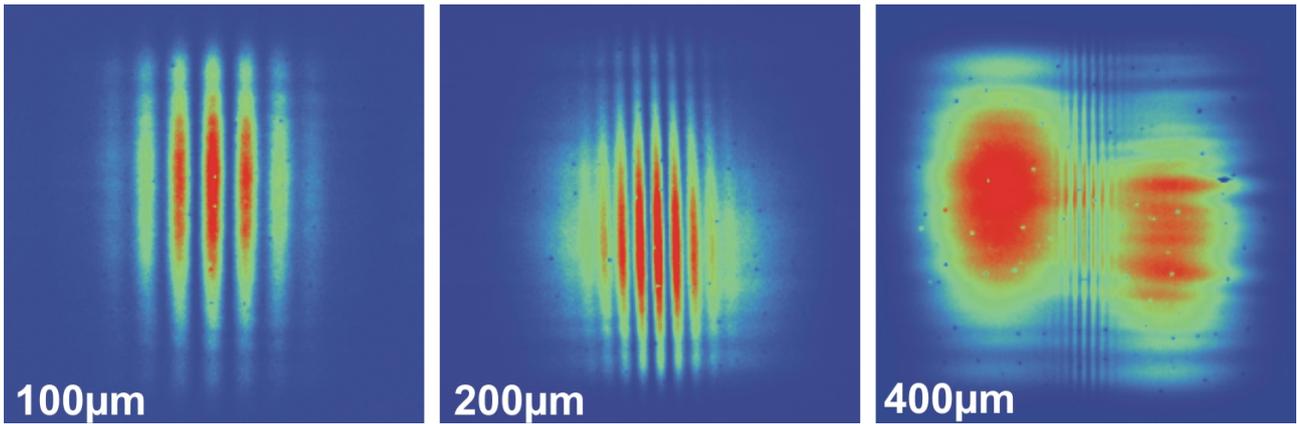


Abbildung 4.12: Beugungsbilder der Doppelspalte für Spaltabstände 100, 200 und 400 μm in der Detektorebene aufgenommen mit 30 (100 μm) bzw. 60 s (200+400 μm) Belichtungszeit.

der Beamline, einer Doppelspaltmatrix und der XUV-CCD zur Detektion des Interferenzmusters. Die HH-Strahlung wird durch die Filterkombination Zr/Si auf den Spektralbereich 12.5 – 17.5 nm eingeschränkt, die Monochromasie beträgt etwa $\lambda/\Delta\lambda \approx 6$ bei einer Zentralwellenlänge von 15 nm. Die Doppelspaltmatrix im Abstand von 895 mm zum Laserfokus lässt sich in den HH-Strahl bewegen und in der xy-Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung positionieren. Der Abstand der Doppelspaltebene zum Detektor betrug $L = 3000$ mm. Die Doppelspaltmatrix besteht aus Doppelspaltpaaren der Einzelspaltbreite $d_{\text{ES}} = 25 \mu\text{m}$ und verschiedenen Abständen d_{DS} von 100 – 800 μm , um das HH-Strahlprofil möglichst komplett abtasten zu können. Dessen Größe betrug in der Doppelspaltebene etwa $400 \mu\text{m} \times 1200 \mu\text{m}$ (FWHM), was aus der gemessenen Größe des Strahlprofils in der Detektorebene und dem Abstand zum Laserfokus abgeschätzt wurde.

Abbildung 4.12 zeigt mit diesem Aufbau detektierte Doppelspaltbeugungsbilder für Spaltabstände von 100 μm , 200 μm und 400 μm für Spaltorientierungen parallel zur kurzen Achse des leicht elliptischen Strahlprofils. Das Beugungsbild eines Doppelspaltes besteht aus der Einhüllenden bestimmt durch die Einzelspaltbreite und einer Intensitätsmodulation der Einhüllenden mit einer Periode proportional dem reziproken Spaltabstand. Gezeigt ist hier nur das Hauptmaximum der Einhüllenden, aus dem die wesentlichen Informationen extrahiert werden können.

Die Interferenzmuster zeigen guten Kontrast, jedoch wird anhand des Beugungsmusters bei größtem Spaltabstand von 400 μm die grundlegende Problematik dieser Art von Experiment bei kleinen Wellenlängen deutlich. Die Einzelspaltbeugungsmuster sind räumlich voneinander getrennt sichtbar, nur noch im geometrischen Überlappungsbereich ist die Modulation zu erkennen. Es handelt sich somit nicht mehr um einen Aufbau, der der Fernfeldnäherung entspricht. Für noch größere Spaltabstände sind die Einzelspaltbeugungsbilder vollständig voneinander getrennt und können nicht für eine Auswertung herangezogen werden. Diese experimentelle Schwierigkeit wird auch aus ähnlichen Experimenten an Harmonischen aus dem Plateau-Bereich

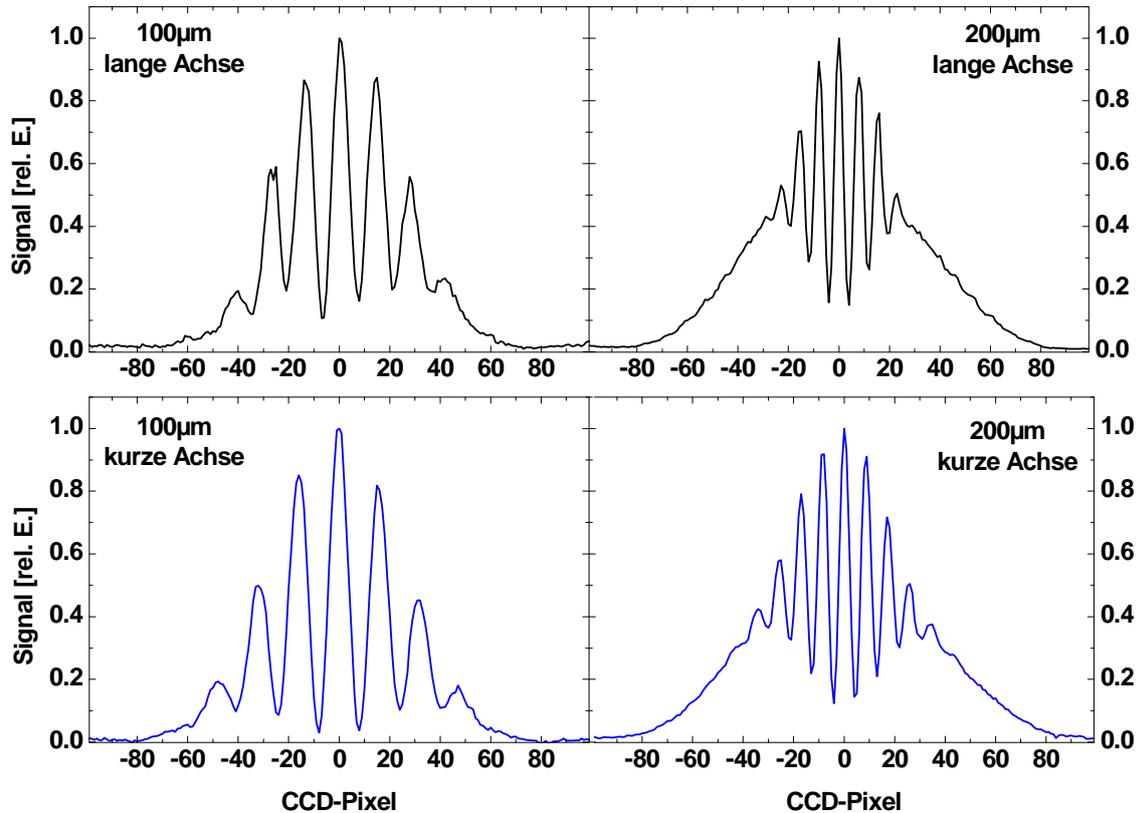


Abbildung 4.13: Beugungsbilder der Doppelspalte bei einem Spaltabstand von $100\ \mu\text{m}$ (links) und $200\ \mu\text{m}$ (rechts) für Spaltorientierungen parallel zur langen (schwarz) und kurzen (blau) Achse des elliptischen Strahlprofils.

($q \simeq 21$) berichtet [5] und ist wesentlich durch die kurzen Wellenlängen bedingt. Zur Vermeidung dieses Problems müssten die beugende Apertur und der Abstand zum Detektor so gewählt sein, dass eine gleichmäßige Ausleuchtung des Beugungsbildes durch beide Einzelspalte gegeben ist. Beide Parameter sind jedoch durch praktischer Aspekte limitiert. Einerseits kann der Abstand zwischen Spalt und Detektor aus geometrischen Gründen nicht beliebig groß gewählt werden. Andererseits ist eine Spaltbreite notwendig, die einen ausreichenden Fluss auf dem Detektor gewährleistet, trotzdem aber ausreichend stark beugt. Die Bedingungen zur vollständigen Überlagerung der Einzelspaltbeugungsmuster sind dann erfüllt, wenn näherungsweise

$$d_{ES} \ll \frac{\lambda L}{d_{DS}} \quad (4.2)$$

gilt [33]. Für den vorhandenen $400\ \mu\text{m}$ -Doppelspalt ergibt sich $d_{ES} \ll 110\ \mu\text{m}$, was die beobachtete Trennung der Einzelspaltbeugungsordnungen erklärt. In Abbildung 4.13 sind für die beiden kleineren Doppelspaltabstände die Intensitätsprofile entlang der Beugungsrichtung dargestellt. Sie unterscheiden sich geringfügig für die beiden Orientierungen der Spalte zum Strahlprofil, entlang der kurzen Achse ist das Interferenzmuster besser moduliert. Unter der

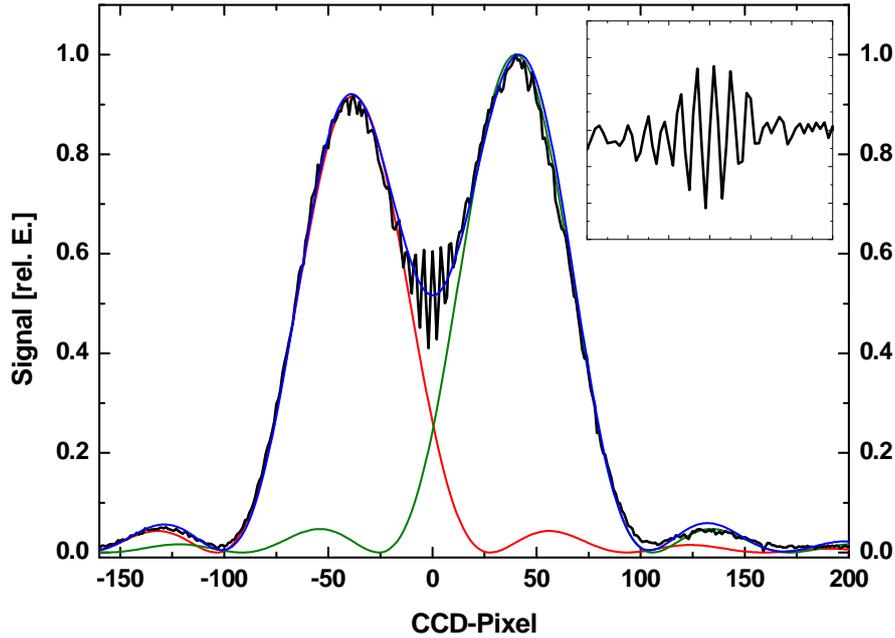


Abbildung 4.14: Intensitätsprofil des Beugungsbildes bei einem Spaltabstand von $d_{DS} = 400 \mu\text{m}$ orientiert entlang der langen Achse (schwarz). Die Einzelspaltbeugungsbilder sind getrennt voneinander sichtbar, nur im Bereich der geometrischen Überlappungsbereiche kommt es zur Interferenz. Die eingefügte Grafik zeigt das Beugungsmuster nach Abzug der inkohärenten Überlagerung der angepassten Einzelspaltbeugungsbilder (rot, grün, Summe=blau).

Annahme quasi-monochromatischer, homogener Beleuchtung der Einzelspalte $I_1 = I_2$, was näherungsweise erfüllt ist, ergibt sich aus Gleichung (2.13) im Zentrum des Interferenzmusters

$$K = \frac{2\sqrt{I_1 I_2}}{I_1 + I_2} |\mu_{12}| = |\mu_{12}|, \quad (4.3)$$

der messbare Kontrast entspricht also gerade dem Kohärenzgrad. Aus den Beugungsmustern der beiden kleineren Spaltabstände ergeben sich $|\mu_{12}|_{100} = 0.95$ und $|\mu_{12}|_{200} = 0.77$ für die kurze Achse und $|\mu_{12}|_{100} = 0.80$ und $|\mu_{12}|_{200} = 0.74$ für die lange Achse. Das in Abbildung 4.14 dargestellte Intensitätsprofil aus dem Beugungsmuster des $400 \mu\text{m}$ Doppelspaltes parallel zur langen Achse erlaubt keine direkte Auswertung hinsichtlich des Kohärenzgrades. Außer den experimentellen Daten sind zwei an diese angepasste Einzelspaltbeugungskurven gezeigt, die eingefügte Grafik zeigt den Intensitätsverlauf im Überlappungsbereich nach Abzug der inkohärenten Einzelspaltanteile. Die resultierende starke Modulation lässt auch für diesen Spaltabstand einen hohen Grad räumlicher Kohärenz der Beleuchtung vermuten.

Neben einer eingeschränkten räumlichen Kohärenz führt auch die relativ große Bandbreite der HH-Strahlung zu einer Verminderung des Kontrastes im Interferenzmuster. Im Gegensatz zur einer verminderten räumlichen Kohärenz, die eine gleichmäßige Kontrastreduzierung über das gesamte Streifenmuster erzeugt, wirkt sich die Bandbreite jedoch auf den Kontrast in

den vom Zentrum entfernten Bereichen aus. Dies ist ansatzweise schon in den 100 μm -Daten sichtbar, deutlicher tritt dieser Effekt in den 200 μm -Beugungsmustern auf.

Eine vollständige Bestimmung der räumlichen Kohärenzeigenschaften des HH-Strahls ist anhand der vorliegenden Daten nicht möglich. Die Limitierung des beschriebenen Aufbaus liegt hauptsächlich in der zu großen Spaltbreite, die nicht für alle Spaltabstände eine Überlagerung der Beugungsfiguren in der Detektorebene erzeugt. Die ermittelten Kohärenzgrade stellen aufgrund der geometrischen Einschränkung und der Bandbreite der HH-Strahlung eine untere Grenze für die tatsächlichen Werte dar. Entlang der kurzen Achse ist mit Spaltabständen von bis zu 400 μm nahezu das vollständige Strahlprofil abgetastet. Der räumliche Kohärenzgrad kann nicht über das gesamte Strahlprofil gemessen werden, der hohe Kontrast der Interferenzstreifen deutet jedoch auf einen relativ hohen Wert hin. Weiterhin kann angenommen werden, dass das zum Zeitpunkt der Messung vorhandene elliptische Strahlprofil schlechtere Kohärenzeigenschaften aufweist als ein symmetrisches.

Die von einer quasi-monochromatischen, thermischen Quelle im Abstand von 895 mm mit $|\gamma_{12}| > 0.88$ beleuchtete Fläche hat nach Gleichung (2.16) einen Durchmesser von etwa 43 μm . Die Beleuchtung des Doppelspaltes durch den HH-Strahl weist somit eine deutlich höhere räumliche Kohärenz auf als die eines thermischen Strahlers.

4.5 Fokussierbarkeit

Die Fokussierung von HH-Strahlung auf möglichst kleine Fokusdurchmesser ist ein erfolgversprechender Ansatz zur Erzeugung hoher Intensitäten im XUV, die das Feld der nichtlinearen Röntgenoptik eröffnen würde. Als fokussierende Optik kommen sphärische Reflexionsoptiken und insbesondere Zonenplatten in Frage, da die erzielbare Auflösung bei Einsatz von nur einem optischen Element in der Regel besser ist als die reflektiver Optiken. Neben der sehr kurzen Pulsdauer der Harmonischen ist dabei die Frage nach dem Kohärenzgrad der Beleuchtung durch die Harmonischen von entscheidender Bedeutung, da nur im Fall räumlich kohärenter Beleuchtung beugungsbegrenzte Fokusdurchmesser erreicht werden können. Nachteilig wirkt sich bei der Verwendung einer diffraktiven Optik jedoch die Verlängerung des XUV-Pulses durch die auftretenden optischen Wegunterschiede aus. Aufgrund der *Fresnelschen* Zonenkonstruktion wird dem Strahl ein Umweg in der Größe von $N_{\text{ZP}} \cdot \lambda/2$ aufgeprägt, die XUV-Pulsdauer verlängert sich dadurch auf

$$\tau_{\text{HH}} = \frac{N_{\text{ZP}} \lambda}{2c}. \quad (4.4)$$

Die experimentelle Bestimmung des Fokusdurchmessers eines mit einer Zonenplatte fokussierten HH-Strahls erfordert eine geeignete Detektion. Bei erwarteten Fokusdurchmessern deutlich unter 1 μm versagen die meisten direkten Detektionstechniken aufgrund mangelnder räumlicher Auflösung. Um dieses Problem zu umgehen, werden häufig sogenannten *knife-edge*-Tests

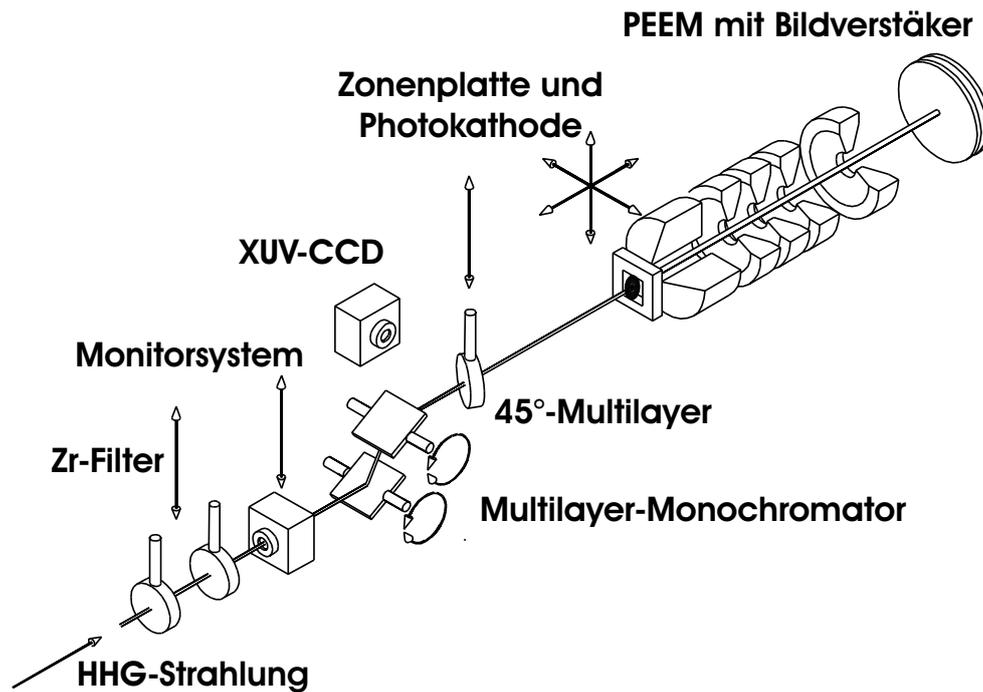


Abbildung 4.15: Experimenteller Aufbau zur Bestimmung der Fokalgröße des Zonenplattenspots. Die Zonenplatte ist vor der Photokathode auf einen 3-Achsen Translationstisch montiert und wird mit dem monochromatisierten HH-Strahl beleuchtet.

durchgeführt, bei denen eine sehr scharfe Kante mit hoher Auflösung durch den zu messenden Fokus geschoben und das transmittierte Signal detektiert wird. Dies erfordert keinen räumlich auflösenden Detektor, aber die Anforderungen an die Stabilität der Quelle sind hoch. Ein solches Experiment mit polychromatischer HH-Strahlung ergab Fokusdurchmesser von $2.3 \mu\text{m}$ unter der Annahme einer gaußförmigen Intensitätsverteilung im Fokus [96]. Ein abbildendes Verfahren ermöglicht neben der genaueren Fokusgrößenmessung gleichzeitig eine direkte Bestimmung der Intensitätsverteilung. Aus diesem Grund wurde ein Photo-Elektronen-Emissions-Mikroskop (PEEM) an die HH-Beamline adaptiert, das sonst an der Beamline U-125/1-ML von der Bielefelder Arbeitsgruppe an *BESSY II* betrieben wird und räumliche Auflösungen deutlich unter 100 nm ermöglicht [85]. Das PEEM arbeitet in Transmission mit einer 150 nm dicken mit Cäsiumiodid (CsI) bedampften Photokathode aus Silizium, auf die der HH-Strahl mit einer Zonenplatte fokussiert wird ($r = 500 \mu\text{m}$, $N_{\text{ZP}} = 1963$, $\Delta r = 130 \text{ nm}$). Die im Fokus der ZP an der Photokathode erzeugten Photoelektronen werden im Mikroskop durch die Elektronenoptik zur Abbildung der Kathodenoberfläche benutzt und über einen nachgeschalteten Bildverstärker auf einem YAG-Schirm sichtbar gemacht. Dieser wird mit einer VIS-CCD im Slow-Scan-Modus ausgelesen. Der Aufbau des Experimentes ist in Abbildung 4.15 schematisch dargestellt.

Zur Beleuchtung der ZP wird der monochromatisierte HH-Strahl mit $\lambda/\Delta\lambda = 70$ bei 12.8 nm Wellenlänge benutzt. Die im Abstand der Brennweite $f = 10.16 \text{ mm}$ vor der Photokathode montierte ZP ist mit einem Mittenstop versehen, der einen Teil des Lichtes der 0. BO abhält, so

dass der fokussierte Anteil der +1. BO im Schattenbereich des Mittenstops detektiert werden kann. Die Ausleuchtung der ZP kann im Experiment über den Teil der 0. BO kontrolliert werden, der durch das PEEM direkt auf den Bildverstärker fällt. Zur Fokussierung und lateralen Positionierung ist die ZP auf einem xyz-Translationstisch montiert. Hinter dem Monochromator befindet sich ein 45°-Mo/Si-Multilayer, mit dem der HH-Strahl zur Kontrolle auf eine XUV-CCD gelenkt werden kann.

Der Betrieb des PEEMs in Transmission an der Harmonischen-Quelle in dieser Konfiguration hat sich als prinzipiell möglich erwiesen. Dabei kommt der verwendeten Photokathode eine entscheidende Rolle zu, da deren Konversionseffizienz die Lichtstärke des PEEM-Bildes bestimmt. Die Verwendung der in-situ mit CsI bedampften Si-Folie im Gegensatz zu einer unbedampften Folie konnte die Belichtungszeit deutlich reduzieren. Trotz der Entwicklung einer an die Bedingungen der HH-Quelle angepassten PEEM-Konfiguration, war es bisher nicht möglich, Fokusdurchmesser des fokussierten HH-Strahls zu messen, die im erwarteten Bereich einiger 100 nm liegen. Abbildung 4.16 zeigt den kleinsten vermessenen ZP-Fokus und einen Intensitätsverlauf vertikal durch das Fokusprofil. Aus der Vergrößerung des PEEMs ergibt sich die Fokusgröße zu etwa 4 μm (Gauß-Fit, FWHM), was deutlich über den Erwartungen liegt.

Weder die nicht besonders hohe Monochromasie, noch eine unzureichend kohärente Beleuchtung kommen als Erklärung für die relativ großen Fokusdurchmesser in Frage. So konnten schon im Fall der Fokussierung nicht monochromatisierter Harmonischer kleinere Fokusse nachgewiesen werden [96]. Auch kann aufgrund der Resultate der Doppelspaltversuche von einem Kohärenzgrad der Beleuchtung ausgegangen werden, der deutlich kleinere Fokusdurchmesser ermöglichen sollte. Die Ergebnisse der abbildenden Verfahren (vgl. Kap. 5.1) zeigen weiter, dass auch bei geringer Monochromasie deutlich bessere Abbildungseigenschaften der ZP erreicht werden können. Auch eine räumlich instabile Quelle würde bei der benutzten Abbildungsgeometrie nicht zu einer Vergrößerung des Fokus in der beobachteten Größenordnung führen. Die Ursache der relativ großen Fokusdurchmesser ist wahrscheinlich apparativer Natur und auf die Bildgebung im PEEM zurückzuführen. Es ist bekannt, dass diese sehr empfindlich auf Raumladungseffekte reagiert. Aus diesem Grund werden z.B. in höchstauflösenden Spektroskopie-Experimenten die Photonenflüsse so gewählt, dass im Mittel 0.1 Elektronen pro Ereignis bzw. Lichtpuls im PEEM detektiert werden [56]. Abschätzungen anhand der Photonenflüsse der Harmonischen, der Beugungseffizienz der Zonenplatte und der Konversionseffizienz der Photokathode ergeben, dass diese Zahl in den durchgeführten Experimenten eher bei 1 – 2 erzeugten Photoelektronen pro HH-Puls liegt und dies ein möglicher Grund für die schlechte erzielte Auflösung ist. Diese Problematik wird auch aus anderen Experimenten von PEEM in Verbindung mit harmonischer Strahlung berichtet [56] und wird möglicherweise durch die sehr kurzen XUV-Pulse verstärkt.

Sofern sich die Verwendung des PEEMs an der HH-Quelle abschließend als ungeeignet erweisen sollte, müssen alternative Verfahren zur direkten Bestimmung der Fokusgrößen herange-

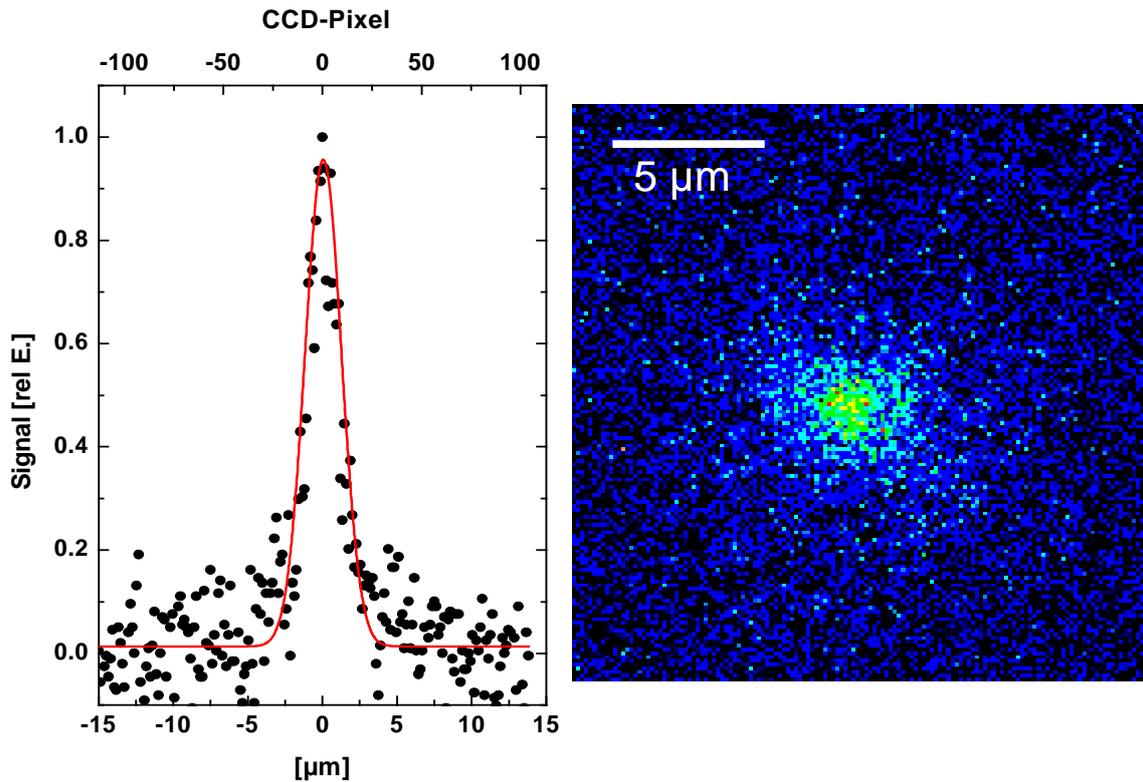


Abbildung 4.16: Kleinster mit dem PEEM zu detektierender Fokus in der Fokalebene der Zonenplatte (rechts) und Intensitätsverlauf in der vertikalen Ebene (links; CCD-Daten (Symbole) und eine daran angepasste Gauß-Funktion (Linie)). Die Halbwertsbreite beträgt $3.9 \mu\text{m}$.

zogen werden. Möglich wäre die Belichtung eines Photoresists mit dem fokussierten HH-Strahl und ein anschließendes Auslesen der entwickelten Probe mit einem Rasterkraftmikroskop. Problematisch hierbei sind jedoch die relativ hohen notwendigen Flüsse zur Belichtung des Resists und die fehlende Kontrollmöglichkeit hinsichtlich der Fokussierung im Experiment. Ein anderes Konzept basiert auf dem Einsatz einer Kombination aus zwei Zonenplatten, von denen die erste den HH-Strahl fokussiert und die zweite den Fokus stark vergrößert auf eine XUV-CCD abbildet. Neben der direkten Messung der Fokusgröße kann dieses Experiment zur Bestimmung der räumlichen Kohärenz dienen, indem die Messung für verschiedene Abstände zur Quelle wiederholt wird. Die Abhängigkeit der Fokusgröße vom Quellabstand gibt Aufschluß über den Grad der räumlichen Kohärenz der Beleuchtung der ersten ZP.

Das grundlegende Ziel, aus der kombinierten Messung von Fokusgröße und Photonenzahl eine Bestimmung der erzielbaren XUV-Intensitäten zu ermöglichen, konnte aufgrund der beschriebenen Probleme nicht erreicht werden. Die vorhandenen Daten lassen aber eine Abschätzung zu. Wegen Gleichung (4.4) ist die Verwendung einer ZP mit möglichst wenigen Zonen zur Fokussierung sinnvoll. Eine für diesen Zweck optimierte ZP mit z.B. 460 Zonen würde eine Puls-

verlängerung auf 10 fs bewirken und bei $\Delta r = 100$ nm einen Durchmesser von $185 \mu\text{m}$ haben. Bei einer mittleren Photonenzahl im Strahlprofil von 2×10^3 pro Puls hinter dem Monochromator (FWHM des Strahlprofils) und einer angenommenen Fokusgröße von 200 nm Durchmesser, die aufgrund der erzielten Auflösungen in der Mikroskopie realistisch erscheint, ergibt dies eine Intensität von 1×10^9 W/cm² bei 12.8 nm. Dies gilt unter der Annahme einer Beugungseffizienz der ZP von 10% in der ersten Beugungsordnung und einer Nutzung aller vorhandenen Photonen. Da Größe, Auflösungsvermögen und Zonenzahl der ZP nicht unabhängig voneinander gewählt werden können, muß ein Kompromiß zwischen diesen Parametern gefunden werden. XUV-Pulsdauer und Fokusgröße werden wesentlich von der ZP bestimmt, so dass diese Größen die Grundlage der Optimierung sein sollten. Die damit festgelegte Größe der ZP von einigen $100 \mu\text{m}$ kann durch den Einsatz eines sphärischen Multilayers zur Kollimierung des HH-Strahls kompensiert werden.

Um einen nichtlinearen Prozess wie z.B. 2-Photonen-Absorption mit ausreichend hoher Wahrscheinlichkeit zum Erreichen der Nachweisgrenze anzuregen, wird von notwendigen Intensitäten im Bereich von 10^{13} W/cm² ausgegangen [97]. Die Wirkungsquerschnitte der 2-Photonen-Absorption werden dabei aus denen der 1-Photonen-Absorption berechnet [53]. Der anhand der experimentellen Daten abgeschätzte Wert ist somit etwa vier Größenordnungen zu gering. Unter Verwendung eines Toroidspiegels zur Fokussierung mehrerer Harmonischer der Ordnungen 19 – 27 ($42 - 30$ nm) konnten bereits höhere Intensitäten von etwa 10^{11} W/cm² erzielt werden. Begründet ist dies in der Verwendung mehrerer Harmonischer und den höheren Konversionseffizienzen bei Argon als Targetgas. Der erreichte Fokusdurchmesser wird mit $3 \mu\text{m}$ angegeben [120]. Die erzeugte Intensität ist auch in diesem Fall durch die verfügbare Photonenzahl begrenzt.

Zusammenfassend ist festzustellen, dass die grundlegende Limitierung eines Fokussierungsexperimentes zur Erzeugung hoher Intensitäten mit 13 nm-Strahlung nach aktuellem Entwicklungsstand der optischen Systeme und der HH-Quelle die relativ geringe Photonenzahl ist, die zur Fokussierung zur Verfügung steht. Um diese deutlich zu erhöhen, werden zwei Ansätze verfolgt. Dies ist zum einen die Steigerung der Pulsenergien der verwendeten Lasersysteme, zum anderen die Verbesserung der Konversionseffizienzen durch *quasi-phase-matching* Techniken, z.B. unter Verwendung von periodisch modulierten Hohlfasern [42].

5 Röntgenoptische Verfahren mit Hohe-Harmonische-Strahlung im XUV

Das generell gewachsene Interesse an brillanten Laborquellen für kurzwellige Strahlung beruht auf den vielfältigen Anwendungsmöglichkeiten, die sowohl durch technische als auch grundlagenorientierte Fragestellungen motiviert sind. Beide Aspekte haben die Notwendigkeit einer Instrumentierung gemein, für die es aufgrund der speziellen Eigenschaften des Spektralbereiches z.T. neuer Konzepte bedarf, um aus anderen Spektralbereichen bekannte Verfahren auf das XUV zu übertragen. Entwicklung und Anwendung von optischen Systemen für die Mikroskopie, Interferometrie und Spektroskopie an der HH-Quelle werden im folgenden Kapitel dargestellt. Dabei steht die Nutzung der besonderen Eigenschaften der Strahlung, insbesondere Kohärenzeigenschaften und Zeitstruktur der XUV-Pulse, im Vordergrund. Bevor diese jedoch in VIS-Anregungs-XUV-Abfrage-Experimenten (Pump-Probe-Experimenten) zugänglich sind, müssen als erster Schritt die statischen Verfahren etabliert werden.

5.1 Mikroskopie

Abbildende Verfahren mit hoher räumlicher Auflösung sind aus dem Bereich weicher Röntgenstrahlung und auch kürzerer Wellenlängen bekannt. Speziell im Bereich des Wasserfensters, dem Spektralbereich zwischen den K-Absorptionskanten von Sauerstoff und Kohlenstoff, weisen biologische Objekte in wässriger Umgebung einen natürlichen Kontrast auf. So liegen die hauptsächlichlichen Anwendungsgebiete der Röntgenmikroskopie im Bereich der Biologie oder Kolloidforschung, aber auch Untersuchungen an magnetischen Domänen mit polarisiertem Röntgenlicht werden erfolgreich durchgeführt [1]. Die Größe des Imaginärteils der komplexen Brechzahl β erlaubt zwar Absorptionskontrastverfahren, Kontrastmechanismen, die auf der Phasenschiebung in Materie basieren, sind jedoch vorteilhaft. Konsequenterweise wurden so Verfahren wie Phasenkontrast nach *Zernike* [94] oder differentieller Interferenzkontrast [125] auf den Röntgenbereich übertragen. Insbesondere für Mikroskopie bei kürzeren Wellenlängen ($\lambda < 1$ nm) sind diese Techniken aufgrund des steigenden Verhältnisses von δ und β erfolgreich.

Die meisten Röntgenmikroskope werden an Elektronenspeicherringen der 3. Generation betrieben, die mit Undulatoren hochbrillante Quellen im XUV und weichen Röntgenbereich darstellen. Die optischen Systeme der Mikroskope bestehen in der Regel aus Zonenplatten,

die als Kondensator und hochauflösendes Objektiv eingesetzt werden. Im Gegensatz zu VIS-Mikroskopen, die häufig die *Köhlersche* Beleuchtung zur homogenen Ausleuchtung der Objektebene benutzen, können Röntgenmikroskope nur in kritischer Beleuchtung betrieben werden, d.h. die Quelle wird vom Kondensator direkt in die Objektebene abgebildet.

In Verbindung mit hochauflösenden Monochromatoren kann die hohe räumliche Auflösung mit spektroskopischer Information verbunden werden, die sogenannte Spektromikroskopie erlaubt so elementspezifische Untersuchungen mit hoher Sensitivität. Zu diesem Zweck werden meistens Rastermikroskope eingesetzt, die im Gegensatz zu den direkt abbildenden Mikroskopen zwar eine höhere Anforderung an die räumliche Kohärenz der Beleuchtung stellen, aber mit nur einer Zonenplattenoptik auskommen [50]. Röntgenmikroskopische Techniken werden heutzutage auch an Laborquellen angewendet. Im Wasserfenster können Labormikroskope z.B. mit Linienstrahlung hochionisierter, leichter Atome aus laserinduzierten Plasmen betrieben werden. Bei moderaten Belichtungszeiten im Bereich weniger Minuten sind mit einer Kombination aus Multilayerspiegel (Kondensator) und Mikrozonplatte (Objektiv) mittlerweile Auflösungen von bis zu 50 nm demonstriert worden [10, 51].

Die bisherige Entwicklung hat es nur sehr eingeschränkt ermöglicht, auf mikroskopischer Ebene mit abbildenden Verfahren auch dynamisch Prozesse verfolgen zu können, also eine hohe räumliche mit einer hohen zeitlichen Auflösung zu verknüpfen. Dies liegt u.a. an den Zeitstrukturen der zur Verfügung stehenden Quellen, wie in Abschnitt 2.2 ausgeführt ist. Bisher durchgeführte Untersuchungen beschränken sich auf dynamische Prozesse auf eher langen Zeitskalen wie z.B. der Elektromigration [95]. Der Betrieb eines XUV- bzw. Röntgenmikroskopes mit HH-Strahlung bietet hier durch deren Zeitstruktur grundsätzlich die Voraussetzungen für die Kombination einer moderaten räumlichen Auflösung bei gleichzeitig hoher Zeitauflösung. Die untere Grenze der erreichbaren Zeitauflösung ist hierbei durch die Pulsdauer der HH-Pulse gegeben. Der Einsatz diffraktiver Optiken zur Abbildung führt jedoch zu einer Pulsverlängerung (vgl. Kap. 4.5), die allerdings bei geeigneter Wahl der verwendeten Optik beschränkt werden kann.

Die an HHG-Quellen aktuell verfügbaren Photonenflüsse für Wellenlängen von bis zu etwa 13 nm erscheinen ausreichend hoch, um ein derartiges Mikroskop zu betreiben. Die Entwicklung und der Betrieb eines hochauflösenden röntgenmikroskopischen Aufbaus an der HH-Beamline wird in den folgenden Abschnitten beschrieben. Das System wurde im statischen Fall betrieben, eine Erweiterung auf zeitaufgelöste Messungen ist möglich.

5.1.1 Vergrößerte Abbildung mit Zonenplatten

Als erster Schritt zur Realisierung eines mikroskopischen Aufbaus wurde die prinzipielle Eignung der Harmonischen-Quelle für abbildende Verfahren mit einer einstufigen, vergrößerten Abbildung eines Testobjektes geprüft.

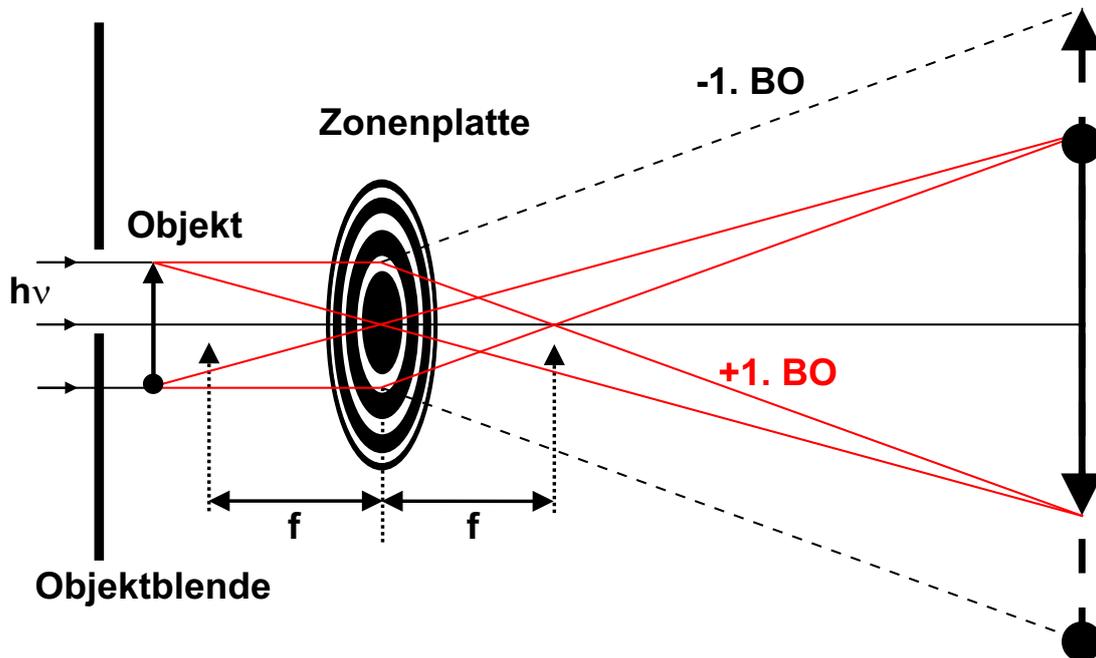


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung der Bildentstehung bei Abbildung mit der schwach divergenten HH-Strahlung und kleinen Optikaperturen. Im Bildfeld ist neben der gewünschten +1. BO das defokussierte Bild der -1. BO zu erkennen.

Experiment

Der Basisaufbau des Experimentes entspricht dem in Abschnitt 4.1.2 beschriebenen. Im Anschluss an den mit planen Multilayern betriebenen Monochromator wird eine Experimentierkammer zur Aufnahme von Objekt und Optik eingesetzt. Der monochromatisierte HH-Strahl beleuchtet das Objekt direkt, die abbildende Optik ist eine an die Beleuchtungsbedingungen angepasste Zonenplatte. Das Design der Zonenplatte ist an Randbedingungen geknüpft, die Gleichung (3.12) vorgibt. Für eine Zonenplatte, die einen großen Teil des HH-Strahls auffängt, ergibt sich bei einer Brennweite von einigen mm eine sehr große Anzahl an Zonen mit entsprechenden Monochromasieanforderungen, so dass ein Kompromiss zwischen diesen beiden Größen eingegangen werden muss. Die Parameter der auf einer 200 nm Silizium-Folie gebauten Phasenzonenplatte aus einem Kunststoff sind $2r = 1$ mm, $\Delta r = 130$ nm und $N_{ZP} = 1923$ ¹. Bei der vom Monochromator selektierten Wellenlänge von 12.8 nm entspricht dies einer Brennweite von $f_{ZP} = 10.13$ mm.

¹Alle der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Zonenplatten wurden am Institut für Röntgenphysik, Universität Göttingen, hergestellt.

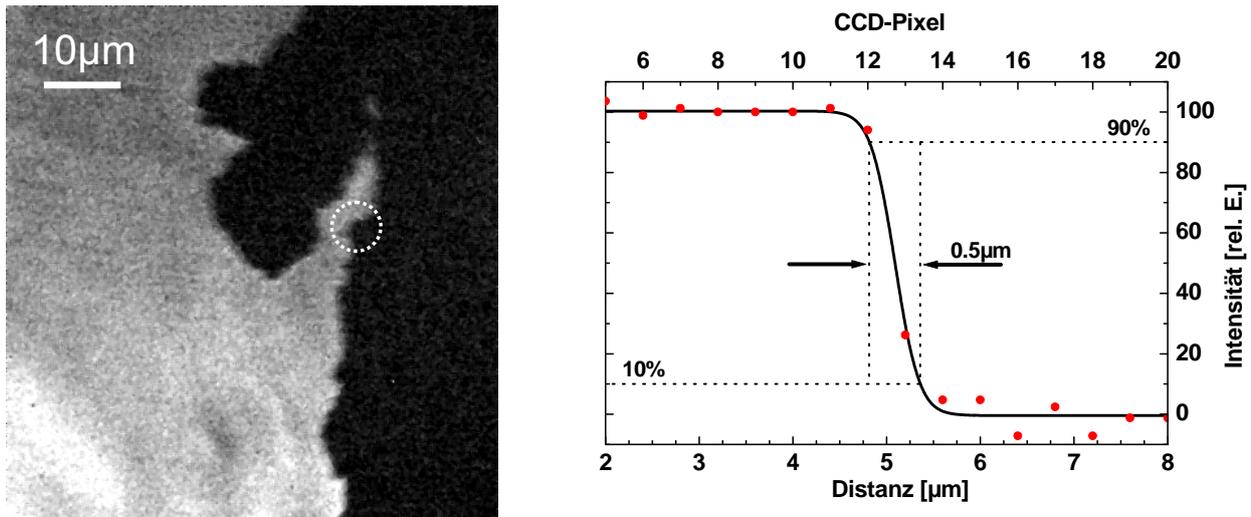


Abbildung 5.2: Röntgenmikroskopisches Bild des Glimmerpräparates (links) und Intensitätsverlauf (rechts) am markierten Objektdetail (Symbole: Daten, Linie: angepasste Funktion). Die Auflösung im Bild ist durch die Größe der CCD-Pixel beschränkt.

Objektebene und Zonenplatte befinden sich etwa 2000 mm von der Quelle entfernt, so dass trotz des relativ großen Zonenplattendurchmessers nur ein Teil des zur Verfügung stehenden Lichtes genutzt werden kann. Als Objekt wurde ein Glimmerpräparat gewählt, da Glimmer in sehr scharfen Kanten bricht, die in der Abbildung zum Test der Auflösung dienen können. Der Abstand von Objekt zu Zonenplatte ist bei starker Vergrößerung geringfügig größer als deren Brennweite, der Abstand zur CCD beträgt 590 mm. Daraus folgt eine Vergrößerung von $M \approx 58$. In diesem Fall entspricht ein Pixel der CCD im Bildfeld $0.41 \mu\text{m}$, nach dem Nyquist-Theorem [41] kann so eine Auflösung von $\approx 0.8 \mu\text{m}$ abgeschätzt werden.

Aufgrund der sehr kleinen numerischen Aperturen der eingesetzten Optiken und den Eigenschaften des HH-Strahls kommt es bei der Abbildung zu Überlagerungen von den in den verschiedenen BO erzeugten Bildern, wie in Abbildung 5.1 skizziert ist. Neben dem gewünschten Bild der +1. BO, erscheint im Bildfeld aufgrund der kleinen Apertur der Optik auch das in der -1. Ordnung erzeugte, aufrechte Bild des Objektes. Dieses ist defokussiert, da in der -1. BO die Abbildungsgleichung nicht erfüllt ist. Aufgrund des hohen Grades an räumlicher Kohärenz der Beleuchtung erscheint der vergrößerte Schattenwurf des Objektes aber vergleichsweise scharf im Bildfeld. Um die Überlagerung der beiden Beugungsordnungen zu vermeiden, kann vor der Objektebene eine Blende in den Strahlengang gebracht werden, die die Beleuchtung auf eine Objekthälfte einschränkt. Das Bildfeld ist so auch um die Hälfte reduziert, die verschiedenen BO sind in der Bildebene jedoch voneinander getrennt. Ein mit diesem modifizierten Aufbau aufgenommenes Bild des Glimmerpräparates ist in Abbildung 5.2 gezeigt. Das Bild ist aus fünf Einzelbelichtungen von jeweils drei Minuten zusammengesetzt, die Gesamtbelichtungszeit beträgt 15 Minuten. Der rechte Teil der Abbildung zeigt den Intensitätsverlauf entlang des markierten Objektdetails im Bild. Die an die experimentellen Daten (Symbole) angepasste Kurve zeigt einen Intensitätsabfall von 90% auf 10% innerhalb von $0.5 \mu\text{m}$.

Diskussion

Trotz der nicht optimierten Ausleuchtung der Objektebene und der Optik konnte mit dem einfachen optischen Aufbau das Abbildungsexperiment mit HH-Strahlung durchgeführt werden. Die erreichte Auflösung ist begrenzt durch die CCD-Pixelgröße und beträgt etwa $0.8 \mu\text{m}$, die an die experimentellen Daten angepasste Funktion liefert einen noch etwas günstigeren Wert. Die deutlich unter den Monochromasieanforderungen der Zonenplatte liegende Bandbreite der monochromatisierten HH-Strahlung hat keine Auswirkungen auf das Resultat der Abbildung, da die geometrische Begrenzung der Auflösung durch den Detektor weit über der Beugungsgrenze der Zonenplatte im Fall kohärenter Beleuchtung von $\delta_{ZP} = 1.64 \Delta r \approx 213 \text{ nm}$ liegt.

5.1.2 XUV-Mikroskopie

Der optische Aufbau eines Mikroskopes beinhaltet neben dem abbildenden Objektiv einen Kondensator, der die Objektebene möglichst homogen ausleuchtet. Der im vorangegangenen Abschnitt beschriebene Aufbau wurde dementsprechend um einen Kondensator erweitert. Für den Betrieb an der HH-Quelle bietet sich dazu die Verwendung eines sphärischen Multilayer-Spiegels an, der an Stelle des zweiten planen Spiegels in den Monochromator eingesetzt wird. Damit können zwei Funktionen in einer Optik integriert werden. Der erweiterte Aufbau des HH-Mikroskopes ist in Abbildung 5.3 schematisch dargestellt.

Experiment

Das XUV-Mikroskop arbeitet in kritischer Beleuchtung mit dem sphärischen Multilayer als Kondensator, dieser erzeugt ein Bild der Quelle in der der Geometrie des Aufbaus entsprechenden Bildebene. Bei nicht-senkrechten Einfall unterscheiden sich die Brennweiten des sphärischen Spiegels für die beiden Ebenen orthogonal zur optischen Achse:

$$f_m = \frac{R}{2} \cos \alpha \qquad f_s = \frac{R}{2 \cos \alpha} \qquad (5.1)$$

f_m steht dabei für die Brennweite der meridionalen Ebene, f_s für die der sagittalen Ebene, der Einfallswinkel ist auf die Substratnormale bezogen. Diese Brennweitendifferenz führt zu Astigmatismus in der Abbildung. Raytracing-Rechnungen der Abbildungseigenschaften des sphärischen Multilayers ergeben für die gegebene Abbildungsgeometrie ein nahezu beugungsbegrenztes Bild in der jeweiligen fokussierten Ebene von etwa $7 \mu\text{m}$. Die Fokalebene der beiden Achsen liegen aufgrund des eingeführten Astigmatismus hintereinander auf der optischen Achse, ein Einfluss auf den Kohärenzgrad der Beleuchtung der Objektebene ist aber nicht zu erwarten.

Die Bildgröße im Fokus ist deutlich kleiner als eine sinnvolle Größe der Objektebene, so dass sich diese nicht direkt im Fokus, sondern im bereits wieder divergierenden Strahl befinden

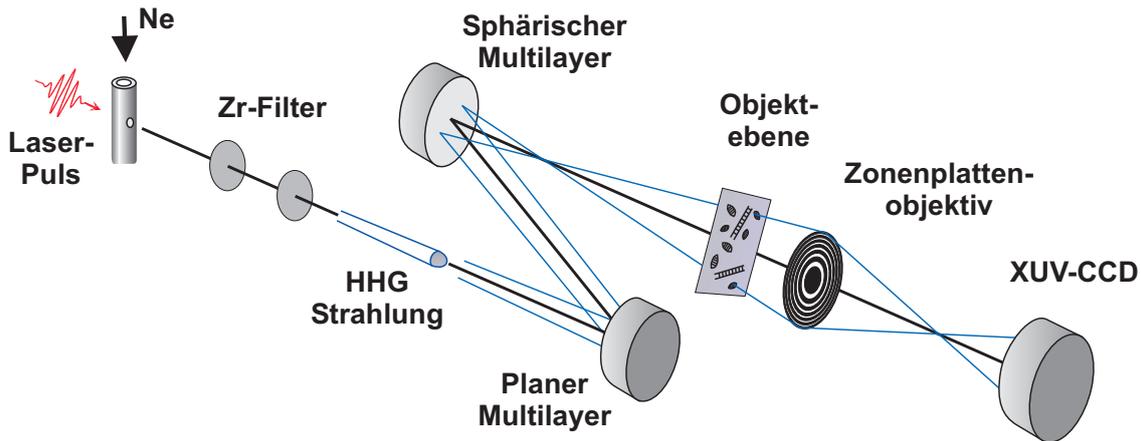


Abbildung 5.3: Aufbau des XUV-Mikroskops an der HH-Quelle. Der monochromatisierte HH-Strahl wird über den zweiten Multilayer kollimiert und dient als Kondensator zur Ausleuchtung der Objektebene, als Objektiv wird eine Mikrozonenplatte verwendet, die ein vergrößertes Bild der Objektebene auf der XUV-CCD erzeugt.

sollte. Die genaue Lage der Objektebene wurde nach der Charakterisierung des sphärischen Spiegels und dessen Fokussiereigenschaften so gewählt, dass der Durchmesser des HH-Strahls an den Durchmesser der benutzten Zonenplatte angepasst war (vgl. Kap. 3.2.4). Diese Anforderung ergab einen Abstand zwischen Kondensator und Zonenplatte von etwa 930 mm bei einem HH-Strahldurchmesser von $290 \mu\text{m} \times 770 \mu\text{m}$ in der Zonenplattenebene.

Um moderate Abstände zwischen Zonenplatte und Detektor bei trotzdem hoher Vergrößerung realisieren zu können, ist die Verwendung einer optimierten Zonenplatte als Objektiv notwendig. Weiter ist eine Anpassung an die Monochromasiebedingungen des Monochromators wünschenswert. Von den im Rahmen dieser Arbeit entworfenen und angefertigten Zonenplatten erfüllt diese Bedingungen am besten die eingesetzte Optik mit $2r = 260 \mu\text{m}$ und $\Delta r = 100 \text{ nm}$ bei $N_{\text{ZP}} = 650$. Die auf eine 200 nm dicke Silizium-Folie gebaute Phasenzonenplatte hat bei der vom Monochromator selektierten Zentralwellenlänge von 13.6 nm eine Brennweite von $f_{\text{ZP}} = 1.9 \text{ mm}$. Als Testobjekte für den Mikroskopbetrieb wurden Diatomeen verwendet. Bei ihnen handelt es sich um kieselsäurehaltige Algen, deren versteinerte Form in urzeitgeschichtlichen Sedimenten zu finden ist. Die Algen besitzen eine Art Zellskelett, das sehr regelmäßige Strukturen haben kann und sich dementsprechend für Auflösungsstests eignet. Zur Vermeidung weiterer Absorption wurden die Diatomeen auf eine 60 nm dicke Si-Folie präpariert.

Die Erhöhung des Flusses in der Objektebene durch die Verwendung des Spiegelpaares mit fokussierendem Multilayer beträgt nach den Abmessungen des fokussierten Strahls etwa einen Faktor 50. Dies kann gegenüber dem in Kap. 5.1.1 beschriebenen Aufbau zur Reduzierung der Belichtungszeit bzw. Verbesserung des Signal-Rausch-Verhältnisses (SNR) eingesetzt werden. Alternativ sind bei gleichbleibendem SNR stärkere Vergrößerungen des Mikroskops möglich.

In Abbildung 5.4 sind bei Vergrößerungen von $M = 183$ bzw. $M = 315$ aufgenommene Bilder

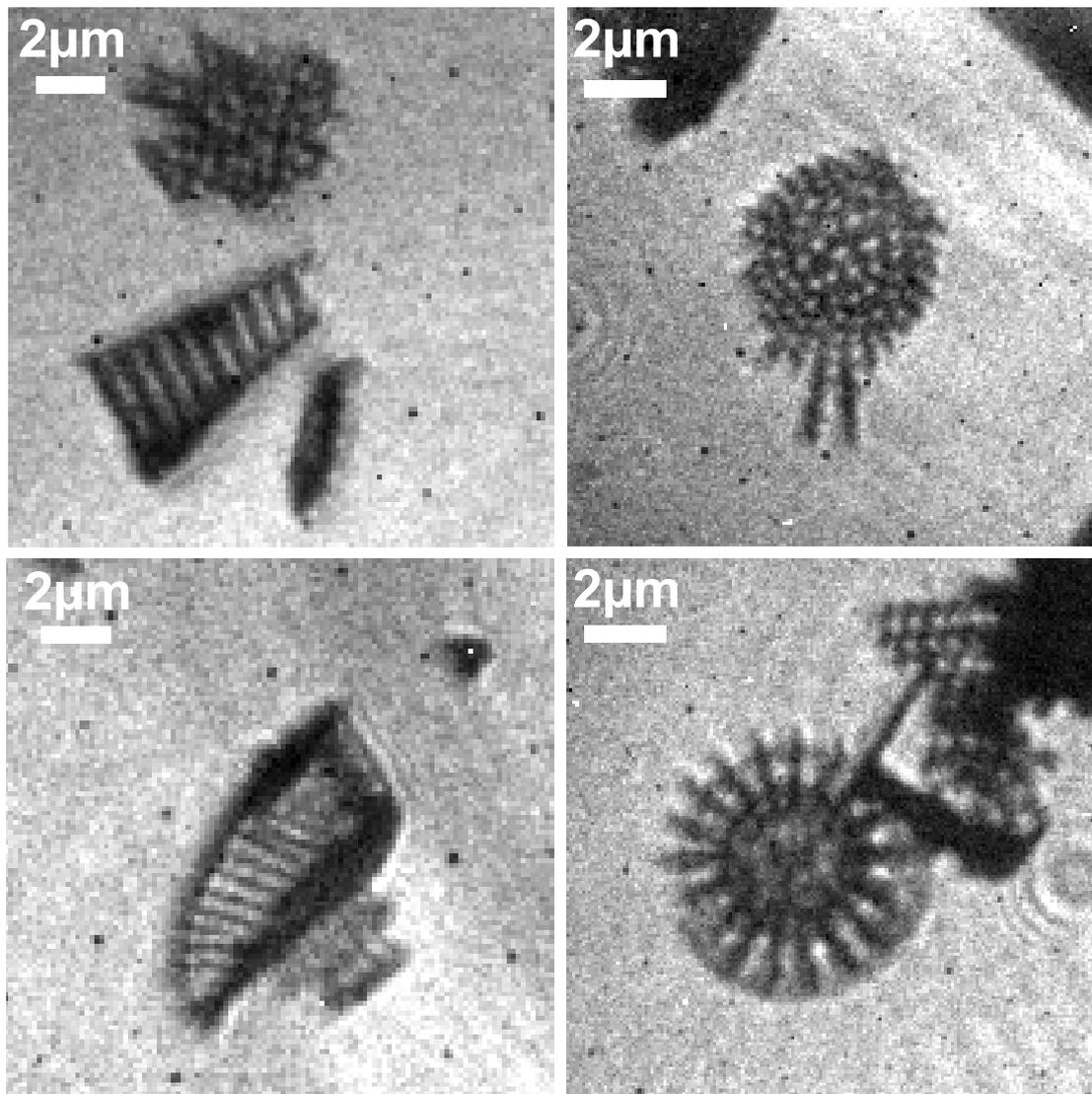


Abbildung 5.4: Mikroskopbilder der Diatomeen aufgenommen bei 13.6 nm Wellenlänge an der HH-Beamline für Vergrößerungen $M = 183$ (links) und $M = 315$ (rechts).

verschiedener Diatomeen gezeigt, die Belichtungsdauer betrug jeweils 240 s. Die Vergrößerung ergibt sich aus dem Abstand ZP-Detektor, der 348 mm (599 mm) betrug. In der Detektorebene entspricht ein Pixel einer Länge von 131 nm (76 nm). Der inhomogene Hintergrund im Bildfeld resultiert aus dem hohen Grad räumlicher Kohärenz der Beleuchtung, die einen relativ scharfen Schattenwurf der Zonenplatte erzeugt, so dass die variierende Beugungseffizienz oder Defekte der ZP im Bildfeld sichtbar werden. Die zum Teil erkennbaren dunklen Punkte beruhen auf defekten Pixeln der CCD. Abbildung 5.5 zeigt eine weitere Diatomee mit einer periodischen Substruktur bei einer Vergrößerung von $M = 315$. Das markierte Objektdetail dient der Quantifizierung der Auflösung.

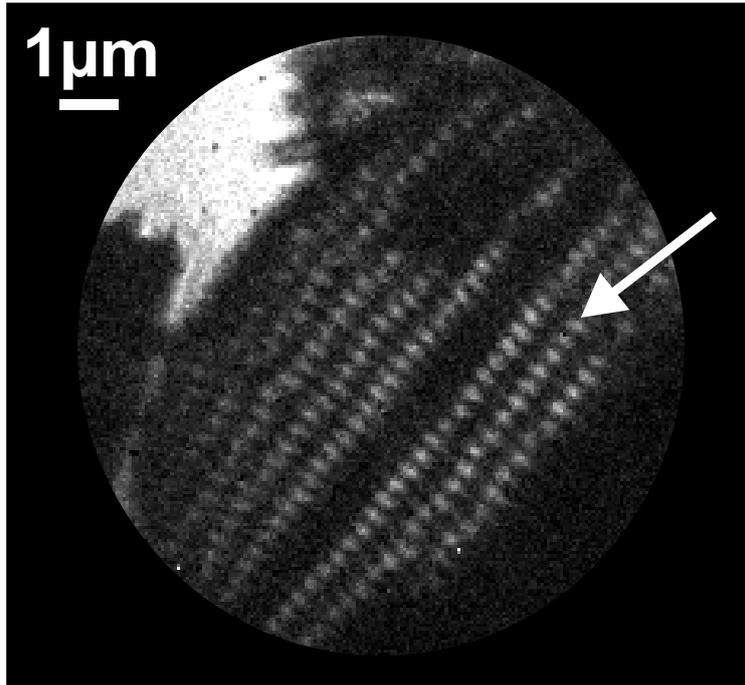


Abbildung 5.5: Bild einer Diatomee ($M = 315$) mit einer periodischen Substruktur, die zur Bestimmung der Auflösung des optischen Systems benutzt wurde. Die Periodizität der Struktur beträgt 380 nm.

5.1.3 Diskussion

Mit der Erweiterung um den Kondensator konnte der mikroskopische Aufbau deutlich verbessert werden. Dies äußert sich in reduzierten Belichtungszeiten bei gleichzeitig höherer Auflösung in den mikroskopischen Bildern. Abbildung 5.6 zeigt den Intensitätsverlauf der in Abbildung 5.5 markierten Struktur. Deren Periodizität beträgt etwa 380 nm, der Abfall bzw. Anstieg des Signals an den Kanten der Strukturen erfolgt z.T. innerhalb von zwei CCD-Pixeln. Dies zeigt, dass auch im optimierten Aufbau die geometrische Begrenzung der CCD gegenüber der Beugungsgrenze der Optik dominiert. Bei der Vergrößerung von $M = 315$ entsprechen zwei Pixel etwa 160 nm Distanz in der Detektorebene, die beugungsbegrenzte Auflösung der Zonenplatte beträgt nach Gleichung (3.16) je nach Kohärenzgrad der Beleuchtung zwischen $\delta_{ZP} = 122 - 164$ nm.

Aus dem Vergleich der Strahldurchmesser für verschiedene Abstände des Detektors zum sphärischen Spiegel kann der Abstand vom Fokus zur Objektebene zu etwa $l = 110$ mm bestimmt werden. Mit einer angenommenen Fokusgröße von $q_s = 7 \mu\text{m}$ folgt nach Gleichung (2.16) ein kohärent beleuchtetes Gebietes von

$$d \approx \frac{0.16 \lambda 2l}{q_s} = 68 \mu\text{m}.$$

Bezogen auf die Dimension der abgebildeten Objekte von wenigen μm wird die Objektebene somit räumlich kohärent beleuchtet, und es kann von $\delta_{ZP} = 164$ nm ausgegangen werden. Die

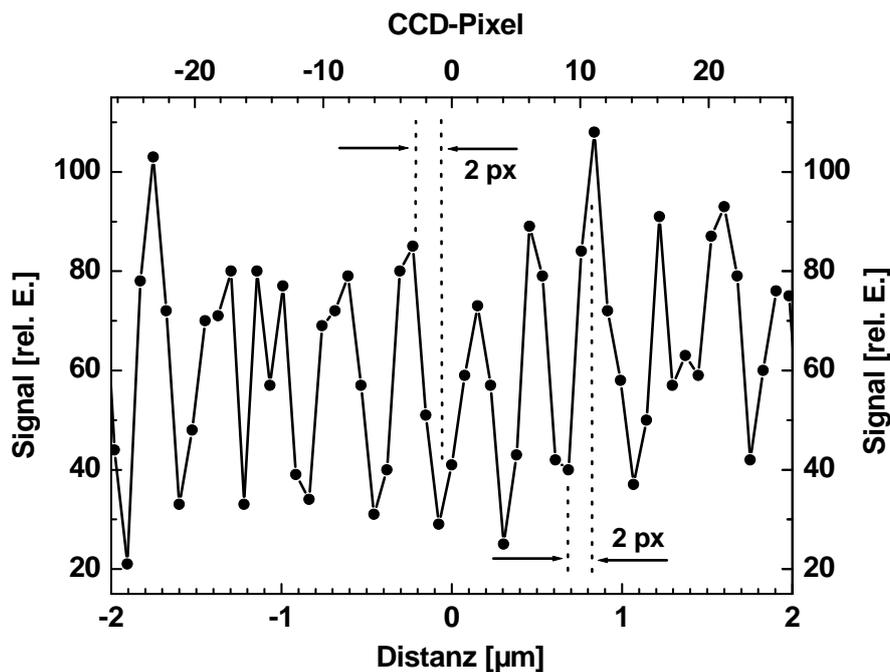


Abbildung 5.6: Intensitätsverlauf entlang der periodischen Struktur der in Abbildung 5.5 gezeigten Diatomee (unprozessierte CCD-Daten). Der Anstieg bzw. Abfall der Intensität erfolgt z.T. innerhalb von zwei CCD-Pixeln, was Strukturen von etwa 160 nm entspricht.

Monochromasie der verwendeten Strahlung von $\lambda/\Delta\lambda = 34$ liegt etwa eine Größenordnung unter den Anforderungen der Zonenplatte mit $N_{ZP} = 650$. Die Beugungsgrenze der Optik im Sinne des *Rayleigh*-Kriteriums wird aus diesem Grund nicht erreicht, da die relativ schlechte Monochromasie Einbußen bei den Abbildungseigenschaften zur Folge hat (vgl. Kap 3.2.3). Zur exakten Bestimmung der Auflösungsgrenze bzw. der Übertragungsfunktion (MTF) des optischen Aufbaus bedarf es geeigneterer Testobjekte, die im Rahmen dieser Arbeit nicht zur Verfügung standen. Ein Betrieb des Mikroskops bei stärkeren Vergrößerungen zur Überwindung der geometrischen Limitierung der CCD wäre zur Klärung dieser Fragestellung ebenso notwendig.

In den röntgenmikroskopischen Bildern sind an den Objektkanten teilweise Schatten sichtbar. Diese können durch Beugungserscheinungen aufgrund der kohärenten Beleuchtung verursacht werden. Auch kann es sich um defokussierte Bilder der Objekte anderer Wellenlängen handeln, die wegen der relativ großen Bandbreite der verwendeten Strahlung zur Bildgebung beitragen.

Der in diesem Kapitel beschriebene Mikroskopaufbau kann um die Zeitauflösung erweitert werden, die die HH-Quelle bietet. Eine dazu notwendige Voraussetzung ist die Implementierung einer Pump-Probe-Einrichtung an der HH-Beamline, die die Anregung des Probensystems mit einem Pumpuls unter definierten Bedingungen erlaubt. Besonders muss dabei die exakte Synchronisation von VIS- und XUV-Puls gewährleistet sein, um eine Zeitauflösung von deutlich unter 100 fs zu erreichen. Der aktuelle Entwicklungsstand der HHG-Quellen erlaubt es nicht, ir-

reversible Prozesse zu untersuchen, da für eine Aufnahme die Integration über mehrere tausend Laserpulse nötig ist. Sofern das Experiment die reproduzierbare Anregung der Probe erlaubt, kann die Zeitstruktur der Harmonischen jedoch genutzt werden.

Insbesondere die Untersuchung von schnellen Phasenübergängen in Materie, die auf Änderungen der elektronischen Struktur beruhen, sind für die Untersuchung mit dem HH-Mikroskop interessant. Die HH-Pulsdauer erreicht Zeitskalen der Relaxationszeiten angeregter elektronischer Systeme und stellt somit eine Sonde zur zeitaufgelösten Messung von Veränderungen der elektronischen Strukturen dar. Außerdem sind die bei Innerschalenvorgängen relevanten Energien im Bereich vieler eV mit hohen Harmonischen direkt zugänglich. So liegen die L-Kanten leichter Elemente wie Si, Al oder P im untersuchten Spektralbereich, ebenso aber auch die M-Kanten schwererer Elemente wie Fe, Co oder Ni. Die spektrale Lage der ausgeprägten Absorptionskanten als auch deren Struktur wird wesentlich durch die mikroskopische Struktur der Materialien bestimmt. In der Nähe einer Absorptionskante können so z.B. zeitliche Änderungen in der Absorption orts aufgelöst gemessen und Aussagen über strukturelle Änderungen im Material gemacht werden. Bisher eingesetzte Verfahren basieren z.B. auf Röntgenbeugung und wurden erfolgreich zur Aufklärung von Strukturveränderungen kristalliner Substanzen bei Bestrahlung mit fs-Laserpulsen eingesetzt [72]. In Verbindung mit den ferromagnetischen 3d-Elementen erscheint prinzipiell auch die Untersuchung der Spindynamik dieser magnetischen Systeme möglich. Dazu könnte das zu untersuchende System mit dem Pumpimpuls über die Curie-Temperatur aufgeheizt werden und die anschließende Relaxation des Systems im Magnetfeld in z.B. einzelnen Domänen mit Harmonischen unterschiedlicher Polarisation beobachtet werden.

5.2 Interferometrie

Interferometrie basiert auf der Überlagerung (teil-)kohärenter Partialwellen und liefert Informationen über die relative Phasenlage der interferierenden Wellen. Interferometrische Techniken ermöglichen so die komplette Charakterisierung eines Lichtfeldes über die Bestimmung der Kohärenzfunktion. Darüber hinaus kann in vielfältiger Weise die Wechselwirkung von Materie mit Licht untersucht und damit Einblick in deren mikroskopische Struktur gewonnen werden.

Nicht nur aus diesen Gründen gibt es unterschiedliche Ansätze, die aus dem VIS bekannten interferometrischen Methoden auf den Bereich kürzerer Wellenlängen auszudehnen. Das bei interferometrischen Verfahren grundlegende Prinzip der Strahlteilung, das im VIS problemlos möglich ist, stellt im XUV ein wesentliches Problem dar, da konventionelle Strahlteiler praktisch nicht verfügbar sind. Erst vor kurzem konnte ein klassischer Strahlteiler auf Basis einer Multilayer-Beschichtung einer dünnen Membran mit ausreichender optischer Qualität hergestellt werden [28]. Neben der hohen Absorption in den eingesetzten Optiken sind die Anforderungen an deren Oberflächengüte aufgrund der deutlich kleineren Wellenlänge um ein Vielfaches höher. So kommen alternative Ansätze wie *Point-diffraction interferometry* ohne Verwendung von Optiken zur Vermessung von Wellenfronten [64] oder Strahlteilung mit *Fresnel*-Spiegeln im streifenden Einfall zum Einsatz [86].

Eine weitere Möglichkeit, das Problem der Strahlteilung zu überwinden, besteht in der Verwendung diffraktiver Optiken. Diese können als strahlteilende und rekombinierende optische Elemente eingesetzt werden, was in verschiedene Regionen des Röntgenspektrums mit z.B. Gitter- oder Shearing-Interferometern demonstriert ist [26, 43, 121]. Auf die Verwendung von Zonenplatten zu diesem Zweck wird im Folgenden näher eingegangen.

Die Anwendung interferometrischer Techniken ist prinzipiell sowohl an Laborquellen als auch an Elektronenspeicherringen möglich. Aufgrund ihrer hohen Photonendichten sind Ablenk- und Undulatoren interessant, Interferometrie an diesen Quellen erfordert jedoch häufig den Einsatz eines Raumfilters zur Erzeugung eines größeren Gebietes mit räumlich kohärenter Ausleuchtung [18], womit eine deutliche Reduzierung des Flusses verbunden ist. Aufgrund ihrer guten räumlichen Kohärenzeigenschaften erscheint die Verwendung von HH-Quellen trotz geringer Photonendichten vielversprechend, da bei angepasstem experimentellen Aufbau ein Großteil der vorhandenen Photonen genutzt werden kann. Darüber hinaus bietet sich auch hier die Verknüpfung interferometrischer Techniken mit der Pulsstruktur der Harmonischen an. Bisher sind neben theoretischen Arbeiten zu den Kohärenzeigenschaften der HH [91] interferometrische Messungen zur Bestimmung des Kohärenzgrades an niedrigeren Harmonischen demonstriert [63].

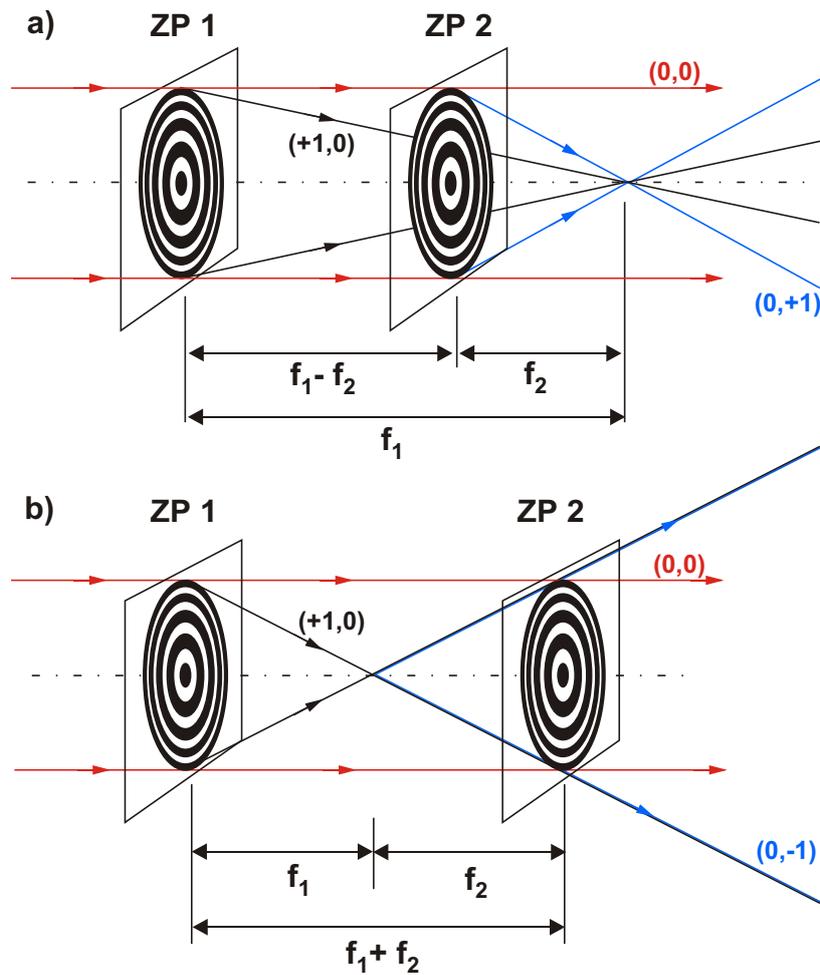


Abbildung 5.7: Mögliche Konfigurationen des Zonenplatteninterferometers: a) $f_1 - f_2$ -Aufbau und b) $f_1 + f_2$ -Aufbau. Die Interferogramme entstehen durch Überlagerung der Beugungsordnungen $(+1,+1)$ bzw. $(+1,-1)$, zur Vereinfachung sind alle höheren BO in der Abbildung nicht aufgeführt (nach [126]).

5.2.1 Zonenplatteninterferometer

Die prinzipielle Eignung von Zonenplatten als optische Komponenten zum Aufbau eines Interferometers sind aus dem VIS hinreichend bekannt [75, 106, 113]. Im Bereich kürzerer Wellenlängen wurden sie bis vor kurzem zu diesem Zweck jedoch kaum eingesetzt. Erst kürzlich demonstrierten *Wilhein et al.* ein funktionsfähiges Interferometer für 4 keV-Strahlung ($\lambda = 0.31$ nm) basierend auf Zonenplatten [126]. Das im Folgenden vorgestellte Interferometer aus zwei Zonenplatten funktioniert nach dem gleichen Prinzip. In Abbildung 5.7 sind mögliche Anordnungen zweier Zonenplatten mit Brennweiten f_1 und f_2 als Interferometer und dessen Funktionsweise schematisch dargestellt. Jede der ZP erzeugt aus einer einfallenden (ebenen) Welle eine Vielzahl sphärischer Wellen, die den Beugungsordnungen $\pm 1, \pm 2$, usw. entsprechen. Die korrespondierenden Quellpunkte liegen in der entsprechenden vorderen oder hinteren Brennebene der ZP.

Die 0. BO passiert die ZP unbeeinflusst. Durch die Superposition verschiedener BO der beiden ZP kommt es zur Interferenz und ein Interferenzmuster kann in der Detektorebene beobachtet werden. ZP1 dient somit als Strahlteiler, ZP2 zur Rekombination der Teilstrahlen. Prinzipiell ist die Überlagerung beliebiger BO zur Erzeugung der Interferenz möglich, aufgrund der höchsten Beugungseffizienz in den ± 1 . BO ist deren Nutzung sinnvoll. Aus den sich daraus ergebenden möglichen Kombinationen $(+1,-1)$, $(+1,+1)$ und $(-1,+1)$ ² sind insbesondere zwei Konfigurationen interessant: Der $f_1 - f_2$ -Aufbau unter Benutzung der BO $(+1,+1)$ (Abb. 5.7 a)) und der $f_1 + f_2$ -Aufbau mit den BO $(+1,-1)$ (Abb. 5.7 b)).

Das in der Detektorebene beobachtete Interferenzmuster entsteht durch die Überlagerung zweier sphärischer Wellen. Die relative Lage ihrer Quellpunkte zueinander bestimmt die Form des entstehenden Interferenzmusters. Ist das Interferometer axial justiert, entspricht der Abstand der ZP auf der optischen Achse also gerade $f_1 - f_2$ oder $f_1 + f_2$, besteht das Interferenzmuster aus näherungsweise parallelen Streifen, deren Breite und Orientierung durch die relative Lage der Quellpunkte zueinander bestimmt ist. Die Orte gleicher Phase, also konstruktiver bzw. destruktiver Interferenz, liegen genaugenommen auf einer Schar von Hyperboloiden mit Brennpunkten an den Orten der Quellpunkte, die in großer Entfernung in einer Schnittebene näherungsweise als parallele Streifen erscheinen. Für die Abstände benachbarter Streifen gilt dann

$$x \approx \frac{\lambda L}{l}, \quad (5.2)$$

hierbei ist l der Abstand der Quellpunkte in der Ebene senkrecht zur optischen Achse und L der Abstand dieser Ebene zum Detektor. Bei axialer Dejustierung erscheinen die Streifen zunächst gekrümmt und gehen bei größeren Abständen der Fokalebene in ein Zonenplattenmuster über. Gleichung (5.2) verdeutlicht die Anforderungen an den interferometrischen Aufbau hinsichtlich der Positioniermöglichkeiten der Zonenplatten. Bei zu großem Abstand der Quellpunkte der erzeugten sphärischen Wellen wird der Streifenabstand schnell kleiner als die Auflösungsgrenze des Detektors und das Interferenzmuster kann nicht mehr detektiert werden. Bei einem Abstand von $L = 400$ mm zum Detektor und $\lambda = 13$ nm ergibt sich für $l = 100$ μm ein Streifenabstand von $x = 52$ μm . Dieser Wert liegt bereits an der Grenze des CCD-Auflösungselementes von zwei Pixeln (48 μm).

Damit eine Überlagerung verschiedener BO zur Erzeugung eines Interferenzmusters führt, muss die Beleuchtung des Interferometers hinreichend kohärent sein, also die Anforderungen des interferometrischen Aufbaus hinsichtlich zeitlicher als auch räumlicher Kohärenz erfüllen. Für das Zonenplatteninterferometer (ZPI) bedeutet dies, dass

- i) die durch die ZP erzeugten optischen Wegdifferenzen kleiner sein müssen als die Kohärenzlänge l_{coh} der Strahlung, und

²Kurznotation der Kombinationen (Beugungsordnung ZP1, 0. BO ZP2) mit (0.BO ZP1, Beugungsordnung ZP2).

5 Röntgenoptische Verfahren mit Hohe-Harmonische-Strahlung im XUV

Tabelle 5.1: Aus den Zonenplattenparametern berechnete Anforderungen möglicher ZPI-Konfiguration an zeitliche und räumliche Kohärenz.

Aufbau	λ [nm]	f_1 [mm]	r_1 [mm]	f_2 [mm]	r_2 [mm]	Δs_{\max} [μm]	$\Delta \rho_{\max}$ [μm]
$f_1 - f_2$	12.8	12.15	0.5	10.12	0.5	2.4	100
$f_1 - f_2$	17.3	9.01	0.5	7.51	0.5	3.3	100
$f_1 + f_2$	12.8	10.12	0.5	10.12	0.5	24.7	1000
$f_1 + f_2$	12.8	12.15	0.5	12.15	0.5	20.6	1000

- ii) in der Ebene der ersten ZP die Größe des räumlich kohärent ausgeleuchteten Gebietes größer sein muss als die räumliche Trennung der Teilstrahlen, die in der Detektorebene interferieren.

Für beide Konfigurationen kann für das axial justierte Interferometer gezeigt werden, dass die den interferierenden Teilstrahlen aufgeprägte Wegdifferenz von der radialen Position ρ auf der ersten ZP abhängt [126]:

$$a) \quad \Delta s = \frac{\Delta f \cdot \rho^2}{2 \cdot f_2^2} \quad (5.3)$$

$$b) \quad \Delta s = \sqrt{\Delta f^2 + (2\rho)^2} - \Delta f \quad (5.4)$$

wobei $\Delta f = f_1 - f_2$ die Differenz der Brennweiten der Zonenplatten ist. Die räumliche Trennung in der Ebene der ersten ZP der interferierenden Teilstrahlen ergibt sich weiter zu:

$$a) \quad \Delta \rho = \frac{\Delta f \cdot \rho}{f_2} \quad (5.5)$$

$$b) \quad \Delta \rho = 2\rho \quad (5.6)$$

Die durch die Zonenplattenparameter bestimmte Geometrie des Aufbaus ergibt die Anforderungen an die Kohärenzeigenschaften der Strahlung, die zur Erzeugung eines ausreichenden Interferenzkontrastes im Bildfeld notwendig sind. Tabelle 5.1 enthält die anhand der Daten der vorhandenen ZP berechneten maximalen Werte für Δs und $\Delta \rho$ möglicher ZP-Kombinationen. Diese zeigen, dass hinsichtlich beider Kohärenzeigenschaften der $f_1 + f_2$ -Aufbau deutlich höhere Anforderungen stellt. Aus der spektralen Charakterisierung des Monochromators ist die Bandbreite der transmittierten Strahlung bekannt, sie beträgt bei $\lambda = 12.8$ nm $\Delta \lambda = 0.2$ nm im Fall der planen Multilayerspiegel, die mit dem Interferometer eingesetzt werden sollen. Nach Gleichung (2.14) lässt sich so eine maximale Kohärenzlänge von $l_{\text{coh}} \approx 450$ nm abschätzen. Dieser Wert liegt selbst im Fall des $f_1 - f_2$ -Aufbaus deutlich unter dem maximalen Gangunterschied der interferierenden Teilstrahlen. Als Konsequenz ergibt sich, dass, unter der Voraussetzung ausreichender räumlicher Kohärenz, nur für Teilstrahlen, die den inneren Teil der ZP passieren und so geringe Wegdifferenzen erfahren, Interferenzkontrast zu beobachten ist. Nach Gleichung (5.3)

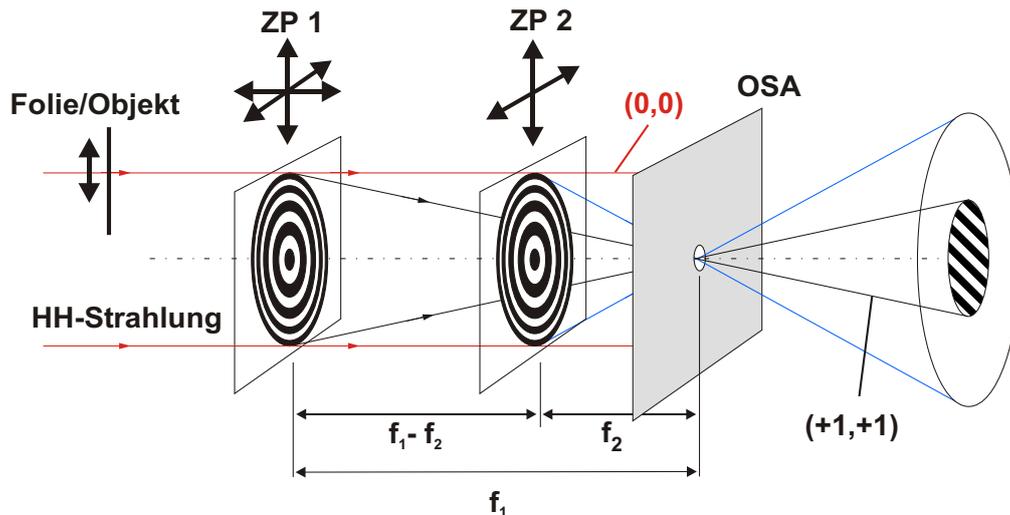


Abbildung 5.8: Realisierung des Zonenplatteninterferometers an der HH-Quelle. Der Betrieb erfolgt im $f_1 - f_2$ -Aufbau, zur Unterdrückung störender Beugungsordnungen im Bildfeld wird eine Apertur (OSA) nahe der hinteren Brennebene der zweiten ZP eingesetzt. Das Interferenzmuster entsteht im Überlappungsbereich der Kegel der jeweils +1. BO. Die Funktion der im Bild links angedeuteten Folie wird Abschnitt 5.2.2 näher erläutert.

ist für $\rho < 210 \mu\text{m}$ die Bedingung $\Delta s < 450 \text{ nm}$ erfüllt, das Interferenzmuster beschränkt sich also auf den inneren Teil des Beleuchtungskegels der +1. BO.

Aufgrund der geringeren Kohärenzanforderungen wurde für den Betrieb an der HH-Quelle der $f_1 - f_2$ -Aufbau für das Interferometer gewählt und, wie in Abbildung 5.8 schematisch gezeigt, realisiert. Zur Kontrastverbesserung und Unterdrückung unerwünschter BO im Bildfeld wurde der Aufbau um eine sogenannte *Order Sorting Aperture* (OSA) kurz hinter der Brennebene der ZP erweitert. Die von den ZP unbeeinflusste 0. BO wurde mit einem Mittenstop abgeblockt. Zur vollständigen Ausleuchtung des CCD-Chips durch die Beleuchtungskegel der +1. BO betrug der Abstand der ZP zum Detektor etwa 360 mm. Der gesamte Interferometeraufbau wurde hinter dem mit den planen Multilayern bestückten Monochromator an die HH-Beamline adaptiert. Der Abstand der ZP zum Target betrug etwa 1900 mm. Dies gewährleistet eine gleichmäßige Ausleuchtung des Interferometers durch den HH-Strahl. Beide ZP können in der Ebene senkrecht zur optischen Achse positioniert werden, ZP1 ist zusätzlich entlang der optischen Achse justierbar. Die Auflösung der schrittmotorgesteuerten Verstelleinheiten liegt bei etwa $1 \mu\text{m}$. Die Anforderung dieses Aufbaus an die Größe des räumlich kohärent bestrahlten Gebietes von $\Delta\rho = 100 \mu\text{m}$ wird vom HH-Strahl erfüllt.

Abbildung 5.9 zeigt mit dem beschriebenen Aufbau an der HH-Quelle bei einer Wellenlänge von 12.8 nm mit einer Belichtungszeit von 240 s aufgenommene Interferogramme für verschiedene Orientierungen der ZP zueinander. In a)-c) sind die ZP lateral dejustiert, die Quellpunkte der interferierenden sphärischen Wellen liegen nebeneinander in der Fokalebene und erzeugen ein Interferenzmuster aus Streifen. Bei zusätzlicher axialer Dejustierung von ZP1 ergibt sich ein

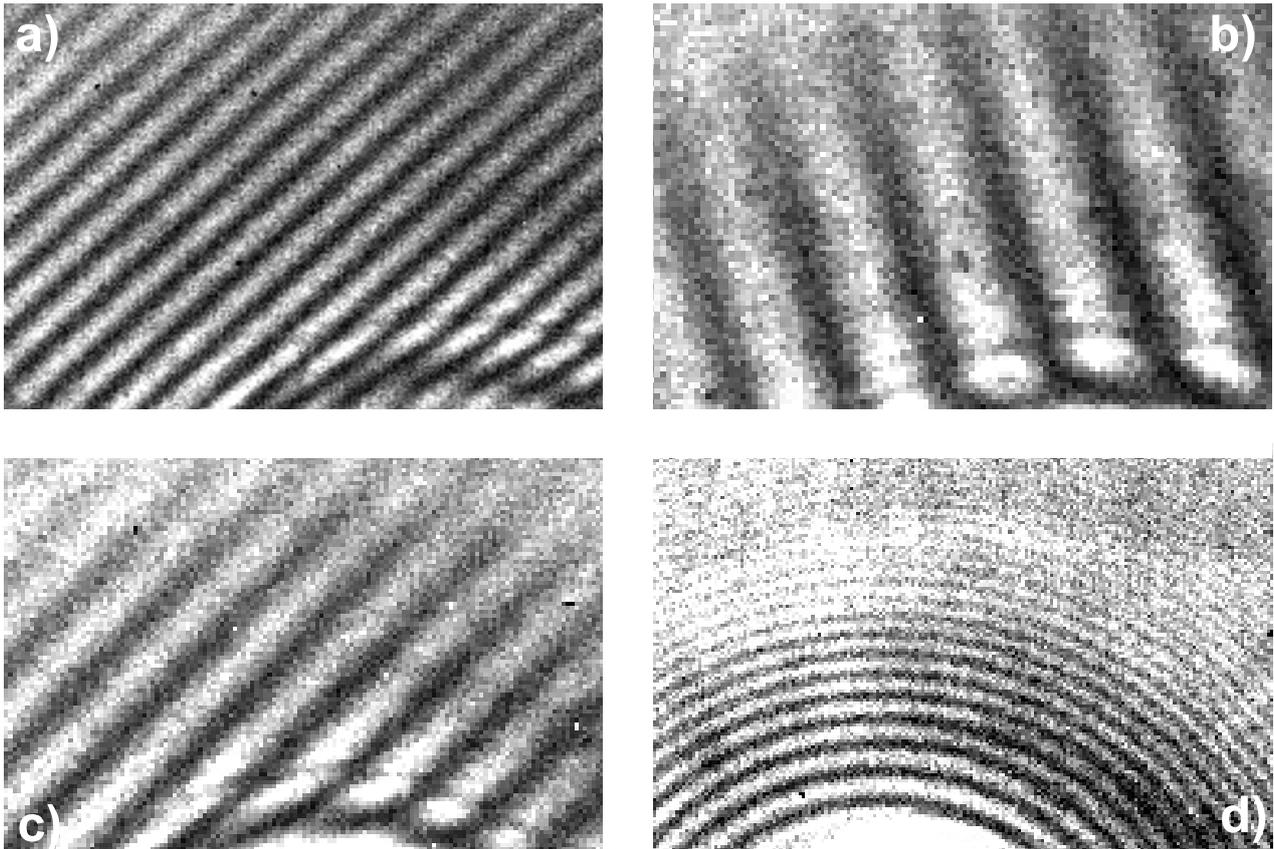


Abbildung 5.9: Ausschnitte verschiedener mit dem ZPI an der HH-Quelle aufgenommenen Interferogramme bei $\lambda = 12.8 \text{ nm}$ für verschiedene Orientierungen der ZP relativ zueinander. Bilder a)-c) mit lateralem Versatz, Bild d) axialer Versatz ZP1.

Zonenplattenmuster (d)). Der axiale Abstand der ZP betrug in diesem Fall etwa $\Delta f + 840 \mu\text{m}$. Der Kontrast in den Interferenzmustern ist ausreichend gut, wird jedoch durch Anteile anderer Beugungsordnungen und, wie in Kapitel 5.1 erläutert, durch Inhomogenitäten der ZP-Beugungseffizienz überlagert. Dies macht es prinzipiell schwierig, den Verlauf der Kontrastfunktion über einen weiten Bereich des Interferenzmusters zu bestimmen. Für präzise Messungen dieser Art bedürfte es einer *Flatfield*-Korrektur, die die Datensätze hinsichtlich der dem Interferenzmuster überlagerten Störsignale korrigiert, für die vorhandenen Daten allerdings nicht verfügbar ist. Weiter ist eine Verbesserung des SNR notwendig. Das Interferometer erweist sich als relativ unempfindlich gegenüber mechanischen Vibrationen, was die mehrere Minuten langen Belichtungszeiten ohne sichtbare Degradation der Interferenzmuster belegen. Dies ist u.a. durch den sehr kompakten Interferometeraufbau begünstigt. Ebenso scheinen mögliche Fluktuationen der Beleuchtung durch räumliche oder Intensitätsschwankungen des HH-Strahls keinen störenden Einfluss zu haben.

Da die Beleuchtung mit dem HH-Strahl die räumlichen Kohärenzanforderungen erfüllt, kann ein abnehmender Kontrast der Interferenzstreifen zur Bestimmung der Kohärenzlänge herangezogen werden. Abbildung 5.10 zeigt zwei zu diesem Zweck ausgewertete Detektorbilder, die

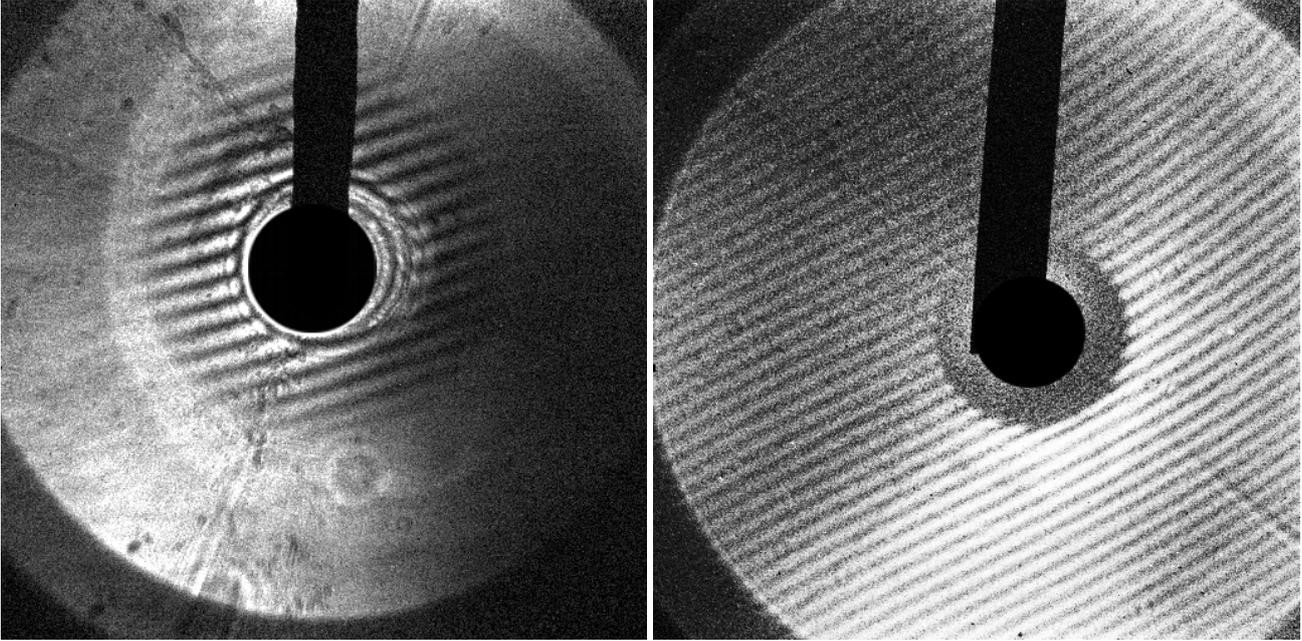


Abbildung 5.10: Vergleich des Einflusses der Kohärenzlänge auf das Interferenzmuster. Im Fall der Harmonischen mit $l_{\text{coh}} < \Delta s_{\text{max}}$ ist das Interferenzmuster auf den inneren Bereich des Beleuchtungskegels beschränkt (links). Bei einem mit 17 nm Strahlung aus einem laserinduzierten Plasma ($l_{\text{coh}} > 17 \mu\text{m} \gg \Delta s_{\text{max}}$) erzeugten Interferogramm ist keine Einschränkung erkennbar (rechts).

nahezu die gesamten Beleuchtungskegel der +1. BO enthalten. Der linke Teil der Abbildung enthält ein für den Fall der Beleuchtung mit HH-Strahlung detektiertes Interferogramm. Die erwartete Einschränkung des Interferenzmusters auf den inneren Bereich des Beleuchtungskegels ist deutlich zu erkennen. Der Beleuchtungskegel der +1. BO entspricht einer Projektion der ZP mit Durchmesser von 1 mm. Daraus kann die Größe des Bereiches bestimmt werden, innerhalb dessen das Interferenzmuster sichtbar ist. Der sich ergebende Durchmesser von etwa $440 \mu\text{m}$ entspricht nach Gleichung (5.3) einem Gangunterschied von $\Delta s = 480 \text{ nm}$, was gut mit der aus der Bandbreite bestimmten Kohärenzlänge von 450 nm übereinstimmt.

Zum Vergleich zeigt der rechte Teil der Abbildung ein mit Linienstrahlung aus einem laserinduzierten Plasma aufgenommenes Interferenzmuster. Die Strahlung bei 17.3 nm Wellenlänge wird von fünffach ionisierten O-Atomen des Plasmas emittiert. Die Beleuchtung mit ausreichender Kohärenzlänge erzeugt über das gesamte Bildfeld gleichmäßigen Interferenzkontrast. Die genaue Kohärenzlänge bzw. Monochromasie der Linienstrahlung ist experimentell bisher nicht bestimmt. Nimmt man eine durch Dopplerverbreiterung bestimmte Linienbreite $\Delta\lambda_D$ und eine Plasmatemperatur von 100 eV an, kann die resultierende Monochromasie bei 17.3 nm zu

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda_D} = \frac{1}{7.7 \cdot 10^{-5}} \sqrt{\frac{M [u]}{k_B T [eV]}} \approx 3673$$

abgeschätzt werden [49]. $k_B T$ ist dabei das der Plasmatemperatur entsprechende Energieäquivalent in eV und M die Ionenmasse in atomaren Masseinheiten u . Dieser Monochromasie

entspricht eine Kohärenzlänge von $l_{\text{coh}} = 31.7 \mu\text{m}$, die deutlich über $\Delta s_{\text{max}} = 3.3 \mu\text{m}$ des Interferometeraufbaus für 17.3 nm liegt. Aus dem Interferogramm bzw. des maximal erzeugten Gangunterschiedes kann weiter eine untere Grenze für die tatsächliche Linienbreite abgeschätzt werden, sie beträgt $\lambda/\Delta\lambda = 384$. Der generell schlechtere Kontrast im Fall des laserinduzierten Plasmas ist auf das schlechte SNR und eine möglicherweise nicht vollständig räumlich kohärente Beleuchtung durch das Plasma zurückzuführen.

5.2.2 Messungen der komplexen Brechzahl bei 100 eV

Das ZPI erlaubt nicht nur die Bestimmung der Kohärenzeigenschaften der verwendeten Strahlungsquelle, die Phasensensitivität ermöglicht darüber hinaus die direkte Bestimmung der komplexen Brechzahl $n = 1 - \delta - i\beta$ im Rahmen einer einzelnen Messung. Dazu wird das zu vermessende Material bzw. Objekt in den Strahlengang gebracht, wie in Abbildung 5.8 skizziert ist. Die ZP bilden das Objekt in die Detektorebene ab, das erzeugte Bild überlagert sich dem Interferenzmuster. Durch die Existenz zweier ZP kommt es zur Entstehung von zwei Bildern, ähnlich der Bildentstehung in VIS-Interferenzmikroskopen (z.B. Verfahren nach Jamin-Lebedeff [112]), die miteinander interferieren. Ein mit diesem Verfahren aufgenommenes Interferogramm mit einer 200 nm Zr-Folie im Strahlengang zeigt Abbildung 5.11. Die Folie ist im unteren Teil des Bildes anhand der Absorption zu erkennen. Im Gegensatz zu konventionellen Interferometern befindet sich das Objekt hier nicht in einem der Interferometerarme, sondern außerhalb des Interferometers. Dies führt dazu, dass im Interferenzmuster nur ein lokaler Brechzahlgradient sichtbar ist, also im betrachteten Fall an der Folienkante. Vor und hinter der Folienkante haben die Interferenzstreifen die gleiche Form und Orientierung. Interferierende Teilstrahlen, die die gleiche Seite der Folie passieren, erfahren die gleiche Phasenschiebung mit resultierender Wegdifferenz null nach der Folie. Nur Teilstrahlen, die unterschiedliche Seiten der Folie passieren, akkumulieren unterschiedliche optische Wege und erzeugen im Interferenzmuster eine Verschiebung der Streifen, es handelt sich um ein differentielles Verfahren.

Aus der Folienabsorption und der relativen Verschiebung der Interferenzstreifen kann die komplexe Brechzahl bestimmt werden. Die Absorption der Folie wird anhand eines hellen Streifens des Interferenzmusters ermittelt, sie beträgt für die vermessene Zr-Folie gemittelt $T = 0.43$. Die Phasenschiebung wurde anhand von an die Daten angepassten Kurven ermittelt (Abb. 5.11, rechts) und beträgt $\Delta\varphi = 1.4\pi$. Nach Gleichung (3.6) und (3.7) ergibt sich für die komplexe Brechzahl bei 12.8 nm Wellenlänge für eine 200 nm dicke Folie $n = 1 - 4.5 \times 10^{-2} - i 4.3 \times 10^{-3}$. Diese Werte weichen von den tabellierten Daten für eine Zr-Folie mit nomineller Dicke von 200 nm ab, in [47] sind diese mit $\delta = 3.7 \times 10^{-2}$ und $\beta = 3.3 \times 10^{-3}$ angegeben. Eine mögliche Erklärung für die auftretenden Abweichungen ist die nur ungenau bekannte, tatsächliche Foliendicke, deren Toleranz vom Hersteller mit $\pm 10\%$ angegeben wird. Außerdem kann nicht quantifiziert werden, ob und wie stark die Folienoberflächen oxidiert sind. Eine ZrO_2 -Schicht

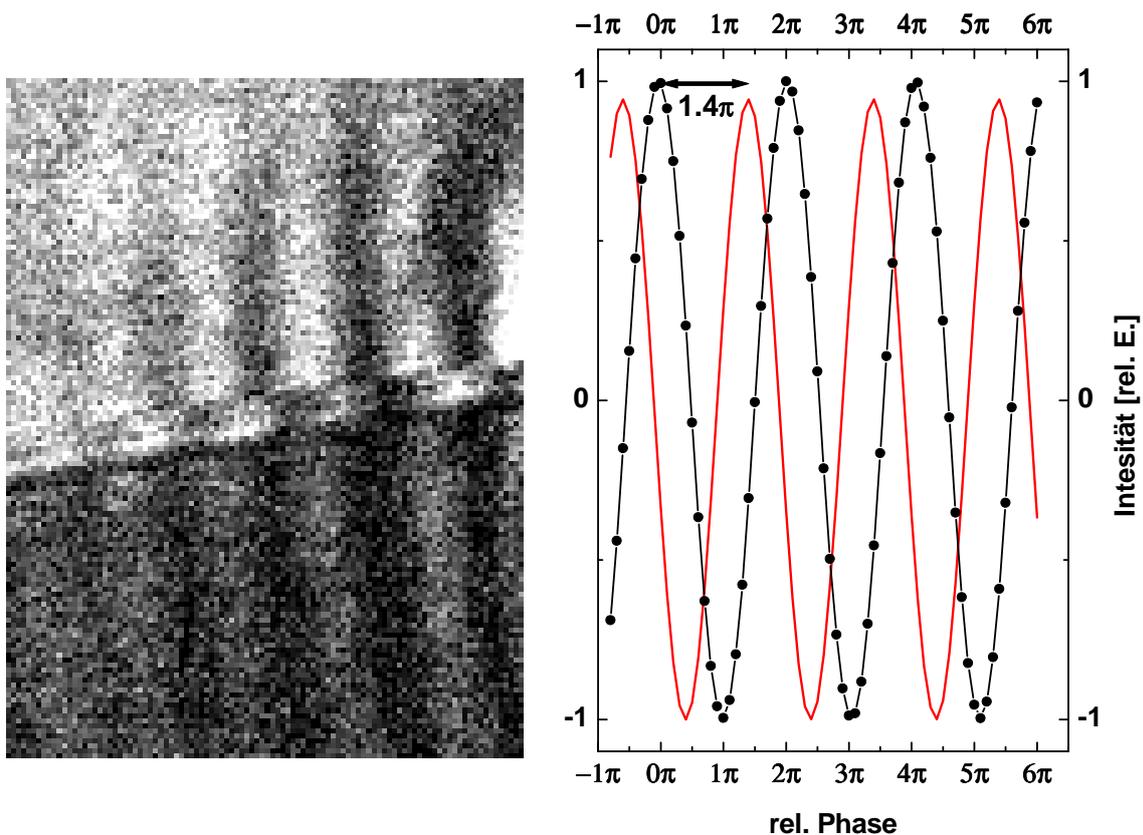


Abbildung 5.11: Interferogramm mit Zr-Folie im Strahlengang (links). An der Foliengkante kommt es zur Verschiebung der Interferenzstreifen, vor und nach der Kante ist deren Orientierung identisch. Aus an die experimentellen Daten angepassten Kurven (sinusförmiger Intensitätsverlauf) der Phasenlage ohne (Linie) und mit (Symbole) 200 nm Zr-Folie ergibt sich eine Phasenschiebung von 1.4π (rechts).

von 10 nm auf beiden Folienseiten würde die Transmission gegenüber einer reinen Zr-Folie von 52% auf 45% reduzieren und ebenso eine verstärkte Phasenschiebung bewirken. Um die Präzision dieser Art von Messungen zu verbessern, ist eine genauere Charakterisierung der Proben als auch eine Verbesserung des SNR in den Interferogrammen nötig. Die damit gesteigerte Empfindlichkeit des Interferometers würde auch die Untersuchung von Probensystemen mit geringer Phasenschiebung erlauben.

5.2.3 Diskussion

Das für den XUV-Bereich entwickelte Zonenplatteninterferometer konnte erfolgreich an der HH-Quelle als auch an einer alternativen Laborquelle in Form eines laserinduzierten Plasmas getestet werden. Der interferometrische Aufbau stellt Anforderungen sowohl an die zeitliche als auch die räumliche Kohärenz der verwendeten Strahlung und ermöglicht prinzipiell deren Mes-

sung. Um genaue Aussagen über diese Eigenschaften der Strahlung treffen zu können, ist eine Präparation des Interferometers derart notwendig, dass jeweils eine der Kohärenzanforderungen des Interferometers voll erfüllt ist, damit die Ursache der Kontrastreduzierung im Interferenzmuster eindeutig bestimmt werden kann. Im Fall des $f_1 - f_2$ -Aufbaus ist die Anforderung an die räumliche Kohärenz leicht zu erfüllen und so eine Aussage über die Kohärenzlänge möglich. Dies gilt allerdings nur, sofern $l_{\text{coh}} < \Delta s_{\text{max}}$ ist. Bei größeren Kohärenzlängen wie im Fall der Linienstrahlung ist lediglich die Angabe einer unteren Grenze möglich.

Zur direkten Vermessung des räumlichen Kohärenzgrades des HH-Strahls ist der $f_1 - f_2$ -Aufbau weniger gut geeignet, da die zur Interferenz gebrachten Teilstrahlen in der Ebene der ersten Zonenplatte räumlich nur wenig voneinander getrennt sind. Im Fall des $f_1 + f_2$ -Aufbaus hingegen kommt es zur Interferenz von Teilstrahlen, die auf gegenüberliegenden Seiten der Zonenplatte auftreffen. Damit bestimmt die Größe der verwendeten Zonenplatten die Größe des Gebietes, das abgetastet werden kann (vgl. Gl. 5.6). Um dies ausnutzen zu können ist ein Aufbau nötig, der bei möglichst großen Optiken ausreichend kleine Wegdifferenzen erzeugt, die an die gegebene Kohärenzlänge der HH angepasst sind.

Experimentelle Bestimmungen der komplexen Brechzahl durch gleichzeitige Messung von Absorption und Phasenschiebung wurden bisher unter Verwendung von Synchrotronstrahlung aus Ablenkmagneten [52] oder Undulatoren [17] vorgenommen und konnte im Rahmen dieser Arbeit erstmalig an einer Laborquelle demonstriert werden. Im Gegensatz zu der Vermessung der Kohärenzeigenschaften ist die Messung der komplexen Brechzahl nicht durch die geringe Kohärenzlänge eingeschränkt. Dennoch ist auch für diesen Zweck eine Optimierung des ZPI sinnvoll, so dass das Interferenzmuster sich über den gesamten Beleuchtungskegel erstreckt. Eine Möglichkeit besteht in der Verwendung einer sogenannte *Twin-Zone Plate*, die aus zwei auf die unterschiedlichen Seiten eines Substrates strukturierten Zonenplatten besteht und im Prinzip ein Zonenplatteninterferometer in einem optischen Element integriert. Der Abstand der Zonenplatten bestimmt die entstehenden Wegunterschiede und deren lateraler Versatz legt die Streifendichte im Interferenzmuster fest. Diese Parameter können problemlos an die experimentellen Bedingungen angepasst werden. Mit Hilfe solch einer Optik wurde vor kurzem differentieller Interferenzkontrast (DIC) mit 4 keV-Strahlung demonstriert, in dem die laterale Aufspaltung der durch die beiden ZP erzeugten Bilder geringer als die räumliche Auflösung des Mikroskopes gewählt wurde [125].

Eine Weiterentwicklung dieser Art von Optik stellen *Diffraction Optical Elements* (DOE) dar, die anhand einer gewünschten Beugungsstruktur oder Fokusform berechnet werden. So ist es z.B. möglich, Optiken herzustellen, die zwei oder auch vier Fokalfunkte mit beliebiger Orientierung zueinander erzeugen [30]. Ein solches DOE-Interferometer bedarf praktisch keiner Justierung und kann problemlos mit verschiedenen Wellenlängen betrieben werden, was zur Bestimmung der komplexen Brechzahl über einen größeren Bereich notwendig ist.

Neben der instrumentellen Verbesserung des ZPI ist die Nutzung der Zeitstruktur der Har-

monischen ein nächster Entwicklungsschritt. Wie im Fall der Mikroskopie geht es auch hier nicht um die höchste erreichbare Auflösung, sondern um die prinzipielle Erweiterung der Messung der komplexen Brechzahl um die Zeitdimension. Dies beschränkt sich nicht zwangsläufig auf die Bestimmung der Brechzahl von fester Materie, auch die zeitaufgelöste Untersuchung schneller Prozesse, wie z. B. Plasmaexpansionen oder Schockwellenausbreitung ist möglich und wird bereits, bei längeren Wellenlängen, mit hohen Harmonischen oder Röntgenlasern durchgeführt [29, 37, 38]. Wie für die Mikroskopie gilt auch hier, dass aufgrund der benötigten langen Belichtungszeiten nur reversible bzw. reproduzierbar anzuregende Prozesse untersucht werden können.

Ein ZPI eignet sich auch zur Bestimmung der Pulsdauer der eingesetzten HH-Strahlung. Die Kontrastfunktion in Abhängigkeit vom Wegunterschied entspricht der linearen Autokorrelation des HH-Signals, deren Fouriertransformation das Spektrum der HH ergibt. Bei räumlich kohärenter Beleuchtung des Interferometers und angenommener Bandbreitenbegrenzung der HH kann so eine untere Grenze für deren Pulsdauer gemessen werden.

5.3 Spektroskopie

Neben den mikroskopischen und interferometrischen Techniken stellt auch die Spektroskopie einen wichtigen Zugang zur Untersuchung von Materialeigenschaften dar. Die Wechselwirkung von Licht mit Atomen findet in der Elektronenhülle des Atoms statt, grundlegend ist die Spektroskopie also ein Werkzeug zur Untersuchung der elektronischen Zustände der Materie³.

Während mit lichtoptischen Verfahren eher schwach gebundene, äußere Elektronenkonfigurationen untersucht werden können, ist mit kürzeren Wellenlängen des XUV- oder Röntgenbereiches der Zugang zu den Innerschalenzuständen gegeben. Die in diesem Spektralbereich auftretenden Absorptionskanten sind sehr ausgeprägt, da die Anregung eines gebundenen, inneren Zustandes ins Kontinuum oder einen unbesetzten, äußeren Zustand erfolgen muss, deren Energiedifferenz im Vergleich zur Anregungsenergie klein ist. Die Bindungszustände der Innerschalenelektronen werden von der atomaren bzw. molekularen Struktur der Materie beeinflusst. So ist entscheidend, was für nächste Nachbarn im Atomverband vorliegen, aber auch ob es sich um eine amorphe oder kristalline Struktur handelt. Diese Zusammenhänge werden in der XAFS (X-ray Absorption Fine Structure)-Spektroskopie untersucht, mit der man in der Lage ist, genaue Bindungszustände und -abstände der Nah- und Fernordnung in der atomaren Struktur zu bestimmen, aber auch Atombindungen zwischen unterschiedlichen Atomsorten voneinander zu unterscheiden [114].

Auch für die Spektroskopie gilt es, bekannte statische Verfahren, wie z.B. XAFS-Spektroskopie, an der HH-Quelle mit einer Zeitauflösung zu kombinieren, die außer den spektralen Informationen Erkenntnisse über die zeitliche Entwicklung der angeregten Prozesse liefern soll. Die Verwendung der HH-Pulse bietet dabei den Zugang zu sehr schnellen Prozessen auf der Zeitskala einiger fs, die zur Zeit von keiner anderen XUV-Quelle erreicht wird.

5.3.1 Absorptionsspektroskopie

Absorptionsspektroskopie beruht auf der Bestimmung des in einer Probe absorbierten Anteils der auftreffenden Strahlung in Abhängigkeit von der Wellenlänge. Zur Aufnahme eines Absorptionsspektrums stehen mehrere Möglichkeiten zur Verfügung. So kann mit einem hochauflösenden Monochromator das Durchstimmen der Wellenlänge erfolgen und mit einem eindimensionalen Detektor das durch die Probe transmittierte Signal gemessen werden. Alternativ wird die Probe mit polychromatischem Licht bestrahlt und das transmittierte Spektrum mittels eines Spektrographen analysiert. Dieses Verfahren wurde unter Verwendung der in Abschnitt 3.2.3 beschriebenen Spektrographen für die Arbeiten an der HH-Quelle gewählt. Inwiefern sich der

³Photonenenergien, die Kernreaktionen auslösen können, werden hier nicht betrachtet

Einsatz einer HH-Quelle in Kombination mit diesen Spektrographen für spektroskopische Messungen eignet, soll anhand der experimentellen Ergebnisse festgestellt werden. Weiter ist zu klären, welche spektralen Auflösungen prinzipiell erreicht werden können.

Zu diesem Zweck wurde an einem geeigneten Probensystem eine Messung der chemischen Verschiebung oder *chemical shift* durchgeführt. Als chemische Verschiebung wird die Verschiebung einer Absorptionskante aufgrund einer veränderten Zusammensetzung in einer chemischen Verbindung bezeichnet, wie sie z.B. zwischen einem reinen Element und dessen Oxid auftritt. Die Verschiebung resultiert aus der Beeinflussung der elektronischen Zustände der Atome untereinander und hängt u.a. von der Elektronegativität der Bindungspartner und deren Anordnung im Atomverband ab.

Im zugänglichen Spektralbereich liegen die L_{2p} -Absorptionskanten von Aluminium bei 17.00 nm (72.85 eV) und von Silizium bei 12.42 nm (99.82 eV), die aufgrund der Spin-Bahn-Kopplung der elektronischen Niveaus in zwei Zustände $L_{2p_{1/2}}$ und $L_{2p_{3/2}}$ aufspalten. Die Aufspaltung beträgt bei beiden Elementen etwa 0.4 eV [118]. Als Probensystem wurde die Kombination Aluminium und Aluminiumdioxid (Al_2O_3) sowie Silizium und Siliziumnitrid (Si_3N_4) gewählt. Die Verschiebung der L-Kante aufgrund der chemischen Verschiebung durch die Sauerstoff- bzw. Stickstoffanteile in den Verbindungen liegt im Bereich einiger eV. Die Präparation der Proben muss so erfolgen, dass der durch die Proben transmittierte Anteil der auftreffenden Strahlung ausreichend hoch ist, was mit einer angepassten Foliendicke erreicht werden kann.

Zur Aufnahme hochauflösender Absorptionsspektren ist neben der Messung der Absorption in der Probe $I(\lambda)$ eine Messung eines Referenzspektrums notwendig. Nur in Verbindung mit dem Referenzsignal $I_0(\lambda)$ kann aus den Spektren die genaue Struktur der Absorptionskanten extrahiert werden. Dazu wird die optische Dichte der Probe bestimmt, die als

$$OD = -\log\left(\frac{I(\lambda)}{I_0(\lambda)}\right) \quad (5.7)$$

definiert ist [44]. Außerdem erlaubt das Referenzspektrum zu einem gewissen Grad eine Eliminierung störender Einflüsse wie z.B. Streulicht. Auf die Problematik der Aufnahme eines geeigneten Referenzsignals an der HH-Quelle wird noch näher eingegangen.

Experiment

Die ersten Experimente zur Absorptionsspektroskopie wurden mit dem TGS-Spektrographen durchgeführt, der anstelle des Monochromators an die HH-Beamline adaptiert wurde. Der Aufbau entspricht dem zur spektralen Charakterisierung der HH-Quelle. Die Geometrie des Aufbaus ($D_q = 1080$ mm, $D_b = 443$ mm, $q_s < 150$ μ m) ergibt eine Begrenzung des Auflösungsvermögens nach Gleichung (3.19) von $\lambda/\Delta\lambda_{\text{geom}} = 567$ bei 17 nm Wellenlänge. Unter der

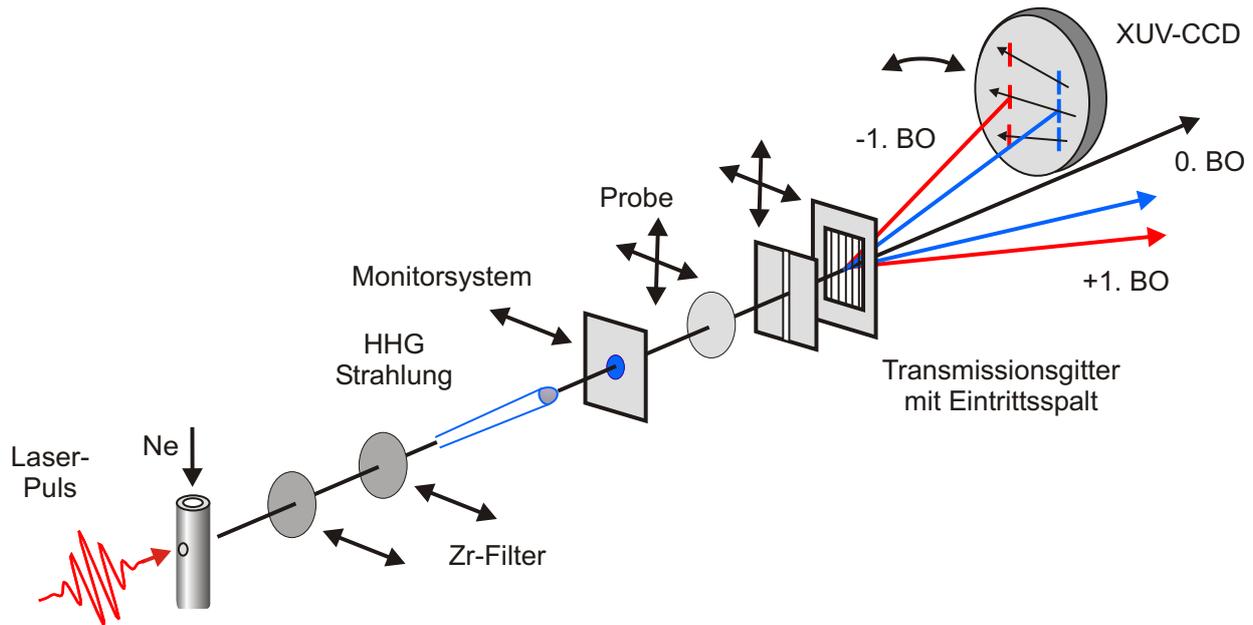


Abbildung 5.12: Experimenteller Aufbau zur Messung der Absorptionsspektren mit dem TGS. Der HH-Strahl trifft auf die Probe vor dem Gitter, die zur Aufnahme des Referenzspektrums aus dem Strahl bewegt werden kann. Das durch die Probe transmittierte Licht wird mit dem Spektrographen spektral zerlegt und mit der XUV-CCD detektiert.

Berücksichtigung der Beugungsgrenze ergibt sich insgesamt nach Gleichung (3.20)

$$\lambda/\Delta\lambda_{\text{exp}} = 375, \quad (5.8)$$

was $\Delta\lambda_{\text{exp}} = 45 \text{ pm}$ bzw. $\Delta E = 0.2 \text{ eV}$ entspricht. Über Lineardurchführungen können die zu untersuchenden Proben dicht vor dem Gitter positioniert werden, so dass die Aufnahme von Spektren mit und ohne Probe möglich ist. Zur Unterdrückung der Fundamentalen und niedriger Harmonischer werden Zr-Filter einer Gesamtdicke von bis zu 400 nm im Strahlengang verwendet. Der Aufbau ist schematisch in Abbildung 5.12 gezeigt.

In dieser Anordnung müssen Absorptionsspektrum und Referenzspektrum ohne Probe nacheinander aufgenommen werden. Bei einer Integrationszeit zur Aufnahme eines Spektrums mit ausreichendem SNR von mehreren 10 s bedarf dies einer stabilen Quelle auf einer vergleichbaren Zeitskala. Wie in Abschnitt 4.3 ausgeführt ist, kann es auch schon bei kleinen Intensitätsfluktuationen der Fundamentalen zu einer Änderung der spektralen Verteilung der Harmonische kommen, die eine solche Messung beeinflusst. Gleiches gilt auch für Fluktuationen der Harmonischen-Intensität. Um unempfindlich gegenüber einer zeitlichen Variation der HH-Emission zu sein, ist die gleichzeitige Aufnahme beider Spektren sinnvoll. Dies setzt jedoch voraus, dass die Spektren räumlich getrennt voneinander detektiert werden können.

Bei der Verwendung des TGS zur spektralen Analyse ist dies prinzipiell möglich. Der vom TGS erzeugte Spaltschattenwurf entspricht in der Ebene senkrecht zur Dispersionsrichtung

einer Projektion der Gitterbeleuchtung über dessen Höhe. Dies erlaubt bei einer Größe des Ni-Gitters von 1 mm in dieser Richtung die Verwendung speziell präparierter Proben, die so vor dem Gitter positioniert werden, dass nur ein Teil des Gitters von der Probe verdeckt ist und der restliche Anteil vom HH-Strahl direkt beleuchtet wird. Beide Spektren werden so simultan detektiert. Mit zu diesem Zweck präparierten Si_3N_4 -Fenstern konnte dieses Konzept prinzipiell umgesetzt werden, im Rahmen der Durchführung des Experimentes wurde jedoch zum ersten Mal der räumliche Chirp der Harmonischen experimentell beobachtet. Die simultane Aufnahme beider Spektren eliminiert die Notwendigkeit eines zeitlich stabilen Spektrums, setzt aber ein räumlich homogene spektrale Verteilung über das HH-Profil voraus. Dies ist für ein räumlich gechirptes Spektrum nicht der Fall. Im Experiment war eine direkte Beeinflussung der spektralen Verteilung über das HH-Profil bisher nicht möglich, so dass der Ansatz der gleichzeitigen Aufnahme der benötigten Spektren nicht weiter verfolgt werden konnte. Aus diesem Grund wurde für die statischen Messungen der chemischen Verschiebung als auch für die Pump-Probe-Spektroskopie die sequentielle Aufnahme der benötigten Spektren angewendet.

Al-L-Kante

Als erstes Probensystem wurde Al/ Al_2O_3 untersucht. Die Proben sind als dünne Schichten auf 150 nm dicke Si-Folien aufgedampft, wobei die 50 nm dicke Al_2O_3 -Schicht mit einer Passivierungsschicht von etwa 5 nm SiO_2 gegen weitere Oxidation geschützt ist. Die Dicke der Al_2O_3 -Schicht beträgt 30 nm. Aufgrund des Herstellungsprozesses liegen die Proben in polykristalliner Form vor. Abbildung 5.13 zeigt die an diesen Proben aufgenommenen Messdaten, die Belichtungszeit betrug 60 s für jedes Spektrum. Der obere Teil der Abbildung enthält die unkorrigierten Absorptions- und Referenzspektren, der untere Teil die nach Gleichung (5.7) berechnete optische Dichte. Deutlich sind die L-Absorptionskanten des Al zu erkennen, wobei diese in der Oxid-Probe von 17.00 nm (72.93 eV) auf 16.08 nm (77.10 eV)⁴ zu kürzeren Wellenlängen hin verschoben ist. Die Substruktur der Kanten ist aufgrund des relativ schlechten SNR in den Spektren jedoch nicht aufgelöst. Das zunehmende Rauschen des Signals oberhalb von 17 nm resultiert aus der abnehmenden Transmission der Zr-Filter für höhere Wellenlängen. Aus diesem Grund wurden die Messungen an der Al-Kante mit nur einem 200 nm Zr-Filter durchgeführt. Die Kalibrierung der Wellenlängenskala erfolgt über die L-Kanten von Al und Si (nicht sichtbar im gezeigten Spektrum). Die Auflösung des Spektrographen bestimmt die Genauigkeit der Wellenlängenzuordnung der Absorptionskanten, diese beträgt an der Al-L-Kante ± 0.05 nm (± 0.2 eV).

Die beobachtete Verschiebung der Kante als auch deren qualitativer Verlauf stimmen gut mit den in der Literatur angegebenen Werten überein. An polykristallinem γ - Al_2O_3 wird eine Verschiebung der Kante auf 16.00 nm (77.50 eV) gemessen [9], einkristalliner Saphir (Korund)

⁴Die Position der Kanten wird anhand der Wendepunkte der ansteigenden Flanke bestimmt.

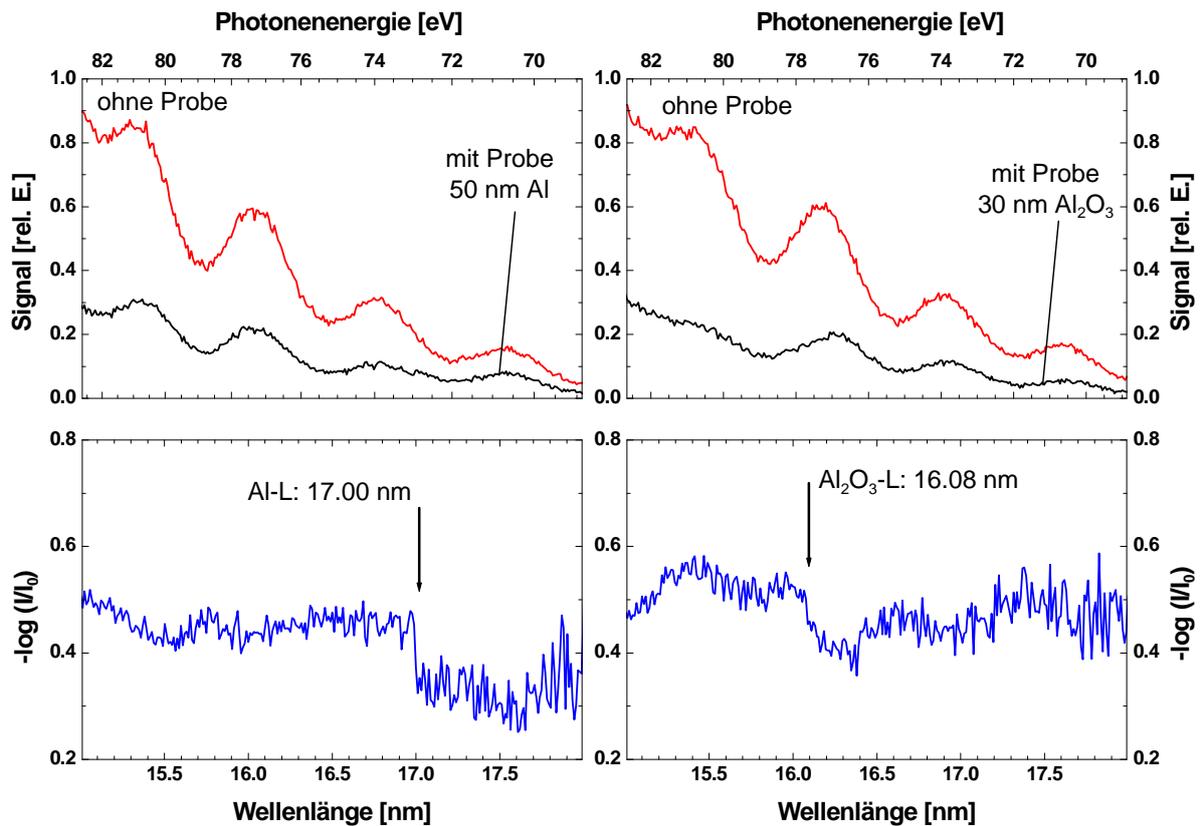


Abbildung 5.13: An Al- (links, 50 nm) und Al₂O₃-Proben (rechts, 30 nm) gemessene Absorptionsspektren und die daraus bestimmte Verschiebung der Al-L-Kante aufgrund der chemischen Verschiebung. Im oberen Teil der Abbildung sind Referenz- und Absorptionsspektrum gezeigt.

weist eine Verschiebung auf 15.81 nm (78.40 eV) auf [20]. Genauere Vergleiche der Daten erfordern eine verbesserte Probencharakterisierung bzw. sind nur für vergleichbare Probenkonfigurationen sinnvoll. Weiter ist ein deutlich besseres SNR notwendig, um die Auflösungsgrenze des Spektrographen zu erreichen.

Si-L-Kante

Für die Spektroskopie an der Si-L-Kante ist es notwendig, ohne Si-haltige Komponenten im Strahlengang zu arbeiten, da sich deren Absorption an der L-Kante störend in den aufzunehmenden Spektren auswirkt. Die Normierung auf das Referenzsignal erlaubt im Prinzip die Beseitigung der Einflüsse von allen optischen Komponenten aus den Absorptionsspektren. Die zusätzliche Absorption an der Si-L-Kanten ist aber insofern problematisch, da sich die Absorptionskanten der zu untersuchenden Si-Verbindungen zu höheren Energien hin verschieben, bei denen im reinen Si schon Absorption stattfindet und den Fluss im zu untersuchenden Bereich des Spektrums deutlich reduziert. Das Gitter des TGS wird auf einer Si-Folie hergestellt, die

nach dem Strukturierungsprozess so weit wie möglich entfernt wird. Tests mit dem verfügbaren Gitter haben eine Restfoliendicke einiger 10 nm ergeben. Aus diesem Grund wurde für die Messung an der Si-L-Kante der ORZ-Spektrograph eingesetzt. Das auf ein Glassubstrat strukturierte Gitter ist mit Pd beschichtet und arbeitet im Gegensatz zum TGS in Reflexion, so dass keine Beeinflussung durch das Substratmaterial zu erwarten ist. Weitere Vorteile dieses Systems sind die bessere spektrale Auflösung, die deutlich größere Fläche der Optik und die fokussierende Eigenschaft, die den Fluss in der Detektorebene zusätzlich erhöht und deutlich kleinere Belichtungszeiten bei gleichem SNR erlaubt. Analog zum TGS wird der ORZ-Spektrograph an die HH-Beamline ohne Monochromator angeflanscht. Der Abstand zwischen Target und Optik betrug 1546 mm, der zwischen Optik und Detektor 749 mm. Dies entspricht einem Abbildungsmaßstab D_b/D_q von etwa 0.5. Der Gesamtablenkwinkel beträgt $\alpha + \beta = 13.75^\circ$ bei einem Einfallswinkel von 3.75° . Die Proben sind wiederum über eine Lineardurchführung im HH-Strahl positionierbar.

Aus Gleichung (3.22) ergibt sich für diesen Aufbau eine Winkeldispersion von

$$\frac{d\lambda}{d\beta} = \frac{942 \text{ nm}}{+1} \sin(10^\circ) = 163 \text{ nm/rad}$$

und in der Detektorebene eine lineare Dispersion von 5.2 pm/px. Anhand der Abbildungsgeometrie kann die erreichbare Auflösung abgeschätzt werden. Bei einer oberen Grenze von $150 \mu\text{m}$ der Quellgröße ergibt sich ein verkleinertes Bild der Quelle von maximal $75 \mu\text{m}$ (FWHM). Nach Gleichung (3.23) und der oben berechneten Winkeldispersion resultiert für das spektrale Auflösungsvermögen

$$\lambda/\Delta\lambda_{\text{geom}} = 751$$

bei 12.3 nm. Auch im Fall einer relativ großen Quellausdehnung und möglicherweise auftretenden Abbildungsfehlern kann eine ausreichend gute Auflösung erwartet werden.

In Abbildung 5.14 sind die mit diesem System an Si (150 nm) und Si_3N_4 (100 nm) gemessenen Spektren dargestellt. Bei den aus Wafern hergestellten Folien handelt es sich um einkristalline Proben. Im oberen Teil befinden sich wieder die Absorptions- und Referenzspektren, der untere Teil zeigt die prozessierten Daten. Die Wellenlängenskala wurde anhand der Si-L-Kante kalibriert. Im Gegensatz zu den an der Al-Kante gemessenen Spektren weisen die Si-Spektren im Kantenbereich ein deutlich besseres SNR auf. Auch hier ist die Verschiebung der Absorptionskante deutlich aufgelöst, der Ansatz der Kante liegt bei 12.05 nm (102.89 eV). Der erste Resonanzpeak der XAFS-Struktur ist bei etwa 11.80 nm entsprechend 105.07 eV lokalisiert. Auch diese Daten sind in Übereinstimmung mit den Literaturwerten aus [9], die erste Resonanz für $\alpha\text{-Si}_3\text{N}_4$ wird hier mit 11.75 nm (105.50 eV) angegeben.

Für die Spektren der Si-Probe ist zu erkennen, dass während der Aufnahme Intensitätsschwankungen der Beleuchtung aufgetreten sind. So weist das Spektrum mit Probe unterhalb

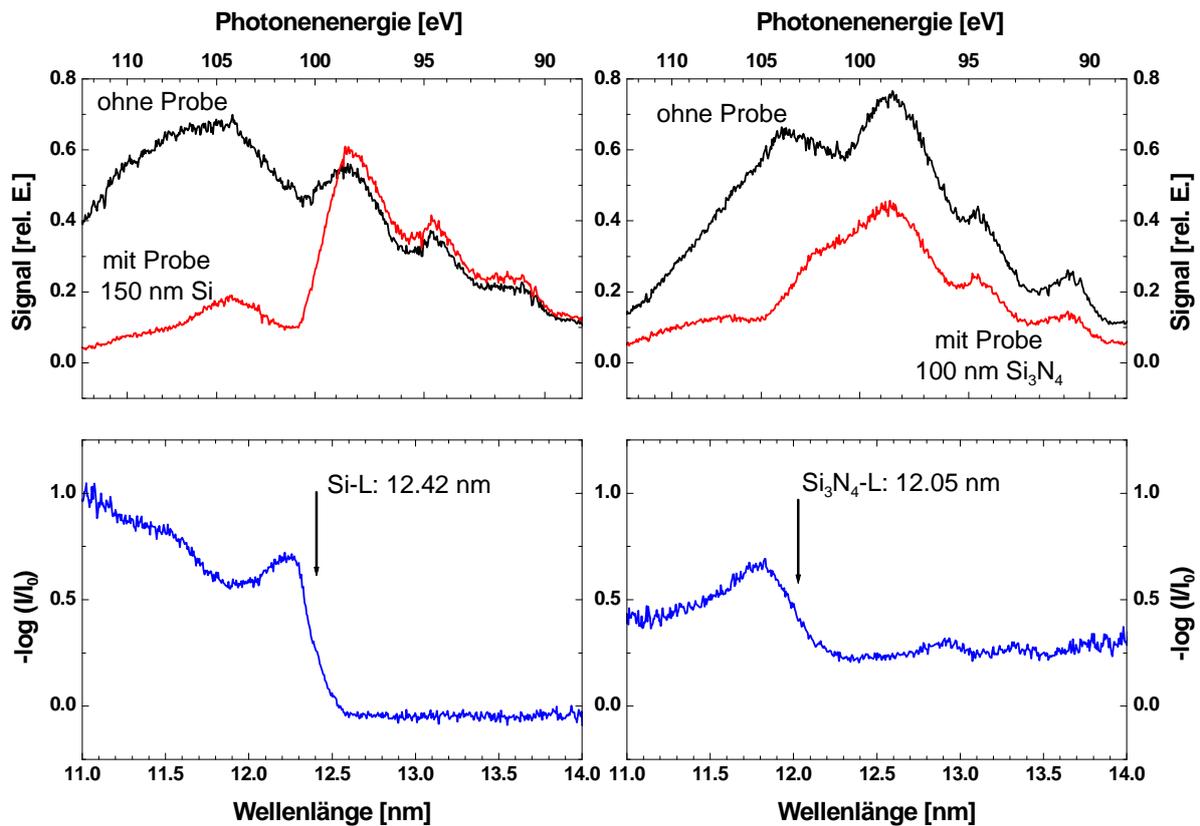


Abbildung 5.14: *Chemical shift* gemessen an Si (links, 150 nm) und Si_3N_4 (rechts, 100 nm) mit dem ORZ-Spektrographen. Der obere Teil der Abbildung enthält Referenz- und Absorptionsspektrum.

der Kante mehr Signal auf als das Referenzspektrum. Eine Vermessung der Absorptionskante ist dennoch möglich, eine genaue Bestimmung der optischen Dichte der Probe kann jedoch bei variierendem I_0 nicht vorgenommen werden.

Diskussion

Die statischen Absorptionsmessungen an den L-Kanten von Al und Si zeigen, dass es mit der HH-Quelle möglich ist, z.B. auftretende chemische Verschiebungen im Bereich weniger eV zu vermessen. Die dazu benötigte spektrale Auflösung stellt im Experiment keine Limitierung dar und wird von den verwendeten Spektrographen gut erreicht. Mit einem gesteigerten SNR scheint sogar eine weitere Verbesserung der spektralen Auflösung möglich.

Problematischer sind die zeitlichen und räumlichen Instabilitäten der Quelle sowohl hinsichtlich des Spektrums, als auch der Intensität, die die Aufnahme der benötigten Referenzspektren erschweren. Da die simultane Aufnahme von Absorptions- und Referenzspektrum als zuverlässigster Ansatz erscheint, ist die Eliminierung des räumlichen Chirp ein wichtiger An-

satz zur Optimierung der HH-Quelle hinsichtlich spektroskopischer Experimente. Weiter kann eine Verbesserung der experimentellen Parameter durch eine Stabilisierung des Lasersystems erreicht werden. Darüber hinaus ist die Entwicklung eines Spektrographen sinnvoll, der an die speziellen Bedingungen der HH-Quelle angepasst ist. Denkbar wäre hier der Einsatz einer *Off-Axis Transmissionszonenplatte* (OTZ), die aus einem außer-axialen Zonenplattensegment besteht. Größe, Brennweite und Auflösungsvermögen können problemlos an die Parameter der Harmonischen-Quelle angepasst werden. Weitere Vorteile wären die sehr einfache Handhabung und Justierbarkeit sowie die deutlich erleichterte Interpretation der Messergebnisse.

5.3.2 Pump-Probe Spektroskopie an Si

Wie für die anderen vorgestellten Anwendungsexperimente aus dem Bereich der abbildenden Verfahren ist auch für die Spektroskopie eine Erweiterung der statischen Experimente auf zeitaufgelöste Messungen ein Ziel der Arbeiten an der HH-Quelle. Die Ergebnisse der Absorptionsspektroskopie im statischen Fall werfen die Frage auf, inwiefern die zeitaufgelöste Spektroskopie mit den vorliegenden Methoden möglich ist bzw. mit was für Einschränkungen Pump-Probe-Experimente durchgeführt werden können.

Aus Untersuchungen an dünnen Si-Folien mit Strahlung aus laserinduzierten Plasmen ist der Einfluss eines optischen Pumpens der Si-Probe auf deren Absorptionsverhalten an der L-Absorptionskante bekannt. Für Pumpfluenzen unterhalb der Zerstörschwelle des Materials kann dieser Prozess reproduzierbar angeregt und untersucht werden. Beobachtet wird bei Anregung des Materials mit einem VIS-Laserpuls eine zunehmende Absorption an der L-Kante bei 99.5 eV, diese Energie entspricht gerade der Differenz der L_{2p} -Zustände und der oberen Kante des Valenzband des Si. Verschiedene Mechanismen werden als Ursache der beobachteten verstärkten Absorption diskutiert. So kann die Erzeugung von Leerstellen im Valenzband durch das optische Pumpen die erhöhte Absorption erklären, aber auch die Erzeugung eines hochangeregten Elektron-Loch-Plasmas, das die elektronische Struktur des Halbleiters verändert und zur Verschiebung der L-Absorptionskante führen kann, ist eine mögliche Erklärung [76]. Die bisher im Experiment verfügbaren Zeitaufösungen einiger 10 ps reichten nicht aus, um einen dieser Mechanismen eindeutig nachzuweisen, da die Relaxationszeiten des Elektron-Loch-Plasmas auf deutlich kleineren Zeitskalen erwartet werden [34]. Unter Verwendung der HH-Quelle und den so erzeugten XUV-Pulsen mit Pulsdauern weniger fs scheint eine Aufklärung dieser Fragestellung möglich.

Experiment

Für ein erstes Pump-Probe-Experiment an der Si-L-Kante wurde der ORZ-Spektrograph um eine Verzögerungsstrecke erweitert (Abb. 5.15). Der zum Pumpen der Probe benötigte An-

5 Röntgenoptische Verfahren mit Hohe-Harmonische-Strahlung im XUV

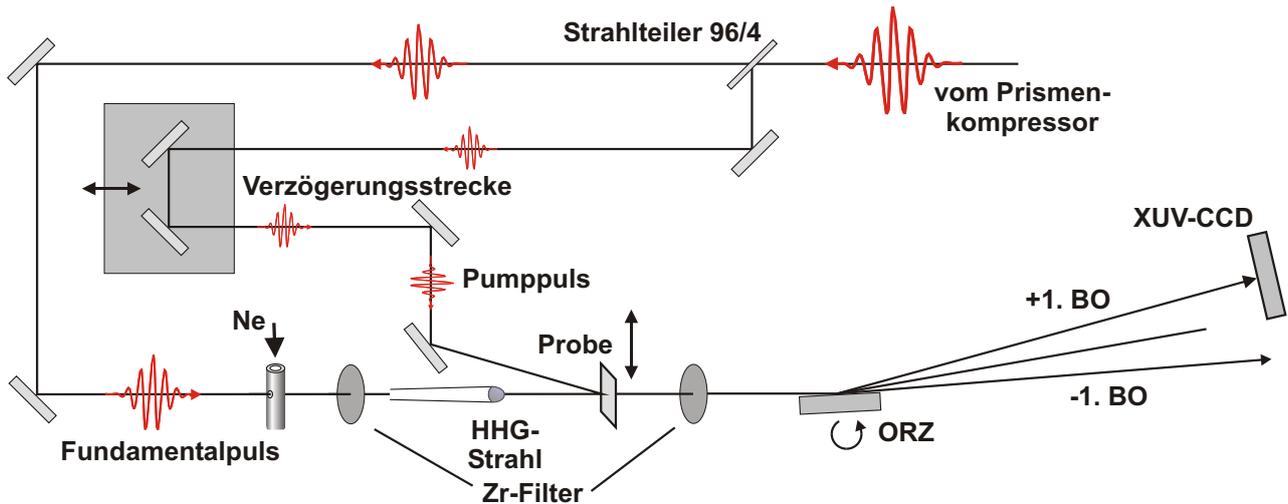


Abbildung 5.15: Schema des experimentellen Aufbaus zur Pump-Probe-Spektroskopie an Silizium. Der Pumpstrahl wird nach dem Prismenkompressor ausgekoppelt nach Durchlaufen der Verzögerungsstrecke auf die Probe fokussiert. Die Pumpenergie beträgt etwa $20 \mu\text{J}$ bei 20 fs Pulsdauer.

teil des Laserpulses wird dazu nach dem Prismenkompressor über einen Strahlteiler aus dem Hauptstrahl ausgekoppelt und in die Verzögerungsstrecke gelenkt. Über deren Länge kann die Zeitdifferenz der Ankunftszeit zwischen VIS- und XUV-Puls am Ort der Probe eingestellt werden. Die erforderliche Genauigkeit im fs-Bereich wird über die Verwendung schrittmotorgesteuerter Translationstische zur Verschiebung der Spiegel in der Verzögerungsstrecke erreicht. Der Abgleich der beiden optischen Wege geschieht in drei Schritten unter Verwendung der beiden VIS-Pulse, da der XUV-Puls an Luft nicht zur Verfügung steht. Beide Laserstrahlen werden am Ort der Probe räumlich überlagert, die grobe Synchronisation kann mit einer schnellen Photodiode vorgenommen werden, die die Verzögerung auf $\tau_d < 0.5 \text{ ns}$ begrenzt. Im nächsten Schritt werden die beiden Teilstrahlen in ein Spektrometer gelenkt, wo sich bei ausreichend guter zeitlicher Überlappung der Pulse eine Modulation des Spektrums ergibt. Die Modulationsfrequenz ist proportional der reziproken Verzögerungszeit $\nu_{\text{mod}} = 1/\tau_d$. Ist die maximale Modulation eingestellt, wird am Ort der Probe ein Barium-Borat-Kristall (BBO, BaB_2O_4) anstelle der Probe auf die optische Achse gefahren, in dem die beiden Laserpulse eine Frequenzverdopplung erfahren. Bei räumlichem und zeitlichem Überlapp entsteht ein Verdopplungssignal, das entlang der Winkelhalbierenden des von den beiden Teilstrahlen eingeschlossenen Winkels emittiert wird. Bei bestem Überlapp der Teilstrahlen ist dieses Signal maximiert und die Verzögerungsstrecke auf $\pm 10 \text{ fs}$ abgeglichen.

Der gepumpte Bereich auf der verwendeten Si-Folie wird durch eine Blende auf 1.5 mm Durchmesser reduziert. Dies sichert einerseits die räumliche Überlagerung vom Pump- und Probe-Puls, andererseits wird zum Pumpen der Probe eine Intensität von mindestens 10^{10} W/cm^2 benötigt [76], die bei der gegebenen Pumpenergie von etwa $20 \mu\text{J}$ keine größere Fläche zulässt. Die Zerstörschwelle des Si wird dabei nicht erreicht [11]. Der Winkel unter

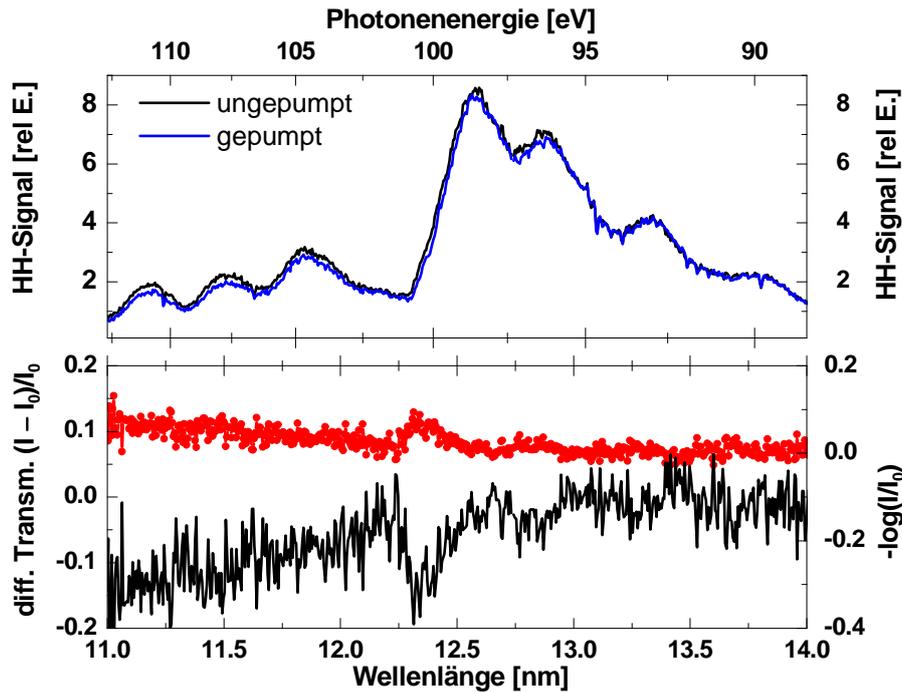


Abbildung 5.16: Beispielergebnis der ersten Pump-Probe Experimente an Si-Folien für eine Verzögerungszeit von $\tau_d = 250$ fs. Der obere Teil der Abbildung zeigt das Absorptionsspektrum mit (blau) und ohne (schwarz) Pumpimpuls, die unteren Abbildungen die daraus berechnete differentielle Transmission (schwarz, Linie) und die optische Dichte (rot, Symbole). An der Si-L-Kante kommt es zur verstärkten Absorption in der gepumpten Probe.

dem die beiden Strahlen auf die Probe treffen ist zur Vermeidung einer zeitlichen Verschmierung so klein wie möglich gewählt und beträgt etwa 1° , was einem Laufzeitunterschied von 56 fs entspricht.

Mit dem so modifizierten Aufbau des ORZ-Spektrographen wurden an einer 150 nm dicken kristallinen Si-Probe mehrere Pump-Probe-Scans mit Verzögerungszeiten von -100 fs bis +70 ps mit verschiedenen Zeitintervallen aufgenommen. Die Pumpenergie betrug zwischen $16 - 25 \mu\text{J}$, was bei einer Fokussierung auf eine Fläche mit 1.5 mm Durchmesser einer Intensität von $(4.5 - 7.1) \times 10^{10} \text{W}/\text{cm}^2$ entspricht. Pro Verzögerungseinstellung wurden jeweils vier Spektren (ungepumpt/gepumpt/ungepumpt/gepumpt) mit 5 s Integrationszeit direkt hintereinander aufgenommen, um die zeitliche Variation der HH-Emission zu erfassen. Aus den aufgenommenen Spektren wurden jeweils die optische Dichte und die differentielle Transmission $T_d = (T_p - T_u)/T_u$ bestimmt. In Abbildung 5.16 sind die so prozessierten Daten der Pump-Probe-Experimente exemplarisch für eine Verzögerungszeit von $\tau_d = 250$ fs dargestellt. Im oberen Teil der Abbildung sind die Spektren der gepumpten (blau) und ungepumpten (schwarz) Probe gezeigt, der untere Teil enthält die berechnete optische Dichte (rot, Symbole) und die differentielle Transmission (schwarz, Linie). An der Si-L-Kante kommt es in der gepumpten Probe zu einer erhöhten Absorption, was anhand der Zunahme der optischen Dichte sichtbar ist. Das Maximum des Absorptionsspeaks liegt bei 12.3 nm (100.8 eV).

Diskussion

Die aus vergleichbaren Experimenten berichtete photo-induzierten Absorptionsänderung von Silizium an dessen L-Absorptionskante [76] kann auch im Rahmen des durchgeführten Pump-Probe-Experimentes beobachtet werden. Eine eindeutige Aussage hinsichtlich der Verschiebung des Absorptionsmaximums und der Zeitkonstante des zugrunde liegenden Prozesses ist aufgrund der wenigen vorhandenen Datensätze bisher noch nicht möglich. Dennoch zeigen die Ergebnisse, dass die verwendete Kombination von Harmonischen-Quelle und ORZ-Spektrograph geeignet ist, zeitaufgelöste XAFS-Experimente im Spektralbereich um 100 eV Photonenenergie durchzuführen.

Wie im Fall der statischen Absorptionsspektroskopie erschwert die schwankende Emission der HH-Quelle eine quantitative Auswertung bzw. Beurteilung des untersuchten Effektes. Darüber hinaus ist zu vermuten, dass die vorhandene Pumpenergie zur ausreichend starken Anregung der Probe nicht hoch genug war. Die daraus resultierende Reduzierung des untersuchten Effektes, der in der Größenordnung von 10% Signaländerung liegt, erschwert dessen Nachweis zusätzlich. Die spektrale Auflösung des ORZ-Spektrographen hat sich im Experiment als ausreichend erwiesen.

Eine Stabilisierung der HH-Emission ist für Folgeexperimente eine wichtige Maßnahme. Ebenso ist eine Modifikation der Pump-Probe-Strecke derart sinnvoll, dass die ausgekoppelte Pumpenergie variiert werden kann, was im durchgeführten Experimente aufgrund eines Strahlteilers mit fester Intensitätsteilung (96%/4%) nicht möglich war.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit beschreibt die Entwicklung und erste Anwendung röntgenoptischer Verfahren aus den Bereichen Interferometrie, Mikroskopie und Spektroskopie im Spektralbereich um 13 nm Wellenlänge an einer Hohe-Harmonische-Quelle basierend auf der Frequenzvervielfachung eines Titan:Saphir-fs-Laserpulses. Zur Konzeption und anschließenden Durchführung dieser Anwendungen wurde die HH-Quelle hinsichtlich der Parameter Strahlprofil, Spektrum, Kohärenzeigenschaften und Stabilität der emittierten Strahlung grundlegend charakterisiert.

Die Emission der hohen Harmonischen im untersuchten Spektralbereich erfolgt in einen schwach divergenten Strahlungskegel von etwa 1 mrad Divergenz. Die Beleuchtung mit dem HH-Strahl weist einen relativ hohen räumlichen Kohärenzgrad auf, der jedoch über das Strahlprofil nach außen hin deutlich abnimmt. Die spektrale Verteilung der HH-Emission lässt sich über die in das Targetsystem eingekoppelte Laserintensität steuern und kann im Bereich des *cut-off* zwischen einer quasi-kontinuierlichen Verteilung und einem linienartigen Spektrum mit differenzierten harmonischen Ordnungen variiert werden. Dies erlaubt prinzipiell eine Anpassung hinsichtlich eines angeschlossenen Anwendungsexperimentes mit spezifischen Anforderungen an die genutzte Strahlung. Die im Mittel innerhalb der Bandbreite einer einzelnen Harmonischen bei 13 nm Wellenlänge nach dem Monochromator gemessene und für ein Anwendungsexperiment zur Verfügung stehende Photonenzahl beträgt $(2 - 4) \times 10^6$ Photonen/s.

Die durchgeführten Anwendungsexperimente an der HH-Quelle umfassen sowohl räumlich, als auch spektral hochauflösende Verfahren. An den L-Absorptionskanten von Si und Al wurden XAFS-Messungen der chemischen Verschiebung mit einer spektralen Auflösung kleiner 1 eV durchgeführt, die in Verbindung mit dem entsprechenden Spektrographen die prinzipielle Eignung der Hohen Harmonischen für diesem Zweck belegen. Die mögliche Erweiterung der Absorptionsspektroskopie um die Zeitdimension, die zeitaufgelöste XAFS-Spektroskopie, ist einer der grundlegenden Vorteile der HH-Quelle. Zeitaufösungen von einigen 10 fs, die deutlich unter denen anderer XUV-Quellen liegen, erscheinen mit den demonstrierten Verfahren möglich. Ein erstes *proof of principle*-Experiment wurde an optisch gepumptem Si durchgeführt, in dem die erwartete, verstärkte XUV-Absorption der angeregten Probe nachgewiesen werden konnte.

Als abbildendes Verfahren konnte ein Röntgenmikroskop-Aufbau unter Verwendung eines sphärischen Multilayers als Kondensor und einer Mikrozonenplatte als Objektiv realisiert werden. Damit war es möglich, in Diatomeen Strukturen von 160 nm aufzulösen. Die Beugungs-

grenze der verwendeten Optik kann so trotz der relativ geringen Bandbreite der monochromatisierten Harmonischen fast erreicht werden. Die Perspektive für die Mikroskopie an HH-Quellen ist deren Verwendbarkeit im Wasserfenster an der C-K-Kante, die den Zugang zu einer Vielzahl biologisch relevanter Systeme bietet. Insbesondere die Zustandsänderung der Elektronenkonfigurationen in Biomolekülen bei optischer Anregung, wie z.B. bei der Photosynthese, ist von grundlegendem Interesse und kann an HH-Quellen mit Zeitaufösungen untersucht werden, die unter den typischen Zeitskalen der ablaufenden Prozesse im Bereich weniger ps bis fs liegen. Voraussetzung dafür ist eine Ausdehnung des mit HHG zugänglichen Spektralbereiches mit ausreichend hohen Photonenströmen, wie sie im Bereich von 13 nm bereits heute erzeugt werden können.

Die zeitlichen und räumlichen Kohärenzeigenschaften der HH-Strahlung ermöglichen weiter die Verwendung interferometrischer Techniken, was mittels eines Zonenplatteninterferometers bei 13 nm Wellenlänge demonstriert wurde. Mit diesem Interferometer ist es gelungen, die komplexe Brechzahl eines Testobjektes direkt über die Auswertung von Absorption und Phasenschiebung eines Interferogrammes zu bestimmen. Die grundlegende Möglichkeit, mit dem Interferometer die Kohärenzfunktion der beleuchtenden Strahlung zu messen, wird noch durch experimentelle Einschränkungen erschwert. Messungen der Kohärenzlänge sind konsistent mit den Ergebnissen aus der spektralen Charakterisierung.

Für alle beschriebenen Anwendungsexperimente gilt, dass aufgrund der benötigten Integrationszeiten an der HH-Quelle bisher nur Prozesse untersucht werden können, die reproduzierbar ablaufen und angeregt werden können. Anregungen bei Intensitäten, die die Zerstörung der Probe bedeuten, sind bisher nicht zugänglich. Die Ergebnisse der Anwendungsexperimente sind ein erster Schritt auf dem Weg zur vollständigen Nutzung des Potentials der durch den HHG-Prozess erzeugten XUV-Strahlung. Dies liegt in der Kombination der demonstrierten Methoden mit einer hohen Zeitaufösung, die durch die Pulsstruktur der Harmonischen und die inhärente Synchronisation mit dem Fundamentalpuls gegeben ist. Die bei 13 nm verfügbaren Photonenzahlen ermöglichen die Durchführung der beschriebenen Verfahren, für eine Verbesserung der Auflösungsgrenzen und eine Reduzierung der Integrationszeiten ist ein erhöhter Fluss in der Probenebene wünschenswert. Dazu kann eine Steigerung der Konversionseffizienzen beitragen, die durch optimierte *phase matching*-Verfahren erreicht wird. Ein verfolgter Ansatz ist z.B. die Verwendung von Hohlfasern als Target, die als Wellenleiter für Fundamentale und Harmonische wirken und so die Wechselwirkungslänge vergrößern [83]. Ebenso ist die Erhöhung der Laserpulsenergien und Wiederholraten Bestandteil der ständigen Weiterentwicklung der verwendeten Lasersysteme, die auch zur Verbesserung der Quellparameter beitragen wird. Eine noch bessere Anpassung der optischen Systeme an die Eigenschaften der HH-Strahlung und die Anforderungen des Experimentes kann die Nutzung der vorhandenen Flüsse zusätzlich optimieren. Zudem erscheinen Maßnahmen zur zeitlichen und räumlichen Stabilisierung der Quellen sinnvoll.

Eine deutliche Erhöhung der vorhandenen Photonenzahlen ist auch zum Erreichen des nicht-

linearen Regimes im XUV und damit der nicht-linearen Röntgenoptik notwendig, wie die Untersuchungen zur Fokussierbarkeit der hohen Harmonischen zeigen. Mit den genannten Erweiterungen der HH-Quellen ist nicht nur eine Erhöhung der Photonenzahlen im XUV verbunden. Dies gilt auch für den Bereich des Wasserfensters, was in ersten Arbeiten realisiert ist [42] und Untersuchungen an der Kohlenstoff-K-Kante ermöglichen wird. Darüber hinaus scheint die Erzeugung von Strahlung bis in den Bereich einiger keV Photonenenergie realisierbar.

Neben den in Zukunft verfügbaren XUV-Quellen wie Freie Elektronen Laser oder Röntgenlaser stellen Hohe Harmonische-Quellen als kompakte *table-top*-Systeme einen einfachen Zugang zu gepulster, kohärenter XUV- und Röntgenstrahlung dar, die aufgrund ihrer speziellen Quelleigenschaften ein breites Anwendungspotential für zeitaufgelöste Messungen im XUV und zukünftig auch im weichen Röntgenbereich bieten.

A Abkürzungsverzeichnis

BBO	Barium-Borat, BaB_2O_4
BO	Beugungsordnung(en)
DIC	differentieller Interferenzkontrast
DOE	Diffractive Optical Element
DQE	Detective Quantum Efficiency
FEL	Freie Elektronen Laser
HH	Hohe(n) Harmonische(n)
HHG	High-Harmonic-Generation
MTF	Modulations-Transfer-Funktion
ORZ	Off-axis Reflexionszonenplatte
OTZ	Off-axis Transmissionszonenplatte
PEEM	Photo-Elektronen-Emissions-Mikroskop
SNR	Signal-Rausch-Verhältnis
TGS	Transmissionsgitterspektrograph
VIS	sichtbarer Teil des elektromagnetischen Spektrums
ZP	Zonenplatte(n)
ZPI	Zonenplatteninterferometer

B Optikspezifikationen

Tabelle B.1: Spezifikationen der im Rahmen dieser Arbeit entwickelten und eingesetzten Zonenplatten: Brennweite f bei λ , Radius r , äußere Strukturbreite Δr , Anzahl der Zonen N_{ZP} und Apertur NA_{ZP} .

ZP-Typ	λ [nm]	f [mm]	r [μm]	Δr [nm]	N_{ZP}	NA_{ZP}
HZP1	13.0	10.0	500	130	1923	0.050
HZP2	13.0	12.0	500	156	1603	0.042
HZP3	13.0	2.00	130	100	650	0.065

Tabelle B.2: Spezifikationen der im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Multilayer-Spiegel: Brennweite f , Substratdurchmesser d , Anzahl der Multilayerperioden N_{ML} , Schichtdickenverhältnis Γ , Doppelschichtdicke d_{ML} . Die Reflektivitäten R sind für s-polarisiertes Licht für einen Einfallswinkel α von 15° zur Substratnormalen berechnet.

Substrate	f [mm]	d [mm]	N_{ML}	Γ	d_{ML} [nm]	$R_{max}[\%]@ \lambda$ [nm]
plan/plan	∞/∞	25.4	40	0.4	6.8	75 @ 12.8
sphärisch/plan	500/ ∞	25.4	40	0.3	7.2	72 @ 13.6

Tabelle B.3: Spezifikationen der im Rahmen dieser Arbeit eingesetzten Off-Axis-Reflexionszonenplatte (ORZ) in +1. Beugungsordnung: Konstruktionswellenlänge λ_0 , Brennweite f , Einfallswinkel α , Beugungswinkel β bei λ_0 , mittlere Gitterkonstante \bar{d} und Reflektivität R der Beschichtung bei Einfallswinkel α für λ_0 .

Optik	λ_0 [nm]	f [mm]	α	β	\bar{d} [nm]	Gitterstriche	R [%] @ α
MCORZ-20	12.30	500	3.75	10	942	16000	64 (Pd)

C Veröffentlichungen

Teile dieser Arbeit sind in folgenden Publikationen veröffentlicht:

- *Submicron extreme ultraviolet imaging using high-harmonic radiation*
Wieland, M., Frueke, R., Wilhein, T., Spielmann, Ch., Pohl, M., Kleineberg, U.
Appl. Phys. Lett. **81** (14), 2520 (2002)
- *Zone-plate interferometry at 13 nm wavelength*
Wieland, M., Wilhein, T., Spielmann, Ch., Kleineberg, U.
Appl. Phys. B **76**, 885 (2003)
- *Towards time-resolved soft x-ray microscopy using high-harmonic radiation*
Wieland, M., Spielmann, Ch., Westerwalbesloh, T., Heinzmann, U., Kleineberg, U., Wilhein, T.
eingereicht bei Ultramicroscopy (2004)
- *Spatial coherence characterization of a pulsed femtosecond high harmonic source in the EUV spectral range*
U. Kleineberg, M. Pohl, U. Heinzmann, M. Wieland, B. Schmidt, Th. Wilhein, Ch. Spielmann
eingereicht bei Appl. Opt. (2003)
- *Steering Attosecond Electron Wave Packages with Light*
Kienberger, R., Hentschel, M., Uiberacker, M., Spielmann, Ch., Kitzler, M., Scinzi, A., Wieland, M., Kleineberg, U., Heinzmann, U., Drescher, M., Krausz, F.
Science **297**, 1144 (2002)

Konferenzbeiträge:

- *Sub-micron imaging in the EUV-spectral range using high harmonic radiation*
Wieland, M., Frueke, R., Wilhein, T., Spielmann, Ch., Pohl, M., Kleineberg, U.
in: X-Ray Microscopy, J. Phys. IV Proceedings **104**, 149 (2003)
- *Hohe Harmonische im EUV: Charakterisierung und erste Anwendungen*
Wieland, M., Frueke, R., Wilhein, T., Kleineberg, U., Pohl, M., Spielmann, C., Krausz, F.
in: Fortschritt-Berichte VDI, Reihe 17, Band 231, 260-266 (2003)
- *Application of high-harmonic radiation for interferometry and spectroscopy*
Wieland, M., Wilhein, T., Kleineberg, U., Heinzmann, U., Spielmann, Ch.
in: Ultrafast Optics IV, Springer Series in Optical Sciences, im Druck (2003)

Literaturverzeichnis

- [1] ANDO, M., R. FRAHM und G. WILLIAMS (EDS.): *Focus on X-ray Microscopy*. Synchrotron Radiation News, 16(3), 2003.
- [2] ANTOINE, P., A. L'HUILLIER und M. LEWENSTEIN: *Attosecond pulse trains using high-order harmonics*. Phys. Rev. Lett., 77(7):1234, 1996.
- [3] ATTWOOD, D.: *Soft X-rays and Extreme Ultraviolet Radiation*. Cambridge University Press, Cambridge, 1999.
- [4] BALTUSKA, A., TH. UDEM, M. UIBERACKER, M. HENTSCHEL, E. GOULIELMAKIS, CH. GOHLE, R. HOLZWARTH, V. S. YAKOVLEV, A. SCINZI, T. W. HÄNSCH und F. KRAUSZ: *Attosecond control of electronic processes by intense light fields*. Nature, 421:611, 2003.
- [5] BARTELS, R. A., A. PAUL, H. GREEN, H. C. KAPTEYN, M. M. MURNANE, S. BACKUS, I. P. CHRISTOV, Y. LIU, D. ATTWOOD und C. JACOBSEN: *Generation of Spatially Coherent Light at Extreme Ultraviolet Wavelengths*. Science, 297:376, 2002.
- [6] BAUER, M., K. LEI, C. ANDREAD, R. TOBEY, J. GLAND, M. M. MURNANE und H. C. KAPTEYN: *Direct Observation of Surface Chemistry Using Ultrafast Soft-X-Ray Pulses*. Phys. Rev. Lett., 87(2):5501–1, 2001.
- [7] BECKER, W., S. LONG und J. K. MCIVER: *Higher-harmonic production in a model atom with short-range potential*. Phys. Rev. A, 41(7):4112, 1990.
- [8] BECK, M., U. VOGT, I. WILL, A. LIERO, H. STIEL, W. SANDNER und T. WILHEIN: *A pulse-train laser driven XUV-source for picosecond pump-probe experiments in the water window*. Opt. Comm., 190:317, 2001.
- [9] BENDER, S.: *Strukturaufklärung amorpher Festkörper mittels Röntgenabsorptionsspektroskopie im Nahkantenbereich*. Dissertation, Physikalisches Institut, Universität Bonn, 1999.
- [10] BERGLUND, M., L. RYMELL, M. PEUKER, T. WILHEIN und H. M. HERTZ: *Compact water window x-ray microscopy*. J. Micr., 197:268, 2000.
- [11] BONSE, J., S. BAUDACH, J. KRÜGER, W. KAUTEK und M. LENZNER: *Femtosecond laser ablation of silicon-modification thresholds and morphology*. Appl. Phys. A, 74:19, 2002.
- [12] BORN, M. und E. WOLF: *Principles of optics*. Cambridge University Press, Cambridge, 6. Auflage, 1980.
- [13] BRABEC, T. und F. KRAUSZ: *Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics*. Rev. Mod. Phys., 72(2):545, 2000.
- [14] BURNETT, N. H., C. KAN und P. B. CORKUM: *Ellipticity and polarization effects in harmonic generation in ionizing neon*. Phys. Rev. A, 51(5):R4318, 1995.
- [15] CENTER FOR X-RAY OPTICS, BERKELEY: *Multilayer Reflectivity*. <http://www-cxro.lbl.gov/optical.constants/multi2.html>, 2003.

- [16] CENTER FOR X-RAY OPTICS, BERKELEY: *X-ray Interactions with Matter*. http://www-crxo.lbl.gov/optical_constants/, 2003.
- [17] CHANG, C., E. ANDERSON, P. NAULLEAU, E. GULLIKSON, K. GOLDBERG und D. ATTWOOD: *Direct measurement of index of refraction in the extreme-ultraviolet wavelength region with a novel interferometer*. *Opt. Lett.*, 27(12):1028, 2002.
- [18] CHANG, C., P. NAULLEAU, E. ANDERSON und D. ATTWOOD: *Spatial coherence characterization of undulator radiation*. *Opt. Comm.*, 182:25, 2000.
- [19] CHANG, Z., A. RUNDQUIST, H. WANG, M. M. MURNANE und H. C. KAPTEYN: *Generation of coherent soft x-rays at 2.7nm using high harmonics*. *Phys. Rev. Lett.*, 79(16):2967, 1997.
- [20] CHEN, J. M., J. K. SIMONS, K. H. TAN und R. A. ROSENBERG: *Correlation between interatomic distances and the x-ray-absorption near-edge structure of single-crystal sapphire*. *Phys. Rev. B*, 48(14):10047, 1993.
- [21] CHRISTOV, I. P., M. M. MURNANE und H. C. KAPTEYN: *High-harmonic generation of attosecond pulses in the 'single-cycle' regime*. *Phys. Rev. Lett.*, 78(16):1251, 1997.
- [22] CONSTANT, E., D. GARZELLA, P. BREGER, E. MÉVEL, CH. DORRER, C. LE BLANC, F. SALIN und P. AGOSTINI: *Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment*. *Phys. Rev. Lett.*, 82(8):1668, 1999.
- [23] CORKUM, P. B.: *Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization*. *Phys. Rev. Lett.*, 71(13):1994, 1993.
- [24] CORKUM, P. B., N. H. BURNETT und M. Y. IVANOV: *Subfemtosecond pulses*. *Opt. Lett.*, 19(22):1870, 1994.
- [25] DAIDO, H.: *Review of soft x-ray laser researches and development*. *Rep. Prog. Phys.*, 65:1513, 2002.
- [26] DAVID, C., B. NÖHAMMER und H. SOLAK: *Differential x-ray phase contrast imaging using shearing interferometry*. *Appl. Phys. Lett.*, 81(17):3287, 2002.
- [27] DAVIS, K. B., M.-O. MEWES, M. R. ANDREWS, N. J. VAN DRUTEN, D. S. DURFEE, D. M. KURN und W. KETTERLE: *Bose-Einstein Condensation in a Gas of Sodium Atoms*. *Appl. Phys. Lett.*, 75(22):3969, 1995.
- [28] DELMOTTE, F., M.-F. RAVET, F. BRIDOU, F. VARNIÈRE, P. ZEITOUN, S. HUBERT, L. VANBOSTAL und G. SOULLIE: *X-ray-ultraviolet beam splitters for the Michelson interferometer*. *Appl. Opt.*, 41(28):5905, 2002.
- [29] DESCAMPS, D., C. LYNGÅ, J. NORIN, A. L'HUILLIER, C.-G. WAHLSTRÖM, J.-F. HERGOTT, H. MERDJI, P. SALIÈRES, M. BELLINI und T. W. HÄNSCH: *Extreme ultraviolet interferometry measurements with high-order harmonics*. *Opt. Lett.*, 25(2):135, 2000.
- [30] DI FABRIZIO, E., D. COJOC, S. CABRINI, B. KAULICH, J. SUSINI, P. FACCI und T. WILHEIN: *Diffractive optical elements for differential interference contrast x-ray microscopy*. *Opt. Expr.*, 11(19):2278, 2003.
- [31] DITMIRE, T., T. DONELLY, A. M. RUBENCHIK, R. W. FALCONE und M. D. PERRY: *Calculation and Measurement of High Order Harmonic Conversion Yields in Helium*. *J. Opt. Soc. Am. A*, 13(3):406, 1996.

- [32] DITMIRE, T., E. T. GUMBRELL, R. A. SMITH, J. W. G. TISCH, D. D. MEYERHOFER und M. H. R. HUTCHINSON: *Spatial coherence measurement of soft x-ray radiation produced by high order harmonic generation*. Phys. Rev. Lett., 77(23):4756, 1996.
- [33] DITMIRE, T., D. D. MEYERHOFER, J. W. G. TISCH, R. A. SMITH, E. T. GUMBRELL und M. H. R. HUTCHINSON: *Spatial coherence of short wavelength high-order harmonics*. Applied Phys. B, 65:313, 1997.
- [34] DOWNER, M. C. und C. V. CHANK: *Ultrafast heating of silicon on sapphire by femtosecond optical pulses*. Phys. Rev. Lett., 56:761, 1986.
- [35] DRESCHER, M., M. HENTSCHEL, R. KIENBERGER, G. TEMPEA, CH. SPIELMANN, G. A. REIDER, P. B. CORKUM und F. KRAUSZ: *X-ray pulses approaching the attosecond frontier*. Science, 291:1923, 2001.
- [36] DRESCHER, M., P. SIFFALOVIC, M. SPIEWECK und U. HEINZMANN: *Applicability of monochromatized high harmonic extended ultraviolet radiation for inner-shell photoelectron spectroscopy*. J. Elec. Spec. Rel. Phen., 127(1-2):103, 2002.
- [37] FILEVICH, J., K. KANIZAY, M. C. MARCONI und J. J. CHILLA, J. L. A. ROCCA: *Dense plasma diagnostics with an amplitude division soft-x-ray laser interferometer based on diffraction gratings*. Opt. Lett., 25(5):356, 2000.
- [38] FILEVICH, J., J. J. ROCCA, E. JANKOWSKA, E. C. HAMMARSTEN, K. KANIZAY, M. C. MARCONI, S. J. MOON und V. N. SHLYAPTSEV: *Two-dimensional effects in laser-created plasmas measured with soft-x-ray laser interferometry*. Phys. Rev. E, 67:056409, 2003.
- [39] FLETTNER, A., J. GÜNTHER, M. B. MASON, U. WEICHMANN, R. DÜREN und G. GERBER: *High harmonic generation at 1 kHz repetition rate with a pulsed valve*. Appl. Phys. B, 73:129, 2001.
- [40] FRÜKE, R.: *RheinAhrCampus Remagen, Fachhochschule Koblenz*. private Mitteilung, 2003.
- [41] GASKILL, J. D.: *Linear Systems, Fourier Transforms, and Optics*. Wiley&Sons, New York, 1978.
- [42] GIBSON, E. A., A. PAUL, N. WAGNER, R. TOBEY, D. GAUDIOSI, S. BACKUS, I. P. CHRISTOV, A. AQUILA, E. M. GULLIKSON, D. T. ATTWOOD, M. M. MURNANE und H. C. KAPTEYN: *Coherent Soft X-ray Generation in the Water Window with Quasi-Phase Matching*. Science, 302:95, 2003.
- [43] GOULIELMAKIS, E., G. NERSISYAN, N. A. PAPADOGIANNIS, D. CHARALAMBIDIS, G. D. TSAKIRIS und K. WITTE: *A dispersionless Michelson interferometer for the characterization of attosecond pulses*. Appl. Phys. B, 74:197, 2002.
- [44] HAKEN, H.: *Molekülphysik und Quantenchemie*. Springer, Berlin, 3. Auflage, 1998.
- [45] HAMBACH, D.: *Elektronenstrahlolithographische Herstellung von Reflexionszonenplatten für die Plasmadiagnostik im weichen Röntgenbereich*. Diplomarbeit, Institut für Röntgenphysik, Georg-August-Universität Göttingen, 1997.
- [46] HELL, S. W.: *Toward fluorescence nanoscopy*. Nature Biotechnology, 21(11):1347, 2003.
- [47] HENKE, B. L., E. M. GULLIKSON und J. C. DAVIS: *X-ray interactions: photoabsorption, scattering, transmission and reflection at $E=50-30000$ eV, $Z=1-92$* . At. Data and Nucl. Data Tables, 54:181, 1993.

- [48] HENTSCHEL, M., R. KIENBERGER, CH. SPIELMANN, G. A. REIDER, N. MILOSEVIC, T. BRABEC, P. CORKUM, U. HEINZMANN, M. DRESCHER und F. KRAUSZ: *Attosecond metrology*. Nature, 414:551, 2001.
- [49] HUTCHINSON, I. H.: *Principles of Plasma Diagnostics*. Cambridge University Press, Cambridge, 1987.
- [50] JACOBSEN, C., S. WILLIAMS, E. ANDERSON, M. T. BROWNE, C. J. BUCKLEY, D. KERN, J. KIRZ, M. RIVERS und X. ZHANG: *Diffraction-limited imaging in a scanning transmission x-ray microscope*. Opt. Comm., 86:351, 1991.
- [51] JOHANSSON, G. A., A. HOLMBERG, H. M. HERTZ und M. BERGLUND: *Design and performance of a laser-plasma-based compact soft x-ray microscope*. Rev. Sci. Instr., 73(3):1193, 2002.
- [52] JOYEUX, D., F. POLACK und D. PHALIPPOU: *An interferometric determination of the refractive part of optical constants for carbon and silver across soft x-ray absorption edges*. Rev. Sci. Instr., 70(7):2921, 1999.
- [53] KÁLMÁN, P.: *Hindering effect of an intense laser field in near-absorption-edge laser-assisted x-ray absorption*. Phys. Rev. A, 39:3200, 1989.
- [54] KIENBERGER, R.: *Sub-Femtosecond XUV Pulse Generation and Measurement*. Dissertation, Institut für Photonik, Technische Universität Wien, 2002.
- [55] KIENBERGER, R., M. HENTSCHEL, M. UIBERACKER, CH. SPIELMANN, M. KITZLER, A. SCINZI, M. WIELAND, U. KLEINEBERG, U. HEINZMANN, M. DRESCHER und F. KRAUSZ: *Steering Attosecond Electron Wave Packages with Light*. Science, 297:1144, 2002.
- [56] KLEINEBERG, U.: *Institut für Oberflächen- und Molekülphysik, Universität Bielefeld, Bielefeld*. private Mitteilung, 2003.
- [57] KLEINEBERG, U., D. MENKE, F. HAMELMANN, U. HEINZMANN, O. SCHMIDT, G. H. FECHER und G. SCHÖNHENSE: *Photoemission microscopy with microspot-XPS by use of undulator radiation and a high-throughput multilayer monochromator at BESSY*. J. Elec. Spec. Rel. Phen., 101-103:931, 1999.
- [58] KOBAYASHI, Y., T. OHNO, T. SEKIKAWA, NABEKAWA Y. und S. WATANABE: *Pulse width measurement of high-order harmonics by autocorrelation*. Appl. Phys. B, 70:389, 2000.
- [59] KONDO, K., N. SARAKURA, K. SAJIKI und S. WATANABE: *High-order harmonic generation by ultrashort KrF and Ti:sapphire lasers*. Phys. Rev. A, 47(4):2480, 1993.
- [60] KOVAČEV, M., Y. MAIRESSE, E. PRIORI, H. MERDJI, O. TCHERBAKOFF, P. MONCHICOURT, P. BREGER, E. MÉVEL, E. CONSTANT, P. SALIÈRES, B. CARRÉ und P. AGOSTINI: *Temporal confinement of the harmonic emission through polarization gating*. Eur. Phys. J. D, 26:79, 2003.
- [61] KRAUSE, J. L., K. J. SCHAFFER und K. C. KULANDER: *High-Order Harmonic Generation from Atoms and Ions in the High Intensity Regime*. Phys. Rev. Lett, 68:3535, 1992.
- [62] KRAUSE, M. O.: *Atomic Radiative and Radiationless Yields for K and L-Shells*. J. Phys. Chem. Ref. Data, 8:307, 1979.
- [63] LE DÉROFF, L., P. SALIÈRES, B. CARRÉ, D. JOYEUX und D. PHALIPPOU: *Measurement of the degree of spatial coherence of high-order harmonics using a Fresnel-Mirror interferometer*. Phys. Rev. A, 61:3802–1, 2000.

- [64] LEE, D. G., J. J. PARK, J. H. SUNG und C. N. NAM: *Wave-front phase measurement of high-order harmonics beams by use of point-diffraction interferometry*. Opt. Lett., 28(6):480, 2003.
- [65] LENGLER, B.: *Linsensysteme für Röntgenstrahlung*. Spektrum der Wissenschaft, 4:25, 1997.
- [66] LEWENSTEIN, M., PH. BALCOU, M. YU. IVANOV, A. L'HUILLIER und P. B. CORKUM: *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*. Phys. Rev. A, 49(3):2117, 1994.
- [67] L'HUILLIER, A. und P. BALCOU: *High order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser*. Phys. Rev. Lett., 70(6):774, 1993.
- [68] L'HUILLIER, A., P. BALCOU und L. A. LOMPRÉ: *Coherence and resonance effects in high-order harmonic generation*. Phys. Rev. Lett., 68(2):166, 1992.
- [69] L'HUILLIER, A., M. LEWENSTEIN, P. SALIÈRES, P. BALCOU, J. LARSSON und C.-G. WAHLSTRÖM: *High-order Harmonic-generation cutoff*. Phys. Rev. A, 48:R3433, 1993.
- [70] L'HUILLIER, A., K. J. SCHAFER und K.C. KULANDER: *High-order harmonic generation in Xenon at 1064nm: The role of phase matching*. Phys. Rev. Lett., 66(17):2200, 1991.
- [71] LINDE, D. VON DER und K. RZĄZEWSKI: *High-order optical harmonic generation from solid surfaces*. Appl. Phys. B, 63:499, 1996.
- [72] LINDE, D. VON DER und K. SOKOŁOWSKI-TINTEN: *X-ray Diffraction Experiments with Femtosecond Time Resolution*. J. Mod. Opt., 50:683, 2003.
- [73] MACKLIN, J. J., J. D. KMETEC und C. L. GORDON: *High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses*. Phys. Rev. Lett., 70:766, 1993.
- [74] MICHETTE, A.G.: *Optical Systems for soft X-Rays*. Plenum Press, New York, London, 1986.
- [75] MURTY, M. V. R. K.: *Common-Path Interferometry using Fresnel Zone-Plates*. J. Opt. Soc. Am., 53(5):568, 1962.
- [76] NAKANO, H., Y. GOTO, P. LU, T. NISHIKAWA und N. UESUGI: *Time-resolved soft x-ray absorption spectroscopy of silicon using femtosecond laser plasma x-rays*. Appl. Phys. Lett., 75(16):2350, 1999.
- [77] NIEMANN, B., D. RUDOLPH und G. SCHMAHL: *Soft X-ray imaging zone plates with large zone numbers for microscopic and spectroscopic applications*. Opt. Comm., 12(2):160, 1974.
- [78] NIEMANN, B., D. RUDOLPH und G. SCHMAHL: *X-Ray Microscopy with synchrotron radiation*. Applied Optics, 15:1886, 1976.
- [79] NISOLI, M., E. PRIORI, G. SANSONE, S. STAGIRA, G. CERULLO, S. DE SILVESTRI, C. ALTUCCI, R. BRUZZESE, C. DE LISIO, P. VILLORESI, L. POLETTI, M. PASCOLINI und G. TONDELLO: *The role of beam profile in high-order harmonic generation by few-optical-cycle pulses*. Appl. Phys. B, 74(Suppl.):S11, 2002.
- [80] NISOLI, M., S. STAGIRA, S. DE SILVESTRI, O. SVELTO, S. SARTANIA, Z. CHENG, M. LENZNER, CH. SPIELMANN und F. KRAUSZ: *A novel-high energy pulse compression system: generation of multigigawatt sub-5-fs pulses*. Appl. Phys. B, 65:189, 1997.
- [81] NUGENT-GLANDORF, L., M. SCHEER, D. A. SAMUELS, V. BIERBAUM und S. R. LEONE: *A laser-based instrument for the study of ultrafast chemical dynamics by soft x-ray-probe photoelectron spectroscopy*. Rev. Sci. Instrum., 73(4):1875, 2002.

- [82] NUGENT-GLANDORF, L., M. SCHEER, D. A. SAMUELS, A. M. MULHISEN, E. R. GRANT, X. YANG, V. BIERBAUM und S. R. LEONE: *Ultrafast time-resolved soft x-ray photoelectron spectroscopy of dissociating Br₂*. Phys. Rev. Lett., 87(19):193002–1, 2001.
- [83] PAUL, A. A., R. A. BARTELS, R. TOBEY, H. GREEN, S. WEIMAN, I. P. CHRISTOV, M. M. MURNANE, H. C. KAPTEYN und S. BACKUS: *Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light*. Nature, 421:51, 2003.
- [84] PAUL, P. M., E. S. TOMA, P. BREGER, G. MULLOT, F. AUGÉ, PH. BALCOU, H. G. MULLER und P. AGOSTINI: *Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation*. Science, 292:1689, 2001.
- [85] POHL, M.: *Aufbau und Charakterisierung einer Undulatorbeamline bei BESSY II für EUV-Photoemissionsmikroskopie an organischen Nanoschichten und Nanoinseln auf Silizium*. Dissertation, Fakultät für Physik, Universität Bielefeld, 2002.
- [86] POLACK, F., D. JOYEUX, J. SVATOŠ und D. PHALIPPOU: *Applications of wavefront division interferometers in soft x-rays*. Rev. Sci. Instr., 66(2):2180, 1995.
- [87] PROXITRONIC: *Phosphor screens and image sensifiers*. <http://www.proxitronic.de>, 2003.
- [88] ROCCA, J. J.: *Table-top soft x-ray lasers*. Rev. Sci. Instr., 70(10):3799, 1999.
- [89] RUDOLPH, W. und J.-C. DIELS: *Ultrashort laser pulse phenomena*. Academic Press, San Diego, 1999.
- [90] RUNDQUIST, A., C. G. DURFEE, Z. CHANG, C. HERNE, S. BACKUS, M. M. MURNANE und H. C. KAPTEYN: *Phase-matched generation of coherent soft x-rays*. Science, 280:1412, 1998.
- [91] SALIÈRES, P., A. L'HUILLIER, P. ANTOINE und M. LEWENSTEIN: *Study of the spatial and temporal coherence of high order harmonics*. Adv. At., Mol., Opt. Phys., 41:83, 1999.
- [92] SALIÈRES, P., A. L'HUILLIER und M. LEWENSTEIN: *Coherence Control of High-Order Harmonics*. Phys. Rev. Lett., 74(19):3776, 1995.
- [93] SCHÄFERS, F.: *Multilayers for the EUV/soft X-ray range*. Physica B, 283:119, 2000.
- [94] SCHMAHL, G., D. RUDOLPH, P. GUTTMANN, G. SCHNEIDER, J. THIEME und B. NIEMANN: *Phase contrast studies of biological specimens with the X-ray microscope at BESSY*. Rev. Sci. Instr., 66(2):1282, 1985.
- [95] SCHNEIDER, G., G. DENBEAUX, E. ANDERSON, B. BATES, A. PEARSON, M. MEYER, E. ZECH, D. HAMBACH und E. STACH: *Dynamical X-ray microscopy investigation of electromigration in passivated inlaid Cu interconnect structures*. Appl. Phys. Lett., 81:2535, 2002.
- [96] SCHNÜRER, M., Z. CHENG, M. HENTSCHEL, F. KRAUSZ., T. WILHEIN, D. HAMBACH, G. SCHMAHL, M. DRESCHER, Y. LIM und U. HEINZMANN: *Few-cycle driven XUV laser harmonics: generation and focussing*. Appl. Phys. B., 70 (Suppl.):227, 2000.
- [97] SCHNÜRER, M., Z. CHENG, M. HENTSCHEL, G. TEMPEA, P. KÁLMÁN, T. BRABEC und F. KRAUSZ: *Absorption limited generation of coherent ultrashort soft x-ray pulses*. Phys. Rev. Lett., 83(4):722, 1999.
- [98] SCHNÜRER, M., CH. SPIELMANN, P. WOBRAUSCHEK, C. STRELI, N.H. BURNETT, C. KAN, P. WOBRAUSCHEK, K. FERENC, R. KOPPITSCH, Z. CHENG, T. BRABEC und F. KRAUSZ: *Coherent 0.5 keV X-Ray Emission from Helium Driven by a Sub-10-fs-Laser*. Phys. Rev. Lett., 80(15):3236, 1998.

- [99] SCHNÜRER, M., C. STRELI, P. WOBRAUSCHEK, M. HENTSCHEL, R. KIENBERGER, CH. SPIELMANN und F. KRAUSZ: *Femtosecond X-ray fluorescence*. Phys. Rev. Lett., 85:3392, 2000.
- [100] SCHOENLEIN, R. W., S. CHATTOPADHYAY, H. H. W. CHONG, T. E. GLOVER, P. A. HEIMANN, C. V. SHANK, A. A. ZHOLENTS und M. S. ZOLOTAREV: *Generation of Femtosecond Pulses of Synchrotron Radiation*. Science, 287:2237, 2000.
- [101] SCHULZE, D., M. DÖRR, G. SOMMERER, J. LUDWIG, P. V. NICKLES, T. SCHLEGEL, W. SANDNER, M. DRESCHER, U. KLEINEBERG und U. HEINZMANN: *Polarization of the 61st harmonic from 1053-nm radiation in neon*. Phys. Rev. A, 57(4):3003, 1998.
- [102] SEKIKAWA, T., T. YAMAZAKI, Y. NABEKAWA und S. WATANABE: *Femtosecond lattice relaxation induced by inner-shell excitation*. J. Opt. Soc. Am. B, 19:1941, 2002.
- [103] SHIN, H. J., D. G. LEE, Y. H. CHA, K. H. HONG und C. N. NAM: *Generation of Nondiabatic Blueshift of High Harmonics in an Intense Femtosecond Laser Field*. Phys. Rev. Lett., 83(13):2544, 1999.
- [104] SHIN, H. J., D. G. LEE, Y. H. CHA, J.-H. KIM, K. H. HONG und C. N. NAM: *Nondiabatic blueshift of high-order harmonics from Ar and Ne atoms in an intense femtosecond laser field*. Phys. Rev. A, 63(5):3407–1, 2001.
- [105] SIFFALOVIC, P., M. DRESCHER, M. SPIEWECK, T. WIESENTHAL, Y. C. LIM, R. WEIDNER, A. ELIZAROV und U. HEINZMANN: *Laser-based Apparatus for Extended Ultraviolet Femtosecond Time-resolved Photoemission Spectroscopy*. Rev. Sci. Instr., 72:30, 2001.
- [106] SMARTT, R. N.: *Zone plate interferometer*. Appl. Opt., 13(5):1093, 1974.
- [107] SNIGIREV, A., V. KOHN, I. SNIGIREVA und B. LENGELER: *A compound refractive lens for focusing high-energy X-rays*. Nature, 384:49, 1996.
- [108] SORET, J.: *Über die durch Kreisgitter erzeugten Diffraktionsphänomene*. Annalen der Physik und Chemie, 156:99, 1875.
- [109] SPIELMANN, CH.: *Physikalisches Institut EP1, Fakultät für Physik, Universität Würzburg*. private Mitteilung, 2003.
- [110] SPIELMANN, CH., N. H. BURNETT, S. SARTANIA, R. KOPPITSCH, M. SCHNÜRER, C. KAN, M. LENZNER, P. WOBRAUSCHEK und F. KRAUSZ: *Generation of Coherent X-rays in the Water Window Using 5-Femtosecond Laser Pulses*. Science, 278:661, 1997.
- [111] SPILLER, E.: *Soft x-ray optics*. SPIE Optical Engineering Press, Bellingham, 1994.
- [112] STEEL, W. H.: *Interferometry*. Cambridge Studies in Modern Optics 1. Cambridge University Press, Cambridge, 2nd Auflage, 1987.
- [113] STEVENS, R. F.: *Zone-Plate Interferometers*. J. Mod. Opt., 35:75, 1988.
- [114] STOEHR, J.: *NEXAFS-Spectroscopy*. Springer, Berlin, 1996.
- [115] SZIPÖCS, R., K. FERENC, CH. SPIELMANN und F. KRAUSZ: *Chirped multilayer coatings for broadband dispersion control in femtosecond lasers*. Opt. Lett., 19(3):201, 1994.
- [116] THIEME, J.: *Beugungstheoretische Rechnungen zu den Abbildungseigenschaften von Zonenplattens in der Röntgenmikroskopie*. Dissertation, Institut für Röntgenphysik, Georg-August-Universität Göttingen, 1988.

- [117] THOMSEN, B. und E. WOLF: *Two-beam interference with partially coherent light*. J. Opt. Soc. Am., 46(10):895, 1957.
- [118] THOMSON, A. C. und D. VAUGHAN (EDS.): *X-Ray Data Booklet*. Lawrence Berkeley National Laboratory, Berkeley, California, 2001.
- [119] TSILIMIS, G., J. KUTZNER und H. ZACHARIAS: *Photoemission study of clean and c(4×2)-2CO covered Pt (111) using high-harmonic radiation*. Appl. Phys. A, 76:743, 2003.
- [120] VALENTIN, C., D. DOUILLET, S. KAZAMIAS, TH. LEFROU, G. GRILLON, F. AUGÉ, G. MULLOT, PH. BALCOU, P. MERCÈRE und PH. ZEITOUN: *Imaging and quality assessment of high-harmonic focal spots*. Opt. Lett., 28(12):1049, 2003.
- [121] VISSER, M., R. CONSTANTINESCU, P. HEGEMAN, J. JONKERS, M. DEKKER, E. LOUIS und D. HAMBACH: *A shearing interferometer to characterize EUV optics with a laser plasma source*. Proc. Spie, 3997:733, 2000.
- [122] WILHEIN, T.: *Gedünnte CCDs: Charakterisierung und Anwendungen im Bereich weicher Röntgenstrahlung*. Dissertation, Institut für Röntgenphysik, Georg-August-Universität Göttingen, 1994.
- [123] WILHEIN, T., D. ALTENBERND, U. TEUBNER, E. FÖRSTER, R. HÄSSNER, W. THEOBALD und R. SAUERBREY: *X-ray brilliance measurements of a subpicosecond laser plasma using an off-axis reflection zone plate*. J. Opt. Soc. Am., 15:1235, 1998.
- [124] WILHEIN, T., D. HAMBACH, B. NIEMANN, M. BERGLUND, L. RYMELL und H. M. HERTZ: *Off-axis reflection zone plate for quantitative soft x-ray source characterization*. Appl. Phys. Lett., 71:190, 1997.
- [125] WILHEIN, T., B. KAULICH, E. DI FABRIZIO, F. ROMANATO, S. CABRINI und J. SUSINI: *Differential interference contrast x-ray microscopy with submicron resolution*. Appl. Phys. Lett., 78(14):2082, 2001.
- [126] WILHEIN, T., B. KAULICH und J. SUSINI: *Two zone plate interference contrast microscopy at 4 keV photon energy*. Opt. Comm., 193:19, 2001.
- [127] WILHEIN, T., S. REHBEIN, D. HAMBACH, M. BERGLUND, L. RYMELL und H. M. HERTZ: *A slit grating spectrograph for quantitative soft x-ray spectroscopy*. Rev. Sci. Instr., 70(3):1694, 1999.
- [128] ZEWAIL, A. H.: *Femtochemistry: Atomic-scale dynamics of the chemical bond using ultrafast lasers*. J. Phys. Chem., 104:5660, 2000. adapted from the Nobel lecture.

Dankeschön

An dieser Stelle gilt mein herzlichster Dank all denen, die zur erfolgreichen Umsetzung dieser Arbeit einen großen oder auch kleinen Teil beigetragen haben. Letztendlich wäre ohne die zahlreich helfenden Hände und Köpfe nur ein Bruchteil der geschilderten Arbeit möglich gewesen. Insbesondere möchte ich mich bedanken bei:

- Prof. Dieter Meschede für die herzliche Aufnahme als „Externer“ in seine Arbeitsgruppe und die stete Zuversicht in den Erfolg meiner Arbeit.
- Prof. Thomas Wilhein für die sehr persönliche fachliche Betreuung inklusive diverser Exkursionen in die Tiefen und Geheimnisse der Fourier-Optik.
- Uli Vogt und Rolf Früke als Mitstreiter der Arbeitsgruppe in Remagen im alltäglichen Kampf gegen die vielen kleinen und großen Probleme.
- Martin Pohl für die gemeinsamen Messzeiten in Wien und an BESSY II und die Wahrheit über Lebkuchen.
- Prof. Christian Spielmann für die tolle Zusammenarbeit und das ein oder andere vorzügliche Essen vom eigenen Herd.
- PD Ulf Kleineberg für die vielen Diskussionen rund um Harmonische und Co.
- Prof. Ferenc Krausz für die stete Unterstützung der Experimente in Wien.
- den Atto-Boys für das Schrauben am Laser und dem Zaubern der Harmonischen.
- Jochen Herbst für die fortlaufende Versorgung mit Folien jeglicher Art auch noch weit in der Ferne und Daniel Weinreich für die Anfertigung der diffraktiven Optiken.
- allen Mitarbeitern des RheinAhrCampus in Remagen für die Unterstützung in vielen Dingen, besonderer Dank geht an die mechanische und elektronische Werkstatt, die so manche Idee in die Tat umgesetzt hat.
- den fleissigen Korrektur-LeserInnen des Manuskriptes.