

# Elektronendynamik in fokussierten Einzelzyklenpulsen

## **Dissertation**

zur Erlangung des akademischen Grades  
*doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)*

vorgelegt dem  
Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät  
der Friedrich-Schiller-Universität Jena

von Dipl.-Phys. **Dominik Hoff**  
geboren am 11. November 1982 in Sundern

**Gutachter:**

1. Prof. Dr. Dr. h.c. habil. Gerhard Paulus  
*IOQ - FSU Jena*
2. Prof. Dr. rer. nat. Jochen Küpper  
*The Hamburg Center for Ultrafast Imaging - Universität Hamburg*
3. Prof. Dr. rer. nat. Jens Limpert  
*Institut für Angewandte Physik - FSU Jena*

**Tag der Disputation:** 15.05.2019

# Zusammenfassung

Diese Arbeit untersucht die lichtgetriebene Elektronen-Rückstreuung an atomaren Gasen und Metallnanospitzen in fokussierten Einzelzyklen-Laserpulsen. Dabei wird sich insbesondere auf die Erforschung der Phasenentwicklung von Einzelzyklenpulsen während der Fokussierung konzentriert. Ermöglicht wird die Messung durch die Verwendung von Elektronen aus einer Wolfram-Nanospitze als Sonde für das elektrische Feld. Mit der Einsicht in die Entwicklung des elektrischen Feldes im Fokus konnten die Unterschiede zwischen dem Edelgas Xenon und Nanospitzen aus Wolfram und Gold verstanden werden.

Um diese sehr schnell ablaufenden Prozesse untersuchen zu können, bedient man sich ultrakurzer Laserpulse, welche nur noch aus wenigen ( $< 2$ ) optischen Wellen-Zyklen bestehen. Bei derartig kurzen Pulsen wird es wichtig, welche relative Lage die optische Trägerwelle zu ihrer Einhüllenden hat. Die Größe, mit der sich diese Lage ausdrücken lässt, wird als Träger-Einhüllende Phase bezeichnet und ist dafür verantwortlich, wie die Elektronenbeschleunigung abläuft. Kann man diese Phase kontrollieren, so eignet sie sich also auch dazu, diesen Prozess zu steuern. In bisherigen Experimenten war es schwierig, diese Größe am Ort der Licht-Materie-Wechselwirkung tatsächlich zu bestimmen, sodass nur relative Phasenabhängigkeiten angegeben werden konnten. Als Grundlage für die hier untersuchten Phänomene wurde daher im Zuge dieser Arbeit erstmals eine Methode entwickelt und angewendet, mit der sich, über eine Vergleichsmessung, Erkenntnis über die Träger-Einhüllende Phase am Ort der Wechselwirkung gewinnen lässt. Dazu wurde die Phasenabhängigkeit der Photoelektronenspektren von Xenon mit der von atomarem Wasserstoff verglichen. Letztere lässt sich auch über numerische *ab-initio* Berechnungen ermitteln und ermöglicht so eine Kalibrierung. Durch das Wissen über diese Abhängigkeit in Xenon-Spektren, kann man das Gas als einen Maßstab verwenden, der sich verhältnismäßig leicht in anderen Messauf-

bauten nutzen lässt. Als Anwendungsbeispiel werden weitere Elektronenspektren von Argon und Krypton gezeigt.

Da sich die Träger-Einhüllende Phase im Bereich der Fokussierung ändert, ist es notwendig deren Verlauf zu kennen, um einen lokal stattfindenden Prozess einordnen zu können. Mit Metallnanospitzen als stark lokalisierten Elektronenemittern wird dazu gezeigt, dass diese ein exzellentes Werkzeug sind, um quantitative Untersuchungen der Fokussierung des elektrischen Feldes von Einzelzyklenpulsen durchzuführen. Dazu wurde erstmals ein weiter Bereich des Fokus gescannt, bei dem lokal in weiten Teilen des Fokus die Träger-Einhüllende Phase bestimmt werden konnte, also ohne sich nur auf die optische Achse oder ein volumengemitteltes Signal zu beschränken. Dabei wurden deutliche Abweichungen von dem lange Zeit angenommenen arcustangens-förmigen Verlauf von monochromatischem Licht auf der optischen Achse festgestellt, wie er durch Gouy beschrieben wurde. Das Verhalten der Pulse wird mit einem analytisch gerechneten Modell von Porras gut reproduziert und lässt sich auf die spektrale Geometrie des Strahls zurückführen. Diese Geometrie ist eine experimentell gut zugängliche Eigenschaft des Strahls und kann genutzt werden, um das Fokussierverhalten abzuschätzen. Das Wissen über den Zusammenhang von Eingangsstrahleigenschaften und Fokussierverhalten ermöglicht zukünftig eine bessere Interpretation und ein besseres Design von Licht-Materie-Wechselwirkungen.

Mit dieser gewonnenen Einsicht wird die Elektronen-Rückstreuung an zwei Metallnanospitzen aus Wolfram und Gold hinsichtlich der dort stattfindenden Phasenverschiebung quantifiziert. Es zeigt sich, dass die beobachteten Verschiebungen auf die Unterschiede im Ionisationspotential der verschiedenen Spezies zurückgeführt werden können und bei den Metallnanospitzen der Effekt des optischen Nahfeldes eine zusätzliche Verschiebung verursacht.

# Abstract

## **Electron dynamics in focused few-cycle laser pulses**

This work investigates light-driven electron re-scattering from atomic gases and metal nanotips in focused few-cycle laser pulses. In particular, the work concentrates on the investigation of the evolution of the electric field of few-cycle pulses during focussing. Electrons emitted from a Tungsten nanotip are used to probe the electric field. With this insight the differences between the noble gas Xenon and nanotips made of Tungsten and Gold can be understood.

To measure such fast processes, ultra-short laser pulses consisting of merely a few optical cycles ( $< 2$ ) are employed. When dealing with pulses as short as this, the relative position between the optical carrier wave and envelope becomes important. This value is called the carrier-envelope phase and is responsible for how the re-scattering takes place. Having control over this phase means being able to control the re-scattering process. As determining this value at the site of interaction is extremely difficult, measurements have been almost exclusively determining the “relative” carrier-envelope phase dependence, i.e. the effects of the change in carrier-envelope phase without an absolute reference. As examination of the phenomena investigated herein requires a knowledge of the “absolute” carrier-envelope phase, a method for determining this value is proposed and implemented. To this end, the phase dependencies of the photo-electron spectra of Xenon are compared to those of atomic Hydrogen, which can in turn be calibrated with ab initio calculations. This insight makes it possible to use the relatively easy determination of the carrier-envelope phase dependence of Xe-spectra as a ruler in other measurements. For instance, further photo electron spectra of Argon and Krypton are shown.

Because the carrier-envelope phase shifts through the focus it is necessary to

know these changes in order to understand local interactions. The metal nanotip, being an extremely localized electron emitter, serves splendidly as a tool to quantify the focussing of the electric field of few-cycle pulses. For the first time the carrier-envelope phase of a wide range of the focus, both on and off axis, was scanned without complications from volume averaging. Significant deviations from the often assumed arcustangent-shaped evolution described previously by Gouy on the optical axis for the monochromatic case were observed. The behaviour is well reproduced with an analytic model calculated by Porras and can be drawn back to the spectral geometry of the laser beam, which can be easily accessed experimentally and used for a coarse estimation of the focusing properties. The insight into the relationship between input beam properties and focussing behaviour allows for better interpretation and design of light-matter interactions in the future.

Here, this technique is utilised to compare the absolute carrier-envelope phase dependence of electron re-scattering at metal nanotips, i.e. Tungsten and Gold, and in Noble gasses. We find that the observed shift can be attributed to the shape of the ionization potential of the different species and that in case of the nanotips the optical near-field due to the geometry of the tip causes an additional phase shift.

# Inhaltsverzeichnis

<b>Zusammenfassung</b>	<b>I</b>
<b>Abstract</b>	<b>III</b>
<b>Inhaltsverzeichnis</b>	<b>V</b>
<b>1 Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2 Elektronenrückstreuung an atomaren Gasen</b>	<b>9</b>
2.1 Photoelektronenrückstreuung in Einzelzyklenpulsen . . . . .	9
2.2 CEP-Messung durch ATI – Das Phasenmeter . . . . .	13
2.3 Aufbau zur phasenaufgelösten Messung rückgestreuter Elektronen – Phase Tagging . . . . .	17
2.4 Ergebnisse für Wasserstoff und Edelgase . . . . .	21
<b>3 Fokussierung von Einzelzyklenpulsen</b>	<b>27</b>
3.1 Gepulste Gaußstrahlen – Beschreibung des Modells . . . . .	29
3.2 Messaufbau für die Nanospitzen . . . . .	36
3.3 Ergebnisse der drei Messreihen . . . . .	41
3.3.1 1D-Messung auf der optischen Achse . . . . .	41
3.3.2 2D-Messung entlang der optischen Achse . . . . .	44
3.4 Interpretation und Schlussfolgerung . . . . .	46
<b>4 Elektronenrückstreuung an Festkörpernanospitzen</b>	<b>57</b>
4.1 Photoelektronen-Emission und Rückstreuung an Metallnanospitzen	57
4.2 Ergebnisse für Wolfram und Gold . . . . .	59
4.3 Interpretation . . . . .	62

<b>5 Fazit und Ausblick</b>	<b>66</b>
<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>68</b>
<b>Danksagungen</b>	<b>84</b>
<b>Ehrenwörtliche Erklärung</b>	<b>86</b>



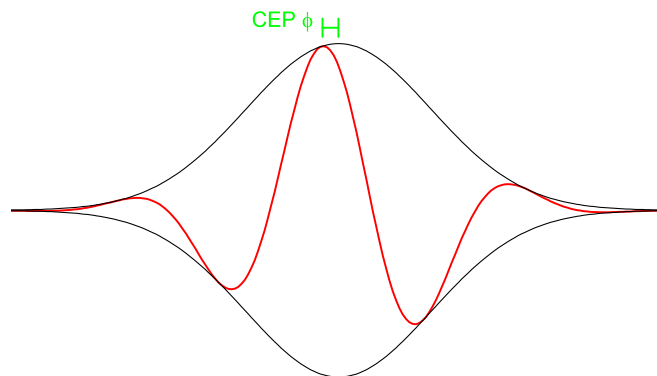
# 1 Einleitung

Licht ist ein Phänomen, das die Menschen seit jeher fasziniert hat und das sie sich in vielfältiger Weise zunutze gemacht haben. Bereits vor 350 Jahren setzten sich beispielsweise Isaac Newton und Christiaan Huygens wissenschaftlich mit dem Phänomen des Lichts auseinander [1, 2]. Zu Beginn des 20. Jahrhunderts gelang es Albert Einstein, den gerade von Heinrich Hertz beobachteten äußeren Photoeffekt mit der Lichtquantenhypothese zu erklären [3, 4]. In den 1950er Jahren waren Ch. H. Townes und Th. Maiman in der Lage, das Prinzip des Lasers umzusetzen [5], was zu einer Revolution im Umgang mit Licht führte. Die Entwicklung der lichtemittierenden Dioden (LEDs) in den darauffolgenden Jahrzehnten brachte einen weiteren Schub in der Erzeugung von Licht [6]. Heute ist technisch erzeugtes Licht fast jederzeit und allgegenwärtig, sodass Astronomen und Biologen schon davor warnen, dass es in manchen Bereichen der Umwelt bereits zuviel ist [7, 8].

Die Forschungsrichtung, in der diese Arbeit angesiedelt ist, basiert darauf, möglichst viel Licht in möglichst kurzer Zeit auf eine möglichst kleine Fläche zu bringen, und dies wohlkontrolliert. Möglich wurde dies, da aufbauen auf dem Prinzip des Lasers, in den letzten 50 Jahren gepulste Laser mit immer kürzerer Pulsdauer, größerer Pulsenergie und somit immer größerer erreichbarer Intensität entwickelt wurden [9, 10, 11]. Die durch den Laser erreichbaren Intensitäten führten dazu, dass auch Effekte beobachtet wurden, die mit einzelnen Lichtquanten im einstein'schen Bild nicht mehr erklärbar waren. Bei sehr hohen Intensitäten kommt es zu einer Mehrphotonenabsorption, die auch eine Ionisation bei Wellenlängen ermöglicht, obwohl dies der Einzelquantenbeschreibung zufolge eigentlich unmöglich ist [12, 13]. Durch die Übertragung der Technik zur Verstärkung gechirpter Pulse (Chirped-Pulse Amplification, CPA) vom Radio in den optischen Bereich, wurden Spitzenintensitäten möglich, die um viele weitere Größenordnungen höher liegen. Im Dezember 2018 wurde der Nobelpreis für die Entwicklung solch neu-

artiger Lichtwerkzeuge verliehen, mit denen es durch kontrollierten Einsatz von Licht unter anderem möglich geworden ist, Augenlinsen oder härteste Materialien, wie sie beispielsweise in Smartphone-Displays benötigt werden, zu bearbeiten [14]. Die dadurch erreichbaren Feldstärken liegen in der gleichen Größenordnung, wie sie in Molekülen und Atomen vorliegen und zeigen neue Phänomene, die in den folgenden Abschnitten eingeführt werden. Mittlerweile gibt es sogar Lasersysteme, wie sie beispielsweise zur Protonenbeschleunigung eingesetzt werden, die noch weit darüber hinaus gehen [15].

Heute kann man ultrakurze Lichtpulse erzeugen, die nur noch aus wenigen Zyklen der Zentralwellenlänge ihres Spektrums bestehen und Pulsdauern von etwa drei Femtosekunden ( $3 \cdot 10^{-15}$  s) im sichtbaren und bis zu wenigen zehn Attosekunden ( $10^{-18}$  s) im extremen ultravioletten Spektralbereich erreichen [16, 17]. Da “ultrakurz” als Bezeichnung immer wieder relativiert wird, ist man dazu übergegangen, diese Forschungszweige nach ihrer Größenordnung, hier Attosekunden-Physik, zu benennen. Bei derartig kurzen Pulsen wird das elektrische Feld stark asymmetrisch und es wird wichtig, welche relative Lage die Trägerwelle zu ihrer Einhüllenden hat, vgl. Abbildung 1.1 [18]. Diese Größe wird Träger-Einhüllenden Phase genannt und mit CEP abgekürzt (für englisch: Carrier-Envelope Phase). Sie bestimmt am Ende, wie das Licht mit der Materie wechselwirkt. Kennt man



**Abbildung 1.1:** Veranschaulichung eines Einzelzyklenpulses mit Einhüllender (schwarz), Trägerwelle (rot) und CEP (grün), siehe auch Gl. 2.5.

von einem Laserpuls die Wellenlänge, die Pulsenergie, die Pulsdauer und die CEP, so ist er vollständig charakterisiert und es können die Einflüsse der Parameter auf Wechselwirkungen bestimmt werden. Es hat sich gezeigt, dass mit der Form des

elektrischen Feldes unter anderem chemische Reaktionen gesteuert werden können und sich gezielt Elektronen aus einer Metalloberfläche beschleunigen lassen [19, 20, 21]. Mit dem zweiten Effekt wurde eine vielversprechende Schnittstelle zwischen Optik und Elektronik gefunden, die es ermöglicht, einzelne Elektronen mit Wiederholraten von Laser-Oszillatoren zu “schalten”.

Es wird erwartet, dass die kommenden Jahrzehnte in ähnlicher Weise von Lichtphänomenen geprägt sein werden, wie es die vergangenen Jahrzehnte durch die Elektronik waren. Mit dieser Arbeit wird versucht, einen Beitrag zum besseren Verständnis dieser Phänomene und zur Weiterentwicklung dieser Technologie zu leisten. Dabei wird der lichtgetriebene Prozess der Rückstreuung von Photoelektronen an atomaren Gasen und Metallnanospitzen miteinander verglichen. Also derjenigen Elektronen, die nach der Ionisation durch das Licht in dem elektrischen Feld zurück zum Atom kehren und an diesem zurück gestreut werden. Da dieser Prozess extrem empfindlich auf die CEP ist, hat man mit der Kenntnis der CEP die Möglichkeit, Vorgänge zu untersuchen, die sich auf der natürlichen Zeitskala des Lichts selbst ändern (Winkelgeschwindigkeit  $\approx 2,3 \cdot 10^{15} \frac{\text{rad}}{\text{s}}$ , optische Periode  $\approx 2,7 \text{ fs}$  bei 800 nm Wellenlänge). Dafür kann man sich die große Phasenabhängigkeit der rückgestreuten Elektronen gleich mehrfach zunutze machen: Erst wird sie zur Bestimmung einer relativen Träger-Einhüllenden-Phase mit einem sogenannten Phasenmeter genutzt. Dann wird die absolute Phasenlage von Xenon-Elektronenspektren durch den Vergleich mit der simulierbaren Rückstreuung an atomarem Wasserstoff ermittelt. Und schließlich wird der Rückstreuungsprozess an Festkörpern auf Unterschiede zum atomaren System hin untersucht. Für eine genaue Untersuchung oder eine tatsächliche Kontrolle der oben vorgestellten Prozesse mithilfe der CEP reicht es aber nicht alleine aus, den eintreffenden Einzelzyklenpuls zeitlich zu kennen [22, 23, 24], sondern man braucht auch die Information über seine räumliche Entwicklung, um die Wechselwirkung an einem bestimmten Ort zu kennen.

Durch die Nanometerauflösung der Festkörper-Spitzen als Elektronenquelle, ist es möglich, das elektrische Feld von fokussierten Laserpulsen zu erforschen und Aussagen über die Fokussierung breitbandiger Laserstrahlung zu machen. Das ist unter anderem wichtig, da die Wechselwirkung mit breitbandigen Laserpulsen heutzutage in einer Vielzahl von Anwendungen genutzt wird, wie zum Beispiel

für die Erzeugung von extremer UV-Strahlung und Attosekunden-Pulsen durch höhere Harmonische, im Forschungszweig der Femtosekunden-Chemie [25], für Anwendungen der Lichtwellenelektronik [26], für die Materialbearbeitung wie sie auch für Augenoperationen genutzt wird und für die optische Kohärenztomographie [27, 28].

## **Gliederung**

Die Arbeit ist in die drei folgenden Kapitel gegliedert, der Schwerpunkt liegt dabei auf den Kapiteln 3 und 4.

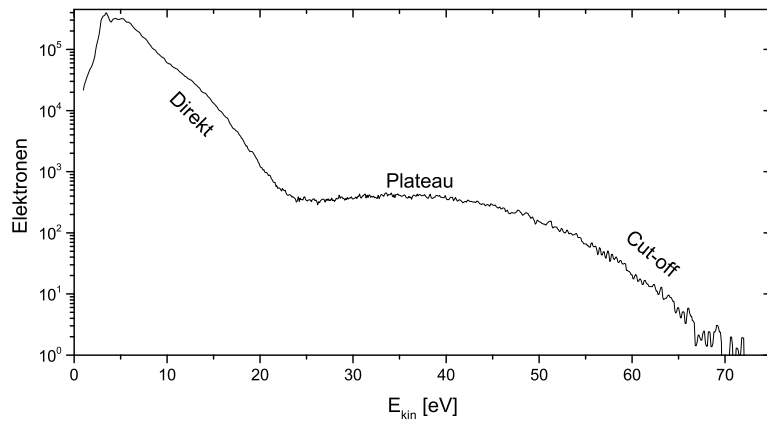
Im zweiten Kapitel (2) geht es um Elektronenrückstreuung an atomaren Gasen. Es werden experimentelle Photoelektronenspektren von atomarem Wasserstoff, Xenon, Argon und Krypton mit theoretisch gerechneten Spektren von Wasserstoff kalibriert. Dazu wird ein einfaches Modell zur Beschreibung der Rückstreuung eingeführt (Kap. 2.1) und ein Messgerät zur Laserpuls-Charakterisierung vorgestellt, welches auf diesem Effekt basiert – dem Phasenmeter (Kap. 2.2). Das Kapitel 2.3 erklärt den experimentellen Aufbau, mit dem sich die Flugzeit-spektren der Elektronen mit der Phaseninformation des Laserpulses verknüpfen lassen. Die so gewonnenen Ergebnisse werden in Kap. 2.4 zusammengefasst und erklärt.

In Kapitel 3 wird das Verhalten von fokussierten Einzelzyklenpulsen vorgestellt. Das Modell zur Beschreibung wird erläutert (3.1), der etwas abgewandelte Messaufbau erklärt (3.2), welcher sich auch für die Messungen in Kapitel 4 nutzen lässt, und das Vorgehen zur Messung beschrieben. Der dritte Abschnitt des Kapitels (3.3) stellt die Ergebnisse von zwei Messreihen auf der optischen Achse sowie einer räumlichen Messung mit Punkten abseits der Achse dar. Mit dieser Messung wird gezeigt, wie sich eine Nanospitze als Sonde zur CE-Phasenprofilierung des Fokus verwenden lässt. Die Resultate werden in 3.4 diskutiert und bewertet.

Abschließend werden in Kapitel 4 die Rückstreueffekte an zwei Festkörpersystemen, einer Nanospitze aus Wolfram und einer aus Gold untersucht. Die Messergebnisse werden in Kapitel 4.2 verglichen und Erklärungen für die Unterschiede diskutiert. Kapitel 5 trägt noch einmal alle Ergebnisse zusammen und gibt einen Ausblick auf mögliche Anwendungen und weitere Experimente.

## Einführung in die Starkfeldionisation

An dieser Stelle soll anhand der historischen Reihenfolge der Beobachtung neuer Phänomene eine kurze Einführung in Begriffe aus dem Bereich der Starkfeldionisation gegeben werden, die später bei der Beschreibung der hier untersuchten Vorgänge Verwendung finden werden. Die diesen Beobachtungen zu Grunde liegende Messmethode ist dabei die Bestimmung der kinetischen Energie von durch das oszillierende elektrische Feld beschleunigten Elektronen. Dies geschieht über die Messung ihrer Flugzeit entlang einer definierten, feldfreien Flugstrecke. Damit konnten im Laufe der Zeit immer genauere Photoelektronenspektren gemessen werden, anhand derer sich viele interessante Effekte studieren ließen, Abb. 1.2.

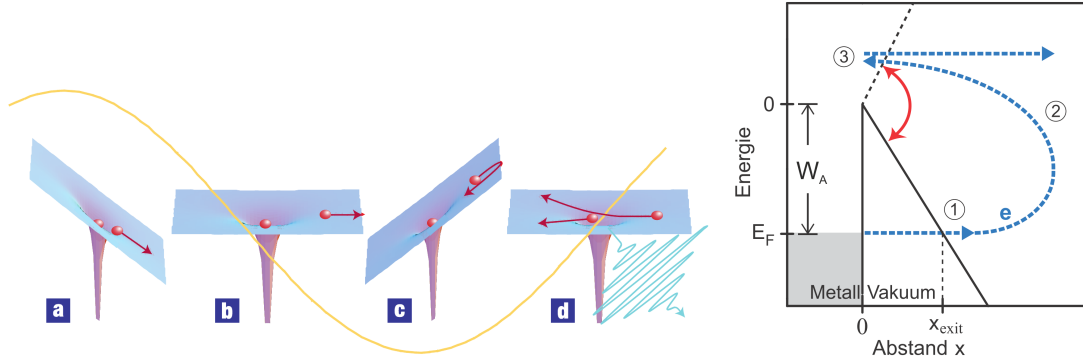


**Abbildung 1.2:** Elektronenenergiespektrum von Xe

So wurde in den 1960er Jahren von Voronov et al. sowie Agostini et al. bei höheren Intensitäten von bis zu  $10^{12} - 10^{13} \text{ W/cm}^2$  beobachtet, dass sich auch Gas-Atome ionisieren lassen, für die die Photonenenergie nach dem ursprünglichen Modell Einsteins gar nicht reichen sollte. Dies wurde durch die gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen erklärt und der Prozess *Mehrphotonenionisation* (MPI) genannt [29, 12]. Werden noch mehr Photonen als für die Überwindung der Ionisationsschwelle notwendig absorbiert, werden die Elektronen entsprechend stärker vom Atom fort beschleunigt und man spricht von *Above-Threshold-Ionisation* (ATI, 1979 [13]). Diese wurde zunächst nur für den Energiebereich des Elektronenspektrums gesehen, der in Abb. 1.2 mit *direkt* bezeichnet ist. Wie im Laufe der Zeit offenbar wurde, gibt es auch noch komplexere Bahnen

der Elektronen bei denen diese auch auf indirektem Wege zum Detektor gelangen können, welche im folgenden Text näher beschrieben werden. Bereits 1985 wurden mit dem Erreichen noch höherer Intensitäten von  $10^{14} - 10^{15} \text{ W/cm}^2$  und der Verwendung von längeren Wellenlängen optische Tunnelphänomene nachgewiesen, bei denen das atomare Coulomb-Potential durch das starke elektrische Feld so weit gebogen wird, dass die Elektronen durch die so entstandene Potentialbarriere tunneln können (Abb. 1.3) [30, 31]. Neben den oben angesprochenen direkten Elektronen, wurde dann 1993 in den Spektren auch ein kleinerer Anteil Elektronen höherer kinetischer Energie beobachtet, welche ein charakteristisches *Plateau* oberhalb der direkten Elektronen bilden (Abb. 1.2). Dies wurde auf eine Beschleunigung der Elektronen zurück zum Ion, mit anschließender elastischer Rückstreuung an selbigem zurückgeführt [32, 33, 34]. Nach dem Plateau bricht die Zählrate rapide ein und so wird dieser Bereich *Cut-Off* genannt.

Die bisherigen Beobachtungen wurden bereits mit verhältnismäßig langen Laserpulsen im ns–fs Bereich gemacht, welche aus vielen optischen Zyklen bestehen. Mit dem Fortschreiten der Technik war man ab 1997 in der Lage, auch Pulse zu erzeugen, die nur noch aus weniger als zwei Zyklen bestehen und *Einzelzyklenpulse* (oder Few-Cycle Pulse, FCP) genannt werden [35]. Bei der Ionisation mit so kurzen Laserpulsen spielt deren oben angesprochener Parameter *CEP* (Carrier-Envelope Phase) eine entscheidende Rolle und bietet die Möglichkeit, die Elektronenspektren an einer zusätzlichen Achse aufzutragen, mit der ab 2001 weitere Phänomene der Ionisation aufgelöst werden konnten [36, 37, 38] (siehe Kapitel 2.3). In den letzten Jahren wurde diese lichtinduzierte und CE-phasenabhängige Elektronenrückstreuung auch an nanometer-scharfen Metallspitzen gesehen [20]. In dieser Arbeit werden diese Abhängigkeiten an verschiedenen Systemen von Festkörpern und Gasen untersucht, daher wird auf diesen Rückstreuungsprozess in Einzelzyklenpulsen in Kapitel 2 näher eingegangen. Der Vollständigkeit halber sei hier noch erwähnt, dass das Elektron bei seiner Rückkehr neben der Rückstreuung, auch die Möglichkeit hat, mit dem Ion zu rekombinieren (unter Abstrahlung von kurzweiligerer Strahlung) oder das Ion noch höher zu ionisieren. Diese beiden Vorgänge heißen High-Harmonic Generation (HHG [39, 40, 41, 42]) bzw. nicht-sequentielle Doppelsonisation (NSDI [43, 44]), sind aber nicht Gegenstand dieser Arbeit.



**Abbildung 1.3:** Das Dreistufenmodell, links an atomarem Gas, rechts an einer Nanospitze: **a/(1)** Tunnelionisation durch das, vom elektrischen Feld (gelb) stark deformierte, Potential, **b,c/(2)** Beschleunigung des Elektrons im el. Feld, **d/(3)** Rückkehr zum Atom/Nanospitze mit Streuung; mit  $W_A$  – Austrittsarbeit am Festkörper,  $E_F$  – Fermi-Energie,  $x_{exit}$  – Tunnelausgang, angepasst aus Corkum et al. und Schenk et al. [45, 46].

Zur Klassifizierung der Ionisation in starken Laserfeldern hat sich die von Keldysh-Faisal-Reiss entwickelte Starkfeld-Approximation etabliert [47, 48, 49]. Diese führt den Keldysh-Parameter ein

$$\gamma = \frac{\tau}{T} = \sqrt{\frac{E_{IP}}{2U_P}} \quad (1.1)$$

der, anschaulich betrachtet, das Verhältnis von Tunnelzeit  $\tau$  zur optischen Periode  $T$  beschreibt und sich aus der Wurzel des Quotienten von  $E_{IP}$  (der Tiefe des Ionisationspotentials, bzw. der Fermi-Energie  $E_F$  beim Festkörper, siehe Abb. 1.3 rechts), und der *ponderomotiven Energie*  $U_P$  ergibt. Letztere skaliert quadratisch mit der elektrischen Feldstärke des Lichts  $E_0$ , also linear mit der Intensität  $I$ , und entspricht der gemittelten kinetischen Energie des frei oszillierenden Elektrons

$$U_P = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} \quad (1.2)$$

wo  $e$  - Elementarladung,  $m_e$  - Elektronenmasse und  $\omega$  die Kreisfrequenz des Lasers ist. Der  $\gamma$ -Parameter setzt also auch das Ionisationspotential und die elektrische Feldstärke ins Verhältnis. Anhand dessen lässt sich abschätzen, welcher der beiden Ionisations-Mechanismen dominiert. Liegt  $\gamma \gg 1$  so befindet man sich im Multiphoton-Regime, bei  $\gamma < 1$ , also mit Tunnelzeiten die kürzer als die Laserperiode

sind, handelt es sich um optisches Tunneln (ähnlich der statischen Feldionisation). Auch bei Werten im Übergangsbereich zwischen den Regimen, von  $\gamma \approx 1$ , hat sich das Tunnelmodell bei sehr kurzen Pulsen schon oft zur Beschreibung der beobachteten Effekte als geeignet erwiesen [50, 31, 51, 52]. Die Messungen in dieser Arbeit finden bei  $\gamma$ -Werten nahe 1 statt, sodass hier eine Beschreibung unter Verwendung des Tunnelbildes genutzt wird. Von starken Feldern kann dann ausgegangen werden, wenn am Tunnelausgang das durch das elektrische Feld deformierten atomaren Potentials das elektrische Feld des Lasers größer als das Kernfeld ist. In der Starkfeldapproximation wird dann angenommen, dass vor dem Zeitpunkt der Ionisation  $t_0$  das Laserfeld vernachlässigt werden kann, da sich das Elektron noch im viel stärkeren Atompotential befindet; nach der Ionisation  $t > t_0$  (siehe Punkt (1) in Abb. 1.3 rechts) wird das atomare Potential vernachlässigt, weil am einige atomare Einheiten entfernten Tunnelausgang das Laserfeld viel stärker als das atomare Potential ist. Frei im elektrischen Feld, lassen sich die Trajektorien der Elektronen dann in guter Näherung klassisch berechnen. Dies kann damit begründet werden, da die Oszillationsamplitude des freien Elektrons  $\alpha_0 = eE/m\omega^2$  deutlich größer als die Dimension des Atoms und das ponderomotive Potential  $U_P \gg \hbar\omega$ , der Photonenenergie ist.

Die freien Elektronen werden zunächst durch das elektrische Feld vom Atom weg beschleunigt, ein Teil der Elektronen kehrt aber mit dem umdrehenden elektrischen Feld wieder zum Atom zurück (2). Diese können dann im dritten Schritt entweder rekombinieren oder gestreut werden (3). Man hat es also mit einem semi-klassischen Modell zu tun, bei dem die Ionisation durch Tunneln erklärt werden kann und die anschließende Beschleunigung klassisch zugänglich ist. Dieser Vorgang aus Tunneln, Beschleunigung im elektrischen Feld und elastischer Rückstreuung bzw. Rekombination wurde in den 1990er Jahren als Drei-Stufen-Modell bekannt, Abb. 1.3 [53, 54, 55, 56]. In den letzten Jahren wurde gezeigt, dass es sich auch zur Beschreibung der Photoemission an Metallnanospitzen eignet [20, 46, 57].



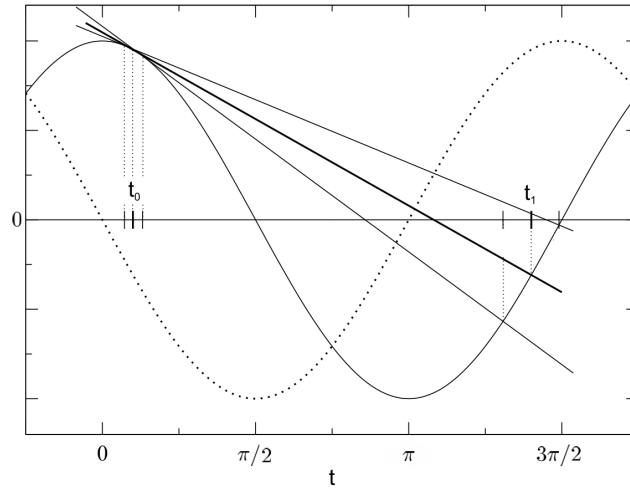
# 2 Elektronenrückstreuung an atomaren Gasen

In Vorbereitung für die späteren Kapitel mit den Messungen an Metallnanospitzen stellt dieses Kapitel kurz die Grundlagen anhand des Beispiels der Photoelektronenrückstreuung an atomaren Gasen dar. Dazu wird in Abschnitt 2.1 ein einfaches Modell zur Beschreibung der kinetischen Energie der Photoelektronen in Abhängigkeit von der CE-Phase des Laserpulses eingeführt. Abschnitt 2.2 beschreibt ein Messgerät, welches diesen Prozess ausnutzt und später in den Messungen zur Charakterisierung der Laserpulse verwendet wird. Der experimentelle Aufbau und die Methode zur Untersuchung von CE-Phasenabhängigkeiten in Elektronenspektren verschiedener Spezies wird in Kapitel 2.3 erläutert. Die Ergebnisse der Messungen von Xe, Kr, Ar und atomarem H werden in Abschnitt 2.4 zusammengefasst.

## 2.1 Photoelektronenrückstreuung in Einzelzyklenpulsen

Für die Untersuchungen in dieser Arbeit wird der Prozess der elastischen Rückstreuung von Photoelektronen an Gasen und Festkörpern in linear polarisierten Einzelzyklenlaserpulsen verwendet. Wie in Kapitel 1 beschrieben, nutzt man zur Beschreibung das Drei-Stufen-Modell (Abb. 1.3) aus (1) Tunnelionisation zum Zeitpunkt  $t_0$ , (2) Beschleunigung im elektrischen Feld und (3) um  $180^\circ$  zurück gerichteter elastischer Streuung am Ion zum Zeitpunkt  $t_1$ .

In diesem Abschnitt wird an einfachen Beispielen erläutert, wie die kinetische Energie der Elektronen mit dem elektrischen Feld und somit auch der CEP zusammenhängt. Dazu wird zunächst die Abhängigkeit der kinetischen Energie von



**Abbildung 2.1:** Veranschaulichung der Start- ( $t_0$ ) und Rückstreuzeit ( $t_1$ ) innerhalb einer optischen Periode, mit dem Vektorpotential (gepunktete Linie) und elektrischen Feld (durchgezogene Linie). Die bei  $t_0$  angelegte Tangente (dicke Gerade) dient der Ermittlung von  $t_1$  beim Schnittpunkt mit dem elektrischen Feld, adaptiert aus Becker et al. [58].

Ionisations- und Rückstreuzeitpunkt in einem kontinuierlichen elektrischen Wechselfeld betrachtet, dann die zeitabhängige Ionisationswahrscheinlichkeit beschrieben und abschließend das elektrische Feld eines Einzelzyklenpulses eingeführt.

Im Falle eines kontinuierlichen linearen elektrischen Wechselfeldes mit Amplitude  $E_0$  hängt die gewonnene kinetische Energie der Elektronen zunächst von den unterschiedlichen Ionisationszeitpunkten  $t_0$  ab, zu denen das Elektron in das elektrische Feld gelangen kann. Vereinfacht nehmen wir für den Moment an, dass es am Ort des Ions bei  $x = 0$  mit  $v = 0$  frei wird. Das E-Feld wird mit

$$E(t) = -\frac{\partial \mathbf{A}(t)}{\partial t} = E_0 \cos(\omega t) \quad (2.1)$$

beschrieben, wobei  $\mathbf{A}(t)$  das Vektorpotential ist, Abb. 2.1. Die Ionisation geschieht bevorzugt um das Maximum des elektrischen Feldes herum, weil dort die Tunnelrate

$$T(t) = \frac{4}{|E(t)|} \exp\left(-\frac{4\sqrt{2} E_{\text{IP}}^{3/2}}{3 |E(t)|}\right) \quad (2.2)$$

am größten ist; hier beispielsweise für Wasserstoff, mit  $E_{\text{IP}}$  als Ionisationspoten-

tial, (nach [59, 58]).

Für den Driftimpuls  $\mathbf{p} = e\mathbf{A}(t_0)$ , den das Elektron mit Elementarladung  $e$  netto aufgrund der Erhaltung des kanonischen Impulses erlangen kann, ist aber das Vektorpotential

$$\mathbf{A}(t) = -\frac{E_0}{\omega} \sin(\omega t) \quad (2.3)$$

maßgeblich, welches jedoch beim Maximum des elektrischen Feldes einen Nulldurchgang hat. Das heißt, gerade bei maximaler Ionisationswahrscheinlichkeit ist die zu erlangende kinetische Energie minimal. Für die insgesamt erreichbare kinetische Energie nach der Rückstreuung ist das Vektorpotential  $\mathbf{A}(t)$  nicht nur zum Zeitpunkt der Ionisation  $t_0$ , sondern auch zum Zeitpunkt  $t_1$ , der Rückkehr zum Ion bzw. Oberfläche entscheidend (vgl. (3) in Abb. 1.3 und Abb. 2.1) [58, 60]. Aus der Differenz von  $t_0$  zu  $t_1$  hat das Elektron bei der Rückkehr den Impuls  $\mathbf{p}(t_1) = e\mathbf{A}(t_0) - e\mathbf{A}(t_1)$ . Dieser kehrt bei der elastischen Rückstreuung sein Vorzeichen um und das Elektron kann zusätzlich erneut vom elektrischen Feld beschleunigt werden, wobei es *weiteren* Impuls von  $e\mathbf{A}(t_1)$  erlangt. Insgesamt gewinnt es also einen Driftimpuls von  $\mathbf{p} = 2e\mathbf{A}(t_1) - e\mathbf{A}(t_0)$  was einer kinetische Energie von

$$E_{kin} = \frac{e^2}{2m_e} [2\mathbf{A}(t_1) - \mathbf{A}(t_0)]^2 \quad (2.4)$$

entspricht, mit der Elektronenmasse  $m_e$ . Numerisch wurde in [58, 55] gezeigt, dass diese mit  $E_{kin}^{max} = 10 U_P$  für eine einfache Rückstreuung der Elektronen maximal wird. Diese Elektronen werden bei einer Vektorpotentialphase  $\omega t_0 = 15^\circ$  frei und kehren nahe dem Maximum von  $\mathbf{A}(t)$  bei  $\omega t_1 = 262^\circ \approx 3\pi/2$  zurück.

Geht man von kontinuierlichen zu gepulsten elektrischen Feldern über, hat man es mit einer variablen Amplitude zu tun, welche bspw. mit einer gaußförmigen Einhüllenden variiert. Es ergibt sich ein Laserpuls der Form

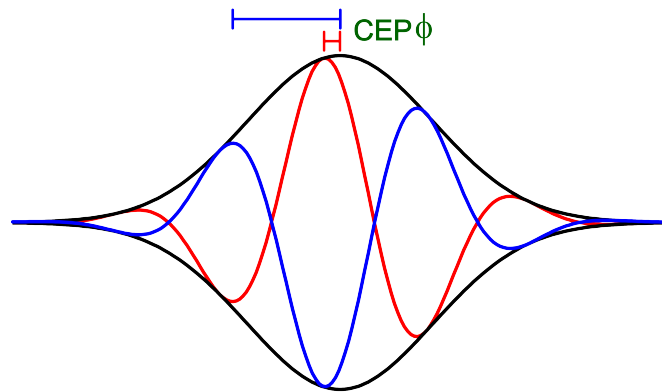
$$E(t) = E_0 e^{-2\ln 2 \left(\frac{t}{\Delta\tau}\right)^2} \cos(\omega t + \phi) \quad (2.5)$$

mit  $\Delta\tau$  als Pulsdauer und  $\phi$  als Phase der Trägerwelle zum Zeitpunkt des Puls-

maximums, der als  $t = 0$  definiert wird [11]. Diese Differenz, zwischen dem Maximum der Trägerwelle und dem Maximum der Einhüllenden, ist also die CEP (carrier-envelope phase), wie in Abb. 1.1 und 2.2 gezeigt.

Mit dem elektrischen Feld, Gl. 2.5, ergibt sich das Elektronenspektrum aus einer Kombination von Ionisationswahrscheinlichkeit und der start- sowie rückstreu-phasenabhängigen kinetischen Energie, Gl. 2.4, und hat typischerweise eine Form wie in Abb. 1.2 gezeigt. Die wenigen rückgestreuten Elektronen bilden das charakteristische Plateau oberhalb der direkten Elektronen.

Da die Elektronen bei längeren Pulsen aus mehreren Zyklen durchaus auch mehrmals im elektrischen Feld zum Atom zurückkehren können und sich das Signal von Elektronen, die in verschiedenen optischen Zyklen rückgestreut werden sonst überlagert, ist es sinnvoll, CE-Phasen abhängige Messungen mit möglichst kurzen Laserpulsen zu machen, die nur noch aus einzelnen Zyklen bestehen wie sie hier zum Einsatz kommen, Abb. 2.2 [58].



**Abbildung 2.2:** Form des elektrischen Feldes für zwei verschiedene CEPs, mit der roten Form ließe sich die kinetische Energie der Elektronen beispielsweise maximieren, während die blaue sie minimiert, siehe auch Gl. 2.5 und Abschnitt 2.4.

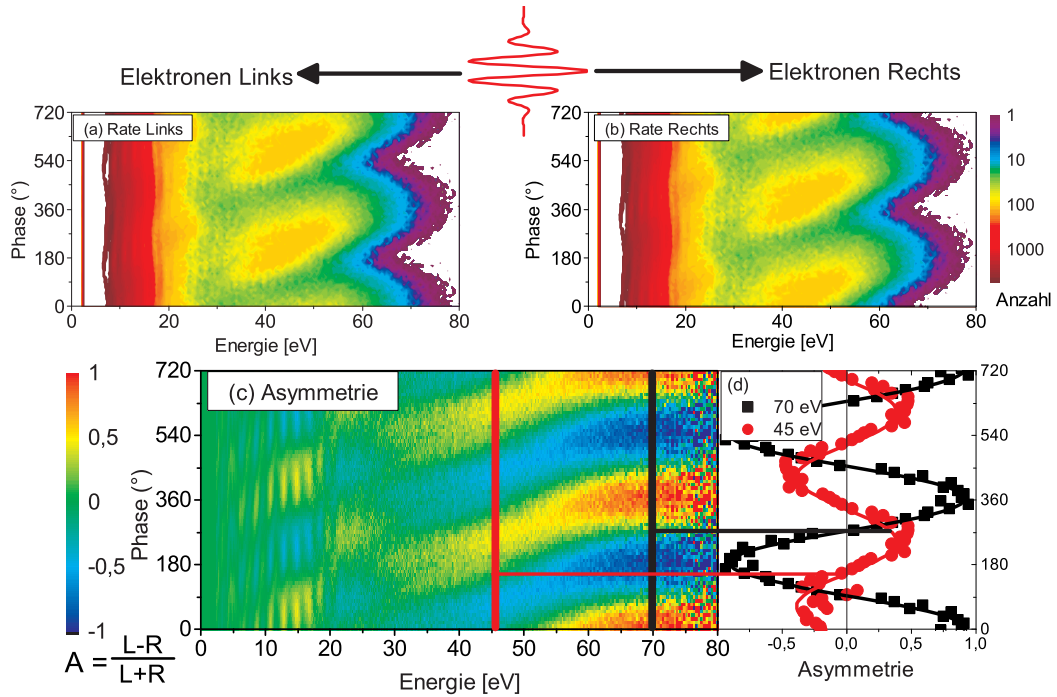
Die CEP verschiebt dann das elektrische Feld (sowie entsprechend das Vektorpotential) unter der einhüllenden Amplitude deutlich, was dazu führt, dass sich unterschiedliche Energieverteilungen der Elektronen ergeben. Mit anderen Worten: Es lässt sich die maximal mögliche kinetische Energie mit der CEP optimieren. Zum Beispiel sehen wir später in Abschnitt 2.4, dass die CEP des rot gefärbten elektrischen Feldes aus Abb. 2.2 zu Elektronenspektren, die am weitesten auf der Energieachse nach rechts reichen, führt, während die CEP der blau

gefärbte Form nur eine deutlich geringere maximale Energie ermöglicht. Durch die Nutzung von Einzelzyklenpulsen wird also eine größere Modulation in der kinetischen Energie der rückgestreuten Elektronen in Abhängigkeit von der CEP erreicht und damit die Genauigkeit, mit der die Phasenlage der Spektren an verschiedenen Systemen bestimmt werden kann, erhöht. In der Vergangenheit wurden in der Regel relative Phasendifferenzen anhand von weiteren CEP-abhängigen Messgrößen bestimmt, da die tatsächliche CEP schwer zugänglich ist. In dieser Arbeit wird CEP im eigentlichen Sinne verwendet und nur in den Fällen, in denen relative Phasen angegeben werden, wird es gesondert notiert. Auf der nächsten Seite im folgenden Abschnitt werden erste Beispiele gezeigt, wie die oben gezeigten Spektren phasenaufgelöst aussehen, Abb. 2.3.

## 2.2 CEP-Messung durch ATI – Das Phasenmeter

In diesem Abschnitt wird auf die Methode der CEP-Bestimmung eingegangen, die in den Messungen dieser Arbeit genutzt wird, und erklärt, wie damit die CEP und Pulsdauer ermittelt werden. Die zugrundeliegenden Effekte und deren Ausnutzung wurden bereits in mehreren Veröffentlichungen ausführlich erläutert [61, 62, 63]. Diese Messgeräte wurden schon vielfach in Experimenten eingesetzt und sind mittlerweile eine etablierte Technik zur Einzelzyklenvermessung [64, 65, 66, 67, 68, 69, 70, 71].

Die im vorherigen Abschnitt beschriebene Elektronenrückstreuung findet bei linearer, horizontaler Polarisierung in beide Richtungen des oszillierenden elektrischen Feldes des Laserpulses nach links *und* rechts statt, Abb. 2.3. Die Diagramme (a) und (b) zeigen die Elektronenzählrate (farbig) nach links bzw. rechts über der kinetischen Energie an Xenon-Atomen. Kommt es für eine Phase in die eine Richtung, z.B. links, zu einem Maximum der kinetischen Energie so wird rechts ein Minimum beobachtet und umgekehrt, sie sind also gerade um  $180^\circ$  phasenverschoben. Man sieht sehr gut, wie sich das stark asymmetrische Feld der Einzelzyklenpulse (Abb. 2.2) in den generierten Plateau-Elektronen niederschlägt, 2.3 (c), und wie diese sehr empfindlich von der Phase abhängen. Die Asymmetrie  $A$



**Abbildung 2.3:** Ermittlung der Asymmetrie am Beispiel von Xenon. Aus den nach relativer Phase aufgelösten Elektronenspektren in linke (a, L) und rechte (b, R) Richtung lässt sich für jede Energie-Phasenkoordinate das phasenverknüpfte Asymmetriespektrum (c) über die angegebene Formel für  $A$  berechnen. Die hier gezeigten Spektren basieren auf Millionen von Laserschüssen, zur visuellen Verdeutlichung werden die Spektren üblicherweise auf  $720^\circ$  verdoppelt, adaptiert von [52].

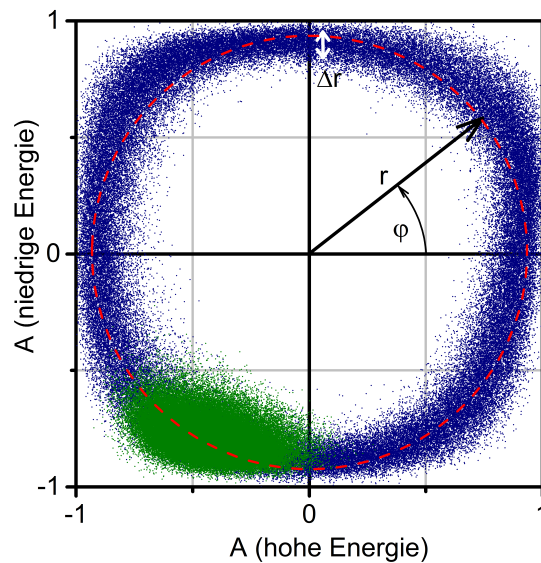
der beiden Zählraten links  $N_L$  und rechts  $N_R$  wird folgendermaßen quantifiziert:

$$A = \frac{N_L - N_R}{N_L + N_R} \quad (2.6)$$

und entspricht so dem Kontrast. In Abb. 2.3 (c) sieht man, wie dadurch die Sichtbarkeit der Phasenabhängigkeit verbessert wird. Dort zeigt sich in den Asymmetriewerten des Plateaus eine cos-förmige Abhängigkeit von der CEP, welche sich mit größer werdender Energie zu größeren Phasen verschiebt.

Diese starke CEP-Abhängigkeit ermöglicht die Konstruktion eines Messgerätes in dem Xenon als Arbeitsgas verwendet wird. Dieses Edelgas hat eine relativ niedrige Ionisierungsenergie von 12,13 eV, und durch einen verhältnismäßig großen Streuquerschnitt wird für die Rückstreuung eine hinreichende Zählrate im Plateau erreicht.

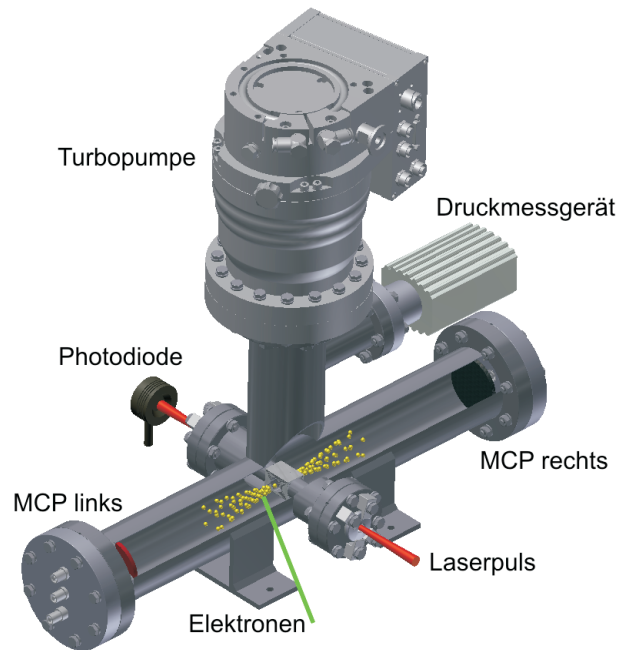
Wählt man aus dem Plateau zwei Energiebereiche aus, einen niedrigen und einen hohen, die gerade um  $90^\circ$  zueinander verschoben sind, Abb. 2.3 c und d (schwarz/rot), so kann man aus diesen zwei periodischen Signalen gleicher Frequenz eine Lissajous-Figur zeichnen. Erreicht man durch richtige Wahl der Energiebereiche auch eine nahezu gleiche Amplitude, so ergibt sich eine kreisförmige Figur, welche in diesem Fall parametrisches Asymmetrie-Diagramm genannt wurde, Abb. 2.4. In diesem Diagramm wird jeder Laserschuss durch einen Punkt



**Abbildung 2.4:** Phasendiagramm, auf der  $x$ -Achse ist die Asymmetrie im hohen Energiebereich, auf der  $y$ -Achse im niedrigen Energiebereich aufgetragen, jeder der 100.000 Punkte steht für einen Laserschuss, der Radius ist ein Maß für die Kürze des Pulses, aus dem Winkel  $\varphi$  kann die relative Phase bestimmt werden, die Genauigkeit ergibt sich aus der Streuung  $\Delta r$ . Blau – Laserpulszug mit unstabiler CEP, grün – bei aktivierter CEP-Stabilisierung des Lasers, aus [72].

repräsentiert, dessen Winkel-Parameter  $\varphi$  mit der CEP des Pulses verknüpft ist. Da die Punkte nicht gleichmäßig über die Winkel des Kreises verteilt sind, die CEP der Pulse aber statistisch gleichverteilt ist, müssen die Messwerte für eine Auswertung noch so in Winkelklassen eingeteilt werden, dass diese gleichverteilt sind. Nach dieser Kalibrierung gibt es einen linearen Zusammenhang zwischen der Phase der Pulse und den Winkelklassen  $\theta$ . Diese  $\theta$ -Werte der Winkelklassen sind dann entlang der  $y$ -Achse in Abb. 2.3 aufgetragen. Der schließlich verbleibende Offset zwischen so gemessenem Winkel und CEP wurde im Zuge dieser

Arbeit bestimmt. In einem der folgenden Kapitel wird noch gezeigt werden, wie man zu dem Wert der CEP am Ort der jeweiligen Wechselwirkung im Experiment gelangt. Der Radius in diesem Diagramm ist ein Maß für die Asymmetrie und somit für die Pulsdauer, je größer der Kreis desto kürzer die Pulse (größere Asymmetrie). Quantifiziert wurde der Zusammenhang mit der Pulsdauer in Veröffentlichung [63].



**Abbildung 2.5:** Zeichnung des Phasenmeters, der Laser wird in ein Gasröhrchen fokussiert, in dem die Elektronen (gelb) auf den linken (rot) und rechten (schwarz) MCP-Detektor beschleunigt werden. Die Auslösung der Zeitmessung geschieht über eine Photodiode nach der Kammer.

Der Aufbau für das daraus folgende Messgerät ist in Abb. 2.5 zu sehen und wird Stereo-ATI-Flugzeitspektrometer oder Phasenmeter (PM) genannt. Es besteht aus einem Vakuumrohr mit einer  $\mu$ -Metall-Abschirmung gegen elektrische und magnetische Felder, die das innere der Kammer feldfrei hält. Am Ende der zwei Flugstrecken links und rechts befinden sich Mikrokanalplatten (MCPs), welche das Elektronensignal verstärken. Die horizontal polarisierten Einzelzyklenpulse werden in die differentiell gepumpte und mit Xenon gefüllte Gaszelle fokussiert, wobei die frei werdenden Elektronen in beide Richtungen des elektrischen Wech-



selfeldes beschleunigt und von den MCP-Detektoren links und rechts detektiert werden. Diese wandeln den Elektronen-Strom in eine Spannung, welche dann von einer Elektronik detektiert werden kann. Aufgrund der viel größeren Anzahl an Elektronen im direkten Teil des Spektrums und der dort nur schwach ausgeprägten CEP-Abhängigkeit wird dieser bis etwa 25 eV reichende Anteil (vgl. Abb. 1.2) durch eine Gegenspannung geblockt, mit dem Ziel, die Detektoren zu schonen. Erfasst und ausgewertet werden dann einige hundert Elektronen pro Laserschuss im Plateau-Teil. Dadurch ist dieses Messgerät sogar in der Lage für jeden einzelnen Laserschuss in Echtzeit, d.h. bevor der nächste Schuss eintrifft, die CEP und die Pulsdauer bei Repetitionsraten von einigen 100 kHz zu bestimmen [63, 72].

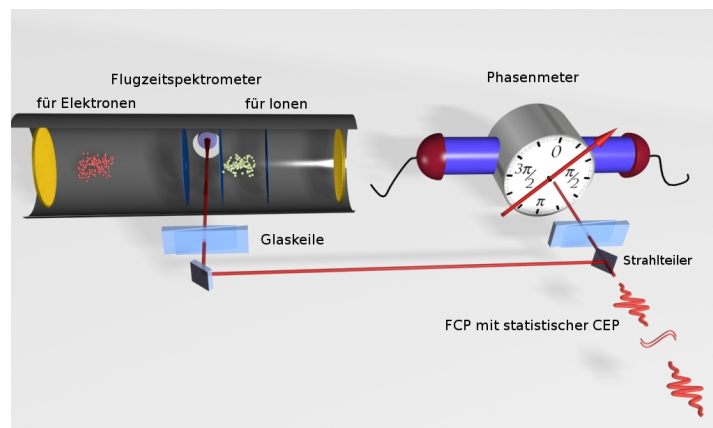
In der Praxis haben sich bei 800 nm folgende Betriebs-Parameter für das Phasenmeter etabliert: eine Fokussierung mit 25 cm Brennweite, eine benötigte Pulsenergie von 20 – 40  $\mu\text{J}$ , damit eine erreichte Intensität von  $\approx 8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  und eine mittlere Phasengenauigkeit von  $\approx 80 \text{ mrad}$ .

Mit der Bestimmung der CEP und Pulsdauer sowie der Wellenlänge und Pulsenergie sind die wesentlichen Parameter eines FCP charakterisiert und es lassen sich Prozesse hinsichtlich ihrer Abhängigkeit von diesen Parametern untersuchen. Durch Kenntnis der Parameter-Abhängigkeit können diese dann entsprechend mit Hilfe des Lichts gesteuert werden.

## 2.3 Aufbau zur phasenaufgelösten Messung rückgestreuter Elektronen – Phase Tagging

Basierend auf dem Phasenmeter wird in diesem Abschnitt auf den grundlegenden experimentellen Aufbau eingegangen, mit dem CEP-Abhängigkeiten in einer Vielzahl von Licht-Materie-Wechselwirkungen untersucht werden können. Es handelt sich dabei um eine sogenannte “tagging” Technik bei der zu beobachtende Ereignisse mit einer weiteren, parallel gemessenen Information verknüpft werden. Im hier vorliegenden Fall wurde sie *phase tagging* genannt. Der Aufbau ist eine typische Anordnung, die analog bereits in vielen Experimenten erfolgreich eingesetzt wurde [64, 67, 68]. Anschließend wird die Methode zur Auswertung der kinetischen Photoelektronenspektren beschrieben.

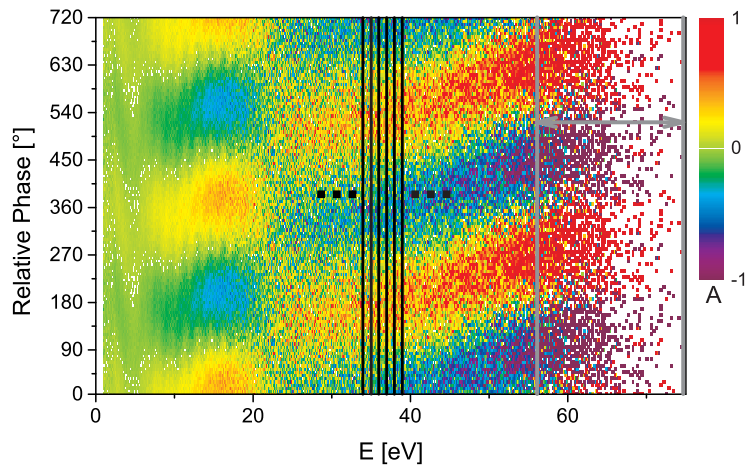
Doch zunächst ein paar Worte zum verwendeten Lasersystem: In unserem Aufbau kommt ein Femtopower Compact Pro HP/HR mit 4 kHz Repetitionsrate der Firma Femtolasers zum Einsatz [73]. Genutzt wird dabei die eingangs erwähnte Technik der “chirped pulse amplification” [14], was bedeutet, dass schwache FCPe eines Titan-Saphir Oszillators ( $\approx 6$  fs bei 800 nm) zeitlich gestreckt werden, um dann in einem Multipass Ti:Sa-Verstärker verstärkt werden zu können. Anschließend werden die verstärkten Pulse wieder in einem Gitterkompressor auf 25 fs komprimiert und haben danach 1,25 mJ Pulsenergie. Diese Pulse werden in eine mit Neon-Gas gefüllte Hohlkammer fokussiert, wobei durch spektrale Verbreiterung wieder bis zu  $\approx 3,5$  fs Pulsdauer bei  $\approx 700$  nm Zentralwellenlänge erreicht werden können. Für die Messungen werden die Pulse durch eine Kombination von gechirpten Spiegeln und Quarzglas-Keilen komprimiert. Solche Laserpulse lassen sich auch bezüglich ihrer CEP stabilisieren, jedoch kommt diese Technik in dieser Arbeit nicht zur Anwendung. Ausführlich werden derartige Lasersysteme bereits in der Literatur beschrieben [11, 73, 74].



**Abbildung 2.6:** Zeichnung des Aufbaus für die Gasmessungen: die Laserpulse (mit statistischer CEP) werden am Strahlteiler auf das Flugzeitspektrometer links (65%) und das Phasenmeter rechts (35%) verteilt und jeweils mit Glaskeilen komprimiert, im Spektrometer werden sie mit einem  $f = 25$  cm Spiegel zurück fokussiert [38].

Der eigentliche Messaufbau besteht aus zwei Teilen, Abb. 2.6, einer Vakuumkammer, mit einem Flugzeit-Spektrometer (time-of-flight – TOF) in dem der zu untersuchende Prozess stattfindet (links), und parallel dazu, das oben beschriebene Phasenmeter (rechts), welches der Charakterisierung des gerade eintreffenden

Laserpulses dient. So können die Ereignisse am Ort der Wechselwirkung direkt mit der Information über den Laserpuls verknüpft und CEP-abhängige Vorgänge aufgelöst werden. Für das Phase-Tagging wird der Laser *ohne* eine Stabilisierung der CEP genutzt, was bedeutet, dass die eintreffenden Pulse eine statistisch fluktuierende CEP haben. Das hat den Vorteil, dass man ohne die recht empfindliche Phasenstabilisierung auskommt und lange Messzeiten realisieren kann, bei der die CEP-Abhängigkeit sich nach dem Sortieren entsprechend der CEP-Werte automatisch ohne ein Scannen der Phase ergibt. Die mit dem Phasenmeter parallel bestimmten Phasen sind zunächst *relative* Werte, die über einen bekannten Prozess am Ort der Wechselwirkung kalibriert werden müssen. Dazu wird erst atomarer Wasserstoff, dessen Spektren sich berechnen lassen, und später Xenon verwendet. Für die vorliegenden Messungen standen in dieser Vakuumkammer zwei Flugzeitspektrometer zur Verfügung, eins für die negativ geladenen Photoelektronen (links) und eins, um vorher die Ionenanteile  $H^+/H_2^+$  (positiv, rechts) aus der Quelle für atomaren Wasserstoff zu bestimmen. Für die Gasvergleichsmessungen

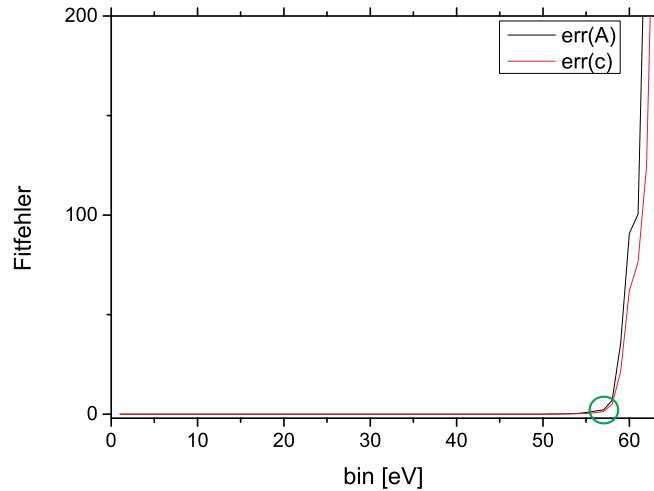


**Abbildung 2.7:** Veranschaulichung der Einteilung des Asymmetrie-Spektrums in Streifen von 1 eV Breite (schwarz und über den ganzen Energiebereich fortgesetzt), hier am Beispiel von Xe gezeigt.

wurde eine Rückfokussierung mit einem sphärischen Spiegel der Brennweite 25 cm eingesetzt, mit der Intensitäten von etwa  $1 \cdot 10^{13}$  bis  $1,5 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> eingestellt werden konnten, Abb. 2.6. Bei der jeweils gewählten Intensität kann einfach das Gas gewechselt, und so beide Gase bei den gleichen optischen Parametern gemes-

sen und miteinander verglichen werden. Der atomare Wasserstoff wurde oberhalb des Fokus über thermische Spaltung mittels einer HABS 40-Quelle von MBE Komponenten erzeugt [75].

Die mit der Phase verknüpften Asymmetriespektren, Abb. 2.7, werden auf folgende Art und Weise ausgewertet: Um einen Wert zu bestimmen, der einen Phasenunterschied markieren kann, wurde die Überlegung gemacht, dass die Phasenempfindlichkeit, und damit die Asymmetriemodulation, bei hohen Energien am größten ist und der Phasenverlauf dieser Modulation über  $E_{kin}$  dort sehr flach wird und nur schwach von der Intensität abhängt. Daher wurde eine Methode basierend auf diesen Cut-off-Ereignissen gewählt. Da es hierbei um den relativen Vergleich verschiedener Datensätze geht, wird dafür als erstes eine repräsentative kinetische Energie des Cut-offs ermittelt, die sich in verschiedenen Datensätzen auf gleiche Weise bestimmen lässt, im zweiten Schritt werden die Ereignisse oberhalb dieser Schranke integriert und im dritten Schritt diese mit einer *cosinus*-Funktion angepasst.



**Abbildung 2.8:** Veranschaulichung der Cut-Off-Bestimmung. Zu sehen ist der Fitfehler von  $A_0$  (schwarz) und  $c$  (rot) über der kinetischen Energie. Der steile Anstieg ( $\partial_E > 3$ , grüner Kreis) markiert die untere Grenze für den zu integrierenden Bereich.

Zur Bestimmung des Cut-offs wird die Achse der kinetischen Energie in schmale Streifen (bins) von 1 eV Breite unterteilt, Abb. 2.7, welche dann jeweils mit einer *cos*-Funktion der relativen Phase angepasst werden  $A(\theta) = A_0 \cos(\theta + \theta_0) + c$  (vgl. auch Abb. 2.3 d). Aus diesem Prozess ergeben sich die Größen  $A_0(E_{kin})$  und

$c(E_{kin})$  inklusive ihrer Fehler. Der Verlauf der Fehlerwerte zeigt ein flaches Verhalten über das Plateau, bis sie dann bei der Cut-off-Energie steil ansteigen, Abb. 2.8. Dieser Punkt, bei dem die Fehlerkurve nach oben abknickt (ab einer Steigung  $> 3$ ) wird als untere Schranke für die Cut-off-Ereignisse genommen. Der Fit der darüber liegenden integrierten Ereignisse, grauer Bereich in Abb. 2.7, ergibt die Cut-off-Phase  $\theta_0$ , welche anschließend mit anderen Messungen verglichen werden kann.

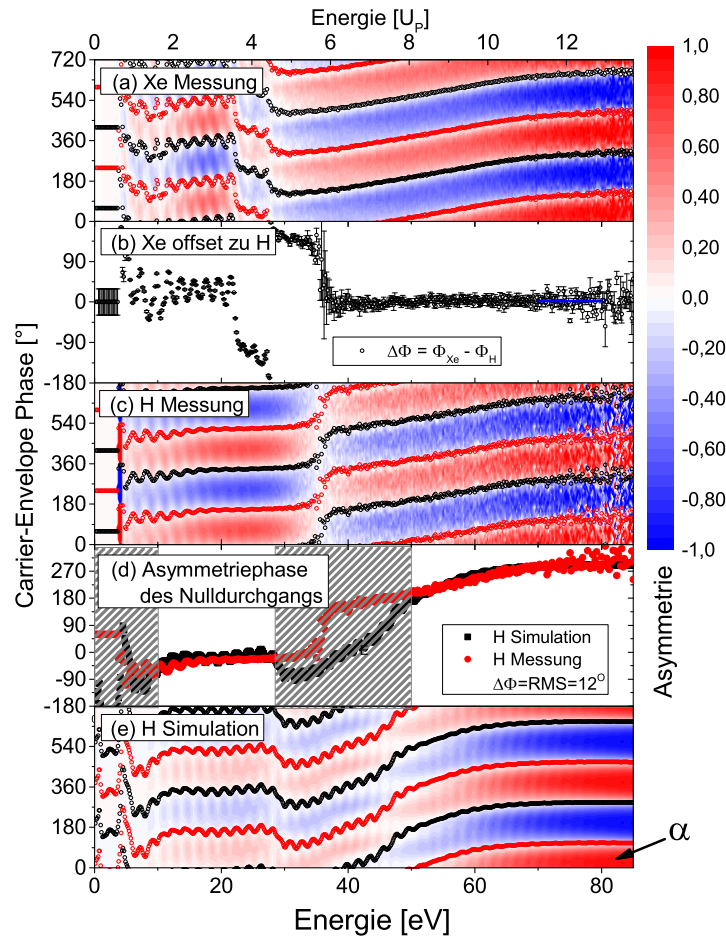
Wegen der geringen Ereignisrate und damit einer sehr langsamen Entwicklung in diesem Bereich, ist das Verfahren relativ robust gegen Varianzen in der Messzeit. Erst bei Messzeiten, die ein Vielfaches von  $> 3 - 4$  des Vergleichsdatensatzes betragen, wurde eine Verschiebung dieses Punktes um 1 eV zu höherer Energie festgestellt.

## 2.4 Ergebnisse für Wasserstoff und Edelgase

Dieser Abschnitt präsentiert die Resultate aus den Vergleichsmessungen der Edelgase und atomarem Wasserstoff. Mit exakten *ab-initio* Simulationen der zeitabhängigen Schrödinger Gleichung (sog. TDSE) an Wasserstoff und deren Vergleich mit der Wasserstoffmessung lässt sich die Phasenabhängigkeit kalibrieren. Über den Vergleich der Wasserstoffmessung mit den Xenon-Spektren erreicht man so auch eine Kalibrierung der Xe-Spektren, sodass sich Xe für den Vergleich mit weiteren Edelgasen (zweiter Abschnitt) oder Festkörpernanospitzen nutzen lässt. Hierbei werden die beiden Artikel von Sayler, Hoff et al. [38, 52] zusammengefasst. Die 3D-TDSE Simulationen sind in der Gruppe von Thomas Fennel in Rostock entstanden.

### Atomarer Wasserstoff

In Abbildung 2.9 sind die simulierten (e) und experimentellen (c) Asymmetriespektren von atomarem Wasserstoff der Messung von Xe (a) gegenübergestellt. Auch hier wurden die Spektren zur optischen Veranschaulichung auf  $720^\circ$  verdoppelt und der Nulldurchgang der Asymmetrie (schwarze Kurven) eingezeichnet. Die CEP-Achse wird durch die Simulation in (e) vorgegeben und das experimen-



**Abbildung 2.9:** Gegenüberstellung von Theorie und Experiment: Simuliertes (e) und experimentelles (c) H-Asymmetriespektrum zusammen mit Xe (a) an der CEP ausgerichtet, angepasst aus [38].

telle H-Spektrum (c) an dieser Achse ausgerichtet, d.h. mit der Simulationsachse in Deckung gebracht. Die für diese Simulation verwendete Intensität beträgt  $1,45 \pm 0,2 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  und war diejenige Intensität, welche die experimentellen Resultate am besten wieder gab. Die Pulsdauer beträgt  $5 \pm 0,5 \text{ fs}$  bei einer Zentralwellenlänge von 677 nm.

Da Xenon direkt im Anschluss am selben Ort und bei gleichen optischen Parametern gemessen wird, ergibt sich die Relation H–Xe direkt aus der Messung, sodass also auch Xe (a) hier an der CEP-Achse aufgetragen ist. Eine Auswertung dieser Daten mit einer *cosinus*-Funktion, wie oben beschrieben, resultiert in einer

kalibrierten Cut-off-Phase  $\phi_0$  für atomaren Wasserstoff von  $19 \pm 3^\circ$ , markiert am roten Asymmetriemaximum des Cut-offs ( $\alpha$ ), und für Xe von  $20 \pm 5^\circ$ . Dementsprechend besteht eine Differenz zwischen den beiden von  $\phi_{Xe} - \phi_H = 1 \pm 6^\circ$ .

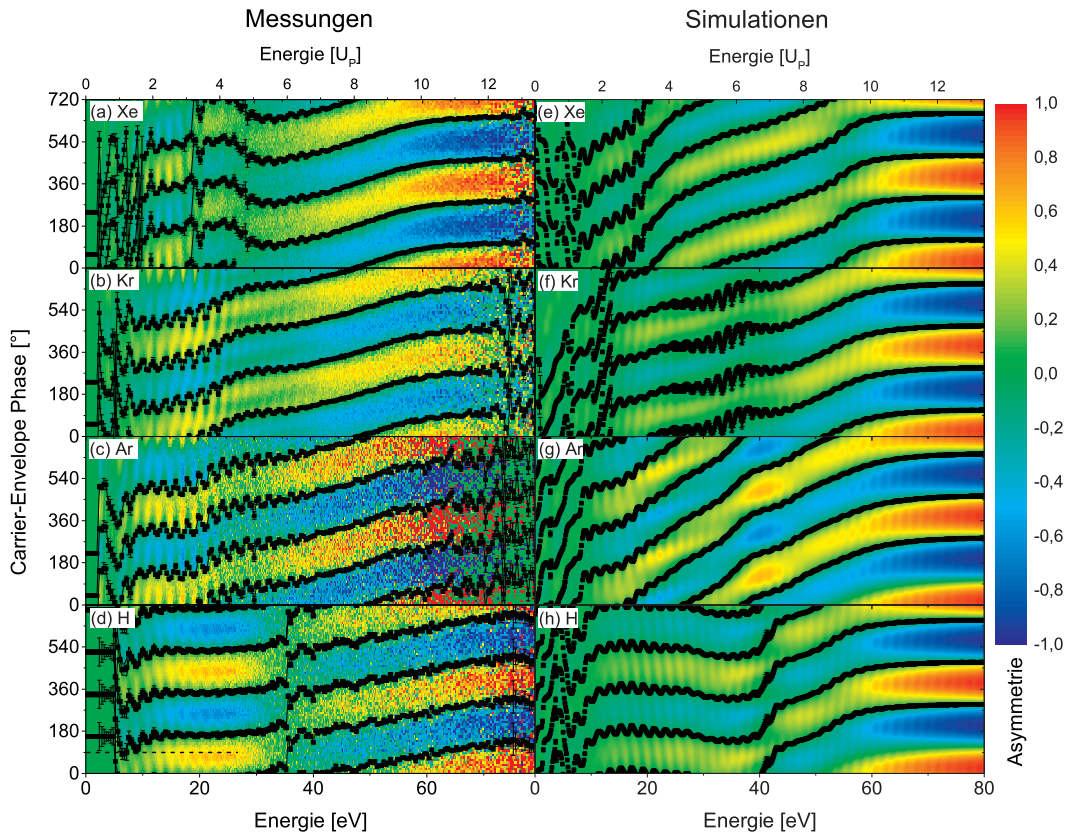
Die Markierung des roten Asymmetriemaximums bei  $\alpha$  entspricht etwa der CEP des roten Feldes in Abb. 2.2, wo auch die CEP des blau gezeichneten Feldes mit dem blauen Asymmetrieminimum assoziiert werden kann. Bei den Simulationen wurde auch festgestellt, dass Xe und H über einen weiten Intensitätsbereich ( $0,9 - 1,8 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ ) eine nur geringe Phasenverschiebung am Cut-off zeigen ( $< 5^\circ$ ). Vorläufige Daten scheinen dies zu unterstützen, müssen aber noch durch weitere Messungen bestätigt werden.

Damit sind die Photoelektronenspektren von Xenon kalibriert und das deutlich leichter zu messende Xe kann in anderen Experimenten als Referenzmessung verwendet werden.

## **Edelgase**

Neben Xenon wurden noch weitere Edelgase gemessen und 1D- sowie 3D-TDSE Simulationen gegenüber gestellt, letztere sind in Abb. 2.10 zusammengefasst. Von oben nach unten werden dort die Asymmetriespektren von Xe ( $E_{IP} = 12,13 \text{ eV}$ ), Kr ( $E_{IP} = 14,0 \text{ eV}$ ), Ar ( $E_{IP} = 15,76 \text{ eV}$ ) und eine weitere Messung von Wasserstoff ( $E_{IP} = 13,6 \text{ eV}$ ) dargestellt. In den Simulationen wurden die Abhängigkeit der Spektren von der Tiefe und Form des Ionisationspotentials untersucht. Die Beobachtungen und Simulationen zeigen, dass die Cut-off-Phase mit kleiner werdendem Ionisationspotential  $E_{IP}$  ansteigt. Dies wird von Sayler et al. [52] auf die verschieden dicke Tunnelbarriere und den damit verbundenen Tunnelausgang zurück geführt. Ein solcher Ansatz, der den Tunnelausgang im Dreistufenmodell mit einbezieht, wurde auch bereits in Referenzen [76, 77] diskutiert.

Betrachtet man die Ausdehnung der Tunnelbarriere bei einem gegebenen elektrischen Feld für unterschiedlich tief liegende Ionisationspotentiale (vgl. Abb. 2.11 a und 1.3), so ist offensichtlich, dass der Startort der Elektronen  $x_0$  beim Tunnelausgang  $x_{\text{exit}}$  für flachere Ionisationspotentiale näher am Atomkern liegt. Das bedeutet, dass die Elektronen, die näher am Kern frei werden, entsprechend auch eine kürzere Bahn bis zur Rückstreuung zurücklegen müssen. Hinzu kommt, dass

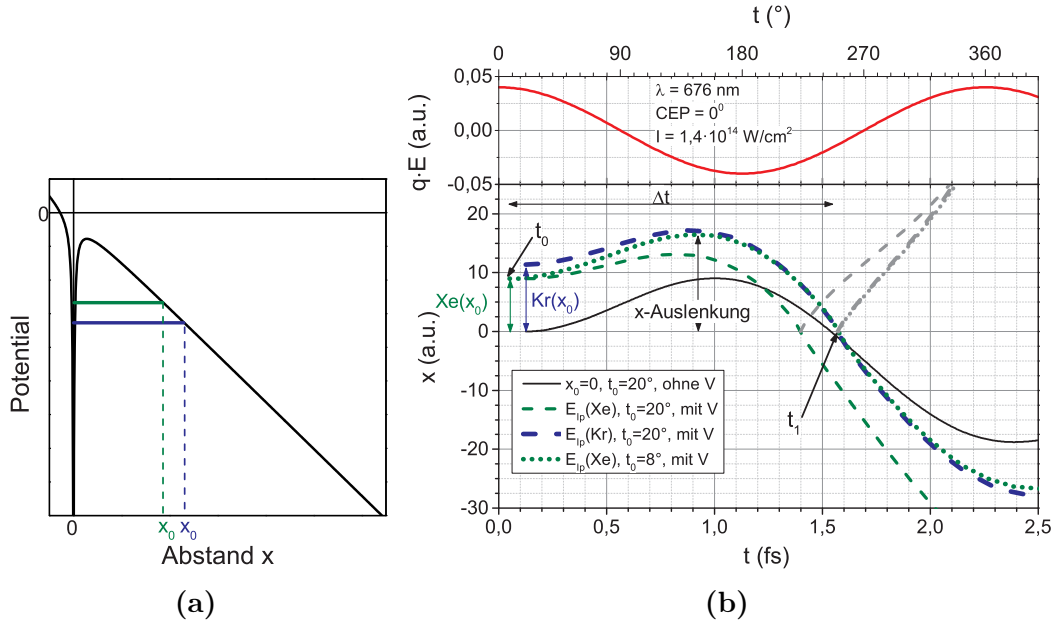


**Abbildung 2.10:** Asymmetriespektren der Edelgase Xenon (a), Krypton (b) und Argon (c) im Vergleich zu atomarem Wasserstoff (d), welcher zur Kalibrierung der CEP-Achse genutzt wurde. Links Messungen, rechts TDSE-Simulationen, schwarze Kurven zur Verdeutlichung der Nulldurchgänge, angepasst aus [52].

sie auch eine größere Anziehung durch den positiven Kern erfahren. Beide Effekte sorgen dafür, dass zwei zur gleichen Phase frei werdende Elektronen bei kleineren Ionisationspotentialen früher zurückkehren und damit bei einem kleineren Vektorpotential als zum späteren Zeitpunkt  $t_1$  am Atom rückstreuen, Abb. 2.11 b (blau und grün gestrichelte Kurven). Wie in Kapitel 2.1 beschrieben, führt dies dazu, dass sie eine geringere kinetische Energie erreichen.

Veranschaulichen kann man diese Verschiebung anhand eines Beispiels der Elektronen-Bahnen an Xenon und Krypton, unterer Teil von Abb. 2.11 b. Diesmal ist die x-Koordinate auf der senkrechten Achse dargestellt, also um  $90^\circ$  zu Abb. 2.11 a nach links gedreht. Um bei einem gegebenen elektrischen Feld (rot, oberer Teil) und bei Berücksichtigung des Potentials  $V$ , des Tunnelausgangs  $x_0$  und





**Abbildung 2.11:** Veranschaulichung des Einflusses von Potential und entsprechendem Tunnelausgang  $x_0$  auf Elektronentrajektorien bei Krypton (blau) und Xenon (grün). (a) Schematische Darstellung des durch den Laser deformierten Potentials, schwarz, und der daraus resultierenden Tunnelbarrierendicke für unterschiedliche Ionisationspotentiale, blau und grün.

(b) Der obere Teil zeigt rot das  $\cos$ -förmige elektrische Feld. Bei einer angenommenen Elektronen-Startphase von  $20^\circ$  ergeben sich: schwarz – Trajektorie ohne Berücksichtigung eines Potentials mit Start bei  $x_0=0$ ; blau gestrichelt – mit Berücksichtigung des Potentials und Start am Tunnelausgang  $x_0$  von Krypton; grün gestrichelt – Xenon-Trajektorie mit Start bei  $20^\circ$ ; grau – Bahnen nach der Rückstreuung. Um einen ähnlichen Impuls durch das zum Zeitpunkt  $t_1$  gegebene Vektorpotential wie das Krypton-Elektron zu erreichen, muss das Elektron bei Xenon bereits zum Zeitpunkt  $t_0 = 8^\circ$  freigesetzt werden (grün gepunktet), also  $12^\circ$  früher als bei Krypton, aus [52].

einer angenommenen Startphase des Krypton-Elektrons (blaue Bahn) von  $20^\circ$  zum gleichen Zeitpunkt  $t_1$  zurück zu kehren und eine ähnliche kinetische Energie zu erreichen, muss das Elektron von Xenon um  $12^\circ$  *früher*, bei  $t_0$ , frei werden als im Falle von Krypton (grüne gepunktete Kurve).

Mit 1D-TDSE Simulationen wurde von Sayler [52] auch ein Scan über die Simulationsparameter  $E_{IP}$ ,  $Z$  (Kernladungszahl) und  $a$  (Formparameter) für ein Soft-Core-Potential ( $V(x) = -Z/\sqrt{x^2 + a^2}$ ) über einen erweiterten  $E_{IP}$ -Bereich von 8 – 24 eV durchgeführt, um deren Einfluss auf die Cut-off-Phase zu bestimmen. Dieser reproduziert die Werte aus den Messungen und den 3D-TDSE-Simulationen gut und bestätigt die wesentliche Rolle der Ionisierungsenergie und

des Tunnelausgangs für die beobachtete Phasenverschiebung. Die resultierende Kurve ergibt einen Trend über die Ionisierungsenergien der gemessenen Edelgase hinaus. Im Bereich der Edelgase und zu höheren Ionisationspotentialen verläuft sie näherungsweise linear fallend, während zu kleineren  $E_{IP}$  unter 12 eV die Cut-off-Phase stärker zu steigen beginnt. Diese Beobachtungen lassen sich also darauf zurückführen, dass bei einem gegebenen elektrischen Feld die dickere Tunnelbarriere bei größeren  $E_{IP}$  zu einem weiter vom Kern entfernten Tunnelausgang führt, bei dem der Einfluss des Kernpotentials schwächer ist als für Elektronen, die näher am Kern frei werden.

# 3 Fokussierung von Einzelzyklenpulsen

Möchte man Nanostrukturen, wie die hier eingesetzten Metallnanospitzen, die einen extrem stark lokalisierten Elektronenemitter darstellen, mit räumlich ausgedehnten Targets wie Edelgasen vergleichen, so ist die Voraussetzung dafür, dass man weiß, an welcher Stelle sich die Nanospitze in Bezug zum Fokus befindet. Je nach ihrer Position hat der Lichtpuls eine andere Form, was einen Vergleich sehr schwierig macht. Daher wird in diesem Kapitel gezeigt, wie sich fokussierte Gaußsche Einzelzyklenpulse hinsichtlich der CEP und somit der Form des elektrischen Feldes während der Propagation ändern. Diese Erkenntnis ist auch deshalb wichtig, weil es bei vielen Prozessen in der Ultrakurzzeitphysik stark davon abhängt, welche Form das elektrische Feld am jeweiligen Ort hat, ob, oder wie effizient die Prozesse stattfinden können. Um letzten Endes eine kontrollierte Steuerung dieser Prozesse zu ermöglichen, muss man also sowohl zeitlich als auch räumlich die Lichtpulse kennen und einstellen können.

Beispiele für Effekte, die von dem fokalen CEP-Verlauf abhängen, sind, die effiziente Erzeugung von höheren Harmonischen, aber auch kontrollierte Emission von Elektronen an Metallnanospitzen oder -strukturen welche im Hinblick auf eine "Lichtwellenelektronik" also eine Schnittstelle von Optik und Elektronik untersucht werden [78, 26, 79, 80].

Die Bedeutung der Fokussierung breitbandiger kohärenter Lichtquellen wurde schon in früheren Arbeiten erkannt und sowohl theoretisch als auch experimentell untersucht. Aufbauend auf dem Verhalten monochromatischer Wellen während der Fokussierung [81, 82, 83, 84, 85], wurden über die letzten 20 Jahre theoretische Beschreibungen für die Fokussierung von breitbandigen kohärenten Lichtquellen, wie sie seit einigen Jahrzehnten in den Labors zur Verfügung stehen

[86, 87], entwickelt [88, 89, 90, 91, 92, 93, 94, 95, 96]. Auch experimentell wurde versucht, das Verhalten von breitbandigen Laserpulsen zu quantifizieren und es wurden Abweichungen zum monochromatischen Fokus festgestellt. Dazu wurden Effekte wie ATI [97], Frequenzkamm-Interferometrie in Kristallen [98] oder Spektrale Interferometrie mit einer Glasfaser genutzt [95]. Bei diesen Ansätzen wurde jedoch noch über einen verhältnismäßig großen Raumbereich gemittelt, was die Auflösung begrenzt. Die genutzten nichtlinearen Effekte in [97, 98] mitteln transversal zur Strahlausbreitung, wodurch nur der gemittelte axiale CEP-Verlauf bestimmt werden kann. In [95] wurde ein Querschnitt von einigen  $\mu\text{m}^2$  gemessen, was noch in der gleichen Größenordnung wie der Fokusdurchmesser selbst liegt. Zudem konnte, auf Grund der genutzten Effekte, in bisherigen Messungen nur ein recht begrenzter Ausschnitt des Fokus vermessen werden. Für die Messungen hier wird die Elektronenrückstreuung an Nanospitzen mit einem Radius von  $\approx 10\text{ nm}$ , also  $\ll \lambda \approx 700\text{ nm}$  der Zentralwellenlänge des Lasers, verwendet und so eine räumliche Auflösung in der Größenordnung von  $1000\text{ nm}^3$  erreicht [20, 99, 100, 101]. Die Phasen-Auflösung durch die Genauigkeit in der CEP-Bestimmung von  $\approx 80\text{ mrad}$  entspricht etwa  $\lambda/78$ . Aus zeitlicher Perspektive sind das gemäß  $\Delta t = \Delta\varphi/2\pi \times 2,3\text{ fs} \approx 30\text{ as}$  also  $\ll T = 2,3\text{ fs}$ , der optischen Periode bei  $\lambda = 700\text{ nm}$ . In Zusammenarbeit mit der Gruppe von Peter Hommelhoff wurde dazu der Aufbau zum Phasetagging aus Kapitel 2.3 weiter entwickelt, damit er den Anforderungen der Nanospitzen gerecht wird und zur Fokus-Charakterisierung genutzt werden kann. Die historische Entwicklung, die zur Entdeckung der Elektronenrückstreuung an Nanospitzen geführt hat, wird im Kapitel über die Nanospitzen, 4, erläutert.

Dieses Kapitel hier basiert auf den beiden Veröffentlichungen von Hoff et al. [102, 103]. Im ersten Abschnitt wird auf die, zum Verständnis nötigen, theoretischen Grundlagen eingegangen. Im zweiten Teil wird der Messaufbau, aufbauend auf Kapitel 2.3, beschrieben. Der dritte Teil stellt die Ergebnisse anschaulich dar, welche dann in Kapitel 3.4 diskutiert werden. Es sei betont, dass in diesem Kapitel Nanospitzenspektren relativ untereinander verglichen werden, erst im folgenden Kapitel wird der Bezug zu den Edelgasen und Wasserstoff hergestellt.

### 3.1 Gepulste Gaußstrahlen – Beschreibung des Modells

Um die folgenden Resultate einordnen zu können, hilft es, sich kurz an den Formalismus der gaußschen Optik zu erinnern. Die Formulierung ist angelehnt an Standardlehrbücher, und orientiert sich an diesen Quellen [11, 74, 91, 104, 105, 22].

Dabei wird das elektrische Feld des fokussierten Lichts in den Zylinderkoordinaten  $z$  und  $r$  folgendermaßen beschrieben (vgl. Abb. 3.1):

$$E(r, z) = E_0 \frac{w_0}{w(z)} \cdot e^{-\left(\frac{r}{w(z)}\right)^2} \cdot e^{-ik \frac{r^2}{2R(z)}} \cdot e^{i(\zeta(z) - kz)} \quad (3.1)$$

mit  $E_0$ : Feldstärke bei  $(z = 0, r = 0)$ ,  $w_0$ : Radius an der Strahltaile,  $w(z)$ : lokaler Radius (bei Achsenposition  $z$ ),  $k = \frac{2\pi}{\lambda} = \frac{\omega}{c}$ : Kreiswellenzahl,  $R(z)$ : Krümmungsradius,  $\zeta(z)$ : Gouy-Phase; dessen transversales Intensitätsprofil sich mit einer Gaußfunktion

$$I(r, z) = |E(r, z)|^2 = I_0 \left( \frac{w_0}{w(z)} \right)^2 e^{-2\left(\frac{r}{w(z)}\right)^2} \quad (3.2)$$

beschreiben lässt. Der lokale Radius wird  $w(z)$  genannt und beschreibt die Kausitik, also die umhüllende Fläche, auf der die Intensität auf  $1/e^2$  des Achsenwertes abgefallen ist

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

mit der Rayleigh-Länge entlang der  $z$ -Achse

$$z_R = \frac{\pi \cdot w_0^2}{\lambda} = \frac{\omega \cdot w_0^2}{2c} \quad (3.4)$$

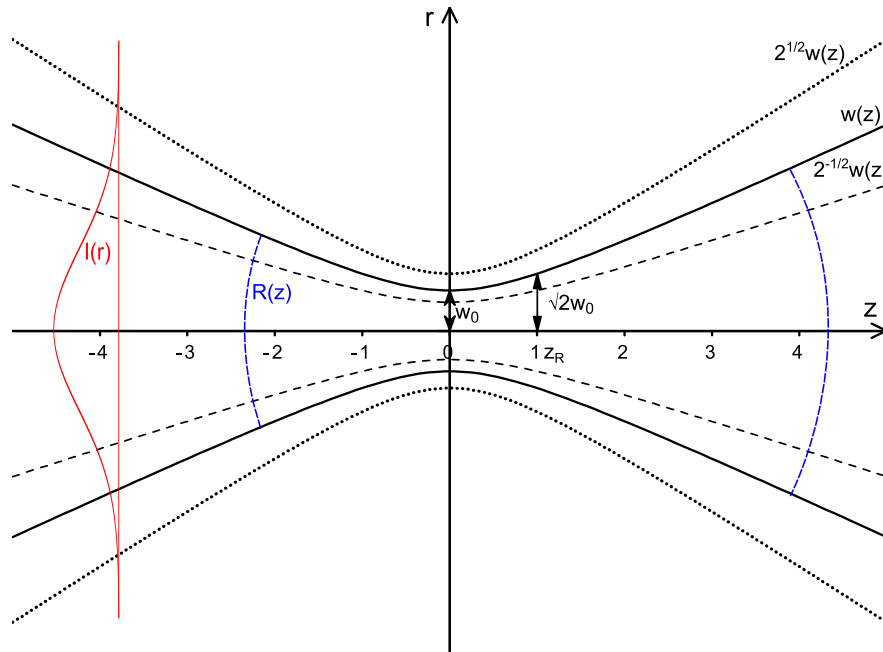
bei der sich die Fläche des Profils im Vergleich zum Fokus verdoppelt hat, beziehungsweise die Intensität auf 50% abgefallen ist. Veranschaulicht wird der Fokus in Abb. 3.1, wo die oben vorkommenden Parameter eingezeichnet sind. Im Fern-

feld  $z \gg z_R$  lässt sich die Divergenz (als halbem Öffnungswinkel) angeben als

$$\vartheta = \arctan\left(\frac{w(z)}{z}\right) \approx \arctan\left(\frac{w_0}{z_R}\right) = \arctan\left(\frac{\lambda}{\pi w_0}\right) = \arctan\left(\frac{2c}{\omega w_0}\right). \quad (3.5)$$

Die Fokustaille  $w_0$  für einen einlaufenden kollimierten Gaußstrahl der Wellenlänge  $\lambda$ , welcher an seiner Strahltaile  $W_0$  mit einer Brennweite  $f$  fokussiert wird, ergibt sich aus

$$w_0 = \frac{\lambda f}{\pi W_0}. \quad (3.6)$$



**Abbildung 3.1:** Der Fokus mit seinen charakteristischen Parametern: Fokustaille  $w_0$ , lokaler Radius  $w(z)$  (dicke Linie), Rayleighlänge  $z_R$  und gaußsches Intensitätsprofil (rot); auf die Kaustiken  $2^{1/2}w(z)$  und  $2^{-1/2}w(z)$  wird in späteren Abschnitten eingegangen.

Die imaginären Exponenten in Gl. 3.1 beschreiben eine Verschiebung der Phase. Im dritten Faktor bestimmt der Krümmungsradius  $R(z)$  die Phasenverzögerung

bei Entfernung von der optischen Achse und verhält sich wie

$$R(z) = z \left( 1 + \left( \frac{z_R}{z} \right)^2 \right) \quad (3.7)$$

er ist bei  $z_R$  minimal, was bedeutet, dass die Krümmung maximal ist. Der  $\zeta$ -Anteil im vierten Faktor wird Gouy-Phase genannt [81] und beschreibt die axiale Phasenverzögerung, verglichen mit einer ebenen Welle ( $ikz$ )

$$\zeta(z) = \arctan \left( \frac{z}{z_R} \right) , \quad (3.8)$$

von  $\zeta(-\infty) = -\pi/2$  nach  $\zeta(+\infty) = \pi/2$  beträgt sie gerade  $\pi$ .

Diese Beschreibungen beziehen sich auf den Fall einer monochromatischen Welle. Für uns ist es aber wichtig, zu wissen, wie sich die Phase eines breitbandigen ultrakurzen Lichtpulses beschreiben lässt. Bereits anhand einer einfachen Betrachtung der Definition der Fokustaille, Gl. 3.6, wird die Wellenlängenabhängigkeit klar. Für die Strahlparameter vor der Fokussierung werden hier Großbuchstaben verwendet. So wird im Falle eines einlaufenden Strahls mit einer konstanten kollimierten Strahltaile,  $W_0(\omega) = \text{const}$ , der Fokus des blauen (kurzwelligeren) Anteils kleiner sein, als der des roten (langwelligeren) Anteils. Das führt in diesem Beispiel auch dazu, dass auf der Achse in der Fokusmitte das Spektrum etwas blau-verschoben ist, während es zu den Rändern etwas rot-verschoben ist. Dieses Beispiel, das den Fall  $g_0 = 1$  des folgenden Formalismus darstellt, ist in Zeile 4 in Abb. 3.2 illustriert. Die rechte Spalte zeigt die relative Verschiebung (blau bzw. rot) der Zentralfrequenz über den Fokusbereich.

Noch wichtiger für die Wechselwirkungen, die in dieser Arbeit beschrieben werden, ist aber der große Einfluss der spektralen Geometrie auf die fokale CEP. Dazu wurden umfangreiche Rechnungen von M. Porras durchgeführt, bei denen auch die spektralen ( $\omega$ ) und zeitlichen ( $t$ ) Abhängigkeiten der oben eingeführten Größen berücksichtigt wurden, diese werden in den Artikeln [90, 91] näher erläutert und können an dieser Stelle nur skizziert werden. Für die Messungen hier beschränken wir uns auf den Fall der starken Fokussierung, auch Debye-Näherung genannt, wobei gilt, dass die Rayleigh-/Beugungslänge vor der Fokussierung  $Z_R \gg f$ , der Brennweite des Spiegels, ist. Desweiteren wird von

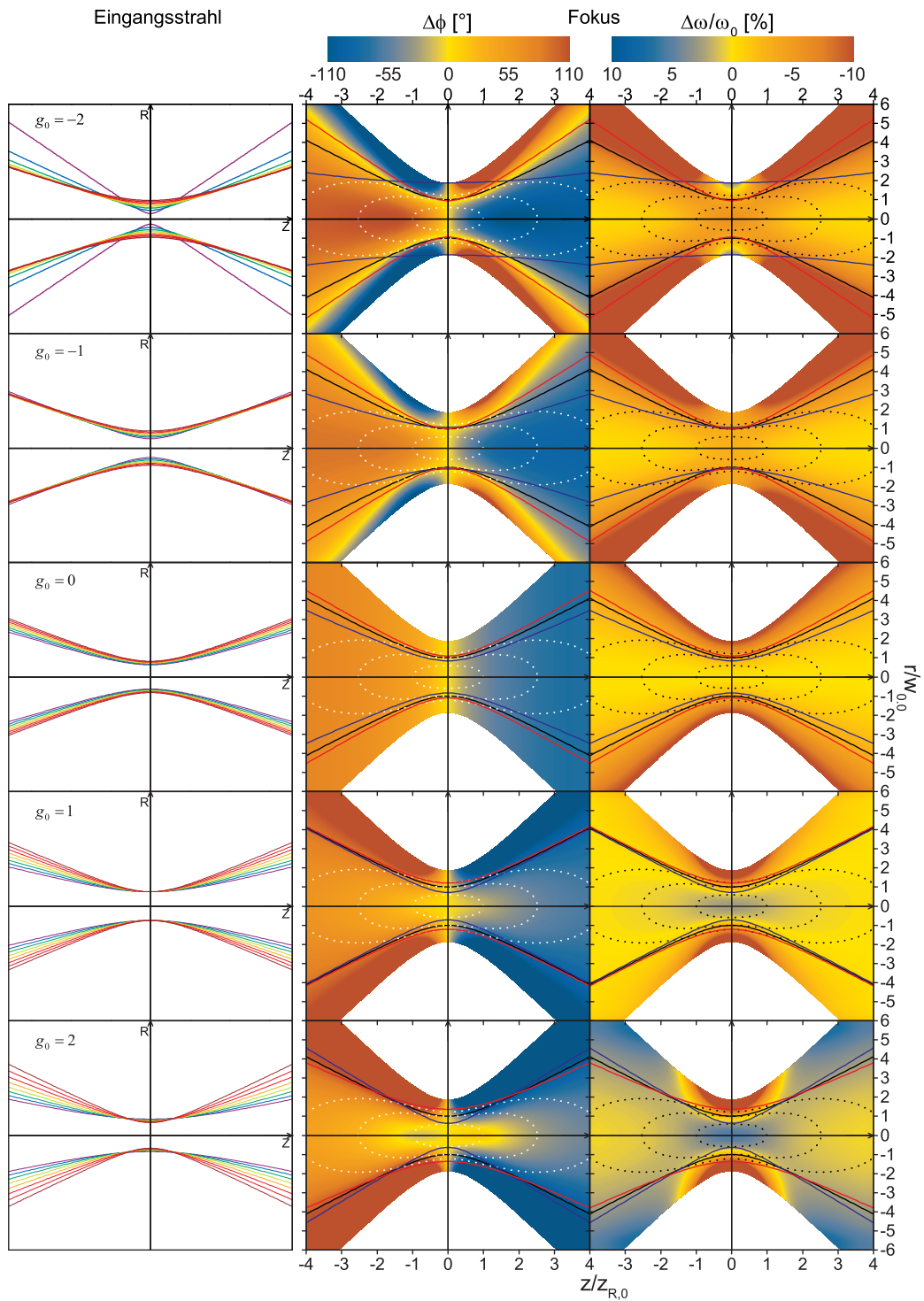


Abbildung 3.2: Fünf Beispiele zum Zusammenhang von Eingangsstrahl und Fokus, vgl. Text.



paraxialer Näherung und einem gut komprimierten Puls mit schwacher Dispersion beziehungsweise flacher Phase höherer Ordnungen ausgegangen. Das bedeutet insbesondere, dass sich die Pulseinhüllende während der Fokussierung nicht oder nur vernachlässigbar verformen soll. Zur zeitlichen und spektralen Beschreibung des kollimierten gepulsten Gausstrahls vor der Fokussierung wird von Porras ein ähnlicher Formalismus wie in Gl. 2.5 genutzt

$$E(t) = \varepsilon(t)e^{-i\omega_0 t} e^{i\phi} \quad (3.9)$$

mit  $\varepsilon(t) = \sqrt{2I(t)/(\epsilon_0 c)}$  als Einhüllender, wobei  $I(t)$  die Intensität,  $\omega_0$  die Trägerfrequenz (der Zentralwellenlänge),  $\epsilon_0$  die elektrische Feldkonstante und  $\phi$  die Eingangs CEP ist. Die Phase  $\phi$  wird so gewählt, dass  $\text{Im } \varepsilon(0) = 0$  zum Zeitpunkt des Maximums ( $t = 0$ ) bei  $r = z = 0$  ist [91]. Das dazugehörige Spektrum im Raum nach einer Fokussierlinse kann angegeben werden als

$$E(\omega, r, z) = \varepsilon(\omega, r, z)e^{-i\Phi(\omega, r, z)} \quad (3.10)$$

mit  $\varepsilon(\omega, r, z) = \sqrt{4\pi S(\omega, r, z)/(\epsilon_0 c)}$  als spektraler Einhüllender,  $S(\omega)$  als spektraler Intensität und  $\Phi(\omega, r, z)$  der spektralen Phase. Die Phase wird bei  $\omega_0$  (Mittelfrequenz) in eine Taylor-Reihe entwickelt

$$\Phi(\omega, r, z) = \Phi_0(r, z) + \left. \frac{\partial \Phi(\omega, r, z)}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^2 \Phi(\omega, r, z)}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \dots \quad (3.11)$$

Unter Vernachlässigung höherer Ordnungen und zusammen mit dem ortsabhängigen  $\Phi_0(r, z)$  wird das elektrische Feld im Fokus angegeben als  $E(t, r, z) = \varepsilon(t, r, z)e^{-i[\omega_0 t - \Phi_0(r, z)] + i\phi}$ . Die Wellenfronten des elektrischen Feldes, bei denen im Exponent  $\omega_0 t - \Phi_0(r, z) = \text{const}$  gilt, breiten sich mit der Phasengeschwindigkeit  $v_p = \omega_0 / |\text{grad } \Phi_0(r, z)|$  aus, während die Pulsfront, wo die Einhüllende maximal ist ( $t = \Phi_0'(r, z)$ ), sich mit der Gruppengeschwindigkeit  $v_g = 1 / |\text{grad } \Phi_0'(r, z)|$  ausbreitet. Hier steht ' für Ableitung nach der Frequenz. Durch gerade diese Unterschiede in beiden Geschwindigkeiten ergibt sich eine,

für jeden Punkt verschiedene, Phase  $\phi(r, z) = \phi - \omega_0 \Phi'(r, z) + \Phi_0(r, z)$  [90, 91]. Je nach spektraler Geometrie kommt es dann zu unterschiedlichen Krümmungen der Phasen- und Pulsfronten. Mit diesen Voraussetzungen gelangt Porras nach umfangreichen Rechnungen zur lokalen Phasenverschiebung

$$\Delta\phi = \phi(r, z) - \phi = -\arctan\left(\frac{z}{z_R}\right) + \frac{g_0 \left[1 - 2\left(\frac{r}{w(z)}\right)^2\right]}{\frac{z}{z_R} + \frac{z_R}{z}}. \quad (3.12)$$

Anders als bei Porras beziehen wir uns hier mit den experimentellen Werten auf  $\phi$  an der Stelle  $z = r = 0$ , sodass die Differenz dort definitionsgemäß null ist. Hier begegnet man wieder dem Gouyphasenanteil  $\zeta$  von oben, mit einem Korrekturterm, der den Parameter

$$g_0 = \frac{Z'_{R,0}}{Z_{R,0}} \cdot \omega_0 \quad (3.13)$$

sowie den relativen Radius zur lokalen Strahlweite enthält  $\left(\frac{r}{w(z)}\right)$ . Der Parameter  $g_0$  resultiert aus der spektralen Variation der Rayleighlänge *vor* der Fokussierung  $Z'_{R,0}$ , in Bezug zur Rayleighlänge *vor* der Fokussierung selbst  $Z_{R,0}$  (bei der Mittenfrequenz), mit

$$Z_R = \omega \frac{W^2}{2c}. \quad (3.14)$$

Der dimensionslose Parameter  $g_0$  ist also die normierte erste Ableitung der Eingangs-Rayleighlänge nach  $\omega$ , ausgewertet bei  $\omega_0$  und beschreibt die spektrale Geometrie des Strahls. Damit ist er natürlich nur eine erste Näherung für den spektralen Verlauf der Rayleighlänge, aber wir sehen im Folgenden, dass er eine gute Orientierung für die fokale Phase gibt.

Dieser Formalismus gilt nicht nur für den sichtbaren oder nahen infraroten Spektralbereich, sondern auch allgemein für breitbandige kohärente Strahlung, wie sie bspw. im XUV oder THz-Bereich erzeugt werden kann. In Abbildung 3.2 ist dieser Zusammenhang zwischen allgemeiner spektraler Eingangsstrahlgeometrie  $W(\omega, Z, R)$  (linke Spalte, Großbuchstaben) und Fokus (rechte Spalten, Kleinbuchstaben) exemplarisch für verschiedene theoretische Strahleigenschaften

$g_0$  graphisch dargestellt. Links sind acht gleichverteilte Wellenlängen gezeichnet, bei denen typischerweise im Labor  $W_0$  einige mm und  $Z_R$  mehrere m beträgt. Bei Fokussierung des Eingangstrahls an der Strahltaile  $W_0(Z = 0)$  folgen aus der Geometrie die räumlichen Fokusparameter Phase  $\Delta\Phi(z, r)$  (mitte) und relative Mittenfrequenzverschiebung  $\Delta\omega/\omega_0(z, r)$  (rechte Spalte).

Zum Beispiel ist  $g_0 = -1$  bei konstanter Divergenz (Abb. 3.2, 2. Zeile),  $g_0 = 0$  bei konstanter Rayleighlänge (Abb. 3.2, 3. Zeile) und  $g_0 = 1$  bei konstanter Strahlweite (Abb. 3.2, 4. Zeile). In letzterem Fall sieht man, wie alle Wellenlängen den gleichen Strahldurchmesser an der Eingangsstrahltaile zeigen. In diesem Fall kommt es in dem CEP-Verlauf interessanterweise zu einem Sattelpunkt im Fokusbereich ( $z \approx 0$ ,  $r \approx 0$ ), bei dem die Phase relativ flach verläuft. Vergleicht man die zwei weiteren Beispiele für größere  $g_0$ -Beträge,  $g_0 = -2$  und  $+2$  in der ersten und letzten Zeile, mit den Beispielen von kleineren  $g_0$ -Beträgen in der Mitte, so sieht man, dass es dort auch zu einer stärkeren radialen Variation der CEP kommt. Darauf wird auch später noch in Kapitel 3.4 eingegangen.

Die Farbskala für den CEP-Verlauf ist bei  $|\Delta\phi| > 110$  deg beschnitten und der lokale Strahldurchmesser bei Intensitäten unterhalb von  $10^{-3}$  des Achsenwertes, was Radien von  $r > 1.86 w(z)$  entspricht. Die schwarze Linie zeigt den lokalen  $1/e^2$  Intensitätsradius  $w(z)$  für die Mittenfrequenz, die blaue und rote Linie entsprechen den für die Ränder des Spektrums. Die weiß beziehungsweise schwarz gepunkteten Linien um den Fokus sind Kurven gleicher Intensität und liegen von innen nach außen bei  $I_0/2$ ,  $I_0/e^2$  und 5% von  $I_0$ .

Wie eingangs beschrieben, ist auch die Zentralfrequenz über den Fokusbereich zu einem gewissen Grade von der spektralen Geometrie abhängig. Basierend auf dem obigen Formalismus hat Porras auch den Einfluss von  $g_0$  auf diesen Parameter quantifiziert [91]. Die lokale Frequenzverschiebung relativ zur Zentralfrequenz ist dazu für die verschiedenen  $g_0$  in der rechten Spalte von Abb. 3.2 gezeigt und beträgt

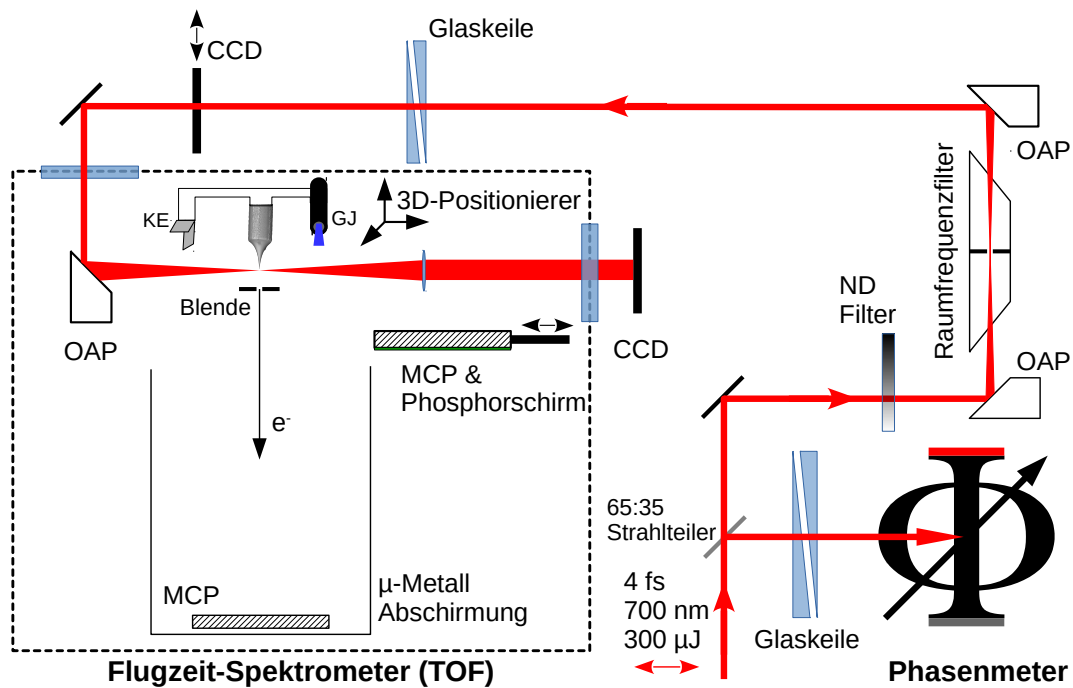
$$\frac{\Delta\omega}{\omega_0}(z, r) = \left\{ \frac{2g_0}{1 + \left(\frac{z}{z_{R,0}}\right)^2} - 2 \left(\frac{r}{w(z)}\right)^2 \left[ 1 + g_0 \frac{1 - \left(\frac{z}{z_{R,0}}\right)^2}{1 + \left(\frac{z}{z_{R,0}}\right)^2} \right] \right\} \times \left( \frac{\delta\omega}{2\sqrt{2} \ln 2 \omega_0} \right)^2, \quad (3.15)$$

wobei  $\delta\omega$  die Halbwertsbreite des Gaußschen Intensitätsspektrums (FWHM) ist. Man sollte anmerken, dass Porras bei dieser Breite von dem Spektrum in der Mitte des Eingangsstrahls bei  $R = 0$  ausgeht. In manche Spektrometer koppelt man jedoch auch den gesamten Strahl ein, was dann der integrierten Intensität entspricht und nicht das gleiche ist, also  $I(\omega, R = 0) \neq \int_R I(\omega, R) 2\pi R dR$ . Die Beispiele in Abb. 3.2 sind für einen 1,5-Zyklen Puls mit einer relativen Kreisfrequenzbandbreite von 0,125 berechnet. Die Farbskala zeigt die blau- beziehungsweise rot-Verschiebung.

## 3.2 Messaufbau für die Nanospitzen

Da mit diesem Aufbau sowohl Elektronenspektren von Gasen als auch von Nanospitzen gemessen werden sollen, und dementsprechend ein besser definierter und charakterisierter Fokus nötig ist, wurde der einfache Phasetaggingaufbau aus Kapitel 2.3 erweitert. Neben dem Gasjet (GJ) und der Nanospitze werden weitere Elemente zur Diagnostik der Spitzengüte und Fokuscharakterisierung benötigt, die zudem noch beweglich sein müssen. Der gesamte Aufbau ist in Bild 3.3 gezeigt und die wesentlichen neuen Elemente im Vergleich zu 2.3 werden hier erläutert.

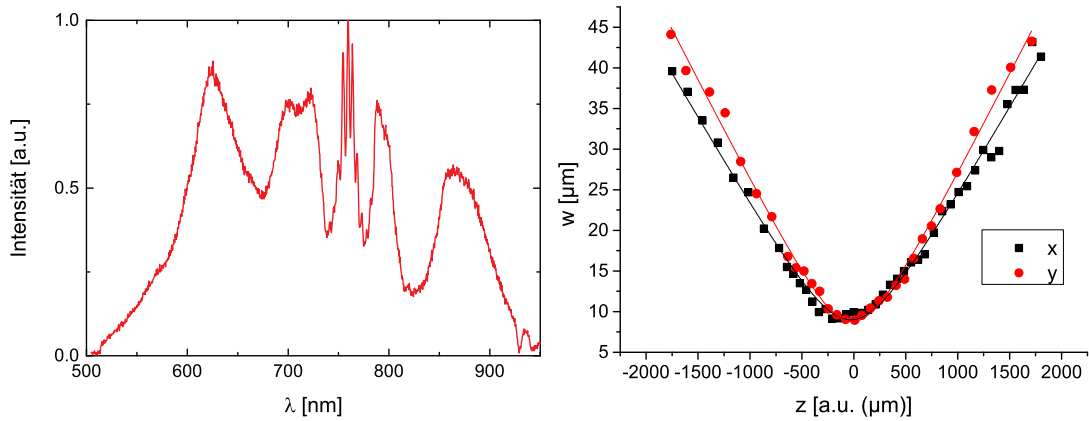
Der horizontal polarisierte Pulszug, bestehend aus 4 fs, 300  $\mu\text{J}$ , 700 nm Pulsen (Spektrum Abb. 3.4), wird hier mit einem 65:35-Strahlteiler auf das Flugzeitspektrometer (TOF) und das Phasenmeter aufgeteilt, in beiden Armen werden Glaskeile zur Kompression der Pulse eingesetzt. Durch die hohe Ortsauflösung der Nanospitze als "Feldsensor" und dem Ziel quantitative Aussagen über die CEP-Entwicklung im Fokus machen zu können, war es nötig, zusätzlich zum Aufbau in Kap 2.3 den Laserstrahl im TOF-Arm räumlich zu filtern. Dazu wurde ein Raumfrequenzfilter konstruiert, der aus einem 90°-off-axis Parabolspiegel und einem kleinen  $d = 25$  mm Vakuumrohr mit einer eingesetzten Lochblende besteht ( $d = 65 - 100$   $\mu\text{m}$ ), die dann im Fokus platziert wurde und nur den Kern des Raumfrequenzspektrums mit 80 – 90% der Leistung hindurch lässt. Dadurch erreicht man ein schönes gaußähnliches Profil, vgl. Abb. 3.5. Um eine geeignete Fokusgröße mit ausreichend Signalstärke für beide Spezies (Nanospitze und Gas) zu erreichen, wurde der Strahldurchmesser mit dem zweiten Kollimationsparabolspiegel etwas verjüngt, sodass vor der Vakuumkammer des Elektro-



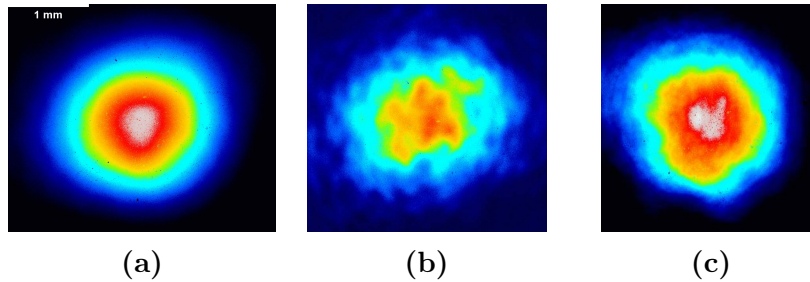
**Abbildung 3.3:** Phasetagging Aufbau zum Vergleich von Elektronenspektren einer Metallnanospitze mit Gasen, der auch zur Vermessung der CEP im Fokus verwendet wurde. Am Strahlteiler werden 35% der Pulsenergie zur Messung der CEP des jeweiligen Pulses an das Phasenmeter abgezweigt. Der Strahl zum Flugzeitspektrometer (TOF) wird zusätzlich durch einen Raumfrequenzfilter gelenkt, um ein sauberes Strahlprofil zu erreichen. Die CCD vor der Nanospitzenkammer wurde zeitweilig für die Strahlprofilmessungen genutzt. In der Vakuumkammer des TOF wird mit einem Off-Axis-Parabolspiegel (OAP) auf die Nanospitze fokussiert. Die Nanospitze, Gasdüse (GJ) und Knife-Edge (KE) sind auf einem xyz-Piezo-Positionierer montiert und beweglich. Die Mikrokanalplatte (MCP) mit Phosphorschirm wurde zeitweilig zur Nanospitzen-Diagnostik genutzt. Hinter dem TOF wurde die CCD für die Knife-Edge-Messung des Fokusses verwendet.

nenspektrometers ein Durchmesser von  $\approx 3$  mm erreicht wurde, was zusammen mit dem  $f = 50$  mm  $90^\circ$ -off-axis Parabolspiegel im Experiment zu einem Fokusedurchmesser von etwa  $18 - 20 \mu\text{m}$  führte, vgl. Abb. 3.4. So war gewährleistet, dass mit dem Gasjet genügend Zählrate erreicht werden konnte, um eine Xe-Gas-Referenzmessung zu machen. Die Verwendung von Off-axis-Parabeln hat den weiteren Vorteil, dass der Astigmatismus des Laserstrahls weitestgehend kompensiert werden konnte. Zur Messung der kollimierten Strahldurchmesser wurde zeitweilig eine CCD-Kamera vor der Vakuumkammer eingesetzt.

An der Stelle des Fokus befindet sich ein Piezo-getriebener 3D-SmarAct Positio-

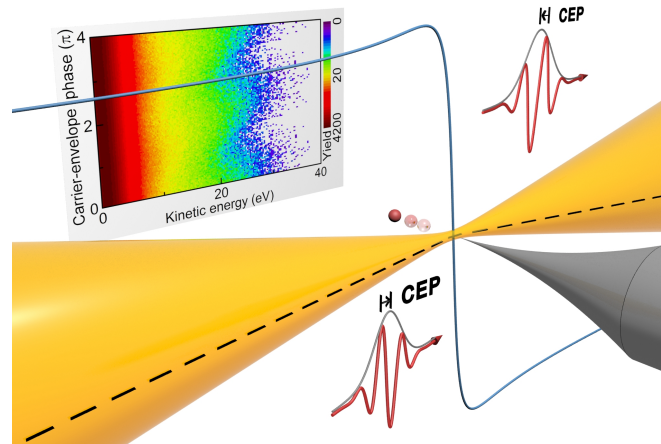


**Abbildung 3.4:** Beispiel für ein typisches Laserspektrum (links, nach dem Raumfrequenzfilter) und einen Knife-Edge-Scan (rechts): Strahlradius  $w$  entlang der optischen Achse ( $z$ ) in  $x$ - und  $y$ -Dimension,  $z$ -Offset nicht kalibriert, die Strahlparameter liegen für die verschiedenen Messreihen bei etwa  $z_R = 400 \pm 50 \mu\text{m}$  (hier:  $z_R = 371 \mu\text{m}$ ) und  $w_0 = 9 \pm 0,5 \mu\text{m}$



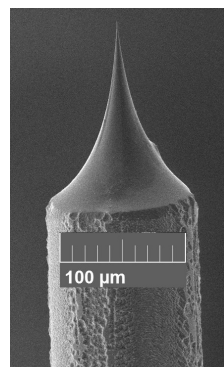
**Abbildung 3.5:** Beispiel für ein Gesamtstrahlprofil (a), sowie optisch gefilterte Profile bei 550 nm (b) und 800 nm (c).

nierer [106] auf dem die Gas-Düse (GJ, schwarz mit blauem Jet), die Nano-Spitze und die horizontal-vertikal-Knife-Edge montiert sind. Die Laserpolarisation liegt parallel zur Spitze und damit senkrecht auf der Apex-Fläche, aus der die Elektronen emittiert werden. Zur Selektion eines kleinen Raumwinkelbereichs, und als Gegenpol zur an der Spitze angelegten Gleichspannung, befindet sich gegenüber der Spitze eine bewegliche  $d = 2 \text{ mm}$  Lochblende. Des Weiteren kann eine Diagnostik-Einheit vor die Nanospitze geschoben werden. Diese besteht aus einer MCP und einem Phosphorschirm, auf dem mittels Feldionenmikroskopie die Schärfe der Spitze abgeschätzt werden kann [107]. Der Strahl wird nach dem Fokus wieder mit einer Linse kollimiert und aus der Kammer geführt, dort kann er mit einer CCD-Kamera für die Knife-Edge-Messung registriert werden.



**Abbildung 3.6:** Schematische Nahaufnahme des Fokusbereichs. Die Nanospitze wird an ausgewählten Stellen entlang des Fokus (hellorange) platziert. Die einzelnen Elektronen (rote Kugel) werden durch das horizontale elektrische Feld des Laserpulses von der Spitze weg beschleunigt. Aus den von einigen Millionen Laserpulsen zufälliger CEP (y-Achse) emittierten Elektronen bildet sich das lokale phasenverknüpfte Elektronenspektrum im Hintergrund. Dieses verschiebt sich entlang der y-Achse in Abhängigkeit von der Position der Nanospitze im Fokus. Die blaue Kurve symbolisiert den CEP-Verlauf auf der optischen Achse, was zusätzlich durch die zwei Einzelzyklenpulse vor und nach der Fokusebene veranschaulicht wird.

Eine Nahaufnahme des Fokusbereichs ist in Abb. 3.6 illustriert. Der breitbandige Laserstrahl (hellorange) wird auf die Nanospitze (grau) fokussiert, an der Elektronen (rote Kugel) emittiert werden, deren kinetische Energie über die Flugzeit im Spektrometer bestimmt wird. Ein Beispiel für eine verwendete Wolfram-Nanospitze ist in Abb. 3.7 gezeigt.



**Abbildung 3.7:** Elektronenmikroskopische Aufnahme einer verwendeten Wolfram-Nanospitze [108]

Das Experiment selbst läuft so ab, dass zunächst mit dem Xe-ATI-Signal die Pulsdauer minimiert und eine Referenzmessung aufgenommen wird [63], anschlie-

ßend wird die Knife-Edge-Messung durchgeführt (Abb. 3.4), bei der die Position für die Spitze im Fokus abgeschätzt wird [109, 110]. Von dieser Position ausgehend werden mehrere Stellen entlang der optischen Achse gemessen, um später einen Fit durch den Verlauf legen zu können und zusätzliche Informationen über den Fokus zu gewinnen. Es wurden drei Messreihen des Phasenverlaufs im Fokus aufgenommen. Bei den ersten beiden wurde auf der optischen Achse verblieben und ein Bereich von etwa  $-4$  bis  $+4 z_R$  gescannt, jeweils einmal mit einer Wolfram- und einmal mit einer Gold-Spitze. Für die dritte Reihe wurden dann auch Punkte außerhalb der Achse abgerastert, die sich über ein Gebiet von etwa  $z = \pm 2 z_R$  und  $r = 0 - 1,6 w$  erstreckten. Nach der Knife-Edge-Messung wurde die Spitze an die so bestimmte Fokus- $z$ -Position gefahren und die Zählrate in  $x$ - und  $y$ -Richtung optimiert. Ausgehend von dieser Position wurde sie weiter sukzessive in die vorderen und hinteren Bereiche des Fokus platziert und Elektronenspektren dort aufgenommen. Die Intensität wurde jeweils entsprechend dem obigen Formalismus mit der  $z$ - und  $r$ -Position angepasst, um annähernd gleiche Verhältnisse an der Spitze zu gewährleisten, die sich anhand der Zählrate und dem Cut-off bestätigen ließen. Zwischendurch wurden wiederholt Punkte am Fokus aufgenommen, um potentielle Drifts ausschließen oder in der Auswertung kompensieren zu können.

Für die Off-axis Messung wurde eine Reihenfolge gewählt, wie sie in Abbildung 3.8 gezeigt ist. Auch dort wurde sich, vom Fokus ausgehend, in die äußeren Bereiche vorgetastet, mit wiederholter Rückkehr zum Fokus. Zunächst in der Region von  $z = 0, \pm 1 z_R$ ;  $r = 1 w$ , und im weiteren Verlauf bei  $z = \pm 2 z_R$ ;  $r = \sqrt{2} w$ , da dort zwei für unsere Strahlcharakteristik interessante Effekte zu beobachten sein sollten: ein relativ flacher CEP-Verlauf in der ersten Region und eine Umkehr des Vorzeichens der CEP in dem zweiten/äußeren Bereich.

Zum Vergleich und zur besseren Einschätzung unserer Strahlgeometrieparameter, wurde zusätzlich mithilfe von Filtern für verschiedene Wellenlängen der Strahldurchmesser vor der Fokussierung bestimmt, vgl. CCD in Aufbau 3.3. Dies wurde zusätzlich auch an einer zweiten Stelle weiter vorne im Strahlengang geprüft, um einschätzen zu können, wie stark der Strahl divergiert/konvergiert. Dieser Test ergab im Rahmen der Messgenauigkeit keinen Unterschied zur Position vor der Kammer, sodass die Näherung eines gut kollimierten Strahls dort gerecht-



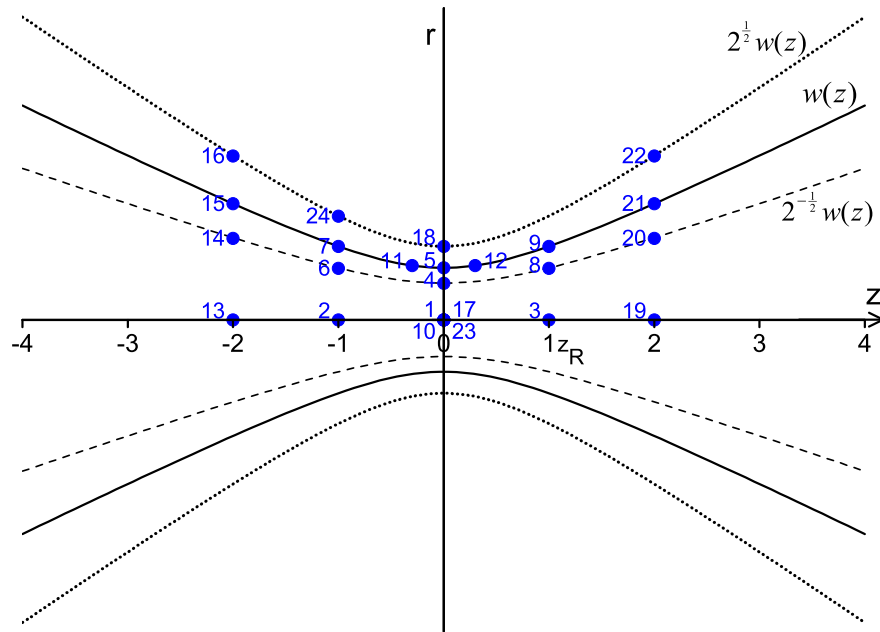


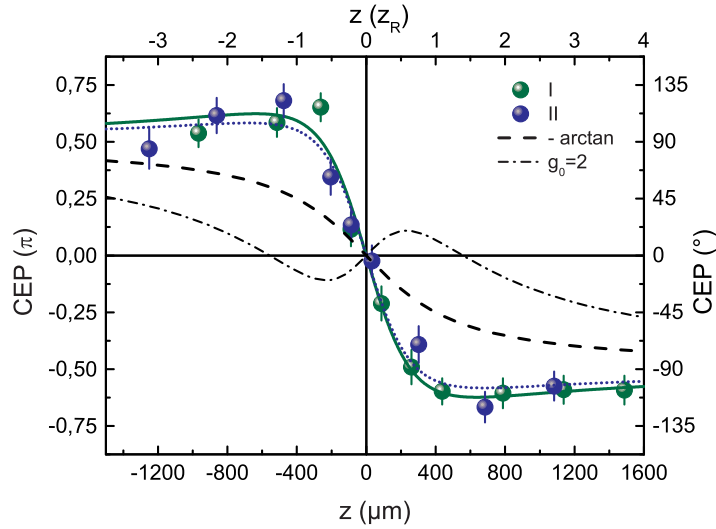
Abbildung 3.8: Veranschaulichung der Messreihenfolge für die Off-Axis-Messung

fertigt ist. Auch wenn das Strahlprofil mitnichten über den gesamten Spektralbereich ideal gaußförmig ist (Abb. 3.5) und es bei einem weitestgehend kollimierten Strahl schwierig ist, die exakte Taillenweite zu messen, kann man so doch eine grobe Abschätzung für den oben eingeführten Parameter  $g_0$  machen.

### 3.3 Ergebnisse der drei Messreihen

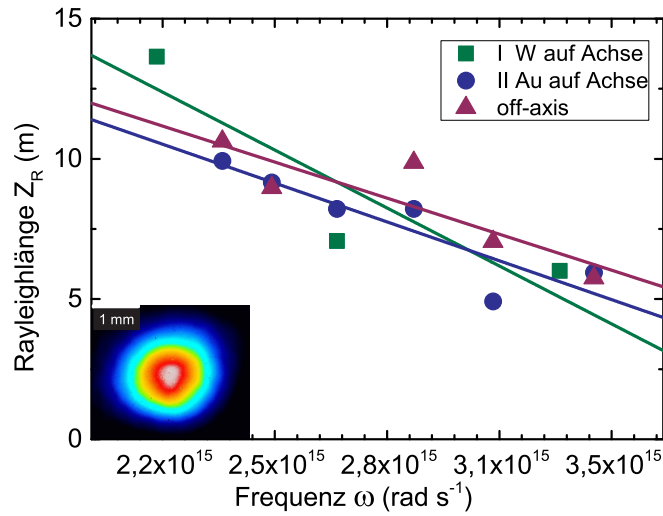
#### 3.3.1 1D-Messung auf der optischen Achse

In Abbildung 3.9 sind die beiden Messreihen mit Nanospitzen aus Wolfram (W) und Gold (Au) entlang der optischen Achse zusammengefasst, aus Hoff, Krüger et al. [102]. Man erkennt die deutliche Abweichung zum reinen Arctan-Verlauf der Gouyphase, die sich in positiven und negativen Extremwerten  $> |\frac{\pi}{2}|$  bei z-Positionen von etwa  $\pm 1,5 z_R$  und einem deutlich steileren Verlauf in der Nähe des Fokus  $z = 0$  ausdrückt. Die Messunsicherheiten für die Punkte betragen  $\approx 0,2\text{rad}$ . Für die Auswertung wurde eine Kurve an die Punkte angepasst, bei der die in Abschnitt 3.1 eingeführten Formel (3.12) für  $r = 0$  verwendet wur-



**Abbildung 3.9:** Verlauf der CEP auf der optischen Achse als Funktion der  $z$ -Koordinate. Gemessen wurde mit zwei verschiedenen Nanospitzen aus Wolfram (I, grün) und Gold (II, blau). Die entsprechenden farbigen Kurven sind Anpassungen von Gl. 3.12 an die Messwerte. Die Rayleighlänge beträgt  $z_R \approx 400 \mu\text{m}$ , für die auch zum Vergleich der Gouy-Verlauf mit der  $-\arctan$  Kurve und ein Verlauf für eine andere Strahlgeometrie von  $g_0 = +2$  gezeigt ist [102]. Details siehe Text.

de. Dabei ergab sich der Parameter  $g_0 = -2,1 \pm 0,2$  für die Reihe I mit W ( $z_R = 380 \pm 50 \mu\text{m}$ , reduziertes  $\chi^2 = 1,3$ ) und  $g_0 = -1,8 \pm 0,3$  für die Reihe II mit Au ( $z_R = 365 \pm 50 \mu\text{m}$ , reduziertes  $\chi^2 = 1,6$ ). Aus dem Fit der Reihe von Messpunkten ergaben sich auch Offsets in  $z$  und  $\phi$ . Diese symmetrisieren den Verlauf, sodass die Kurve punkt-symmetrisch um  $z = 0$  liegt. Dadurch ist es möglich, den Fokus genauer zu bestimmen als mit der Knife-Edgemessung allein, was später wichtig für den Vergleich von Spitze und Gas ist. Der vorher abgeschätzte Fokussmesspunkt für die Nanospitze liegt also nicht genau beim Punkt der Symmetrie, was bei diesem Graph bereits berücksichtigt wurde. Die Offsets betragen für Reihe I, W:  $z_0 = 87 \pm 29 \mu\text{m}$ ,  $\phi_0 = 0,663 \pm 0,092 \text{ rad} = 38 \pm 5^\circ$  und für Reihe II, Au:  $z_0 = -86 \pm 32 \mu\text{m}$ ,  $\phi_0 = -0,423 \pm 0,123 \text{ rad} = -24 \pm 7^\circ$ . Die Ursache für die begrenzte Genauigkeit in der Positionierung durch die Kombination Knife-Edge - Spitze liegt zum einen in der Bestimmung des Abstandes von Knife-Edge und Spitze sowie in einem leichten Rest-Astigmatismus des Fokus, vgl. Abb. 3.4. Die hier ermittelten Werte von  $g_0$  entsprechen einer mit der Wellenlänge größer und mit der Frequenz kleiner werdende Rayleighlänge des Eingangsstrahls vor



**Abbildung 3.10:** Spektralen Rayleighlänge vor der Fokussierung  $Z_R$ , berechnet aus optisch gefilterten Strahlprofilmessungen die parallel zu den jeweiligen Spitzenmessungen gemacht wurden: für die Achsenmessung mit W (I, grüne Quadrate) und Au (II, blaue Kreise) sowie der Off-Axis-Messung (lila Dreiecke).

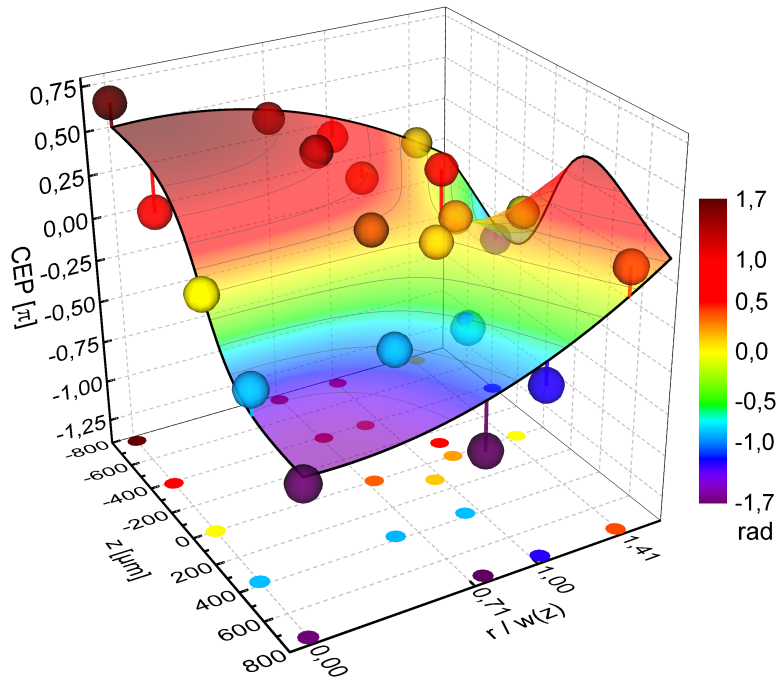
der Fokussierung.

Zur Gegenprobe wurde daher auch die spektrale Geometrie des Eingangsstrahls untersucht. In Diagramm 3.10 ist das Ergebnis der Abschätzung aus den Strahldurchmesserbestimmungen vor der Kammer zu sehen, vgl. auch Abb. 3.5. Aufgetragen ist die abgeschätzte Rayleighlänge *vor* der Fokussierung  $Z_R$ , aus Gl. 3.13, über der optischen Frequenz. Die so bestimmten normalisierten Steigungen bei der Mittenfrequenz ergeben für die Messreihen  $g_0$ -Werte von  $g_0 = -2,0 \pm 1,0$  für Reihe I und  $g_0 = -1,4 \pm 0,4$  für Reihe II. Sie liegen also im selben Bereich wie die  $g_0$ -Parameter aus den Nanotip-Messwerten und können somit die Befunde aus der Nanospitzen-Messung bestätigen.

Es sei hier nochmal betont, dass die Berechnung aus den kollimierten Strahldurchmessern nur eine Näherung ist, vgl. auch Kap. 3.1. Da die Rayleighlängen mehrere Meter sind, ist die Annahme der spektralen Durchmesser als Strahl-taille plausibel, aber in zukünftigen genaueren Untersuchungen können durchaus höhere Ordnungen im spektralen Verlauf der Eingangs-Rayleighlänge eine Rolle spielen. Die hier gefundene Übereinstimmung zwischen den beiden Methoden deutet aber darauf hin, dass man die relativ einfache spektrale Profilierung des Eingangsstrahls nutzen kann, um eine Orientierung über den fokalen CEP-Verlauf

zu bekommen. Im praktischen Laboralltag ist es natürlich deutlich einfacher, die Geometrie des einige mm großen Eingangsstrahls spektral zu charakterisieren, als für jeden Messaufbau einen Nanospitzen-Scan des  $\mu\text{m}$  großen Fokus durchzuführen.

### 3.3.2 2D-Messung entlang der optischen Achse

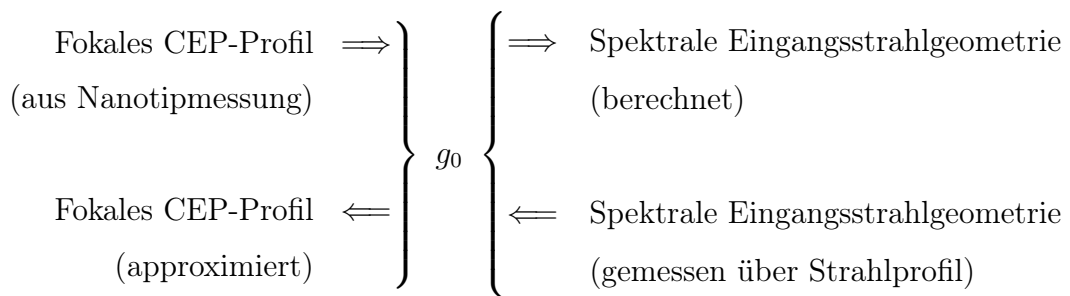


**Abbildung 3.11:** CEP-Fokusprofil mit Messungen abseits der optischen Achse und angepasster CEP-Oberfläche. Die CEP ist für beide zusätzlich farblich kodiert und der Durchmesser der Kugeln reflektiert die Messungenauigkeit ( $\approx 0,2$  rad). Zur Einordnung im Raum sind auch Projektionen in die z-r Ebene gezeigt. Zur besseren Sichtbarkeit ist die r-Achse mit  $w(z)$  normiert, das heißt es gibt einen gewissen "zoom"-Effekt und die Kaustiken  $2^{-1/2}w(z)$ ,  $w(z)$  und  $2^{1/2}w(z)$  liegen parallel zur z-Achse [102].

Im Folgenden werden die experimentellen Resultate der 2D-Messung dargestellt. Die Messpunkte beschränken sich auf eine horizontale Halbebene des Fokus, vgl. Abb. 3.8, da in der anderen Hälfte ansonsten die Spitze voll vom Strahl getroffen worden wäre. Wegen der Rotationssymmetrie des Fokus ergibt sich aber automatisch der übrige Raum. Abbildung 3.11 zeigt ein dreidimensionales Profil der CEP-Messwerte entlang des Fokus, welche durch die Oberfläche, beschrie-

ben durch Gl. 3.12, approximiert wurden. Für den gezeichneten Oberflächen-Fit wurde eine Rayleighlänge von  $z_R = 350 \pm 50 \mu\text{m}$  und ein Fokusbereich von  $w_0 = 9 \pm 0,5 \mu\text{m}$  verwendet, die aus der Knife-Edge-Messung bestimmt wurden. Die Anpassung ergab so den Fitparameter  $g_0 = -1,2 \pm 0,3$  mit reduziertem  $\chi^2 = 3,7$ . Die entsprechende Abschätzung aus den spektralen Eingangsstrahlprofilen, lila Kurve in Abb. 3.10, ergab ebenfalls ein  $g_0$  von  $-1,2 \pm 0,4$ . In dem CEP-Profil sind ein paar charakteristische Effekte in der fokalen CEP breitbandiger Laserpulse für negative spektrale Strahlgeometrieparameter  $g_0$  zu erkennen. Man sieht, dass es eine starke radiale Abhängigkeit der CEP gibt, das heißt für Nanostrukturen spielt es nicht nur eine Rolle, bei welcher z-Position sie platziert sind, sondern auch bei welchem Radius sie liegen. Die radiale CEP-Abhängigkeit ist vor und nach dem Fokus jeweils gegensätzlich gekrümmt, das heißt vor dem Fokus ist sie konkav, während sie nach der Fokusebene konvex ist. Dies führt dazu, dass die CEP weiter außen von der optischen Achse bei  $r \gtrsim w(z)$  das Vorzeichen ändert. Ergo verläuft die CEP mit unterschiedlicher Steigung auf oder entfernt der optischen Achse und es kommt im Bereich der Fokusebene zu einem relativ flachen CEP-Verlauf bei  $r/w \approx 1$ .

Im folgenden Schema sind diese beiden Herangehensweisen zur Bestimmung des fokalen CEP-Verlaufs veranschaulicht. Aus dem mit den Nanospitzen gemessenen fokalen CEP-Profil lässt sich über den Parameter  $g_0$  auf die spektralen Eigenschaften des Eingangsstrahls schließen und umgekehrt lässt sich aus der durch das spektrale Strahlprofil bestimmten Eingangsstrahlgeometrie mit dem Parameter  $g_0$  der fokale CEP-Verlauf abschätzen.



Alle ermittelten Werte von  $g_0$  und  $z_R$  sind noch einmal in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Da für jede Messreihe der Laser mit der Hohlkernfaser und der Strahl-

lengang neu justiert wurde, gibt es eine gewisse Varianz in den Parametern. Das zeigt aber erstens, wie wichtig die Kenntnis über den genutzten Laserstrahl ist und zweitens, ihn dementsprechend vor der Messungen gut zu charakterisieren.

Reihe	$g_0^{\text{Spitze}}$	$g_0^{\text{Strahlprofil}}$	$z_R^{\text{Kn-E}}$
I Wolfram	$-2,1 \pm 0,2$	$-2,0 \pm 1$	$380 \pm 50 \text{ }\mu\text{m}$
II Gold	$-1,8 \pm 0,3$	$-1,4 \pm 0,4$	$365 \pm 50 \text{ }\mu\text{m}$
Off-Axis	$-1,2 \pm 0,3$	$-1,2 \pm 0,4$	$350 \pm 50 \text{ }\mu\text{m}$

**Tabelle 3.1:** Zusammenfassung der Geometrieparameter für die drei Messreihen,  $g_0$  bestimmt aus den Nanospitzen-Scans und der Profilabschätzung,  $z_R$  aus der Knife-Edge-Messung.

### 3.4 Interpretation und Schlussfolgerung

Im Gegensatz zu den Nanospitzen und -strukturen handelt es sich bei einem Großteil der laserinduzierten ultraschnellen Prozesse in Atomen und Molekülen um räumlich ausgedehnte Targets. Das heißt, sie erstrecken sich über einen größeren Bereich des Fokus und erfahren so entsprechend auch einen größeren Bereich an Laserparametern wie Intensität, Zentralwellenlänge, Pulsdauer und Phase. Dieser Effekt wird Intensitätsvolumeneffekt genannt [111, 112, 113]. Durch die in diesem Kapitel gewonnenen Erkenntnisse wird klar, dass es einen analogen Phasenvolumeneffekt gibt und es stellt sich die Frage, welchen Einfluss der fokale CEP-Verlauf auf nichtlineare Effekte hat. Darauf aufbauend kann man überlegen, wie dieser Effekt sich so einstellen lässt, dass er die zu untersuchenden Wechselwirkungen nicht stört, sondern sogar dafür genutzt werden kann, um den räumlichen Phasenverlauf optimal auf den räumlichen Verlauf des laserinduzierten Prozesses anzupassen. Beispielsweise um die Erzeugung von höheren Harmonischen zu optimieren.

Auf seinen Rechnungen aufbauend, wird von Porras auch für Licht-Materiewechselwirkungen, die mit

$$I^n = |E|^{2n} \sim e^{-2n\left(\frac{r}{w(z)}\right)^2} \quad (3.16)$$

skalieren, die transversal gemittelte CEP  $\overline{\Delta\phi} \pm \delta(\Delta\phi)$  für 2-dimensionale Targets,

die also dünn in z-Richtung sind, inklusive ihrer rms-Abweichung berechnet [91]. Nach Gewichtung ergibt sich

$$\overline{\Delta\phi} = \Delta\phi \left[ z, \frac{r}{w(z)} = \frac{1}{\sqrt{2n}} \right] \quad \text{und} \quad \delta(\Delta\phi) = \left| \frac{\frac{g_0}{n}}{\frac{z}{z_R} + \frac{z_R}{z}} \right| \quad (3.17)$$

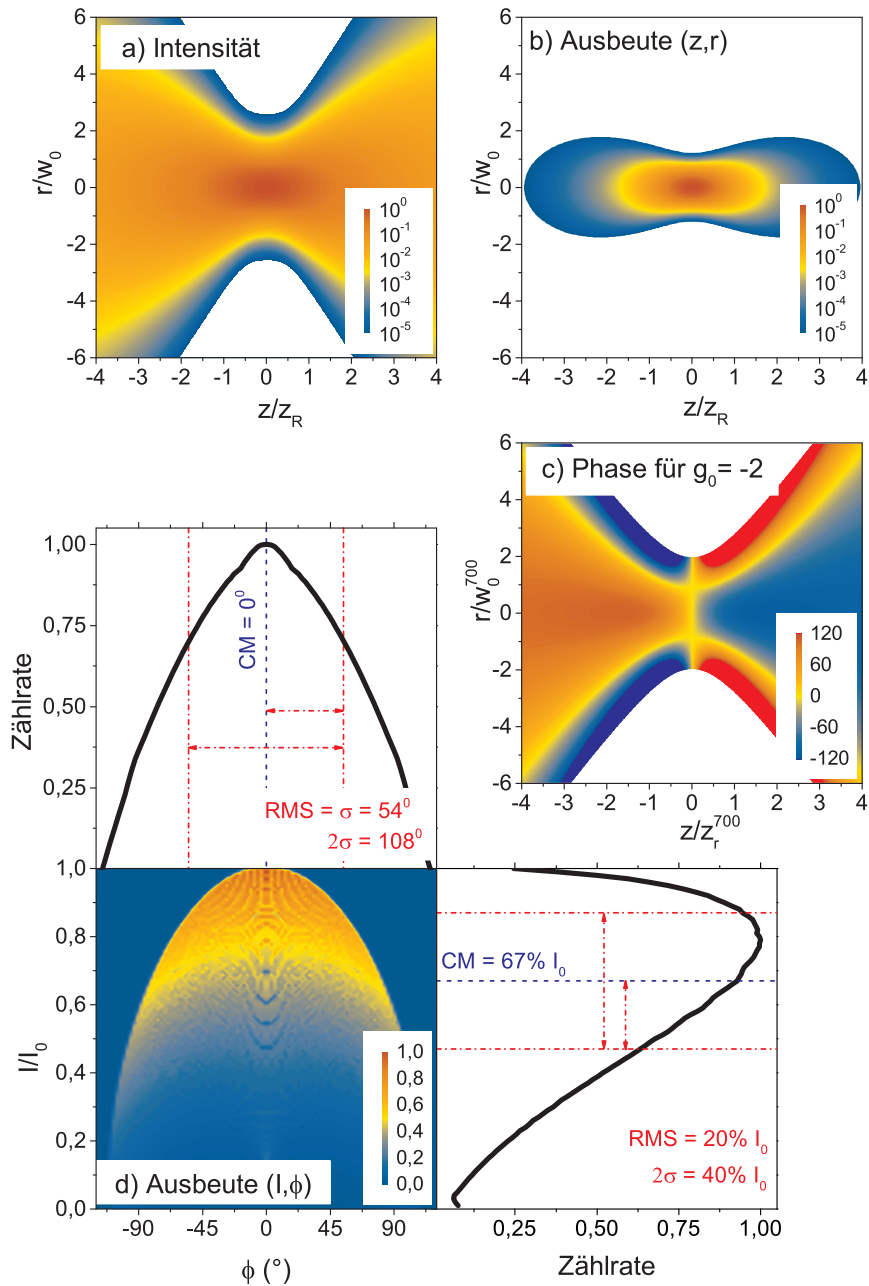
das bedeutet, dass der gemittelte Phasenverlauf den Werten auf einer Kaustik  $\frac{r}{w(z)} = \frac{1}{\sqrt{2n}}$  entspricht und sich dementsprechend auch dort messen ließe (mit  $w(z)$ : Strahlradius der Mittenfrequenz). Im besonderen Fall von hoch nichtlinearen Prozessen schiebt sich diese entsprechend nah an die optische Achse. Für lineare ( $n = 1$ ) Prozesse ergibt sich für die an der jeweiligen z-Position transversal gemittelte Phase der arctan-förmige Gouy-Verlauf, der für alle Fälle von  $g_0$  bei Radius  $\frac{r}{w(z)} = \frac{1}{\sqrt{2}}$  gemessen werden kann und demzufolge nicht mehr von  $g_0$  abhängt, vgl. Gl. 3.12.

Zur Veranschaulichung wird hier ein Beispiel für eine nichtlineare Wechselwirkung vierter Ordnung gegeben ( $\sim I^4$ ), bei der von einem räumlich gleichmäßig über (z,r) verteilten Target wie einem Gas ausgegangen wird. Aus der räumlichen normierten Intensitätsverteilung, Abb. 3.12(a), resultiert dann die zu erwartende Ereignis-Ausbeute in diesem Bereich, Abb. 3.12(b). Damit kann man die fokale Phase (c), die auf diese Ereignisse wirkt, gewichten und bekommt eine Wahrscheinlichkeitsverteilung in Abhängigkeit von den beiden Parametern I und  $\Delta\Phi$ , (d). Für die Berechnung wurden folgende optische Parameter angenommen:  $g_0 = -2$ ,  $f = 50$  mm,  $\lambda_0 = 700$  nm, Eingangsstrahldurchmesser  $D_0 = 5$  mm und Pulsdauer  $\tau = 3,5$  fs. Die effektiven Laserparameter ergeben sich aus der Projektion auf die I- bzw.  $\Delta\Phi$ -Achse und werden durch ihren Schwerpunkt (CM) sowie ihre Standardabweichung (entspricht dem RMSE) beschrieben. Für den Schwerpunkt der Phase gilt dann zum Beispiel

$$\Delta\phi^{\text{CM}} = \frac{\int_z \int_r Y(r, z) \cdot \Delta\phi(r, z) 2\pi r dr dz}{\int_z \int_r Y(r, z) 2\pi r dr dz} \quad (3.18)$$

mit der Standardabweichung

$$\Delta\phi^{\text{RMS}} = \sqrt{\frac{\int_z \int_r Y(r, z) \cdot (\Delta\phi(r, z) - \Delta\phi^{\text{CM}})^2 2\pi r dr dz}{\int_z \int_r Y(r, z) 2\pi r dr dz}} \quad (3.19)$$

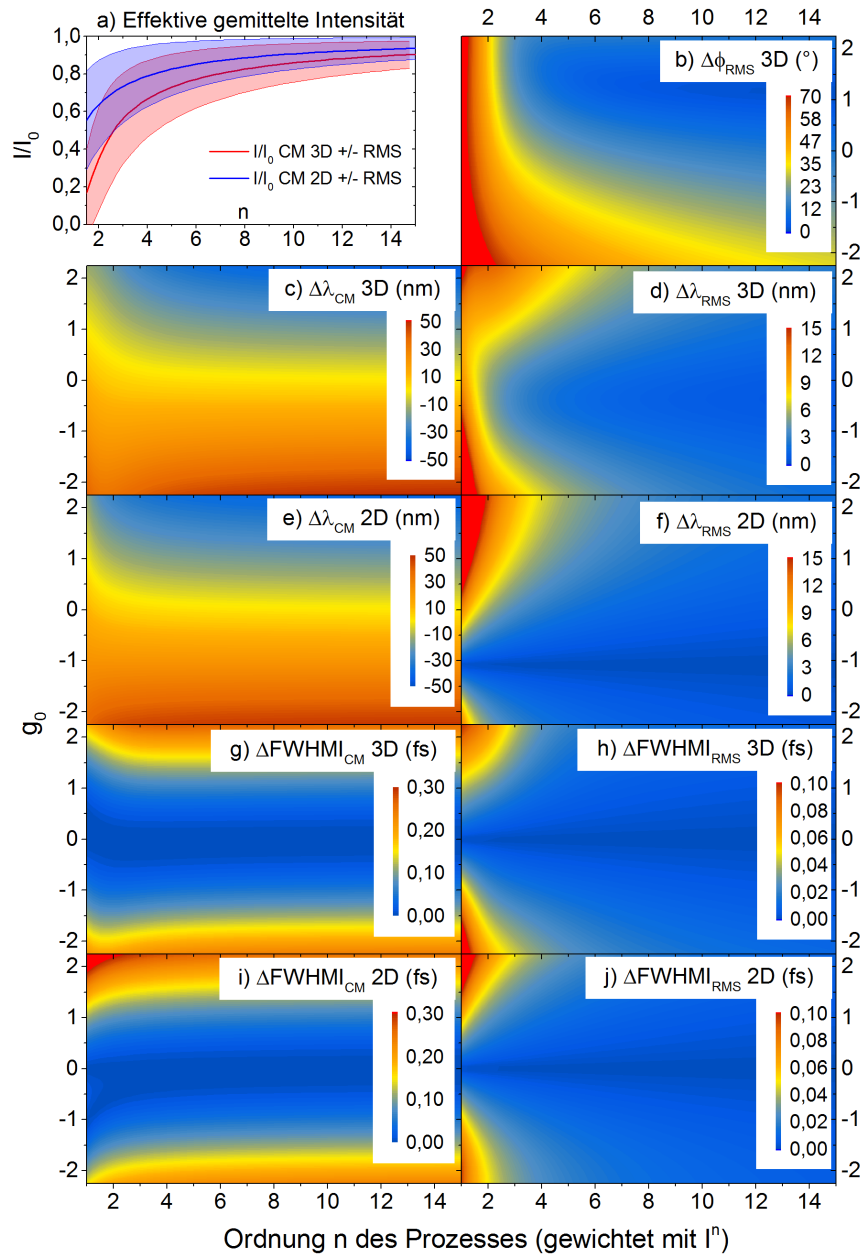


**Abbildung 3.12:** Berechnung der effektiven Laserparameter für einen Prozess vierter Ordnung. Ortsabhängige Intensität (a), daraus folgend die normierte ortsabhängige Ausbeute des Prozesses nach Gewichtung mit  $I^n$  (b) und ortsabhängige Phase (c). Diagramm (d) zeigt die normierte Ausbeute in Abhängigkeit von Intensität und Phase. Mit den Querschnitten über Phase und Intensität aus denen der jeweilige Schwerpunkt CM und die Standardabweichung  $\sigma$  beziehungsweise RMS abgelesen werden können [103].



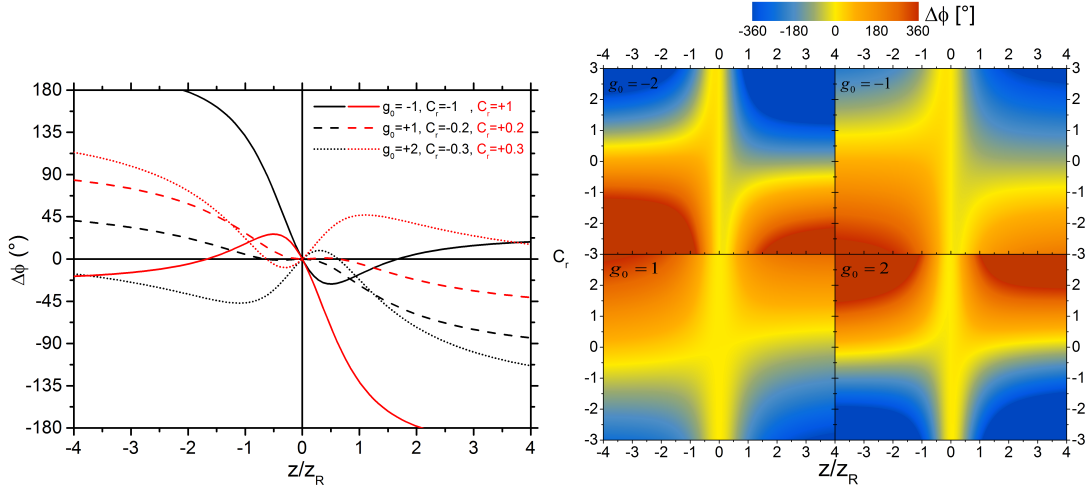
Für das obige Beispiel liegt der Schwerpunkt der Intensität bei 67 % der Spitzenintensität,  $I^{\text{CM}}=0,67 I_0$ , mit einer Standardabweichung von  $\pm 20\%$ , siehe Abb. 3.12(d). Die effektive Intensität liegt also rund 33 % unter dem Spitzenwert im Fokus. Da der Phasenverlauf  $\Delta\phi(r, z)$  antisymmetrisch in  $z$  ist, erhält man für  $\Delta\phi^{\text{CM}}=0$  mit einer Standardabweichung von  $\Delta\phi^{\text{RMS}}=54^\circ$ . Damit ist zu erwarten, dass die tatsächlich experimentell im Fokus zu messenden intensitäts- und phasenabhängigen Ereignisse deutlich verwaschen werden. Um quantitative Übereinstimmung zwischen Messung und Simulation zu sehen, reicht es also nicht, nur von einer Spitzenintensität und einem einzelnen Phasenwert auszugehen, sondern man muss sowohl den Intensitäts- als auch den Phasen-Volumeneffekt berücksichtigen.

Von diesem Beispiel kann man nun weiter gehen und die Abhängigkeit der effektiven Fokusparameter bei höheren Ordnungen  $n$  und anderen spektralen Strahlgeometrien  $g_0$  betrachten, Abb. 3.13. Feld (a) zeigt die effektive Intensität für isotrope 2D Targets, die also dünn im Vergleich mit  $z_R$  sind (blau) und 3D Targets (rot) über der Ordnung der Wechselwirkung. Die Integrationsgrenzen für Gleichung 3.18 und 3.19 sind also für ein zweidimensionales Target  $z = 0$ ,  $0 \leq r \leq \infty$  und für ein dreidimensionales Target  $-\infty \leq z \leq \infty$  und  $0 \leq r \leq \infty$ . Wie auch bei Porras beschrieben sieht man, dass sich beide dem Wert auf der Achse beziehungsweise hier im Fokus selbst ( $I_0$ ) annähern. Der Gewichtung entsprechend, wird auch die Breite der effektiven  $\Delta\Phi$ -Verteilung, Abb. 3.12(d) oben, zu höheren Ordnungen schmaler, Abb. 3.13(b). Die Felder (c-f) zeigen den Einfluss der Prozess-Ordnung und von Parameter  $g_0$  auf die effektive Verschiebung der Zentralwellenlänge  $\Delta\lambda$  von 700 nm für diese 2D und 3D Wechselwirkungsbereiche und ihre Verteilungsbreite. Insbesondere für größere  $g_0$ -Beträge, wie sie ja hier experimentell gesehen wurden, ist eine gewisse Verschiebung zu beobachten, während die Abhängigkeit von der Ordnung eher gering ist. Das gleiche gilt für die effektive Änderung der Bandbreite ( $\Delta\text{FWHMI}$ ) beziehungsweise der Pulsdauer, welche in den Feldern (g-j) dargestellt ist. Schwächere Nichtlinearitäten und größere  $g_0$ -Beträge zeigen also größere Verschiebungen mit größerer Unsicherheit in den effektiven Laserparametern. Mit diesen Betrachtungen kann man für typische Einzelzyklenpulse bestimmen, ob die Verschiebungen relevant für die jeweilige Wechselwirkung sind. Für viele Wechselwirkungen wird die geringe



**Abbildung 3.13:** Verschiebung der effektiven Laserparameter in Abhängigkeit von der Ordnung  $n$  des Prozesses und der spektraler Geometrie beschrieben durch  $g_0$ . Gezeigt sind Parameter für ein dreidimensionales isotropes Target und für ein zweidimensionales Target das dünn in  $z$ -Richtung ist. Feld (a) zeigt die effektive gemittelte Intensität, (b) die Verteilungsbreite der gewichteten Phase (für beide vgl. Abb. 3.12 d), sowie die Verschiebung der effektiven Zentralwellenlänge in (c, e) und die Änderung der Bandbreite beziehungsweise Pulsdauer in (g, i). Die rechten Felder (d, f) und (h, j) geben die Streuung beziehungsweise Unsicherheit der jeweiligen Parameter wieder [103].

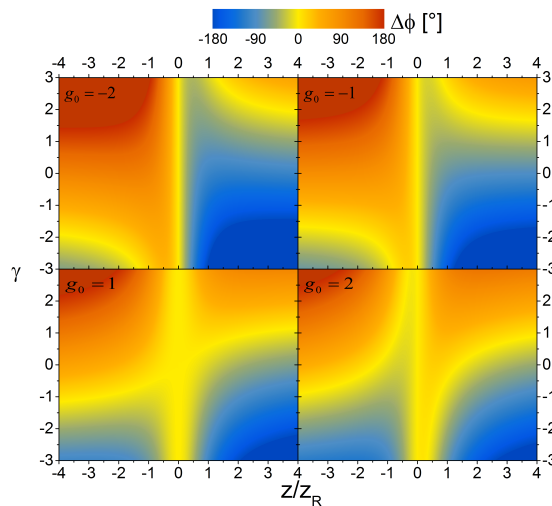
Wellenlängenverschiebung sicher keine so große Rolle spielen, aber wenn man beispielsweise bestimmte Resonanzen bei einer Wellenlänge untersucht, könnte sie Bedeutung erlangen.



**Abbildung 3.14:** Theoretischer CEP-Verlauf auf der optischen Achse in Abhängigkeit von relativem Chirp  $C_r$ , basierend auf Gl. 3.20 [93]. Links: für ausgewählte  $g_0$ - $C_r$ -Kombinationen, bei denen der Verlauf in der Nähe der Fokusebene, also dem Bereich der höchsten Intensität, relativ flach ist. Rechts: Scan des Parameters  $C_r$ , y-Achse, für vier  $g_0$ -Fälle. Der Bereich von  $-3$  bis  $+3$  entspricht  $\pm 27 \text{ fs}^2$  für einen 35 fs FWHMI Puls [103].

Im Abschnitt 3.1 wurde bereits erläutert, welchen Einfluss die spektrale Eingangsstrahlgeometrie über den Parameter  $g_0$  auf den Fokus hat. Dies ist aber nicht die einzige Möglichkeit das CEP-Profil zu beeinflussen. Für den bisher genutzten Formalismus wurden optimal komprimierte, also Fouriertransformation limitierte Pulse angenommen. Davon kann aber nicht in allen Situationen ausgegangen werden. Ein leicht zugänglicher Parameter in Licht-Materiewechselwirkungen ist der Chirp der benutzten Pulse. Als Beispiel sei der Chirp zweiter Ordnung genannt, der einfach mit ein paar Quarzglas-Keilen variiert und oft leichter angepasst werden kann als die spektrale Strahlgeometrie, für die man Spiegel-Linsen-Kombinationen oder Strahlformer verwenden müsste. Aus Gl. 3.17 wissen wir, dass für hoch nichtlineare Wechselwirkungen die effektive CEP dem axialen Verlauf entspricht. Für diesen Verlauf bei  $r=0$  hat Porras auch für gechirpte Pulse den Beitrag zur lokalen CEP berechnet. Dort geht der relative Chirp bezogen auf die Pulsdauer ein  $C_r \equiv \frac{2 \ln(2) C}{\tau^2}$ , worin  $C$  der Chirp zweiter Ordnung des Laserpulses

ist [93]. Nimmt man zum Beispiel Pulse von  $\approx 1,5$  Zyklen an, die auch in diesen Messungen verwendet wurden, so erzeugt man mit  $\approx 200 \mu\text{m}$  Quarzglas einen Chirp von  $C_r = 1$ , da  $C_r = \frac{2 \ln(2) \times 0,2 [\text{mm}] \times 45 [\text{fs}^2/\text{mm}]}{(3,5 [\text{fs}])^2} \simeq 1$  wobei für  $C$  die Gruppengeschwindigkeitsdispersion von Quarzglas von  $45 \text{ fs}^2/\text{mm}$  bei  $700 \text{ nm}$  durch die  $200 \mu\text{m}$  Material verwendet wurde. Abbildung 3.14 illustriert diesen Einfluss des Chirps auf die CEP und auch das Zusammenspiel von  $g_0$  mit verschiedenen  $C_r$ -Werten wird gezeigt. Beispielsweise sieht man für  $g_0 = 1$  einen ausgedehnten gelben Bereich um die Fokusebene. Dieses flache Plateau in der CEP kann sich über einen Bereich bis zu  $1z_R$  vor oder nach der Fokusebene erstrecken und wird für kleine Chirp-Beträge von  $C_r \simeq -0,2 - +0,2$  erreicht. Solch eine flache Phase ist oft für die Erzeugung höherer Harmonischer wünschenswert. Die entsprechende Dicke Quarzglas von  $\approx 40 \mu\text{m}$ , um diese Chirp-Beträge zu erreichen, verursacht übrigens auch eine CEP-Verschiebung von  $\approx \pm 3/2\pi$ .



**Abbildung 3.15:** Theoretischer CEP-Verlauf auf der optischen Achse, farbig, in Abhängigkeit von der longitudinalen chromatischen Aberration  $\gamma$ , y-Achse, und für verschiedene  $g_0$ , basierend auf Gl. 3.20 [93].

In der Regel verwendet man aufgrund der Dispersion für breitbandige Laserpulse Spiegel zur Strahllenkung. Im Zusammenhang mit der fokalen CEP könnte man sich aber auch den Effekt der chromatischen Aberration von Linsen oder Glasplatten im konvergierenden Strahl zunutze machen [114, 92, 93, 95]. Zusammen mit dem Chirp wurde auch dieser Einfluss von Porras berücksichtigt. Die

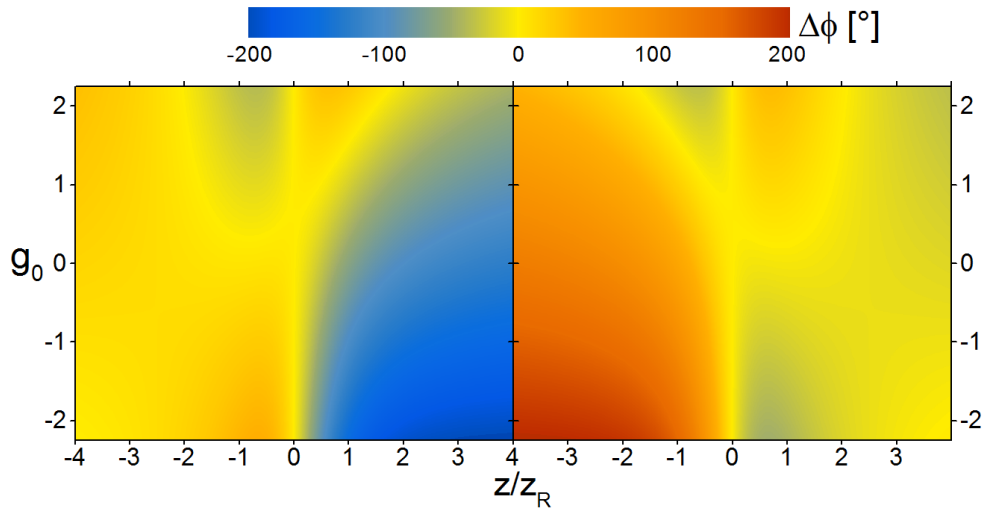
lokale CEP aus Gleichung 3.12 wird um diese Effekte ergänzt und lautet dann

$$\Delta\phi(z) = -\arctan\left(\frac{z}{z_R}\right) + \frac{(g_0 - 2C_r\gamma)\left(\frac{z}{z_R}\right) + (\gamma + 2C_r g_0)\left(\frac{z}{z_R}\right)^2}{1 + \left(\frac{z}{z_R}\right)^2}, \quad (3.20)$$

dabei wird der neue dimensionslose Parameter

$$\gamma \equiv \left. \frac{df(\omega)}{d\omega} \right|_{\omega_0} \frac{\omega_0}{Z_{R,0}} \quad (3.21)$$

eingeführt, welcher die chromatische Aberration durch ein fokussierendes Element der Fokusslänge  $f(\omega)$  quantifiziert [93]. Der Einfluss der chromatischen Aberration auf den CEP-Verlauf auf der optischen Achse ist für einige Beispiele in Abb. 3.15 für ungechirpte Pulse ( $C_r = 0$ ) und verschiedene Fälle von  $g_0$  gezeigt.



**Abbildung 3.16:** Die axiale CEP, farbig, für exemplarische Parameter  $C_r$  und  $\gamma$  bei denen flache Phasen erreicht werden können:  $C_r=0,2$ ,  $\gamma=-1$  (links) und  $C_r=-0,2$ ,  $\gamma=1$  (rechts) in Abhängigkeit von  $g_0$ , y-Achse.

Nachdem die Beiträge von Chirp und chromatischer Aberration in der axialen CEP bisher einzeln betrachtet wurden, kann man sich nun das Zusammenspiel der CEP-beeinflussenden Parameter  $g_0$ ,  $C_r$ , und  $\gamma$  verdeutlichen.

Abbildung 3.16 zeigt einen  $g_0$ -scan, y-Achse, für  $C_r=\pm 0.2$  und  $\gamma=\mp 1$ . Ausgedehnte flache Bereiche sieht man um die Fokusebene insbesondere für  $g_0=0$

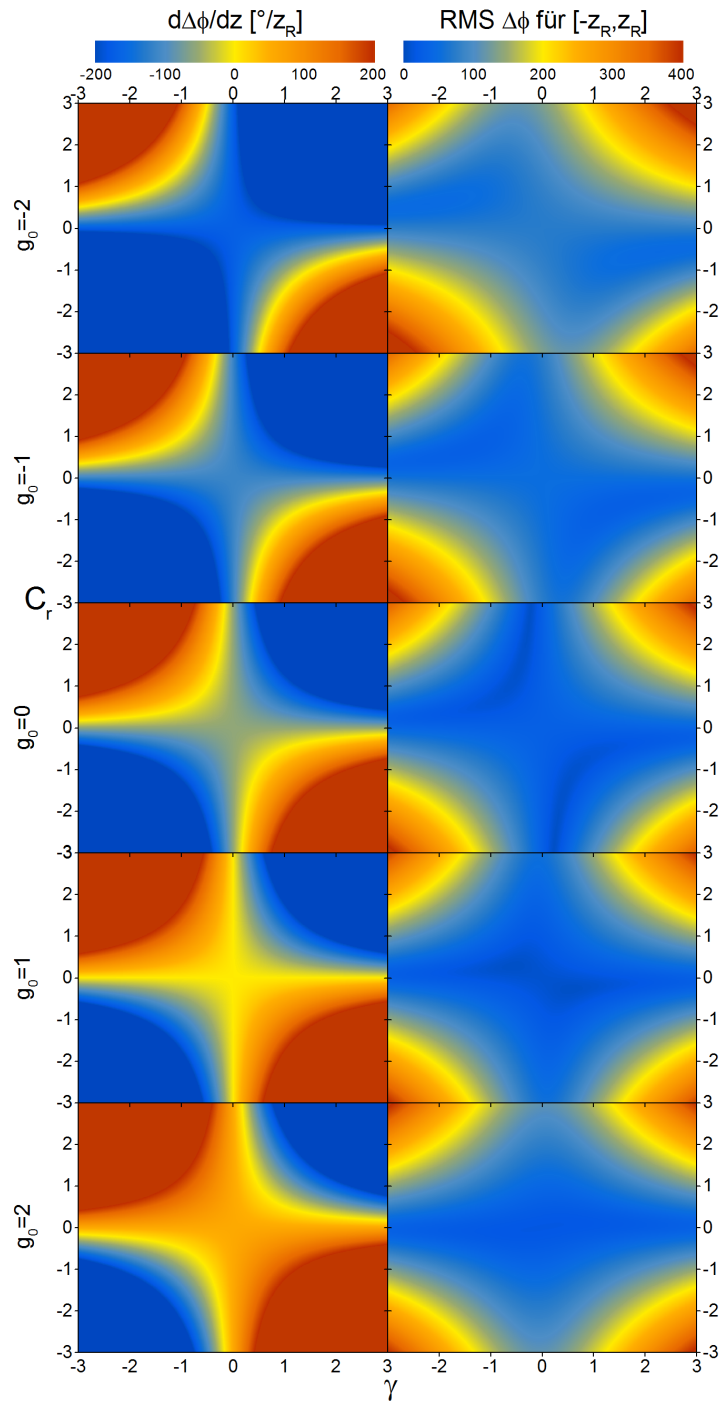
bis 1, sowohl etwas vor (linkes Bild) als auch etwas nach dem Fokus (rechts). Möchte man die Veränderlichkeit einer Größe quantifizieren, ist es gut, sich deren Ableitung zu betrachten. Abbildung 3.17 linke Spalte, zeigt dementsprechend die Ableitung der fokalen CEP-Verschiebung nach der  $z$ -Koordinate an der Stelle  $z = 0$ , also  $\frac{d\Delta\phi}{d(z/z_R)}\Big|_{z=0} = g_0 - 2C_r\gamma - 1$ . Die Standardabweichung der axialen CEP im Bereich  $[-z_R, z_R]$ , also  $\sqrt{\frac{1}{2z_R} \int_{z=-z_R}^{z_R} (\phi - \langle\phi\rangle)^2 dz}$  ist in der rechten Spalte gezeigt.

Betrachtet man den  $g_0$ -Verlauf der Plots der linken Spalte von oben nach unten, sieht man, dass für die Steigung der CEP am Fokuspunkt der Parameter  $g_0$  als Offset betrachtet werden kann, der für  $C_r=\gamma=0$  bei  $g_0=1$  gerade die Steigung durch die Gouy-Phase kompensiert und dort das Vorzeichen wechselt (das "gelbe Kreuz" markiert das Umschlagen von blau nach rot). Es lässt sich aber für jeden  $g_0$  Wert eine flache Steigung erreichen, vorausgesetzt man hat die richtigen  $\gamma$  und  $C_r$  Parameter. Möchte man eine große positive Steigung erreichen, sollten  $C_r$  und  $\gamma$  groß und mit entgegen gesetzten Vorzeichen gewählt werden, während für große negative Steigung das gleiche Vorzeichen für beide Parameter zu wählen wäre.

Zur Identifikation eines größeren Bereiches flacher Phase im Bereich der höchsten Intensität,  $[-z_R, z_R]$ , können die Diagramme in der rechten Spalte von Abb. 3.17 unten herangezogen werden. Die Standardabweichung der CEP dort wird in den dunkelblauen Bereichen minimiert, wie sie auch hier zum Beispiel für die Parameter  $C_r=\gamma=0$  bei  $g_0=1$  zu sehen sind. Zusätzlich könnten auch einige Parameter-Regionen für  $g_0 = 0$  und 1 interessant sein. Möchte man beispielsweise für manche CEP-abhängige Laser-Materiewechselwirkungen einen Chirpscan machen, sei der Fall  $g_0 = 0$  zu erwähnen, bei dem die Standardabweichung für einen weiten Chirp-Bereich bei  $\gamma \approx 0$  sehr klein ist.

In diesem Kapitel wurde der lokale CE-Phasenverlauf über einen weiten Bereich des Fokus von Einzelzyklenpulsen gezeigt. Dafür wurde ein typischer Aufbau zur FCP-Erzeugung verwendet, welcher auf einem Hohlfaserkompressor basiert, wie er in vielen Labors zum Einsatz kommt. Der beobachtete Verlauf weicht deutlich von der lange angenommenen arctan-Form der Gouyphase ab. Obwohl in früheren Veröffentlichungen bereits Ansätze dieser Abweichung gesehen wurden [97, 98], konnte bisher nicht quantitativ nachgewiesen werden, wie sich die CEP über einen größeren Teil des Fokus entwickelt. Erst die hohe Empfindlichkeit

und Effizienz der Elektronen-Rückstreuung an Metallnanospitzen in Kombination mit einer präzisen Bestimmung der CEP, gibt die Möglichkeit, das Fokusvolumen weiträumig abzurastern. Das gezeigte Verhalten ist auf die unterschiedliche Fokussierungsgeometrie für verschiedene Wellenlängen zurückzuführen und wird sehr gut von den analytischen Rechnungen von Porras reproduziert. Durch die Verknüpfung des gemessenen Phasenverlaufs mit den spektralen Eigenschaften des Eingangsstrahls, ergibt sich eine einfache Möglichkeit, die fokale CE-Phase mit einem Strahlprofilierer vor dem Messaufbau abzuschätzen.



**Abbildung 3.17:** Links: Ableitung der axialen CEP (Gl. 3.20[93]) nach  $z$ , an der Fokusposition  $(z,r)=(0,0)$  in Abhängigkeit von chromatischer Aberration  $\gamma$  (x-Achse) und relativem Chirp  $C_r$  (y-Achse). Rechts: dazugehörige Standardabweichung von  $\Delta\phi$  im Bereich  $[-z_R, z_R]$ .



# 4 Elektronenrückstreuung an Festkörpernanospitzen

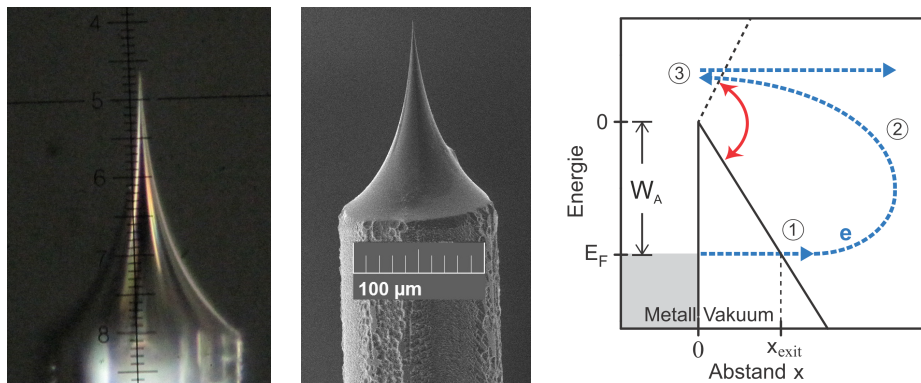
In diesem Kapitel geht es um den Vergleich zwischen Elektronenrückstreuung an Festkörpernanospitzen und atomaren Gasen. In 4.1 wird auf Ergänzungen des Rückstreumodells für die Nanospitzen eingegangen. Der Abschnitt 4.2 zeigt die ermittelten Spektren und Phasenwerte, die anschließend in 4.3 interpretiert werden. Die Abbildung 4.1 stellt zwei der verwendeten Spitzen vor – mit einem konventionellen Lichtmikroskop sowie, nach dem Experiment, unter dem Elektronenmikroskop aufgenommen.

## 4.1 Photoelektronen-Emission und Rückstreuung an Metallnanospitzen

Bereits 1989 wurden erste Effekte von Above-Threshold Photoemission, dem Analogon zu ATI von Gasen, an Festkörpern beobachtet [115], 1991 wurden Ansätze von Starkfeldeffekten veröffentlicht [116] und als Tunneleffekte 2010 bestätigt [117, 118, 119]. Die ersten CEP-Abhängigkeiten in den rückgestreuten Elektronen konnten 2011 an scharfen Metallnanospitzen nachgewiesen werden [20]. Die Pionierarbeit wurde dabei von der Gruppe von Peter Hommelhoff geleistet, die die Voraussetzungen für die Messungen in diesem und dem vorhergehenden Kapitel geschaffen haben. Die Effekte der Emission an einer Festkörper-Nanospitze wurden sehr ähnlich wie an einem atomaren Gas beschrieben [119, 20]. Allerdings muss man sich dabei den Effekt der geometrischen Feldverstärkung der nm-scharfen Spitzen zunutze machen. In früheren Versuchen an Nanostrukturen begann bereits die Zerstörung des Materials, bevor eine signifikante Elek-

tronenbeschleunigung beobachtet werden konnte. Die Zerstörschwelle wurde dort überschritten und so wurden die Strukturen unbrauchbar. Eine gute Zusammenfassung über diese Phänomene findet sich in [51, 120, 57].

Die Nahfeldverstärkung an der Spitze beruht auf einem ähnlich Effekt wie bei der Spitzenentladung an der Fangeinrichtung eines Blitzableiters, bei dem es durch die Geometrie der Spitze zu einer sehr hohen Dichte der Feldlinien, dadurch zu einer Feldüberhöhung und so zu einem Elektronenfluss kommt. Durch das schwingende Lichtfeld oszilliert dieses Nahfeld allerdings im Falle der Nanospitze. Bei Spitzengeometrien von nur wenigen nm Radius reichen dadurch bereits nominelle Laserintensitäten von einigen  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> aus, um auch dort CEP-abhängige Starkfeldeffekte beobachten zu können. Die beobachteten Verstärkungen des elektrischen Feldes können Faktoren von 5 bis zu 30 erreichen [46, 121, 57]. Das bedeutet, durch diesen Effekt werden Starkfeldexperimente auch schon mit kleineren Lasersystemen oder fs-Oszillatoren möglich. Um ein atomares Gas, bei dem keine Feldverstärkung auftritt, mit den Nanospitzen zu vergleichen, gibt das Ionisationspotential des jeweiligen Gases ( $E_{IP} \approx 12\text{--}20$  eV) die benötigte Pulsenergie/Intensität vor. Deshalb wurde hier mit einem Verstärker-Lasersystem gearbeitet.



**Abbildung 4.1:** Mikroskop- (links) und Elektronenmikroskopaufnahme (mitte, [108]) von verschiedenen Wolframspitzen, sowie ein Schema des Potentials an der Nanospitze (rechts, [46])

Der wesentliche Unterschied zum atomaren Gas in der Beschreibung der ATP-Rückstreuung liegt in einem Bruch der Symmetrie durch den Festkörper im linken Halbraum und der anderen Struktur des Potentials an der Grenzfläche Metall-Vakuum, Abb. 4.1. Dieses zunächst stufenförmig angenommene Potential wird

durch eine zusätzlich angelegte Spannung von einigen  $-10$  V bereits gebogen und so der Austritt der Elektronen erleichtert (Schottky-Effekt). Die effektive Austrittsarbeit ist  $4,5$  eV für Wolfram und  $5,2$  eV für Gold. Ein weiterer Unterschied findet sich in der elektronischen Struktur, die bei einem Festkörper in Bändern eines Elektronengases vorliegt und im Atom diskrete Zustände bildet. Die Energie der Elektronen im Festkörper verteilt sich dabei gemäß der Fermi-Dirac-Statistik und demzufolge muss dort die Austrittsarbeit, als Differenz zwischen Fermi-Niveau  $E_F$  und Kontinuum (0), mithilfe des optischen Feldes überwunden werden [119]. Das oszillierende optische Feld neigt das Potential so stark (roter Pfeil in Abb. 4.1), dass die Elektronen durch die Barriere tunneln können. Sobald das Elektron bei  $x_0$  ins Kontinuum gelangt ist (Punkt 1), kann sein Energiegewinn wieder mit klassischen Trajektorien verstanden werden. Es wird zunächst mit dem Feld von der Oberfläche weg beschleunigt (2) und nach der Rückkehr (3) zurück gestreut. Die CEP-Abhängigkeit kommt durch den gleichen Mechanismus wie bei den Gasen zustande. Mit dieser Phasen-Abhängigkeit des Elektronenstroms bei hohen kinetischen Energien und damit dem Nachweis der Schaltbarkeit durch den Lichtpuls ist eine Schnittstelle zwischen ultraschneller Optik und Elektronik gefunden, welche von großer Bedeutung für eine zukünftige Lichtwellenelektronik sein kann [78, 122, 79, 80]. Um Kontrolle durch Licht zu ermöglichen, ist es nun aber nicht mehr allein ausreichend *den Puls* vollständig zu kennen, sondern durch die starke Lokalisierung der Wechselwirkung an der Nanospitze wird es auch wichtig sein, welche Form der Puls an welchem *Ort* hat. Aus diesem Grunde wurde dieses räumliche Verhalten der Pulse in Kap. 3 untersucht und ermöglicht im folgenden Kapitel einen Vergleich der beiden Systeme.

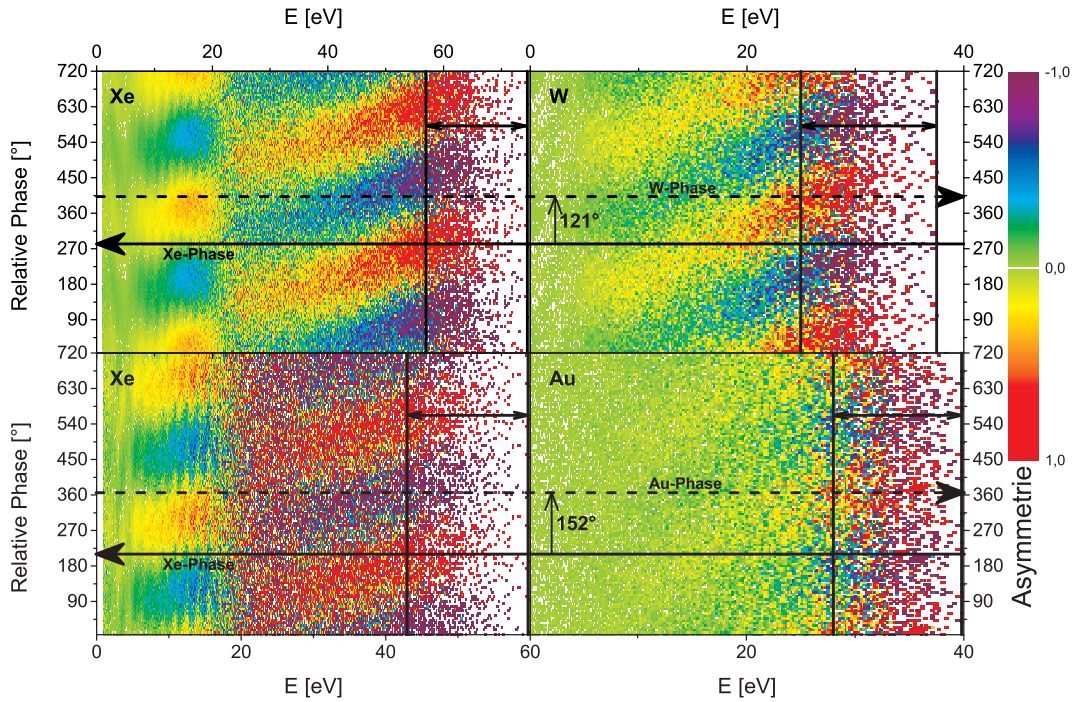
## 4.2 Ergebnisse für Wolfram und Gold

In diesem Abschnitt werden die Messergebnisse der Differenz zwischen Xenon und Wolfram beziehungsweise Gold Nanospitzen dargestellt. Dazu werden die Elektronenspektren gegenübergestellt und weitere Einflussfaktoren für die beobachtete Phasenverschiebung zwischen den Targets bestimmt. Zur Abschätzung der feldverstärkten Intensität an den Nanospitzen hat sich folgende Formel für die Cut-off-Energie etabliert. Da wir schon aus Kapitel 2.4 wissen, dass der von

Null verschiedenen Startort der Elektronen am Tunnelausgang mit berücksichtigt werden muss, wird diesem durch den zweiten Term mit dem Bindungs-/Ionisationspotential als Korrektur Rechnung getragen [76, 51]

$$E_{\text{cut-off}} \approx 10 U_P + 0,538 E_{\text{IP}} \quad (4.1)$$

aus  $U_P$  kann dann die Intensität berechnet werden (Gl. 1.2).



**Abbildung 4.2:** Asymmetriespektren von Xe (jeweils links) im Vergleich mit Wolfram (oben) und Gold (unten), der Cut-off-Bereich (vertikale Linien) und die dortige Phasenverschiebung sind eingezeichnet.

Diagramm 4.2 zeigt die Asymmetriespektren von Xe (jeweils links) und von den beiden Spitzen aus Wolfram und Gold (rechts oben beziehungsweise unten). Die eingezeichneten horizontalen Linien markieren das Maximum der Cut-off-Asymmetrie. Diese wurde aus dem integrierten Bereich für den Cut-off-Cosinus-Fit bestimmt, markiert durch vertikale Linien, vgl. Kap 2.3.

Die Cut-off-Phasendifferenz zwischen Xenon und der Wolfram-Nanospitze beträgt für diesen fokusnächsten Messpunkt  $\Delta\theta = \theta_W - \theta_{Xe} = 121 \pm 10^\circ$ , die Ab-

schätzung der Intensität ergibt  $1 \pm 0,05 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  für Xe und  $4,5 \pm 0,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  an der Spitze. Der Offset, den dieser Messpunkt zum Fokus hat, ist bereits aus dem Fit des CEP-Fokusverlaufs der weiteren Messpunkte auf der optischen Achse bekannt und beträgt  $38 \pm 5^\circ$  (vgl. Kap. 3, Abb. 3.9). Dieser muss zu dem Verschiebungswert aus Abb. 3.9 addiert werden, da das Wolfram-spektrum dort weiter zu größeren  $\theta$ -Werten verschoben wäre, sodass sich eine Gesamtdifferenz von  $159 \pm 15^\circ$  ergibt.

Die Phasendifferenz zwischen Xenon und der Gold-Nanospitze beträgt  $\Delta\theta = \theta_{Au} - \theta_{Xe} = 152 \pm 11^\circ$ , hier liegen die Intensitäten bei  $8 \pm 0,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  für Xe und  $4,6 \pm 0,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  für die Goldspitze. Aus dem Fit dieser Reihe (auch Abb. 3.9) ergibt sich der Offset zu  $-24 \pm 7^\circ$ , woraus eine Gesamtdifferenz von  $128 \pm 18^\circ$  resultiert.

In Kapitel 2.4 wurde die Phasenabhängigkeit der Cut-off-Asymmetrie von Xe mit derer von H kalibriert und ergab eine Differenz von  $1 \pm 6^\circ$ , sodass mit diesem Wert die Cut-off-Phasen der W- und Au-Spektren in Bezug auf Wasserstoff und, durch die dortigen Simulationen, auch in Bezug auf die CEP angeben werden können, dafür müssen zusätzlich  $+19 \pm 3^\circ$  addiert werden. Diese CEP-kalibrierten Cut-off-Asymmetriephasenwerte werden in Tabelle 4.1 zusammengefasst und betragen  $179 \pm 24^\circ$  für Wolfram und  $148 \pm 27^\circ$  für Gold. Unter den bei der Gas-Kalibration getroffenen Annahmen wäre also für die hier genutzte Wolfram und Gold-Nanospitze, mit ihrer jeweiligen Geometrie und Position im Fokus bei Einzelzyklenpulsen mit diesen CEP-Werten das Maximum im Asymmetrie-Cut-off zu erwarten. Dieses Wissen ist Grundlage dafür, die Elektronen am Cut-off tatsächlich kontrolliert mit dem Laserlicht "schalten" zu können.

	$\Delta\theta_{Xe}$	$\Delta\theta_H$	CEP
Wolfram	$159 \pm 15^\circ$	$160 \pm 21^\circ$	$179 \pm 24^\circ$
Gold	$128 \pm 18^\circ$	$129 \pm 24^\circ$	$148 \pm 27^\circ$

**Tabelle 4.1:** Zusammenfassung der Phasenverschiebungen der Nanospitzenspektren gegenüber Xe unter Berücksichtigung des Spitzen-Offsets zum Fokus, sowie gegenüber H und der CEP.

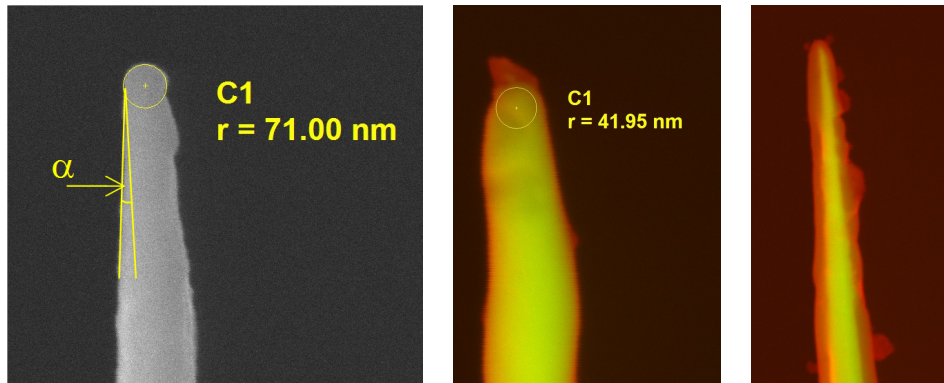
Ein weiterer für die Kontrolle der Elektronenemission zu berücksichtigender Faktor ist die Geometrie der Spitze und das dadurch beeinflusste Nahfeld, wel-

ches zu unterschiedlichen Phasenverschiebungen an Nanospitzen verschiedener Geometrie führt [121]. Daher wurden die Spitzen nach den Messungen mit einem Elektronenmikroskop (SEM) untersucht. Dabei sind Spitzenradien von  $\approx 71$  nm bei der Wolfram – und  $\approx 42$  nm bei der Goldspitze bestimmt worden, Abb. 4.3. Der Öffnungswinkel  $\alpha$  der Spitzen beträgt für die Wolframspitze  $\alpha \approx 5^\circ$  und für die Goldspitze  $\alpha \approx 7^\circ$ .

Die Spitzen konnten erst nach den Messungen mit einem Scanning Elektronen Mikroskop (SEM) untersucht werden, da diese Art der Untersuchung hoch energetischen Elektronen verwendet und bereits durch die Messung selbst derartig scharfe Spitzen beeinträchtigt und zerstört würden. Das heißt, dass diese Abbildungen auch nur die Schärfe und den Zustand der Spitzen nach Ausbau, Transport und SEM-Messung zeigen können. Bei der Goldspitze (Mitte) und der Wolframspitze aus der Off-Axis-Messung (rechts) sieht man zum Beispiel zusätzlich Ablagerungen, die vom Transport an der Luft herrühren. Dadurch, dass die SEM-Bilder erst im Nachhinein aufgenommen wurden, wird aber hauptsächlich der Wert für den Spitzenradius verfälscht, während der Öffnungswinkel sich auch zu vorher kleineren Spitzenradien fortsetzt und gut durch die nachträglichen Aufnahmen bestimmt werden kann. Für die Messung der Elektronenspektren konnten die Spitzen in der Kammer durch Feldevaporation gereinigt werden. Im Resultat waren sie deutlich schärfer, was durch Feldionenmikroskopie diagnostiziert wurde [123]. Für Wolfram wurden 9 nm aus der Startspannung für Feldemission und Feldionenmikroskopie-Aufnahmen abgeschätzt und die Goldspitze hatte einen Radius von ca. 30 nm.

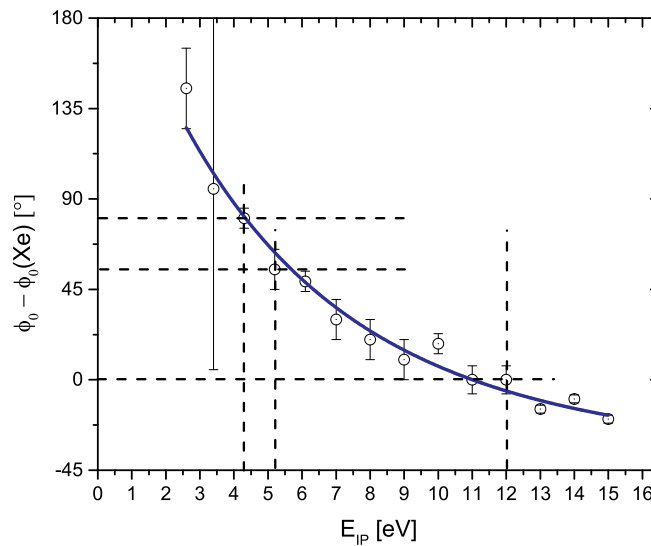
### 4.3 Interpretation

Durch die Nanospitze wird das elektrische Feld in der Nähe der Spitze stark deformiert, sodass durch dieses optische Nahfeld eine Phasenverschiebung induziert wird [121]. Die beeinflussenden Parameter sind dabei der Krümmungsradius der Spitze und der Öffnungswinkel, Abb. 4.3, sowie die materialspezifische dielektrische Funktion. Mit den ermittelten Parametern für die Spitzengeometrie im Verhältnis zur Wellenlänge lässt sich dann der Anteil der zu erwartenden Phasenverschiebung durch diese Feldverstärkung an der Spitze bestim-



**Abbildung 4.3:** Elektronenmikroskopaufnahmen der Spitzen nach den Messreihen, *links* - Wolfram, *mitte* - Gold, *rechts* - Off-Axis-Spitze (Wolfram), bei den beiden letzteren sind Ablagerungserscheinungen durch den Transport zu erkennen ([108])

men. Simulationen dieses Phänomens in Abhängigkeit von Spitzenradius  $r$  und Öffnungswinkel  $\alpha$  wurden von Thomas et al. für Wolfram- und Gold-Spitzen bei 800 nm durchgeführt [121]. Für die hier bestimmten Parameter der Wolframspitze  $r = 9 \text{ nm}$ ,  $\alpha = 5^\circ$  ergibt sich dort eine Phasenverschiebung von ca.  $1,24 \pm 0,16 \text{ rad} = 71 \pm 9^\circ$ . Die Parameter für die Goldspitze  $r = 30 \text{ nm}$ ,  $\alpha = 7^\circ$  ergeben eine Phasenverschiebung von  $1,42 \pm 0,16 \text{ rad} = 82 \pm 9^\circ$ .



**Abbildung 4.4:** Ergebnisse der erweiterten 1D-TDSE Simulationen für  $E_{IP}$  von 3 eV bis 15 eV, aus Sayler et al. [52]

In Kapitel 2.4 wurde der Zusammenhang zwischen Ionisationspotential, Tunne-

lauskung und Phasenverschiebung beschrieben. Die dort gefundene Entwicklung der Cut-Off-Phase aus den Edelgasmessungen diente als Grundlage für einen erweiterten 1D-TDSE Parameter-Scan von Sayler [52] unter Annahme einer Intensität von  $4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , wie sie feldverstärkt an der Spitze erreicht wird. Dabei wurden die Differenzen der Asymmetrie-Phasen aus dem kinetischen Energiebereich von 30 – 35 eV auch für kleinere Ionisationspotentiale  $E_{\text{IP}}$  von 3 – 15 eV bestimmt die in der Kurve in Abb. 4.4 zu sehen sind. Daraus kann abgeschätzt werden, dass für eine effektive Austrittsarbeit  $E_{\text{IP}}$  von 4,3 eV bei Wolfram und 5,2 eV bei Gold eine Verschiebung von  $80 \pm 12^\circ$  und  $55 \pm 17^\circ$  bezogen auf Xenon erwartet werden kann.

In Summe verursachen diese beiden Effekte an der Nanospitze eine Phasenverschiebung zu Xenon von  $151 \pm 15^\circ$  für Wolfram und  $137 \pm 19^\circ$  für Gold. Dies passt im Rahmen der Messgenauigkeit gut mit den gemessenen Verschiebungen von  $159 \pm 15^\circ$  bei der Wolfram- und  $128 \pm 18^\circ$  bei der Goldspitze zusammen. Zusammen mit den ergänzenden Werten bezogen auf Wasserstoff sind die Verschiebungen noch einmal in Tabelle 4.2 zusammengefasst.

	Wolfram	Gold
Nahfeld	$71 \pm 9^\circ$	$82 \pm 9^\circ$
1D-TDSE Vergleich mit Xe	$80 \pm 9^\circ$	$55 \pm 12^\circ$
Summe	$151 \pm 13^\circ$	$137 \pm 15^\circ$
Gemessene Verschiebung zu Xe	$159 \pm 15^\circ$	$128 \pm 18^\circ$
bezogen auf H-Messung	$160 \pm 21^\circ$	$129 \pm 24^\circ$
1D-TDSE Vergleich mit H	$92 \pm 5^\circ$	$67 \pm 10^\circ$
Summe Nahfeld + H-TDSE	$163 \pm 10^\circ$	$149 \pm 13^\circ$

**Tabelle 4.2:** Zusammenfassung der jeweiligen Phasenverschiebungen zu den Nanospitzen durch das Nahfeld und das Austrittspotential, verglichen mit den Messwerten bezogen auf Xenon und Wasserstoff.

Die hier angegebenen Werte sind noch Gegenstand der Diskussion um in einer Fachzeitschrift publiziert zu werden, aber die hier gemachten Beobachtungen sprechen dafür, dass die Phasenverschiebung im Wesentlichen auf das Nahfeld an der jeweiligen Spitzengeometrie und das Austrittspotential zurückzuführen sind. Neben den Ionisationspotentialen ist noch der Einfluss der Form des Potentials genauer zu bestimmen. Für die Interpretation ist auch noch zu beachten,



dass die Simulationen der Spitzengeometrie für 800 nm Wellenlänge gemacht wurden, während in der Messung rund 700 nm genutzt wurden. Eine Verschiebung zu etwas kleineren Wellenlängen bedeutet effektiv, dass die Spitze relativ dazu größer wirkt, was zu einer etwas geringeren Phasenverschiebung führen würde [121]. Die Simulationen der Austrittspotential-Abhängigkeit, Abb. 4.4, beziehen sich auf eine Intensität an den Nanospitzen von  $\approx 4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ , während die Gasmessungen bei  $\approx 8 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  gemacht wurden. Aus den Simulationen in Referenzen [52, 38] ist zwar bekannt, dass sich die Cut-off-Phase der Elektronen mit der höchsten Energie nur sehr wenig mit der Intensität verschiebt, dennoch wird durch die Intensitätsdifferenz noch eine gewisse Verschiebung von ein paar Grad zu erwarten sein. Für eine abschließende Interpretation müsste dies noch berücksichtigt werden.

Es sei bemerkt, dass eine quantitative Beurteilung der Phasenabhängigkeiten an den Nanospitzen nicht einfach ist, da diese durch viele Faktoren wie Spitzengeometrie (Krümmungsradius, Öffnungswinkel), Oberflächenbeschaffenheit, Materialeigenschaften und genaue Position der Spitze im Fokus beeinflusst werden. Insbesondere eine gute Kenntnis und Kontrolle über die Spitzenbeschaffenheit erscheint noch eine Herausforderung, um in Zukunft quantitative Aussagen über die einzelnen Abhängigkeiten machen zu können. Die theoretischen Vorarbeiten von Thomas, Wachter et al. [121] sowie Sayler et al. [52] geben gute Hinweise zu einer Auflösung der einzelnen Beiträge. Die hier gezeigten Messungen für einzelne Spitzen deuten bereits auf eine realistische Einschätzung durch die Simulationen hin. Es könnte daher interessant sein, in Zukunft durch systematische experimentelle Untersuchung für verschieden designte Spitzengeometrien die Öffnungswinkelabhängigkeit der Simulationen zu bestätigen.

## 5 Fazit und Ausblick

In dieser Arbeit wurde eine Methode vorgestellt mit der sich die Träger-Einhüllende Phase von Einzelzyklenpulsen am Ort der Wechselwirkung mit Materie selbst bestimmen lässt. Dazu wurden Photoelektronenspektren von Xenon mit *ab initio* Simulationen und gemessenen Spektren an atomarem Wasserstoff kalibriert. Xenon kann somit als Referenz in vielen Attosekundenexperimenten verwendet werden. Als eine der ersten Anwendungen für diese kalibrierte Phase wurde diese Kenntnis auf den Vergleich von Elektronenrückstreuung an Gasen mit Metallnanospitzen angewendet.

Mit der Phasenabhängigkeit der Nanospitzen-Elektronen konnte gezeigt werden, dass sich diese als ausgezeichnete Sonde zur Erforschung des elektrischen Feldes von fokussierten Einzelzyklenpulsen eignen. Der CE-Phasenverlauf entlang der optischen Achse wurde aufgeklärt und es konnte gezeigt werden, dass er für Einzelzyklen-Laserpulse deutlich von einer früher angenommenen einfachen *arctan*-Form abweicht. Mit der Nanospitze wurde es auch zum ersten Mal möglich, einen größeren Bereich um den Fokus zu profilieren, bei dem das dreidimensionale Verhalten des Lichtfeldes gezeigt werden konnte. Mit dieser erweiterten Einsicht und besseren Annäherung an die tatsächliche fokale Phase ist eine bessere Interpretation der Licht-Materie-Wechselwirkungen im Fokus möglich.

Aktuell laufen zum Beispiel in unserer Arbeitsgruppe Simulationen, die zeigen, dass die fokale Phase der Schlüssel zum besseren Verständnis der Vorgänge im Stereo-ATI-Phasenmeter sein kann. Da die Effekte darin in ähnlicher Weise auch bei der Erzeugung höherer Harmonischer auftreten, ist zu erwarten, dass es auch dort eine große Rolle spielen wird.

Insbesondere wäre auch zu überprüfen, in wie weit die 3D-TDSE Simulationen an atomarem Wasserstoff und Edelgasen, die hier zunächst zur Kalibrierung genutzt wurden, schon den Phasenvolumeneffekt berücksichtigen und ob eine Kor-

rektur der Kalibrierung unter Einbeziehung der fokalen Phase notwendig ist. Das wäre dann ein nächster Iterationsschritt im wissenschaftlichen Prozess.

In mehreren Veröffentlichungen wurde bereits auf die Bedeutung der fokalen Phase für weitere Wechselwirkungsprozesse eingegangen, wie z.B. in der Femtochemie [25], der Nanooptik und Lichtwellenelektronik [26] und auch in optischer Kohärenztomographie, wenn in einem der Interferometerarme fokussiert wird [27, 28]. Es ist daher zu erwarten, dass auch diese Bereiche von einer genaueren Kenntnis profitieren werden. Der hier gefundene Zusammenhang gilt allgemein für breitbandige kohärente Strahlung, d.h. auch Nutzer anderer Wellenlängenbereiche können überprüfen, ob sich ihre Ergebnisse hiermit besser verstehen lassen.

Mit den hier gezeigten Messungen wurde auch gezeigt, dass der fokale CEP-Verlauf von der spektralen Geometrie des Eingangslaserstrahls abhängt. In der Zukunft könnte es interessant sein, dieses Verhalten auch experimentell systematisch für verschiedene spektrale Strahlgeometrien zu untersuchen. Eine weiter zu untersuchende Frage ist sicher auch, warum der Laserstrahl aus der Hohlleiter die beobachtete spektrale Geometrie aufweist und welche Rolle eine mögliche Filamentation am Ausgang dieser spielen könnte. Es wäre außerdem interessant zu sehen, wie der Phasenverlauf *ohne* den Einsatz eines Hohlleiter-Kompressors ist, was sich durch die Nanospitze auch mit geringeren Pulsenergien, bspw. direkt aus einem Oszillator, messen ließe.

# Literaturverzeichnis

- [1] NEWTON, Isaac: Theory about light and colors. In: *Philosophical Transactions (1665-1678)* (1665), S. 3075–3087
- [2] HUYGENS, Christiaan: *Traité de la lumiere*. (1690)
- [3] HERTZ, Heinrich: Ueber einen Einfluss des ultravioletten Lichtes auf die elektrische Entladung. In: *Annalen der Physik* 267 (1887), Nr. 8, S. 983–1000
- [4] EINSTEIN, Albert: Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. In: *Annalen der Physik* 322 (1905), Nr. 6, S. 132–148
- [5] GORDON, James P. ; ZEIGER, Herbert J. ; TOWNES, Charles H.: The maser—new type of microwave amplifier, frequency standard, and spectrometer. In: *Physical Review* 99 (1955), Nr. 4, S. 1264
- [6] NAKAMURA, S. ; KRAMES, M. R.: History of Gallium–Nitride–Based Light-Emitting Diodes for Illumination. In: *Proceedings of the IEEE* 101 (2013), Oct, Nr. 10, S. 2211–2220. <http://dx.doi.org/10.1109/JPROC.2013.2274929>. – DOI 10.1109/JPROC.2013.2274929. – ISSN 0018–9219
- [7] POSCH, Thomas ; FREYHOFF, Anja ; UHLMANN, Thomas: *Das Ende der Nacht: die globale Lichtverschmutzung und ihre Folgen*. John Wiley & Sons, 2012
- [8] HELD, Martin ; HÖLKER, Franz ; JESSEL, Beate: Schutz der Nacht–Lichtverschmutzung, Biodiversität und Nachtlandschaft. In: *BfN-Skripten*, Bd 336 (2013)

- [9] FRANKEN, PA ; HILL, AE ; PETERS, CW ; WEINREICH, G: Generation of optical harmonics. In: *Physical Review Letters* 7 (1961), Nr. 4, S. 118–119
- [10] FORK, Richard L. ; BRITO CRUZ, Carlos H. ; BECKER, PC ; SHANK, Charles V.: Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation. In: *Optics letters* 12 (1987), Nr. 7, S. 483–485
- [11] DIELS, Jean-Claude ; RUDOLPH, Wolfgang: *Ultrashort laser pulse phenomena*. Academic press, 2006
- [12] AGOSTINI, P ; BARJOT, G ; BONNAL, J ; MAINFRAY, G ; MANUS, C ; MORELLEC, J: Multiphoton ionization of hydrogen and rare gases. In: *Quantum Electronics, IEEE Journal of* 4 (1968), Nr. 10, S. 667–669
- [13] AGOSTINI, Pierre ; FABRE, F ; MAINFRAY, Gérard ; PETITE, Guillaume ; RAHMAN, N K.: Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. In: *Physical Review Letters* 42 (1979), Nr. 17, S. 1127
- [14] STRICKLAND, Donna ; MOUROU, Gerard: Compression of amplified chirped optical pulses. In: *Optics Communications* 55 (1985), Nr. 6, 447 - 449. [http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/0030-4018\(85\)90151-8](http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/0030-4018(85)90151-8). – DOI [https://doi.org/10.1016/0030-4018\(85\)90151-8](https://doi.org/10.1016/0030-4018(85)90151-8). – ISSN 0030-4018
- [15] HORNING, Marco ; LIEBETRAU, Hartmut ; SEIDEL, Andreas ; KEPPLER, Sebastian ; KESSLER, Alexander ; KÖRNER, Jörg ; HELLWING, Marco ; SCHORCHT, Frank ; KLÖPFEL, Diethard ; ARUNACHALAM, Ajay K. ; AL. et: The all-diode-pumped laser system POLARIS – an experimentalist’s tool generating ultra-high contrast pulses with high energy. In: *High Power Laser Science and Engineering* 2 (2014), S. e20. <http://dx.doi.org/10.1017/hpl.2014.26>. – DOI 10.1017/hpl.2014.26
- [16] GOULIELMAKIS, Eleftherios ; SCHULTZE, Martin ; HOFSTETTER, M ; YAKOVLEV, Vladislav S. ; GAGNON, Justin ; UIBERACKER, M ; AQUILA, Andrew L. ; GULLIKSON, EM ; ATTWOOD, David T. ; KIENBERGER, Reinhard u. a.: Single-cycle nonlinear optics. In: *Science* 320 (2008), Nr. 5883, S. 1614–1617

- [17] CHANG, Zenghu: Single attosecond pulse and xuv supercontinuum in the high-order harmonic plateau. In: *Physical Review A* 70 (2004), Nr. 4, S. 043802
- [18] GRASBON, Felix ; PAULUS, Gerhard G. ; WALTHER, Herbert ; VILLORESI, P ; SANSONE, G ; STAGIRA, S ; NISOLI, M ; DE SILVESTRI, S: Above-threshold ionization at the few-cycle limit. In: *Physical review letters* 91 (2003), Nr. 17, S. 173003
- [19] KLING, MF ; SIEDSCHLAG, Ch ; VERHOEF, Aart J. ; KHAN, JI ; SCHULTZE, Martin ; UPHUES, Th ; NI, Y ; UBERACKER, Matthias ; DRESCHER, M ; KRAUSZ, Ferenc u. a.: Control of electron localization in molecular dissociation. In: *Science* 312 (2006), Nr. 5771, S. 246–248
- [20] KRÜGER, Michael ; SCHENK, Markus ; HOMMELHOFF, Peter: Attosecond control of electrons emitted from a nanoscale metal tip. In: *Nature* 475 (2011), Nr. 7354, S. 78–81
- [21] RATHJE, T. ; SAYLER, A. M. ; ZENG, S. ; WUSTELT, P. ; FIGGER, H. ; ESRY, B. D. ; PAULUS, G. G.: Coherent Control at Its Most Fundamental: Carrier-Envelope-Phase-Dependent Electron Localization in Photodissociation of a  $H_2^+$  Molecular Ion Beam Target. In: *Phys. Rev. Lett.* 111 (2013), Aug, 093002. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.111.093002>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.111.093002
- [22] BRABEC, Thomas ; KRAUSZ, Ferenc: Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. In: *Reviews of Modern Physics* 72 (2000), Nr. 2, S. 545
- [23] FUJI, Takao ; RAUSCHENBERGER, Jens ; APOLONSKI, Alexander ; YAKOVLEV, Vladislav S. ; TEMPEA, Gabriel ; UDEM, Thomas ; GOHLE, Christoph ; HÄNSCH, Theodor W. ; LEHNERT, Walter ; SCHERER, Michael u. a.: Monolithic carrier-envelope phase-stabilization scheme. In: *Optics letters* 30 (2005), Nr. 3, S. 332–334
- [24] KRAUSZ, Ferenc ; IVANOV, Misha: Attosecond physics. In: *Rev. Mod. Phys.* 81 (2009), Feb, 163–234. <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.81.163>. – DOI 10.1103/RevModPhys.81.163

- [25] GORDON, Robert J. ; BARGE, Vishal J.: Effect of the Gouy phase on the coherent phase control of chemical reactions. In: *The Journal of chemical physics* 127 (2007), Nr. 20, S. 204302
- [26] KRAUSZ, Ferenc ; STOCKMAN, Mark I.: Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing. In: *Nature Photonics* 8 (2014), Nr. 3, S. 205–213
- [27] JOHNSON, Jon L. ; DORNEY, Timothy D. ; MITTLEMAN, Daniel M.: Enhanced depth resolution in terahertz imaging using phase-shift interferometry. In: *Applied Physics Letters* 78 (2001), Nr. 6, S. 835–837
- [28] DREXLER, Wolfgang ; FUJIMOTO, James G.: *Optical coherence tomography: technology and applications*. Springer Science & Business Media, 2008
- [29] VORONOV, GS ; DELONE, Nikolai B.: Ionization of the xenon atom by the electric field of ruby laser emission. In: *JETP letters* 1 (1965), Nr. 2, S. 66–68
- [30] CHIN, SL ; YERGEAU, F ; LAVIGNE, P: Tunnel ionisation of Xe in an ultra-intense CO<sub>2</sub> laser field (1014 W cm<sup>-2</sup>) with multiple charge creation. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 18 (1985), Nr. 8, S. L213
- [31] UIBERACKER, Matthias ; UPHUES, Th ; SCHULTZE, Martin ; VERHOEF, Aart J. ; YAKOVLEV, Vladislav ; KLING, Matthias F. ; RAUSCHENBERGER, Jens ; KABACHNIK, Nicolai M. ; SCHRÖDER, Hartmut ; LEZIUS, Matthias u. a.: Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms. In: *Nature* 446 (2007), Nr. 7136, S. 627–632
- [32] PAULUS, GG ; NICKLICH, W ; XU, Huale ; LAMBROPOULOS, P ; WALTHER, H: Plateau in above threshold ionization spectra. In: *Physical review letters* 72 (1994), Nr. 18, S. 2851
- [33] YANG, Baorui ; SCHAFFER, KJ ; WALKER, B ; KULANDER, KC ; AGOSTINI, P ; DIMAURO, LF: Intensity-dependent scattering rings in high order above-threshold ionization. In: *Physical review letters* 71 (1993), Nr. 23, S. 3770

- [34] PAULUS, GG ; NICKLICH, W ; WALTHER, H: Investigation of above-threshold ionization with femtosecond pulses: connection between plateau and angular distribution of the photoelectrons. In: *EPL (Europhysics Letters)* 27 (1994), Nr. 4, S. 267
- [35] NISOLI, Mauro ; DE SILVESTRI, S ; SVELTO, O ; SZIPÖCS, R ; FERENCZ, K ; SPIELMANN, Ch ; SARTANIA, S ; KRAUSZ, Ferenc: Compression of high-energy laser pulses below 5 fs. In: *Optics letters* 22 (1997), Nr. 8, S. 522–524
- [36] PAULUS, GG ; GRASBON, F ; WALTHER, H ; VILLORESI, P ; NISOLI, M ; STAGIRA, S ; PRIORI, E ; DE SILVESTRI, S: Absolute-phase phenomena in photoionization with few-cycle laser pulses. In: *Nature* 414 (2001), Nr. 6860, S. 182–184
- [37] MILOŠEVIĆ, DB ; PAULUS, GG ; BECKER, W: High-order above-threshold ionization with few-cycle pulse: a meter of the absolute phase. In: *Optics Express* 11 (2003), Nr. 12, S. 1418–1429
- [38] SAYLER, A. M. ; ARBEITER, M. ; FASOLD, S. ; ADOLPH, D. ; MÖLLER, M. ; HOFF, D. ; RATHJE, T. ; FETIĆ, B. ; MILOŠEVIĆ, D. B. ; FENNEL, T. ; PAULUS, G. G.: Accurate determination of absolute carrier-envelope phase dependence using photo-ionization. In: *Opt. Lett.* 40 (2015), Jul, Nr. 13, 3137–3140. <http://dx.doi.org/10.1364/OL.40.003137>. – DOI 10.1364/OL.40.003137
- [39] FERRAY, M ; L'HUILLIER, A ; LI, XF ; LOMPRES, LA ; MAINFRAY, G ; MANUS, C: Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 21 (1988), Nr. 3, S. L31
- [40] MCPHERSON, A ; GIBSON, G ; JARA, H ; JOHANN, U ; LUK, Ting S. ; MCINTYRE, IA ; BOYER, Keith ; RHODES, Charles K.: Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases. In: *JOSA B* 4 (1987), Nr. 4, S. 595–601



- [41] BALTUŠKA, Andrius ; UDEM, Th ; UIBERACKER, M ; HENTSCHEL, M ; GOULIELMAKIS, E ; GOHLE, Ch ; HOLZWARTH, Ronald ; YAKOVLEV, VS ; SCRINZI, A ; HÄNSCH, Theodor W. u. a.: Attosecond control of electronic processes by intense light fields. In: *Nature* 421 (2003), Nr. 6923, S. 611–615
- [42] NISOLI, M ; SANSONE, G ; STAGIRA, S ; DE SILVESTRI, S ; VOZZI, C ; PASCOLINI, M ; POLETTI, L ; VILLORESI, P ; TONDELLO, G: Effects of carrier-envelope phase differences of few-optical-cycle light pulses in single-shot high-order-harmonic spectra. In: *Phys. Rev. Lett.* 91 (2003), Nr. 21, S. 213905
- [43] L'HUILLIER, Anne ; LOMPRES, LA ; MAINFRAY, G ; MANUS, C: Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at 0.53  $\mu\text{m}$ . In: *Physical Review A* 27 (1983), Nr. 5, S. 2503
- [44] LIU, X. ; ROTTKE, H. ; EREMINA, E. ; SANDNER, W. ; GOULIELMAKIS, E. ; KEEFFE, K. O. ; LEZIUS, M. ; KRAUSZ, F. ; LINDNER, F. ; SCHÄTZEL, M. G. ; PAULUS, G. G. ; WALTHER, H.: Nonsequential Double Ionization at the Single-Optical-Cycle Limit. In: *Phys. Rev. Lett.* 93 (2004), Dec, 263001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.93.263001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.93.263001
- [45] CORKUM, PB ; KRAUSZ, Ferenc: Attosecond science. In: *Nature Physics* 3 (2007), Nr. 6, S. 381–387. <http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1038/nphys620>. – DOI <https://doi.org/10.1038/nphys620>
- [46] SCHENK, Markus: *Starkfeldeffekte und Attosekundendynamik in Photoemission von Metallnanospitzen*, lmu, Diss., 2012
- [47] KELDYSH, LV: Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. In: *Sov. Phys. JETP* 20 (1965), Nr. 5, S. 1307–1314
- [48] FAISAL, Farhad H.: Multiple absorption of laser photons by atoms. In: *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* 6 (1973), Nr. 4, S. L89

- [49] FAISAL, Farhad H.: Strong-field physics: Ionization surprise. In: *Nature Physics* 5 (2009), Nr. 5, S. 319–320
- [50] YUDIN, Gennady L. ; IVANOV, Misha Y.: Nonadiabatic tunnel ionization: Looking inside a laser cycle. In: *Physical Review A* 64 (2001), Nr. 1, S. 013409
- [51] KRÜGER, Michael ; SCHENK, Markus ; FÖRSTER, Michael ; HOMMELHOFF, Peter: Attosecond physics in photoemission from a metal nanotip. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 45 (2012), Nr. 7, S. 074006
- [52] SAYLER, A. M. ; ADOLPH, D. ; FASOLD, S. ; MÖLLER, M. ; ARBEITER, M. ; RATHJE, T. ; HOFF, D. ; FENNEL, T. ; PAULUS, G. G.: Probing attosecond dynamics and atomic structure with absolute carrier-envelope phase dependent electron rescattering. . – Manuskript in Vorbereitung für Phys. Rev. X
- [53] KULANDER, KC ; SCHAFFER, KJ ; KRAUSE, JL: Dynamics of short-pulse excitation, ionization and harmonic conversion. In: *Super-intense laser-atom physics*. Springer, 1993, S. 95–110
- [54] CORKUM, Paul B.: Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. In: *Physical Review Letters* 71 (1993), Nr. 13, S. 1994
- [55] PAULUS, Gerhard G. ; BECKER, Wilhelm ; NICKLICH, W ; WALTHER, Herbert: Rescattering effects in above-threshold ionization: a classical model. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 27 (1994), Nr. 21, S. L703
- [56] PAULUS, GG ; BECKER, W ; WALTHER, H: Classical rescattering effects in two-color above-threshold ionization. In: *Physical Review A* 52 (1995), Nr. 5, S. 4043
- [57] KRÜGER, Michael ; LEMELL, Christoph ; WACHTER, Georg ; BURGDÖRFER, Joachim ; HOMMELHOFF, Peter: Attosecond physics phenomena at nanometric tips. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical*

- Physics* 51 (2018), Nr. 17, 172001. <http://stacks.iop.org/0953-4075/51/i=17/a=172001>
- [58] BECKER, W ; GRASBON, Felix ; KOPOLD, R ; MILOŠEVIĆ, DB ; PAULUS, GG ; WALTHER, Herbert: Above-threshold ionization: from classical features to quantum effects. In: *Advances in Atomic, molecular, and optical physics* 48 (2002), S. 35–98. [http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/S1049-250X\(02\)80006-4](http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1016/S1049-250X(02)80006-4). – DOI [https://doi.org/10.1016/S1049-250X\(02\)80006-4](https://doi.org/10.1016/S1049-250X(02)80006-4)
- [59] DELONE, Nikolai B. ; KRAINOV, Vladimir P.: Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field. In: *Physics-Uspexhi* 41 (1998), Nr. 5, S. 469–485
- [60] BECKER, W ; GORESLAVSKI, S P. ; MILOŠEVIĆ, D B. ; PAULUS, G G.: The plateau in above-threshold ionization: the keystone of rescattering physics. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 51 (2018), jul, Nr. 16, 162002. <http://dx.doi.org/10.1088/1361-6455/aad150>. – DOI 10.1088/1361-6455/aad150
- [61] WITTMANN, Tibor ; HORVATH, Balint ; HELML, Wolfram ; SCHÄTZEL, Michael G. ; GU, Xun ; CAVALIERI, Adrian L. ; PAULUS, Gerhard G. ; KIENBERGER, Reinhard: Single-shot carrier-envelope phase measurement of few-cycle laser pulses. In: *Nature Physics* 5 (2009), Nr. 5, S. 357–362. <http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1038/nphys1250>. – DOI <https://doi.org/10.1038/nphys1250>
- [62] SAYLER, A. M. ; RATHJE, Tim ; MÜLLER, Walter ; RÜHLE, Klaus ; KIENBERGER, R. ; PAULUS, G. G.: Precise, real-time, every-single-shot, carrier-envelope phase measurement of ultrashort laser pulses. In: *Opt. Lett.* 36 (2011), Jan, Nr. 1, 1–3. <http://dx.doi.org/10.1364/OL.36.000001>. – DOI 10.1364/OL.36.000001
- [63] SAYLER, A. M. ; RATHJE, Tim ; MÜLLER, W. ; KÜRBIS, Ch. ; RÜHLE, Klaus ; STIBENZ, Gero ; PAULUS, G. G.: Real-time pulse length measurement of few-cycle laser pulses using above-threshold ionization. In: *Opt.*

- Express* 19 (2011), Feb, Nr. 5, 4464–4471. <http://dx.doi.org/10.1364/OE.19.004464>. – DOI 10.1364/OE.19.004464
- [64] JOHNSON, Nora G. ; HERRWERTH, O. ; WIRTH, A. ; DE, S. ; BEN-ITZHAK, I. ; LEZIUS, M. ; BERGUES, B. ; KLING, M. F. ; SENFTLEBEN, A. ; SCHRÖTER, C. D. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J. ; BETSCH, K. J. ; JONES, R. R. ; SAYLER, A. M. ; RATHJE, T. ; RÜHLE, K. ; MÜLLER, W. ; PAULUS, G. G.: Single-shot carrier-envelope-phase-tagged ion-momentum imaging of nonsequential double ionization of argon in intense 4-fs laser fields. In: *Phys. Rev. A* 83 (2011), Jan, 013412. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.83.013412>. – DOI 10.1103/PhysRevA.83.013412
- [65] RATHJE, T ; JOHNSON, Nora G. ; MÖLLER, M ; SÜSSMANN, Frederik ; ADOLPH, D ; KÜBEL, Matthias ; KIENBERGER, Reinhard ; KLING, Matthias F. ; PAULUS, GG ; SAYLER, AM: Review of attosecond resolved measurement and control via carrier–envelope phase tagging with above-threshold ionization. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 45 (2012), Nr. 7, S. 074003
- [66] STEINGRUBE, Daniel S. ; KRETSCHMAR, Martin ; HOFF, Dominik ; SCHULZ, Emilia ; BINHAMMER, Thomas ; HANSINGER, Peter ; PAULUS, Gerhard G. ; MORGNER, Uwe ; KOVAČEV, Milutin: Sub-1.5-cycle pulses from a single filament. In: *Optics express* 20 (2012), Nr. 21, S. 24049–24058
- [67] XIE, Xinhua ; DOBLHOFF-DIER, Katharina ; ROITHER, Stefan ; SCHÖFFLER, Markus S. ; KARTASHOV, Daniil ; XU, Huailiang ; RATHJE, Tim ; PAULUS, Gerhard G. ; BALTUŠKA, Andrius ; GRÄFE, Stefanie ; KITZLER, Markus: Attosecond-Recollision-Controlled Selective Fragmentation of Polyatomic Molecules. In: *Phys. Rev. Lett.* 109 (2012), Dec, 243001. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.109.243001>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.109.243001
- [68] MIURA, Shun ; ANDO, Toshiaki ; OOTAKA, Kazuki ; IWASAKI, Atsushi ; XU, Huailiang ; OKINO, Tomoya ; YAMANOUCHI, Kaoru ; HOFF, Dominik ; RATHJE, Tim ; PAULUS, Gerhard G. u. a.: Carrier-envelope-phase depen-

- dence of asymmetric C D bond breaking in C<sub>2</sub>D<sub>2</sub> in an intense few-cycle laser field. In: *Chemical Physics Letters* 595 (2014), S. 61–66
- [69] XIE, Xinhua ; ROITHER, Stefan ; SCHÖFFLER, Markus ; LÖTSTEDT, Erik ; KARTASHOV, Daniil ; ZHANG, Li ; PAULUS, Gerhard G. ; IWASAKI, Atsushi ; BALTUŠKA, Andrius ; YAMANOUCHI, Kaoru ; KITZLER, Markus: Electronic Predetermination of Ethylene Fragmentation Dynamics. In: *Phys. Rev. X* 4 (2014), Apr, 021005. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevX.4.021005>. – DOI 10.1103/PhysRevX.4.021005
- [70] HANSINGER, Peter ; TÖPFER, Philipp ; DIMITROV, Nikolay ; ADOLPH, Daniel ; HOFF, Dominik ; RATHJE, Tim ; SAYLER, A. M. ; DREISCHUH, Alexander ; PAULUS, Gerhard G.: Refractive index dispersion measurement using carrier-envelope phasemeters. In: *New Journal of Physics* 19 (2017), Nr. 2, S. 023040
- [71] CARPEGGIANI, P. ; REDUZZI, M. ; COMBY, A. ; AHMADI, H. ; KÜHN, S. ; CALEGARI, F. ; NISOLI, M. ; FRASSETTO, F. ; POLETTI, L. ; HOFF, D. ; ULLRICH, J. ; SCHRÖTER, C. D. ; MOSHAMMER, R. ; PAULUS, G. G. ; SANSONE, G.: Vectorial optical field reconstruction by attosecond spatial interferometry. In: *Nature Photonics* 11 (2017), May, 383. <http://dx.doi.org/doi:10.1038/nphoton.2017.73>. – DOI doi:10.1038/nphoton.2017.73. – Article
- [72] HOFF, Dominik ; FURCH, Federico J. ; WITTING, Tobias ; RÜHLE, Klaus ; ADOLPH, Daniel ; SAYLER, A. M. ; VRAKKING, Marc J. J. ; PAULUS, Gerhard G. ; SCHULZ, Claus P.: Continuous every-single-shot carrier-envelope phase measurement and control at 100 kHz. In: *Opt. Lett.* 43 (2018), Aug, Nr. 16, 3850–3853. <http://dx.doi.org/10.1364/OL.43.003850>. – DOI 10.1364/OL.43.003850
- [73] RAUSCHENBERGER, Jens ; FUJI, Takao ; HENTSCHEL, M ; VERHOEF, A-J ; UDEM, Thomas ; GOHLE, Christoph ; HÄNSCH, TW ; KRAUSZ, Ferenc: Carrier-envelope phase-stabilized amplifier system. In: *Laser Physics Letters* 3 (2006), Nr. 1, S. 37–42

- [74] BOYD, Robert W.: *Nonlinear optics*. Academic press, 2003
- [75] TSCHERSICH, KG ; FLEISCHHAUER, JP ; SCHULER, H: Design and characterization of a thermal hydrogen atom source. In: *Journal of Applied Physics* 104 (2008), Nr. 3, S. 034908
- [76] BUSULADŽIĆ, M. ; GAZIBEGOVIĆ-BUSULADŽIĆ, A. ; MILOŠEVIĆ, D. B.: High-order above-threshold ionization in a laser field: Influence of the ionization potential on the high-energy cutoff. In: *Laser Physics* 16 (2006), Feb, Nr. 2, 289–293. <http://dx.doi.org/10.1134/S1054660X06020149>. – DOI 10.1134/S1054660X06020149. – ISSN 1555–6611
- [77] HICKSTEIN, Daniel D. ; RANITOVIC, Predrag ; WITTE, Stefan ; TONG, Xiao-Min ; HUISMANS, Ymkje ; ARPIN, Paul ; ZHOU, Xibin ; KEISTER, K E. ; HOGLE, Craig W. ; ZHANG, Bosheng u. a.: Direct visualization of laser-driven electron multiple scattering and tunneling distance in strong-field ionization. In: *Physical review letters* 109 (2012), Nr. 7, S. 073004
- [78] HIGUCHI, Takuya ; STOCKMAN, Mark I. ; HOMMELHOFF, Peter: Strong-Field Perspective on High-Harmonic Radiation from Bulk Solids. In: *Phys. Rev. Lett.* 113 (2014), Nov, 213901. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.113.213901>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.113.213901
- [79] HIGUCHI, Takuya ; HEIDE, Christian ; ULLMANN, Konrad ; WEBER, Heiko B. ; HOMMELHOFF, Peter: Light-field-driven currents in graphene. In: *Nature* 550 (2017), Nr. 7675, S. 224
- [80] RYBKA, Tobias ; LUDWIG, Markus ; SCHMALZ, Michael F. ; KNITTEL, Vanessa ; BRIDA, Daniele ; LEITENSTORFER, Alfred: Sub-cycle optical phase control of nanotunnelling in the single-electron regime. In: *Nature Photonics* 10 (2016), Nr. 10, S. 667
- [81] GOUY, Louis G.: Sur une propriété nouvelle des ondes lumineuses. In: *Compt. Rendue Acad. Sci.(Paris)* 110 (1890), S. 1251–1253 *ibid.* 111, 33
- [82] GOUY, Louis G.: Sur la propagation anormale des ondes. In: *Ann. Chim. Phys* 24 (1891), S. 145–213

- [83] BORN, Max ; WOLF, Emil: *Principles of optics: electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light*. Cambridge University Press, 1999
- [84] SIEGMAN, Anthony E.: *Lasers*. Bd. 37. University Science Books, Mill Valley, CA, 1986
- [85] VISSER, TD ; WOLF, E: The origin of the Gouy phase anomaly and its generalization to astigmatic wavefields. In: *Optics Communications* 283 (2010), Nr. 18, S. 3371–3375
- [86] SHVERDIN, MY ; WALKER, DR ; YAVUZ, DD ; YIN, Guang-Yu ; HARRIS, Stephen E.: Generation of a single-cycle optical pulse. In: *Physical review letters* 94 (2005), Nr. 3, S. 033904
- [87] WIRTH, Adrian ; HASSAN, M T. ; GRGURAŠ, Ivanka ; GAGNON, Justin ; MOULET, Antoine ; LUU, Tran T. ; PABST, S ; SANTRA, R ; ALAHMED, ZA ; AZZEER, AM u. a.: Synthesized light transients. In: *Science* 334 (2011), Nr. 6053, S. 195–200
- [88] KAPLAN, AE: Diffraction-induced transformation of near-cycle and subcycle pulses. In: *JOSA B* 15 (1998), Nr. 3, S. 951–956
- [89] PORRAS, Miguel A.: Ultrashort pulsed Gaussian light beams. In: *Physical Review E* 58 (1998), Nr. 1, S. 1086
- [90] PORRAS, Miguel A.: Diffraction effects in few-cycle optical pulses. In: *Physical Review E* 65 (2002), Nr. 2, S. 026606
- [91] PORRAS, Miguel A.: Characterization of the electric field of focused pulsed Gaussian beams for phase-sensitive interactions with matter. In: *Optics letters* 34 (2009), Nr. 10, S. 1546–1548
- [92] PORRAS, MA ; HORVATH, ZL ; MAJOR, B: On the use of lenses to focus few-cycle pulses with controlled carrier–envelope phase. In: *Applied Physics B* 108 (2012), Nr. 3, S. 521–531

- [93] PORRAS, Miguel A. ; MAJOR, Balazs ; HORVATH, Zoltan L.: Carrier-envelope phase shift of few-cycle pulses along the focus of lenses and mirrors beyond the nonreshaping pulse approximation: the effect of pulse chirp. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 29 (2012), Nr. 12, S. 3271–3276
- [94] PORRAS, Miguel A.: Propagation-induced changes in the instantaneous polarization state, phase, and carrier–envelope phase of few-cycle pulsed beams. In: *JOSA B* 30 (2013), Nr. 6, S. 1652–1659
- [95] MAJOR, Balázs ; HORVÁTH, Zoltán L. ; PORRAS, Miguel A.: Phase and group velocity of focused, pulsed Gaussian beams in the presence and absence of primary aberrations. In: *Journal of Optics* 17 (2015), Nr. 6, 065612. <http://dx.doi.org/http://dx.doi.org/10.1088/2040-8978/17/6/065612>. – DOI <http://dx.doi.org/10.1088/2040-8978/17/6/065612>
- [96] MAJOR, Balazs: *Phase and polarization changes of pulsed Gaussian beams during focusing and propagation*, SZTE, Diss., 2017
- [97] LINDNER, Fabrizio ; PAULUS, Gerhard G. ; WALTHER, Herbert ; BALTUŠKA, A ; GOULIELMAKIS, E ; LEZIUS, M ; KRAUSZ, Ferenc: Gouy phase shift for few-cycle laser pulses. In: *Physical review letters* 92 (2004), Nr. 11, S. 113001
- [98] TRITSCHLER, T ; HOF, KD ; KLEIN, MW ; WEGENER, M: Variation of the carrier-envelope phase of few-cycle laser pulses owing to the Gouy phase: a solid-state-based measurement. In: *Optics letters* 30 (2005), Nr. 7, S. 753–755
- [99] WACHTER, Georg ; LEMELL, Christoph ; BURGDÖRFER, Joachim ; SCHENK, Markus ; KRÜGER, Michael ; HOMMELHOFF, Peter: Electron rescattering at metal nanotips induced by ultrashort laser pulses. In: *Physical Review B* 86 (2012), Nr. 3, S. 035402
- [100] THOMAS, Sebastian ; KRÜGER, Michael ; FÖRSTER, Michael ; SCHENK, Markus ; HOMMELHOFF, Peter: Probing of Optical Near-Fields by Electron Rescattering on the 1 nm Scale. In: *Nano Letters* 13 (2013),



- Nr. 10, 4790-4794. <http://dx.doi.org/10.1021/nl402407r>. – DOI 10.1021/nl402407r. – PMID: 24032432
- [101] PIGLOSIWICZ, Björn ; SCHMIDT, Slawa ; PARK, Doo J. ; VOGELSANG, Jan ; GROSS, Petra ; MANZONI, Cristian ; FARINELLO, Paolo ; CERULLO, Giulio ; LIENAU, Christoph: Carrier-envelope phase effects on the strong-field photoemission of electrons from metallic nanostructures. In: *Nature Photonics* 8 (2014), Nr. 1, S. 37–42
- [102] HOFF, Dominik ; KRÜGER, Michael ; MAISENBACHER, Lothar ; SAYLER, AM ; PAULUS, Gerhard G. ; HOMMELHOFF, Peter: Tracing the phase of focused broadband laser pulses. In: *Nature Physics* 13 (2017), July, Nr. 10, 947–951. <http://dx.doi.org/10.1038/nphys4185>
- [103] HOFF, Dominik ; KRÜGER, Michael ; MAISENBACHER, Lothar ; PAULUS, Gerhard G. ; HOMMELHOFF, Peter ; SAYLER, AM: Using the focal phase to control attosecond processes. In: *Journal of Optics* 19 (2017), November, Nr. 12, S. 124007. <http://dx.doi.org/https://doi.org/10.1088/2040-8986/aa9247>. – DOI <https://doi.org/10.1088/2040-8986/aa9247>
- [104] MESCHÉDE, Dieter: *Optik, Licht und Laser*. 3rd revised ed. Wiesbaden: Vieweg+Teubner, 2008. – xi + 568 S. – ISBN 978-3-8351-0143-2/pbk
- [105] RUDAWSKI, Piotr: *Second-generation High-Order Harmonic Sources*, Lund University, Diss., 2014
- [106] <http://smaract.de/index.php/manipulators/3dmanipulators>
- [107] KRÜGER, Michael: *Attosecond physics in strong-field photoemission from metal nanotips*, lmu, Diss., 2013
- [108] HOFFMANN, B.: *SEM Aufnahme, MPI Erlangen*. March 2014
- [109] WRIGHT, D ; GREVE, P ; FLEISCHER, J ; AUSTIN, L: Laser beam width, divergence and beam propagation factor—an international standardization approach. In: *Optical and Quantum Electronics* 24 (1992), Nr. 9, S. S993–S1000

- [110] ARNAUD, JA ; HUBBARD, WM ; MANDEVILLE, GD ; CLAVIERE, B De l. ; FRANKE, EA ; FRANKE, JM: Technique for fast measurement of Gaussian laser beam parameters. In: *Applied optics* 10 (1971), Nr. 12, S. 2775–2776
- [111] SAYLER, AM ; WANG, PQ ; CARNES, KD ; BEN-ITZHAK, I: Determining intensity dependence of ultrashort laser processes through focus z-scanning intensity-difference spectra: application to laser-induced dissociation of H+2. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 40 (2007), Nr. 22, S. 4367
- [112] STROHABER, J. ; UITERWAAL, C. J. G. J.: In Situ Measurement of Three-Dimensional Ion Densities in Focused Femtosecond Pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 100 (2008), Jan, 023002. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.100.023002>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.100.023002
- [113] KIELPINSKI, D ; SANG, R T. ; LITVINYUK, I V.: Benchmarking strong-field ionization with atomic hydrogen. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 47 (2014), Nr. 20, 204003. <http://stacks.iop.org/0953-4075/47/i=20/a=204003>
- [114] PORRAS, Miguel A. ; DOMBI, Péter: Freezing the carrier-envelope phase of few-cycle light pulses about a focus. In: *Optics express* 17 (2009), Nr. 22, S. 19424–19434
- [115] LUAN, S ; HIPPLER, R ; SCHWIER, H ; LUTZ, HO: Electron emission from polycrystalline copper surfaces by multi-photon absorption. In: *EPL (Europhysics Letters)* 9 (1989), Nr. 5, S. 489
- [116] TOTH, Cs ; FARKAS, Gy ; VODOPYANOV, KL: Laser-induced electron emission from an Au surface irradiated by single picosecond pulses at  $\lambda = 2.94 \mu\text{m}$ . The intermediate region between multiphoton and tunneling effects. In: *Applied Physics B* 53 (1991), Nr. 4, S. 221–225
- [117] DOMBI, Péter ; IRVINE, SE ; RÁCZ, Péter ; LENNER, Miklós ; KROÓ, Norbert ; FARKAS, Gyozo ; MITROFANOV, Alexander ; BALTUŠKA, A ; FUJI,

- Takao ; KRAUSZ, Ferenc u. a.: Observation of few-cycle, strong-field phenomena in surface plasmon fields. In: *Optics express* 18 (2010), Nr. 23, S. 24206–24212
- [118] BORMANN, R ; GULDE, M ; WEISMANN, A ; YALUNIN, SV ; ROPERS, C: Tip-enhanced strong-field photoemission. In: *Physical review letters* 105 (2010), Nr. 14, S. 147601
- [119] SCHENK, Markus ; KRÜGER, Michael ; HOMMELHOFF, Peter: Strong-field above-threshold photoemission from sharp metal tips. In: *Physical review letters* 105 (2010), Nr. 25, S. 257601
- [120] KRÜGER, Michael ; SCHENK, Markus ; HOMMELHOFF, Peter ; WACHTER, Georg ; LEMELL, Christoph ; BURGDÖRFER, Joachim: Interaction of ultrashort laser pulses with metal nanotips: a model system for strong-field phenomena. In: *New Journal of Physics* 14 (2012), Nr. 8, S. 085019
- [121] THOMAS, Sebastian ; WACHTER, Georg ; LEMELL, Christoph ; BURGDÖRFER, Joachim ; HOMMELHOFF, Peter: Large optical field enhancement for nanotips with large opening angles. In: *New Journal of Physics* 17 (2015), Nr. 6, 063010. <http://stacks.iop.org/1367-2630/17/i=6/a=063010>
- [122] GOULIELMAKIS, Eleftherios ; YAKOVLEV, Vladislav S. ; CAVALIERI, Adrian L. ; UIBERACKER, Matthias ; PERVAK, Volodymyr ; APOLONSKI, A ; KIENBERGER, Reinhard ; KLEINEBERG, Ulf ; KRAUSZ, Ferenc: Attosecond control and measurement: lightwave electronics. In: *Science* 317 (2007), Nr. 5839, S. 769–775
- [123] MÜLLER, Erwin W. ; TSONG, Tien T.: Field ion microscopy, field ionization and field evaporation. In: *Progress in surface science* 4 (1974), S. 1–139

# Danksagungen

Wissenschaft lebt von der Zusammenarbeit, daher gilt es an dieser Stelle einer Reihe von Menschen für ihre Unterstützung zu danken.

An erster Stelle danke ich Professor Dr. Dr. h.c. Gerhard G. Paulus für die Möglichkeit in der NLO-Arbeitsgruppe die hier gezeigten Messungen durchführen zu können, die dafür nötige exzellente Infrastruktur bereit zu stellen und diese Arbeit zu betreuen.

Dann möchte ich auch besonders unserem langjährigen PostDoc Max Saylor danken, aus dessen großem Erfahrungsschatz ich den Großteil der Dinge für den täglichen Laboreinsatz und einige How-to's in der EDV lernen durfte. Vielen Dank für manch schnelle Computer-Simulation und das geschliffene Englisch unserer Paper.

Ganz herzlich möchte ich mich für die tolle Zusammenarbeit mit der Gruppe von Peter Hommelhoff bei den Nanospitzenmessungen bedanken. Dabei gilt mein spezieller Dank Michael Krüger für die monatelange gemeinsame Zeit Tag und Nacht im Labor. Alles was ich über die (Nano)Spitzenforschung gelernt habe, weiß ich von ihm. Vielen Dank für die erfolgreiche Zusammenarbeit an unseren Papern. Lothar Maisenbacher und dem übrigen Team in Erlangen gilt mein Dank für die Vorbereitungen am Aufbau und die Versorgung mit Nanospitzen.

Aus der NLO-Arbeitsgruppe danke ich besonders Daniel Adolph für die Bereitstellung der Software und die Hilfe, damit die Auswertung der großen Datenmengen bewerkstelligen zu können. Die gute Seele des NLO-Labors ist Thomas Weber, der mit allen Kräften das Labor und den Laser am Laufen hält, danke dafür. Den übrigen Technikern des IOQ danke ich für allerlei Spezialanfertigungen die man in der Experimentalphysik so braucht. Allen weiteren Mitgliedern der NLO-Arbeitsgruppe möchte ich für die nette Arbeitsatmosphäre danken.

Zudem möchte ich auch einigen Professoren für ihre Gastfreundschaft danken,

bei denen ich im Laufe meiner Promotion jeweils einige Monate im Labor arbeiten und Erfahrungen sammeln durfte: Uwe Morgner und Milutin Kovacev in Hannover, Kaoru Yamanouchi in Tokyo, Reinhold Schuch in Stockholm und Giuseppe Sansone in Mailand.

Abschließend gebührt der Dank meiner gesamten Familie, die mich über all die Jahre unterstütz und immer ein offenes Ohr hatte, wo auch immer sie oder ich gerade waren.

# Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Ort, Datum

Unterschrift d. Verfassers