

# 1 Einleitung

Die vielseitigen Anwendungsmöglichkeiten intensiver Kurzpulsstrahlung repräsentieren einen der Schwerpunkte heutiger Lasertechnologie. Hierbei lässt sich der Laser selbst nicht mehr als reiner Forschungsgegenstand einstufen, sondern erobert als Werkzeug zusehends industrielle Produktionsstätten, die ihrerseits die Richtung der Laserentwicklung stark beeinflussen. Die Realisierung einer allgemein angestrebten Miniaturisierung verlangt von den optischen Bearbeitungssystemen eine Erhöhung der räumlichen Auflösung bei gleichzeitiger Einhaltung hoher Qualitätsstandards. Auf diese Weise bedingt sich, vor allem durch die Mikromaterialbearbeitung und -strukturierung, der Trend, Lasersysteme mit einer möglichst kurzen Emissionswellenlänge und einer kurzen Pulsdauer zu entwickeln. Kurze Wechselwirkungszeiten im Subpikosekundenbereich erlauben konvektionsarme Ablationsprozesse und dadurch eine hohe Bearbeitungspräzision. Neben der Voraussetzung, die für die Ablation hinreichende Energie zur Verfügung zu stellen, ist eine natürliche Limitierung in der erreichbaren Ortsauflösung durch die Laserwellenlänge gegeben, begleitend mit der Absicht, diese Grenze so weit wie möglich in den UV- und XUV-Spektralbereich zu verschieben. Primärstrahlungsquellen im XUV-Spektralbereich sind derzeit allerdings kaum vorhanden oder lassen sich nur mit ineffizienten Pumpmechanismen realisieren. Eine mögliche Alternative eröffnet sich hier mit Hilfe nichtlinearer Konversionsprozesse. Sie besitzen die Vorteile, zur Realisierung nur einen geringen technischen Mehraufwand zu benötigen und bestimmte Eigenschaften der Primärlaserquellen, wie beispielsweise ihre Durchstimbarkeit, auf die konvertierte Strahlung zu übertragen.

Zur nichtlinearen Strahlungskonversion werden aufgrund der mit der Ordnung des Prozesses abnehmenden Konversionseffizienz vorzugsweise Hochintensitätslaser als Pump laser eingesetzt. Als die zur Zeit gebräuchlichsten Hochintensitätslaser sind das Titan-Saphir-System mit einer Emissionswellenlänge im Bereich um 800 nm und das KrF-Excimerlasersystem mit der Laserwellenlänge bei 248.5 nm zu nennen. Von diesen Systemen ausgehend werden die kürzesten Wellenlängen durch Rekombinationsstrahlung in Plasmen im Bereich um 10 – 20 nm und durch die Strahlungskonversion in Harmonische bis in den Bereich des Wasserfensters hinein erzeugt. Da die maximal zu beobachtende Ordnung eine direkte, quadratische Abhängigkeit zur eingestrahlten Fundamentalwellenlänge aufweist, wird zur Erzeugung möglichst kurzer Wellenlängen in der Regel mit langwelligen Primärlaserquellen gearbeitet. Stattdessen bieten die kurzwelligen Primärsysteme den Vorteil, den XUV-Spektralbereich unter 100 nm bereits in niedrigster Ordnung und im Vergleich zu den langwelligen Systemen mit wesentlich höherer Effizienz zugänglich zu machen.

In der vorliegenden Arbeit wird ausgehend von einem KrF-Hochintensitätslasersystem mit Subpikosekundenpulsdauer der Prozess der Frequenzverdreifung in Argon als nichtlineares Medium untersucht, der zur Erzeugung kohärenter Strahlung bei einer

Wellenlänge von 82.8 nm führt. Die der Harmonischenerzeugung in niedriger Ordnung zu Grunde liegende Physik kann hierbei im Rahmen eines störungstheoretischen Formalismus beschrieben werden. Die Verknüpfung von nichtlinearer Optik in niedrigster Ordnung mit Subpikosekundenpulsstrahlung stellt im Gegensatz zu anderen Arbeiten, deren Ziel die Erzeugung höchster Ordnungen mittels Kurzpulslaserquellen ist, den Ansatzpunkt dieser Arbeit dar. Die Verwendung von kurzen Pulsdauern zieht vor allem zwei Konsequenzen nach sich: Zum einen lassen sich höhere Pumpintensitäten in den Prozess einbringen, da die Ionisation des Mediums mit kürzerer Pulsdauer erst bei höherer Spitzenintensität einsetzt. Zum anderen wird durch den Einsatz kurzer Pulsdauern bzw. durch die damit verknüpfte hohe spektrale Bandbreite des Pumpasers nahegelegt, die dispersiven Eigenschaften des Mediums genauer zu studieren. Die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung der Harmonischenerzeugung werden daher unter Berücksichtigung der dispersiven Eigenschaften und der Ionisation des Mediums, die bei den verfügbaren Pumpintensitäten von bis zu  $10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$  eintritt, konsequent angewendet. Allgemeine Eigenschaften des Prozesses und Besonderheiten der hier betrachteten Kombination aus Lasersystem, Medium und Prozessordnung bei Variation verschiedener äußerer Parameter, wie Teilchendichte, Pumpenergie oder Pumpwellenlänge, werden vorgestellt und den experimentellen Ergebnissen gegenübergestellt.

Insbesondere lassen sich aus der theoretischen Modellierung der für die nichtlinearen Prozesse fundamentalen Phasenanpassung zwei für die in dieser Arbeit betrachteten Kombination aus Primärlaserwellenlänge, nichtlinearem Medium und Ordnung des Prozess ausschlaggebende Aspekte gegenüber anderen Konversionsprozessen ableiten: Aufgrund der Nähe einer Vielzahl von atomaren Ar-Niveaus zum virtuellen  $3\omega_{\text{KrF}}$ -Niveau kann zum einen der Wert der nichtlinearen Suszeptibilität, die als Maß für die Konversionseffizienz angesehen werden kann, nahresonant erhöht werden. Zum zweiten zeigt die Untersuchung der dispersiven Eigenschaften, dass innerhalb des durch den Kurzpuls-KrF-Laser zur Verfügung gestellten Spektralbereichs fast perfekte Phasenanpassung möglich ist. Sowohl die vor diesem Hintergrund messbaren hohen Konversionseffizienzen als auch die spektrale Sensitivität der Phasenanpassung werden experimentell demonstriert und mit Simulationsrechnungen unterlegt. Gleichzeitig werden die Vorteile der Kombination aus nichtlinearem Medium und Primärlaser herausgearbeitet, aber auch auf die durch Ionisation auferlegten Grenzen hingewiesen. Im Ergebnis wird eine Strategie zur Steigerung der erzeugbaren Energieausbeute aufgezeigt, die als vorgegebenes Ziel dieser Arbeit den Weg vorzeichnet, aus diesem System eine potentielle XUV-Strahlungsquelle zum Einsatz in der Materialbearbeitung zu entwickeln. Die Charakterisierung der erzeugten Strahlung der 3.ten Harmonischen des KrF-Lasers bei der Wellenlänge von 82.8 nm schließt die Arbeit ab.

Diese Arbeit wurde mitinitiiert von Herrn Prof. Bernd Wellegehausen von der Universität Hannover, mit dessen Hilfestellung wesentliche Ergebnisse entstanden sind.

## 2 Einführung und Motivation

### 2.1 Quellen intensiver Kurzpulsstrahlung und deren Anwendung

Der Entwicklungsfortschritt im Bereich der Hochintensitätslaser in der jüngsten Vergangenheit eröffnet ein breitgefächertes Angebot zur Erforschung der Wechselwirkung intensiver Kurzpulsstrahlung mit Materie und deren praktischer Anwendung. Zu nennen sind zeitaufgelöste Pump-Probe-Experimente, die Mikromaterialbearbeitung, die Mikrostrukturierung, die Untersuchung schneller, dynamischer Prozesse sowie die Grundlagenforschung im Bereich der Hochleistungslaserphysik einschließlich der Erzeugung heißer, dichter Plasmen und der Erzeugung kurzwelliger Strahlung bis hin zu Strategien zur Generierung von Attosekundenpulsen und *fast-ignition* Konzepten [LBI 94, ALL 96, THK 99, HaM 01]. Ausführliche Übersichten über die verschiedenen Aspekte der Wechselwirkung intensiver Laserfelder mit Materie finden sich beispielsweise in [Lin 94, GiF 96].

Die derzeit höchsten Intensitäten bis zu  $10^{21} \text{ Wcm}^{-2}$  und höchsten Leistungen bis in den Petawatt-Bereich hinein werden vor allem in speziellen Großforschungseinrichtungen erzielt (z.B. *Lawrence Livermore National Laboratory* [LLNL], *Rutherford Appleton Laboratory* [CLF]), die für eine kommerzielle Nutzung allerdings aus Kostengründen unattraktiv sind. Der zur Zeit gebräuchlichste Hochintensitätslaser ist das Titan-Saphir-System (Ti:Sa) in Kombination mit der CPA-Technik bei einer Wellenlänge von 800 - 1000 nm (*chirped pulse amplification* [Tre 69]). Mit diesem System lassen sich Pulsdauern bis hinunter auf 10 fs und Energien von einigen  $\mu\text{J}$  bis hin zu einigen hundert mJ bei Repetitionsraten von 0.1 Hz bis zu 5 kHz realisieren [MBP 98, BPP 00, HCK 00, NTS 00]. Einsatzfelder dieser Lasertypen sind unter anderen die Mikromaterialbearbeitung sowie die Plasmaphysik und die Erzeugung kurzwelliger Pulse durch Harmonischenstrahlung in höchster Ordnung.

Als Alternative bietet das KrF-Excimerlasersystem eine Emissionswellenlänge von 248.5 nm, eine Pulsdauer von 300 – 600 fs und Energien bis zu 100 mJ bei einer Repetitionsrate von 10 Hz bzw. bis zu 30 mJ bei Raten bis zu 100 Hz [BMS 01, BSS 02]. Bei geeigneter Fokussierung lassen sich mit diesem Lasertypus Intensitäten bis zu  $10^{19} \text{ Wcm}^{-2}$  erzeugen [SAF 96].

Aus anwendungsorientierter, kommerzieller Sicht bietet vor allem die Kombination kurzer Pulse mit hohen Intensitäten und kurzen Wellenlängen Vorteile [SiI 96, WCS 99]: Für Ablations- und Strukturierungsprozesse in der Mikrotechnik ist es wünschenswert, wohldefinierte Strukturen mit hoher Ortsauflösung und Genauigkeit zu erzeugen. Zum einen ist die Ortsauflösung durch die verwendete Laserwellenlänge bestimmt, zum anderen ist es mit Pulsdauern im Subpikosekundenbereich durch die kurze Wechselwirkungszeit

möglich, konvektionsfreie bzw. -arme Ablationsprozesse ohne Aufschmelzungen in den Strukturrandbereichen ablaufen zu lassen, wodurch eine hohe Bearbeitungspräzision erreicht werden kann. Die sehr hohen Intensitäten, die bei der Fokussierung solcher Pulse auftreten, führen zudem, bedingt durch eine starke Mehrphotonenabsorption, zu einer drastischen Reduzierung der Eindringtiefe der Strahlung auch bei transparenten Materialien und ermöglichen so einen definierten Materialabtrag. Besonders in der Strukturierung von Materialoberflächen besitzt das KrF-System aufgrund seiner sehr guten Fokussierbarkeit und seiner kürzeren Wellenlänge gegenüber dem Ti:Sa-System ein wesentlich höher einzuschätzendes Potential.

Kurzwellige, leistungsstarke Primärstrahlungsquellen mit Emission im UV- und XUV-Spektralbereich sind derzeit allerdings kaum vorhanden oder lassen sich nur mit hohem technischen Aufwand realisieren. Die bekannten Lasertechniken erweisen sich in diesem Spektralbereich aufgrund des ungünstigen Skalierungsverhältnisses der Pumpleistungsdichte mit der Emissionslaserfrequenz  $\sim \nu^4$  als schwierig und die eingeschränkten Durchstimmungsmöglichkeiten für beispielsweise spektroskopische Anwendungen als unzureichend [Sve 82]. Die direkte Erzeugung kurzwelliger Piko- oder Subpikosekundenpulse ist aufgrund fehlender Medien mit entsprechender Verstärkungsbandbreite nicht möglich, wodurch die Erzeugung hoher Intensitäten ebenso ausgeschlossen ist.

Als Primärlaserquellen im Spektralbereich unter 100 nm ist lediglich der Krypton-Auger-Laser mit der Emissionswellenlänge von 90.7 nm zu nennen [HoW 94]. Unterhalb von 50 nm existieren die Elektronenstoß- und Rekombinationsanregung in laserproduzierten Plasmen als Laserquellen, deren notwendige Pumpintensitäten oftmals nur in Großforschungseinrichtungen zur Verfügung stehen und somit unpraktikabel sind [Elt 90]. Neuere Bemühungen zeigen, dass mit Hilfe sehr kompakter Lasersysteme über Plasmen in Gasmedien Strahlung im Bereich um 11 – 13 nm mit Effizienzen von 0.5 % erzeugt werden kann [KrM 01]. Kürzerwellige Primärstrahlungsquellen sind derzeit jedoch nicht verfügbar.

### 2.2 Nichtlineare Frequenzkonversion

Der zugängliche Spektralbereich kohärenter Strahlung lässt sich dennoch erweitern. Die Möglichkeit zur Verkürzung der Wellenlänge über die nichtlineare Optik wurde bereits kurz nach der Erfindung des Lasers 1961 zunächst für Kristalle, später auch für Edelgase prognostiziert und demonstriert [FHP 61, MTS 63, NeW 67]. Zum einen sind diese Prozesse unabhängig von einer Besetzungsinversion und somit aus technischer Sicht von den damit verbundenen Problemen losgelöst. Zum anderen übertragen sie bestimmte Eigenschaften, so dass beispielsweise aufgrund der Durchstimmbbarkeit der Primärquelle die konvertierte Strahlung innerhalb gewisser Grenzen selbst Durchstimmbbarkeit aufweist. Der Vierwellen-Differenzfrequenzmischprozess in Xenon erlaubt zum Beispiel eine durchstimmbare VUV-Strahlung im Wellenlängenbereich von 133 – 200 nm mit einer

Konversionseffizienz im Promillebereich und Energien von einigen  $\mu\text{J}$  [Tün 92, Mom 94, WME 96]. Mit Hilfe der nichtlinearen Techniken wird der gesamte kurzwellige Spektralbereich grundsätzlich erfassbar, und durch die Übertragung der Pulsdauer der Fundamentallaser sind diese Prozesse zudem prinzipiell geeignet für die Erzeugung ultrakurzer intensiver Lichtpulse.

Die erzeugbaren Harmonischenintensitäten zeigen über die materialabhängigen Suszeptibilitäten eine direkte Abhängigkeit von der Ordnung des Prozesses und somit eine indirekte von der Intensität des Pump lasers. Inzwischen haben sich nichtlineare Techniken, besonders mit der raschen Entwicklung intensiver Primärlaserquellen mit GW- und TW-Leistungen, in sehr vielen Bereichen der Physik durchsetzen können. Intensitäten oberhalb von  $10^{13} \text{ Wcm}^{-2}$  sind hier im Allgemeinen ausreichend, um hohe Harmonische bis in den weichen Röntgenbereich zu erzeugen.

### 2.3 Harmonischenerzeugung in Edelgasen

Als transparente, nichtlineare Medien im XUV-Spektralbereich stehen letztlich nur noch Dämpfe oder Gase, insbesondere die Edelgase aufgrund ihres hohen Ionisationspotentials zur Verfügung [SaM 94, TSM 94, PeM 95, PSZ 96]. Ihre Inversionssymmetrie bedingt die Einschränkung auf ungerade Harmonischenordnungen [Dem 91, Boy 92]. Abb. 2.1 zeigt ein typisches Harmonischenspektrum, in diesem Fall bei Anregung mit Nanosekundenpulsen bei einer Wellenlänge von 1064 nm [FLL 88]. Abb. 2.2 zeigt ein Prinzipdiagramm für die Harmonischenerzeugung bei Anregung mit zwei unterschiedlichen Eingangswellenlängen unter der Voraussetzung gleicher Pumpintensität.

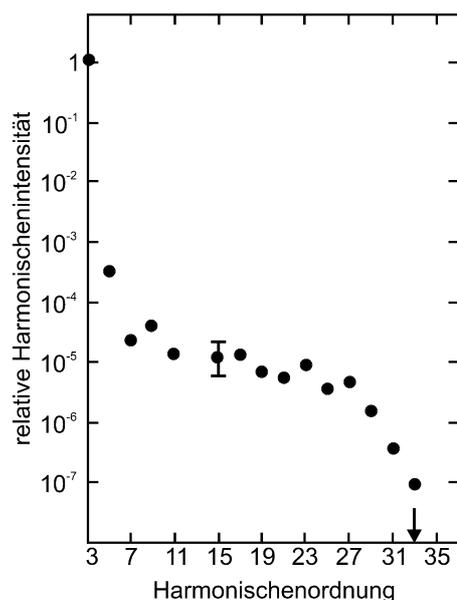


Abb. 2.1: Typisches Harmonischenspektrum mit Plateaustruktur bei der Grundwelle 1064 nm [FLL 88].

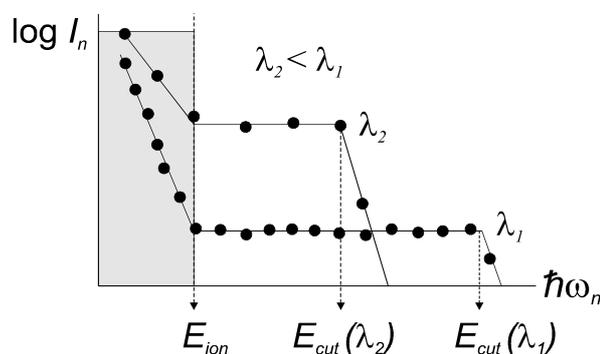


Abb. 2.2: Prinzipdiagramm eines Harmonischenspektrums für zwei unterschiedliche Eingangswellenlängen gleicher Pumpintensität.

Der Gesamtverlauf des Harmonischenspektrums ist nicht mit der klassischen Störungstheorie zu erfassen. Drei Regionen lassen sich allerdings unterscheiden [LBI 94]: Zunächst fällt die Intensität in niedriger Harmonischenordnung um mehrere Größenordnungen exponentiell ab (in Abb. 2.2 grau unterlegt). Dieser Bereich, in dem die treibende elektrische Feldstärke klein gegenüber der inneratomaren Feldstärke ist, lässt sich im Allgemeinen hinreichend störungstheoretisch behandeln. Er erstreckt sich über die Ordnungen, deren Strahlung eine Photonenenergie unterhalb der Ionisationsenergie des Mediums aufweist. Somit wird die maximale Harmonischenordnung dieses Bereichs durch das Medium und die verwendete Eingangswellenlänge festgelegt. Der Vergleich der Spektren beider Eingangswellenlängen zeigt, dass die Effizienzen für die kürzere Wellenlänge größer sind. Dieses Verhalten lässt sich verstehen, da dieser Spektralbereich mit kürzerer Pumpwellenlänge in kleinerer Ordnung erfasst wird und die nichtlineare Suszeptibilität als Maß für die Wechselwirkung im Allgemeinen stark mit der Ordnung abfällt.

Für Photonenenergien der Harmonischenstrahlung oberhalb der Ionisationsenergie liegen die beobachteten Effizienzen deutlich niedriger, bleiben aber mit Werten im Bereich von  $10^{-4} - 10^{-6}$  im sogenannten Plateaubereich nahezu konstant. Die Konversion wird vor allem durch die einsetzende Ionisation des Mediums und starke Reabsorption der generierten Strahlung limitiert. Auch in diesem Bereich gilt, dass für kürzerwellige Primärstrahlung insgesamt höhere Werte zu erwarten sind. Zudem ist die zu Grunde liegende Physik nicht mehr anhand der Störungstheorie zu erfassen, nach der sich der exponentielle Abfall der Intensitäten mit der Ordnung fortsetzen sollte [Rei 84].

Das Plateau erstreckt sich bis zur sogenannten *cut-off-Frequenz*, oberhalb derer wiederum ein starker exponentieller Abfall der Intensitäten beobachtet wird, der schließlich die maximale Harmonischenordnung definiert. Die Breite des Plateaus bestimmt auf diese Weise die kürzeste erreichbare Wellenlänge. Die zur *cut-off-Frequenz* zugehörige Photonenenergie  $E_{cut}$  ist gegeben durch:

$$E_{cut} = E_{ion} + \alpha \cdot U_P, \quad (2.1)$$

$$U_P = \frac{e^2}{8\pi \cdot m_e c^3 \epsilon_0} I_P \lambda_P^2. \quad (2.2)$$

Mit  $I_P$ : Pumpintensität,  $\lambda_P$ : Pumpwellenlänge,  $E_{ion}$ : Ionisationsenergie des Mediums,  $m_e$ ,  $e$ : Elektronenmasse und -ladung,  $\epsilon_0$ : dielektrische Konstante,  $c$ : Lichtgeschwindigkeit.

Wird ein einfaches theoretisches Modell [Cor 93, LBI 94] zu Grunde gelegt, nimmt der Faktor  $\alpha$  in (2.1) den theoretischen Wert 3.17 an, experimentell werden dagegen Werte im Bereich von 2–3 erzielt. Eine detaillierte Ausführung des Modells findet sich beispielsweise in [LLL 90, LLM 92].  $U_P$  bezeichnet das ponderomotive Potential, das der mittleren kinetischen Energie der Oszillationsbewegung eines freien Elektrons im Laserfeld entspricht. Es führt zu einer Anhebung aller Energieniveaus im nichtlinearen Medium relativ zum Grundzustand und zeigt eine Abhängigkeit von dem Produkt aus

Pumpintensität und dem Quadrat der Pumpwellenlänge  $I_P \lambda_P^2$ . Entsprechend ist die höchste Ordnung des Plateaubereichs abhängig von der Intensität und Wellenlänge des eingestrahnten Laserfeldes und über die Ionisationsenergie vom nichtlinearen Medium.

Die genaue Betrachtung der Gleichungen (2.1) und (2.2) lässt für die Erzeugung von Harmonischenstrahlung folgende Strategien sinnvoll erscheinen. Die *cut-off-Frequenz* verschiebt sich über die Primärwellenlänge und die Pumpintensität in Richtung kürzerer Harmonischenwellenlängen. Zur Erzeugung höchster Ordnungen bzw. von Strahlung mit sehr kurzer Wellenlänge erscheint es ohne Betonung hoher Energieausbeute daher günstig, hohe Ordnungen durch den Einsatz langwelliger Primärstrahlung und höchster Pumpintensitäten sowie durch ein Medium mit hoher Ionisationsenergie zu erzeugen. Entsprechend dem Stand der aktuellen Lasertechnologie konnte die maximal beobachtete Ordnung bzw. kürzeste Wellenlänge sukzessive verschoben werden. Während 1977 mit CO<sub>2</sub>-Lasern mit Nanosekundenpulsdauer die 11.te Harmonische beobachtet wurde [BBR 77], konnte einige Jahre später bereits mit gleichem Laser, aber mit Pikosekundenpulsdauer die 46.te Ordnung registriert werden [CRB 81]. Mit dem Einsatz von Femtosekunden und Ti:Sa- bzw. KrF-Lasersystemen erfuhr die Erzeugung von hohen Harmonischen erneuten Aufschwung, beobachtet wurde nun Strahlung bis zur 109.ten Ordnung [MKG 93]. Die bislang höchste, diskrete Ordnung mit 297 konnte mit einem Ti:Sa-Laser bei einer Wellenlänge von 2.7 nm für eine Pumpimpulsdauer von 26 fs und einer Pumpintensität von  $6 \cdot 10^{15} \text{ Wcm}^{-2}$  in Helium demonstriert werden [CRW 97]. Unter Verwendung von extrem kurzen Pulsen mit Pulsdauer von wenigen fs konnte kontinuierliche kohärente Strahlung mit Energien bis zu 0.5 keV bzw. Wellenlängen unterhalb von 2.5 nm nachgewiesen werden [SSW 98]. Für ein KrF-System beträgt die kürzeste erreichte Wellenlänge 6.7 nm (37.te Ordnung), gemessen ebenfalls in Helium [PSZ 96]. Besonderes Interesse besteht hier aufgrund der hohen optischen Transparenz des Wassers vor allem für den Wellenlängenbereich von 2.4 – 4.8 nm, dem sogenannten Wasserfenster [Gib 96].

Zur Erzeugung höchster Effizienzen ist es dagegen vorteilhaft, in dem in der Abb. 2.2 grau unterlegtem Bereich, dem *perturbative regime*, zu arbeiten und niedrige Konversionsordnungen zu betrachten [WME 96]. Die Kombination aus Primärwellenlänge und Medium sollte im Idealfall so gewählt sein, dass die erzeugte Strahlung in niedrigster Ordnung gerade unterhalb der Ionisationsenergie des Mediums liegt, um Reabsorption zu vermeiden [CGB 99, MCW 00]. Daher ist auch hier die Verwendung von leichten Atomen mit hohem Ionisationspotential günstiger. Des Weiteren lassen sich die Effizienzen durch die Ausnutzung naher Resonanzübergänge signifikant steigern. Einerseits führen sie zu einer Erhöhung der nichtlinearen Suszeptibilität, andererseits können sie jedoch auch dazu beitragen, die erzeugte Strahlung effizienzmindern zu reabsorbieren [HOM 97, CGB 99, MVW 00]. Die Konversionseffizienz ist in diesem Spektralbereich grundsätzlich durch die Zerstörung des Mediums durch einsetzende Ionisation begrenzt. Diese zeigt ihrerseits eine Abhängigkeit von der Pulsdauer in der Weise, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit durch Tunnel- bzw. Multiphotonenprozesse mit abnehmender Pulsdauer reduziert und

folglich das Medium erst für höhere Intensitäten ionisiert wird. Untersuchungen mit Nanosekundenpulsdauern zeigen typische Spitzenleistungen der generierten Strahlung im kW-Bereich und Konversionseffizienzen um  $10^{-4} - 10^{-6}$  [EHB 80, CGB 99, MCW 00]. Mit der Verkürzung der Pulsdauer in den Subpikosekundenbereich hinein sind deutlich höhere Effizienzen zu erwarten. Dies belegen die im Rahmen dieser Arbeit und in Vorarbeiten geleisteten Untersuchungen und Experimente zur Analyse der 5.ten Harmonischen von Yoshitomi et al. [WCS 99, YSS 02, DRS 02, SBD 02].

## 2.4 Erzeugung der 3.ten Harmonischen von KrF-Laserstrahlung in Argon

Ausgehend von der Primärstrahlung des KrF-Lasers bei einer Wellenlänge von 248.5 nm führt der Prozess der Frequenzverdreifachung  $3\omega_{KrF} = \omega_{82.8}$  zu kohärenter Strahlungsemission bei einer Wellenlänge von 82.8 nm. Die Wahl eines geeigneten nichtlinearen Mediums sollte verschiedene, die Frequenzkonversion beeinflussende Aspekte berücksichtigen. Hierzu gehören die Ionisationsenergie des Mediums, die nichtlineare Suszeptibilität bzw. die statische Polarisation  $\alpha_{stat}$  als ein Maß für die nichtlineare Antwort des Mediums sowie die Ausnutzung von Resonanzen.

Transparenz im Wellenlängenbereich der Primärstrahlung wie auch der erzeugten Strahlung ist Voraussetzung. Im Allgemeinen erfüllen nur noch die Edelgase diese Bedingung im VUV- und XUV-Spektralbereich hinreichend. Tab. 2.1 und Abb. 2.3 geben eine Übersicht über die Ionisationsenergie  $E_{ion}$ , die statische Polarisation  $\alpha_{stat}$ , die maximale KrF-Harmonischenordnung  $n_{max}$  ohne Ionisation des Gases sowie über die Energieniveauschemata der Edelgase.

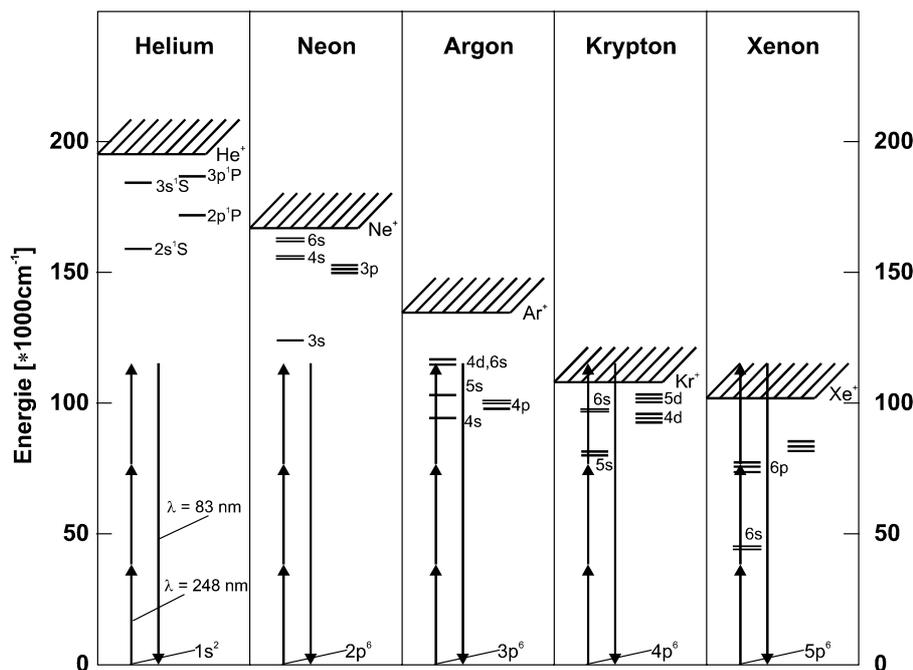


Abb. 2.3: Vereinfachte Energieniveauschemata der Edelgase [Moo 71].

Medium	He	Ne	Ar	Kr	Xe
$E_{ion}$ [eV]	24.580	21.559	15.759	13.996	12.127
$\alpha_{stat}$ [ $10^{-24}$ cm <sup>3</sup> ]	0.205	0.396	1.641	2.484	4.044
$n_{max}$	3	3	3	1	1

Tab. 2.1: Ionisationsenergien  $E_{ion}$ , statische Polarisierung  $\alpha_{stat}$  und die maximale Harmonischenordnung  $n_{max}$  unterhalb der Ionisationsschwelle für die Edelgase [WLA 89].

Der Plateaubereich im Harmonischenspektrum beginnt ab den Photonenenergien, die oberhalb der Ionisationsenergie des Mediums liegen. Um diesen Bereich hoher Konversionseffizienz nicht zu verlassen, sollten daher vorrangig leichte Gase verwendet werden. Obwohl die 3.te Harmonische der niedrigsten nichtlinearen Ordnung entspricht, liegen die zugehörigen Photonenenergien ausgehend von Pumpstrahlung der Wellenlänge von 248.5 nm für die Gase Krypton und Xenon bereits oberhalb dieser Grenze. Für die leichteren Edelgase kann von der Ionisation und einer Reabsorption der generierten 3.ten Harmonischenstrahlung abgesehen werden. Dies gilt im Speziellen auch für Argon, dessen Ionisationsenergie um 0.792 eV oberhalb der verdreifachten KrF-Photonenenergien von 14.967 eV liegt. Hier kann im Weiteren ein Transmissionskoeffizient von 1 angenommen werden [CXRO]. Entsprechend ergeben sich die in Tab. 2.1 aufgeführten maximalen Harmonischenordnungen  $n_{max}$ , deren Photonenenergie unterhalb der jeweiligen Ionisationsschwelle liegen. Demzufolge ist es nicht möglich, Strahlung der 5.ten Harmonischen bei 49.7 nm ohne zusätzliche Verluste durch Reabsorption zu erzeugen.

Die Werte der statischen Polarisierung legen im Gegensatz zur vorherigen Betrachtung nahe, schwere Gase einzusetzen. Ein guter Kompromiss ergibt sich unter Verwendung von Argon als nichtlineares Medium. In Argon existieren mehrere Energieniveaus in der Nähe der Wellenlänge der 3.ten Harmonischen des KrF-Lasers bei 82.8 nm, siehe Abb. 2.4. In Tab. 2.2 sind sämtliche Übergänge im Wellenlängenbereich von 80 – 90 nm mit einigen spezifischen Daten dargestellt [CXRO, NIST, LeL 73, CCG 92, NKM 92]. Die Resonanzen wirken sich in der Nähe der Resonanzwellenlängen signifikant auf die Dispersion des Mediums aus. Vorteilhaft sind die Resonanzen, die energetisch unterhalb der Photonenenergie der generierten Strahlung liegen und bei denen für die beteiligten Wellenlängen negative dispersive Phasenfehlanspassung vorliegt. Diese kann zur Erfüllung der Phasenanspassung durch einen positiven Beitrag der entstehenden Elektronen mit Hilfe einer gewissen Teilionisation ausgeglichen werden [MCW 00, MCW 00b, Mey 00]. Das der Photonenenergie der 3.ten Harmonischen am nächsten liegende Energieniveau  $3s^2 3p^5 (^2P^{\circ}_{1/2}) 4d'$  (15.005 eV) liegt 0.038 eV unterhalb des virtuellen  $3\omega_{KrF}$ -Niveaus. Bei geeigneter Ausnutzung der Resonanz darf erwartet werden, dass abweichend von der statischen Polarisierung eine erhöhte nichtlineare Suszeptibilität zu einer erhöhten Konversionseffizienz führt, was für die vorliegenden Parameter experimentell bereits bestätigt worden ist [WME 96].