

In jedem Kubikzentimeter eines Festkörpers befinden sich etwa 10^{23} Elektronen, deren gegenseitige Wechselwirkungen optische, elektronische, thermische und mechanische Eigenschaften eines Materials definieren. Sie zu entschlüsseln ist daher ein zentrales Ziel in der Festkörperphysik. In dieser Arbeit wird sogenannte Attosekundenchronoskopie entwickelt, um Millielektronenvolt-Energieselektivität und Attosekunden-Präzision ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) zu kombinieren. Damit gelingt es, niederenergetische Korrelationen direkt in der Zeitdomäne anhand der Dynamik von Bloch-Elektronen zu untersuchen. Hierzu regt ein resonanter, nah-infraroter Lichtimpuls kohärente Elektron-Loch-Paare an, während ein hochintensives, mittelinfrarotes Lichtfeld sie kollidiert. Das führt zur Emission von Seitenbändern hoher Ordnung.

Werden diese Kollisionspfade mit einer Präzision von 300 as vermessen, so können Vielteilchen-Korrelationen aufgelöst werden. Die unterschiedlich starke Coulomb-Interaktion in einem Volumenkristall und einer Monolage Wolframdiselenid führt zu einer Änderung der Ladungsträgerdynamik um $1,2 \pm 0,3 \text{ fs}$. Darüber hinaus schlagen sich auch die Treiberfeldstärke und Quantenattribute wie der Grad der Valley-Polarisation in der Kollisionsdynamik nieder. Eine voll quantenmechanische Beschreibung der Bewegung der Elektron-Loch-Paare reproduziert die experimentellen Ergebnisse quantitativ und zeigt, wie Coulomb-Korrelationen die Dynamik von Bloch-Elektronen prägen.

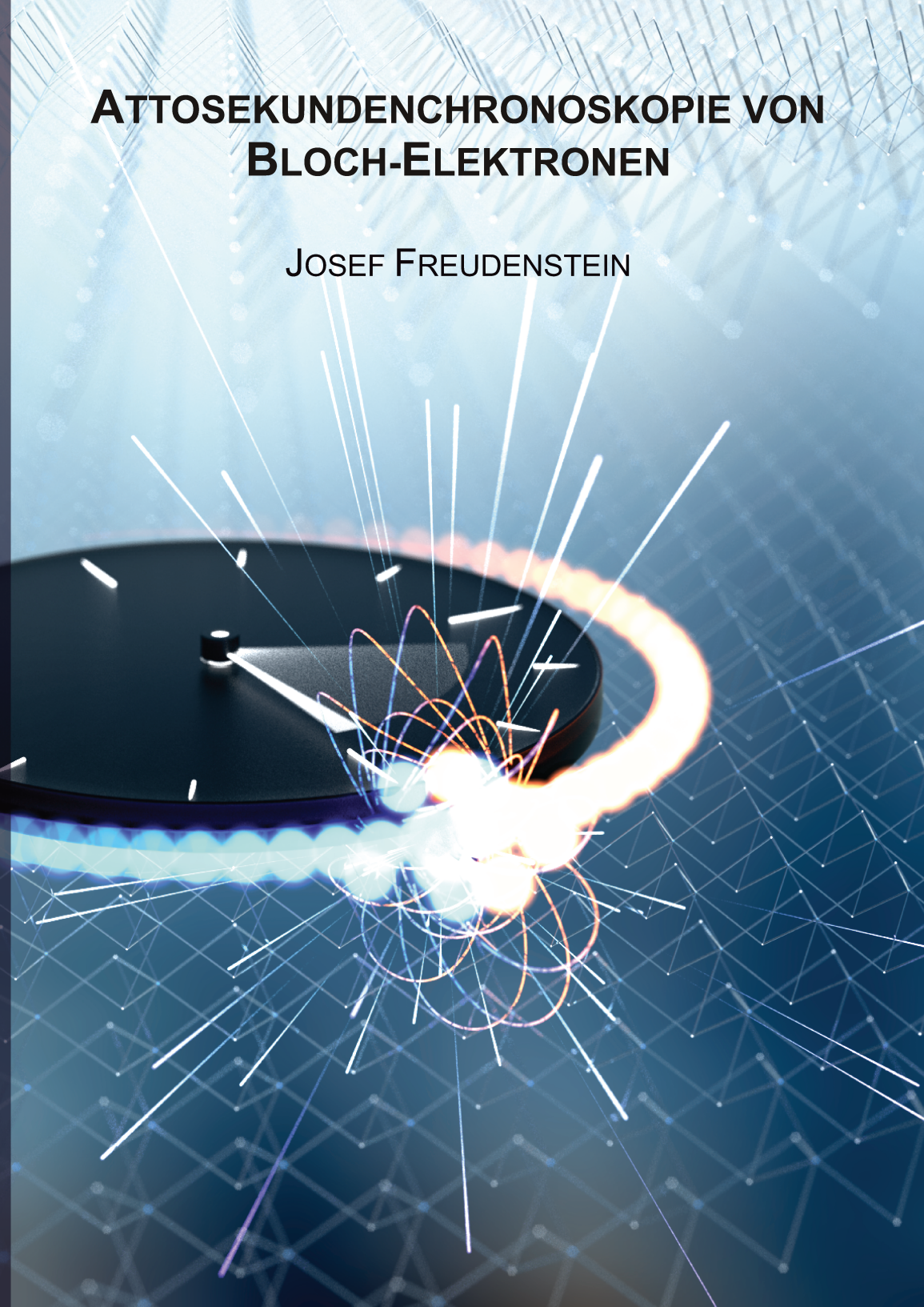
Vielteilchen-Interaktionen äußern sich nicht nur als Coulomb-Anziehung innerhalb eines Elektron-Loch-Paares, sondern können ebenso Phasenübergänge treiben. Erste Experimente an Wolframdite tellurid zeigen, dass Attosekundenchronoskopie auch an Halbmatalen durchgeführt werden kann. Damit steht ein neues Werkzeug zur Untersuchung von Phasenübergängen in verschiedensten Materialien zur Verfügung. Außerdem beschleunigt das hochintensive Lichtfeld Ladungsträger vollständig ballistisch durch einen Festkörper, was die Tür zu einer Welt voller kohärenter Quantenphänomene öffnet.

ATTOSEKUNDENCHRONOSKOPIE VON BLOCH-ELEKTRONEN

JOSEF FREUDENSTEIN

Josef Freudenstein

Attosekundenchronoskopie von Bloch-Elektronen



Titelabbildung:

Elektron-Loch-Paare (blaue und orange Kugeln) in einem Kristall (Gitter im Hintergrund) werden zur Kollision gebracht, wodurch Licht emittiert wird. Indem dieser Prozess präzise zeitlich vermessen wird (veranschaulicht durch die Stoppuhr), können Vielteilchen-Korrelationen (blaue und rote Feldlinien) untersucht werden.

© Brad Baxley - www.parttowhole.com

Attosekundenchronoskopie von Bloch-Elektronen



DISSERTATION
ZUR ERLANGUNG DES DOKTORGRADES DER NATURWISSENSCHAFTEN
(DR. RER. NAT.)
DER FAKULTÄT FÜR PHYSIK DER UNIVERSITÄT REGENSBURG

vorgelegt von
JOSEF FREUDENSTEIN
aus Malching
im Jahr 2025

Das Promotionsgesuch wurde eingereicht am: 14.01.2025.

Die Arbeit wurde angeleitet von: Prof. Dr. Rupert Huber.

Prüfungsausschuss:	Vorsitzender:	Prof. Dr. Christoph Lehner
	1. Gutachter:	Prof. Dr. Rupert Huber
	2. Gutachter:	Prof. Dr. Christian Schüller
	weiterer Prüfer:	Prof. Dr. Jörg Wunderlich

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Starkfeldkontrolle von Ladungsträgern	7
2.1. Licht-Materie-Wechselwirkung in der Störungstheorie	7
2.2. Erzeugung Hoher Harmonischer	8
2.3. Seitenbänder hoher Ordnung	15
3. Vielteilchen-Korrelationen in WSe₂	21
3.1. Kristall- und Bandstruktur von WSe ₂	22
3.2. Spin-Tal-Kopplung	25
3.3. Gebundene Elektron-Loch-Paare	28
4. Atomar starke Felder mit Attosekunden-Stabilität	31
4.1. Optisch parametrischer Verstärker	32
4.2. Intensive, phasenstarre Multi-THz-Felder	35
4.3. Ultrakurze NIR-Impulse	38
4.4. Kontrolle der Ladungsträgerdynamik mit Attosekunden-Präzision . .	41
5. Attosekunden-Stoppuhr für Kristalle	49
5.1. Attosekundenchronoskopie von Bloch-Elektronen	50
5.2. Vermessen von Coulomb-Korrelationen	59
5.3. Dynamische Dephasierungszeiten	71
5.4. Externes Feld versus Coulomb-Anziehung	76
5.5. Spin-Tal-Kopplung und Pauli-Verbot	83

6. Ausblick: Elektronendynamik bei Phasenübergängen	89
6.1. Attosekundenchronoskopie von Phasenübergängen	89
6.2. HSG in Halbmetallen	92
6.3. Dynamik von Floquet-Bloch-Zuständen in topologischen Isolatoren . .	94
7. Zusammenfassung und Ausblick	101
Anhang	105
A. Erreichbare zeitliche Präzision der NIR-Impulse	105
B. Elektrostatische Abschirmung im WSe₂-Volumenkristall	107
C. Publikationen	109
Literaturverzeichnis	115
Danksagung	135

Einleitung

Now I know what the atom looks like.

— Ernest Rutherford

Als Ernest Rutherford 1911 untersuchte, wie α -Teilchen an einer dünnen Goldfolie gestreut werden, war er von seinen eigenen Messergebnissen so überrascht, dass er sie damit verglich, als ob er ein 15-Zoll-Geschoss auf ein Taschentuch geschossen hätte, es zurückkäme und einen selbst träfe [Jam95]. Nach dem bis dato anerkannten Thomsonschen Atommodell würden die Goldatome der Folie aus einem positiv geladenen, masselosen Hintergrund bestehen, der von vielen leichten Elektronen durchsetzt ist. Demnach sollten die α -Teilchen kaum durch Stöße mit den Atomen der Goldfolie abgelenkt werden. Tatsächlich streuen aber einige α -Teilchen unter großen Winkeln und eines aus 8000 wird sogar reflektiert [Rut11]. Rutherford schlussfolgerte, dass es einen sehr kleinen, positiv geladenen Atomkern sowie eine sehr leichte Elektronenhülle im Atom geben müsse.

Basierend auf solchen Kollisionsexperimenten entschlüsseln heutzutage gigantische Teilchenbeschleuniger wie der Große Hadronen-Speicherring (englisch: *Large Hadron Collider*, kurz: LHC) am CERN die Eigenschaften von Elementarteilchen immer genauer. Damit offenbart sich nicht nur die komplexe innere Struktur der Bausteine des Universums, sondern es werden auch fundamentale Naturgesetze getestet. Diese Ergebnisse verfeinern immer weiter das Standardmodell der Teilchenphysik, dessen Vorhersage für das anomale magnetische Dipolmoment des Elek-

trons mittlerweile bis auf einen Faktor 10^{-13} mit Kollisionsexperimenten übereinstimmt [Odo06, Wya07, But16]. Ein wegweisendes Experiment gelang 2012, als mit dem LHC das Higgs-Boson nach einer fast 50 Jahre andauernden Suche gefunden werden konnte. Ein Jahr darauf wurde dafür der Nobelpreis für Physik verliehen [Eng64, Hig64, ATL12]. Kollisionsexperimente und Teilchenbeschleuniger sind also nicht mehr aus der Teilchenphysik wegzudenken.

Das Standardmodell der Teilchenphysik reduziert Materie auf verblüffend wenige verschiedene Elementarteilchen. Und obwohl alle Elemente des Periodensystems letztendlich aus den gleichen Bausteinen bestehen, unterscheiden sie sich grundlegend in ihren Eigenschaften. Ordnen sich einzelne Atome in einem periodischen Gitter an, entstehen wiederum kristalline Festkörper, die beispielsweise überhaupt erst moderne Informationstechnologien ermöglichen und somit nicht mehr aus dem Alltag wegzudenken sind. Jeder Kubikzentimeter eines Festkörpers enthält in etwa 10^{23} Elektronen, die untereinander wechselwirken. Deshalb spielen Vielteilchen-Wechselwirkungen eine zentrale Rolle und definieren mechanische, thermische, elektronische und optische Eigenschaften eines Festkörpers [Bas11, Spe21, Sca21].

Die vielfältige Art und Weise, wie Ladungsträger in einem Kristall interagieren können, bringt völlig neue Effekte wie beispielsweise Ladungsdichtewellen [Car96, Nie22], Wigner-Kristalle [Wig34, Zho21] oder Supraleitung hervor [Lee06, Kei15, Cao18b], um nur wenige zu nennen. Das verdeutlicht, welche Fülle an physikalischen Phänomenen die Wechselwirkungen zwischen Teilchen nach sich ziehen. Um einen Festkörper in seiner Gesamtheit zu beschreiben, müssen sowohl alle Elektronen als auch deren Wechselwirkungen berücksichtigt werden. Eine Möglichkeit, diese Aufgabe zu lösen, besteht darin, ein Teilchen mitsamt seiner Wechselwirkungen als ein neues fiktives *Quasiteilchen* zu beschreiben [Lan57]. Interaktionen äußern sich dabei in modifizierten Eigenschaften des Quasiteilchens wie deren Masse, Ladung oder Spin. Da Wechselwirkungen bereits in der Beschaffenheit von Quasiteilchen berücksichtigt sind, können einzelne Quasiteilchen als unabhängig voneinander betrachtet werden. Beispiele für Quasiteilchen reichen von Bogoliubov-Quasiteilchen in Supraleitern [Bar57, Bee14] über Phononen in einem Kristallgitter [Afa21] bis hin zu Plasmonen als kollektive Ladungsträgersdynamik [Hub01].

Ein prominentes Quasiteilchen in Halbleitern kann auftreten, wenn ein Elektron aus dem Valenzband ins Leitungsband angeregt wird und eine Leerstelle im Valenzband

zurückbleibt. Das angeregte Elektron wechselwirkt dann mit allen anderen Elektronen im Valenzband gerade so, als befände sich an der Leerstelle ein hypothetisches, positiv geladenes Teilchen, ein sogenanntes *Loch*. Genau wie ein Elektron und ein Atomkern können auch das angeregte, negativ geladene Elektron im Leitungsband und das positiv geladene Loch im Valenzband einen gebundenen Zustand bilden [Che01]. Das resultierende, wasserstoffähnliche Quasiteilchen wird *Exziton* genannt. Ist seine Bindungsenergie hoch genug, dominiert es als niederenergetische Resonanz das Absorptionsspektrum von Halbleitern und führt unter anderem zu einer effektiven Absenkung der Bandlücke, da gebundene Exzitonen auch unterhalb der Ein-Teilchen-Bandlücke angeregt werden können [Che01, Wan18].

Ein Materialsystem, in dem Exzitonen eine besondere Rolle spielen, sind Übergangsmetallchalkogenide. Diese Quantenmaterialien zeichnen sich insbesondere dadurch aus, dass sie aus einzelnen Atomschichten aufgebaut sind, die lediglich durch schwache van-der-Waals-Kräfte zusammengehalten werden. Deshalb können aus ihnen atomar dünne Monolagen hergestellt werden. Die reduzierte Dimensionalität der Kristalle schränkt auch die Struktur von Quasiteilchen ein und beeinflusst damit die Stärke von Vielteilchen-Wechselwirkungen. Unter anderem steigt die exzitonische Bindungsenergie in einem atomar dünnen Kristall eines Übergangsmetallchalkogenids stark an [Che14]. Auch darüber hinaus bieten Monolagen dieser Materialklasse interessante elektronische Eigenschaften wie die Spin-Tal-Kopplung [Sch16].

Korrelationen bestimmen fundamentale Eigenschaften von Materialien, weshalb es auch ein zentrales Ziel der Festkörperphysik ist, sie genauer zu untersuchen. Um Korrelationen in einem Festkörper besser zu verstehen, könnten in Analogie zur Teilchenphysik Kollisionsexperimente mit Quasiteilchen durchgeführt werden. Allerdings können Quasiteilchen wie Exzitonen aufgrund ultraschneller Wechselwirkungen in Festkörpern meist nur innerhalb von Femtosekunden ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) nach ihrer Anregung untersucht werden, ehe sie wieder zerfallen [Poe15]. Sie müssten also auf einer ultraschnellen Zeitskala angeregt, beschleunigt und kollidiert werden.

Dazu werden elektrische Wechselfelder benötigt, die schneller oszillieren als Quasiteilchen dephasieren. Herkömmlich erzeugte elektrische Felder mit maximalen Frequenzen von wenigen hundert Gigahertz reichen dafür bei weitem nicht aus [Cha04]. Ein Quasiteilchenbeschleuniger kann daher nicht durch Verbesserung bestehender Technologie realisiert werden, sondern erfordert ganz neue Konzepte.

Die schnellsten Wechselfelder der Natur, die der Mensch nutzt, finden sich in elektromagnetischen Wellen in Form von Licht. Sie können leicht Frequenzen von mehreren hundert Terahertz erreichen. Das intensive elektrische Trägerfeld von Licht kann dabei im Rahmen der *Lichtwellenelektronik* als ultraschnelle Vorspannung genutzt werden [Bor23, Kir25]. In atomaren Gasen hat sich die Verwendung hochintensiver Lichtfelder etabliert, um Kollisionen von Ladungsträgern herbeizuführen. Hier werden die Atome durch das Lichtfeld zuerst ionisiert und anschließend das Elektron hin und her beschleunigt, sodass es mit großer kinetischer Energie wieder mit dem Ion zusammenstößt [Cor93, Lew94]. Die dabei frei werdende Energie wird als Lichtblitz mit einer Impulsdauer weniger Attosekunden ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) emittiert. Auf diesem Umstand baut das Forschungsfeld der *Attosekundenphysik* auf [Cor07, Kra09]. 2023 wurde drei Pionieren in diesem Gebiet, *Pierre Agostini*, *Anne L’Huillier* und *Ferenc Krausz* der Nobelpreis in Physik zuerkannt [L’H93, Pau01, Hen01].

Um Quasiteilchen zu erzeugen, eignen sich besonders Anregungsenergien im Millielektronenvolt-Bereich. Die Photonenenergie von typischen Attosekunden-Impulsen liegt allerdings oberhalb von 10 eV und passt damit nicht zur charakteristischen Energieskala von Quasiteilchen und Korrelationen [Kam13, Dhi17]. Der Terahertz-Spektralbereich (THz, 1-100 THz) umfasst dagegen den für Quasiteilchen relevanten Energiebereich, in dem mit modernen Lasersystemen phasenstarre und atomar starke Lichtfelder mit Spitzenfeldstärken bis zu 1 V \AA^{-1} bereitgestellt werden können [Sel08, Sch14a]. Lichtimpulse mit einer Frequenz von wenigen Terahertz eignen sich daher bestens, um korrelationsbasierte Phänomene in Festkörpern zu untersuchen und Ladungsträger weit in der Bandstruktur auszulernen [Sch14a, Lan16, Liu17, Lan17, Yos17, Haf18, Bor20, Sch21]. Insbesondere konnten mit hochintensiven Multi-THz-Impulsen Quasiteilchen in Festkörpern innerhalb weniger Mikrometer und Femtosekunden kollidiert werden [Lan16, Lan18].

Die Oszillationsdauer von Lichtfeldern im Multi-THz-Spektralbereich ist mit einigen zehn Femtosekunden in der gleichen Größenordnung wie die typische Lebensdauer von Exzitonen [Poe15]. Deshalb müssen kohärente Experimente an Quasiteilchen innerhalb einer einzigen Schwingung von Licht durchgeführt werden. Diese Zeitspanne reicht dabei bereits aus, um dynamische Blochoszillationen [Gol08, Ghi11, Gol11, Sch14a] und quantenmechanische Interferenzeffekte [Hoh15, Gar16, Azo19], durch die Floquet-Bloch-Zustände entstehen können [Wan13, McI20, Zho23], zu be-

obachten. Darüber hinaus führt die ultraschnelle Beschleunigung von Lichtwellengetriebenen Ladungsträgern zur Erzeugung Hoher Harmonischer [Ghi11, Sch14a, Lan17, Liu17, Yos17, Haf18, Sch21] und von Seitenbändern hoher Ordnung [Chi01, Zak12, Lan16, Bor20, Cos21]. Die genaue Subzyklendynamik von Ladungsträgern in Festkörpern wird dabei von vielen Materialeigenschaften beeinflusst, die sich in der emittierten Strahlung widerspiegeln. Dadurch ermöglicht Starkfeldbeschleunigung einen Blick auf Symmetrien [Lan17, Nag20] und Nichtlinearitäten [Haf18, Sch21] von Festkörpern. Zudem können mittels der emittierten Strahlung sogar die Bandstruktur [Vam15, Bor20] und die Wellenfunktion von Bloch-Elektronen [Cos21] sowie Quanteneigenschaften wie der Valley-Pseudospin [Lan18] oder die Berry-Krümmung [Ban17, Luu18, Sch21, UN24] von Kristallen rekonstruiert werden.

Insgesamt steht mit der Lichtwellen-Beschleunigung von Ladungsträgern ein mächtiges Werkzeug zur völlig kontaktfreien Charakterisierung von Quantenmaterialien zur Verfügung. Allerdings war es bisher nicht möglich, auch den Einfluss von Korrelationen auf die Subzyklendynamik von Bloch-Elektronen in einem Festkörper direkt in der Zeitdomäne nachzuweisen. Hier besteht die Herausforderung, die Brücke zwischen der Attosekunden-Zeitskala und dem Millielektronenvolt-Energiebereich zu schlagen: Während Bloch-Elektronen und ihre gegenseitigen Wechselwirkungen vor allem bei niedrigen Energien nahe der Fermi-Kante auftreten, wird ihre Subzyklendynamik in der Starkfeldphysik in erster Näherung durch die Ein-Teilchen-Bandstruktur vorgeschrieben. Änderungen in der Dynamik aufgrund von Korrelationen äußern sich erst auf der viel schnelleren Attosekunden-Zeitskala, die aber eigentlich mit viel höheren Energien einhergeht. Attosekunden-Präzision und Millielektronenvolt-Energieselektivität scheinen daher grundlegend voneinander entkoppelt und experimentell nur schwer vereinbar zu sein.

Diese beiden Energie- und Zeitskalen werden in dieser Arbeit kombiniert, um zum ersten Mal den Einfluss von Korrelationen auf die Trajektorien von Bloch-Elektronen direkt in der Zeitdomäne nachzuweisen. Dazu beschleunigen intensive Lichtfelder Ladungsträger periodisch hin und her, was zur Emission von Seitenbändern hoher Ordnung führt. Eine präzise zeitliche Vermessung dieser Strahlung erlaubt Rückschlüsse auf die Korrelationen im Festkörper. In diesem Rahmen gibt *Kapitel 2* eine Einführung in Licht-Materie-Wechselwirkung. Insbesondere wird das Prinzip der Erzeugung von Seitenbändern hoher Ordnung mikroskopisch erläutert.

Quantenmaterialien wie Übergangsmetalldichalkogenide eignen sich hervorragend für die Untersuchung von Korrelationen zwischen Ladungsträgern, vor allem aufgrund der hohen exzitonischen Bindungsenergie und der Möglichkeit, diese in atomar dünnen Kristallen um ein Vielfaches zu steigern. Aus diesem Grund wird in dieser Arbeit der Halbleiter Wolframdiselenid (WSe_2) sowohl als Volumenkristall als auch als Monolage verwendet. *Kapitel 3* behandelt die kristallographischen sowie elektronischen Eigenschaften dieses Materials.

Die Beschreibung des in dieser Arbeit verwendeten optischen Messaufbaus findet sich in *Kapitel 4*. Ein ultrakurzer resonanter Anregeimpuls aus einem Weißlichtkontinuum erzeugt im Festkörper kohärente Ladungsträgerpaare, die anschließend durch intensive Multi-THz-Lichtfelder beschleunigt werden. Um die nötige zeitliche Präzision zu erreichen, korrigiert eine interferometrische Stabilisierung langsame Veränderungen der Träger-Einhüllenden-Phase der ohnehin schon passiv phasenstarren Multi-THz-Impulse [Mei23b].

Kapitel 5 präsentiert das Konzept der Attosekundenchronoskopie, mit der Korrelationen in einem Festkörper vermessen werden können [Fre22]. Dazu wird der Injektionszeitpunkt von kohärenten Exzitonen bestimmt, der zu optimalen Elektron-Loch-Kollisionen und damit einhergehend zur stärksten Emission von Seitenbändern hoher Ordnung führt. Durch eine umfassende Datenanalyse kann der beste Injektionszeitpunkt mit Attosekunden-Präzision bestimmt werden. Damit werden Signaturen von Coulomb-Korrelationen in der Dynamik von Elektron-Loch-Paaren sichtbar. Weiterhin wird systematisch der Einfluss von Streuprozessen sowie der Trägerfeldstärke auf die Dynamik der Ladungsträger untersucht und durch quantenmechanische Berechnungen sowie ein klassisches Modell verifiziert. Zuletzt werden noch Auswirkungen des Valley-Pseudospins auf die Emission von Seitenbändern hoher Ordnung dargestellt.

Attosekundenchronoskopie birgt enormes Potential, um in Zukunft auch Phasenübergänge zu studieren, was *Kapitel 6* behandelt. Dass bei der Beschleunigung von Ladungsträgern mit intensiven Lichtwellen ihre Phaseninformation bewahrt wird, öffnet dabei auch die Tür zu kohärenten Phänomenen wie der Ausbildung von Floquet-Bloch-Zuständen [Ito23].

Zuletzt fasst *Kapitel 7* die Ergebnisse dieser Arbeit zusammen.

Starkfeldkontrolle von Ladungsträgern

Das Ziel von Lichtwellenelektronik besteht in der Kontrolle von Ladungsträgern mittels elektromagnetischer Wellen. Dabei üben sowohl die elektrische als auch die magnetische Feldkomponente von Licht eine Kraft auf Ladungsträger aus. Das magnetische Feld entfaltet jedoch eine etwa um die Größe der Feinstrukturkonstante geringere Wirkung auf freie Elektronen. Deshalb kann gerade bei sehr intensiven Lichtimpulsen Licht-Materie-Wechselwirkung vor allem durch den Effekt des elektrischen Feldes beschrieben werden [Bra00, Pas08]. Je nach Intensität der Lichtimpulse werden dabei verschiedene Bereiche der Licht-Materie-Wechselwirkung unterschieden.

2.1. Licht-Materie-Wechselwirkung in der Störungstheorie

Im Fall einer schwachen elektrischen Feldkomponente $\mathbf{E}(t)$ kann Licht als kleine Störung aufgefasst werden, die auf die Ladungsträger im Material wirkt. Das elektrische Feld ist schwächer als die Coulomb-Anziehung zwischen Elektronen und Atomkernen und verschiebt die Elektronen daher nur leicht im Kristallgitter. Dadurch baut das elektrische Feld ein Dipolmoment im Material auf. Für die Polarisation $\mathbf{P}(t)$, also das Dipolmoment pro Volumen, gilt in einem isotropen Medium [Boy08]:

$$\mathbf{P}(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}(t). \tag{2.1}$$

Die Polarisation im Material ist direkt proportional zum angelegten elektrischen Feld, wobei ε_0 die elektrische Feldkonstante und $\chi^{(1)}$ die materialabhängige elektrische Suszeptibilität bezeichnet. Aufgrund dieser Beziehung wird dieses Regime der Licht-Materie-Wechselwirkung auch als *lineare Optik* bezeichnet [Boy08]. In diesem Bild kann Licht-Materie-Wechselwirkung weitestgehend durch den Brechungsindex eines Materials beschrieben werden.

Mit der Entwicklung des ersten Lasers durch *Maiman* im Jahr 1960 [Mai60] konnten intensivere Lichtfelder erzeugt werden, die zu größeren Auslenkungen der Ladungsträger führen. Hier reicht es nicht mehr aus, nur den Teil der Polarisation zu betrachten, der linear auf das äußere Feld reagiert. Stattdessen wird die Polarisation üblicherweise als Taylor-Entwicklung des elektrischen Feldes geschrieben [Boy08]:

$$\mathbf{P}(t) = \varepsilon_0(\chi^{(1)}\mathbf{E}(t) + \chi^{(2)}\mathbf{E}^2(t) + \chi^{(3)}\mathbf{E}^3(t) + \dots). \quad (2.2)$$

Es treten also neue Terme mit Suszeptibilitäten $\chi^{(i)}$ auf, die mit der i -ten Potenz des elektrischen Feldes skalieren. Aus diesem Grund wird dieser Bereich der Licht-Materie-Wechselwirkung auch als *nichtlineare Optik im störungstheoretischen Regime* bezeichnet. Hier folgt die Polarisation im Material nicht mehr linear dem elektrischen Feld und neuartige Prozesse wie die Erzeugung der zweiten Harmonischen, der Differenzfrequenz zweier Lichtwellen oder auch beispielsweise Selbstphasenmodulation treten auf. Im Allgemeinen fallen die nichtlinearen Suszeptibilitäten mit höherer Ordnung sehr schnell ab, sodass in diesem Bereich der Licht-Materie-Wechselwirkung nur wenige harmonische Ordnungen erzeugt werden.

2.2. Erzeugung Hoher Harmonischer

Durch die ständige Weiterentwicklung von immer leistungsstärkeren Lichtquellen, insbesondere der gepulsten Laser, werden heutzutage atomar starke Lichtfelder erreicht. Bei diesen Feldstärken bricht das störungstheoretische Regime zusammen, da das Lichtfeld vergleichbar mit dem Coulomb-Potential zwischen Atomkern und Elektron wird, was einzigartige neue Phänomene zum Vorschein bringt. Ein Beispiel dieser neuartigen Wechselwirkung zwischen Licht und Materie ist die Erzeugung Hoher Harmonischer (englisch: *high-order harmonic generation*, kurz: HHG) in Ato-

men und Molekülen. Die Lichtwellen-beschleunigte Dynamik eines Elektrons, das fest an einen Atomkern gebunden ist (siehe Abb. 2.1a), kann hier mit dem semiklassischen *Drei-Schritt-Modell* beschrieben werden [Cor93]. Sobald ein atomar starkes Feld $\mathbf{E}(t)$ anliegt (siehe Abb. 2.1b), wird das Coulomb-Potential des Elektrons so stark verkippt, dass es ins Vakuum tunneln kann [Kel65]. Das Atom wird dadurch ionisiert und das nun freie Elektron kann durch das angelegte Feld vom Atomkern weg beschleunigt werden. Dabei nimmt es während einer Lichtschwingung eine mittlere kinetische Energie auf, die durch das ponderomotorische Potential

$$U_P = \frac{e^2 E_{\text{peak}}^2}{4m_e \omega^2}, \quad (2.3)$$

gegeben ist [Kib66]. Der Lichtimpuls wird hier durch die Spitzenfeldstärke E_{peak} und Kreisfrequenz ω charakterisiert. Die Größen e und m_e bezeichnen Ladung und Masse des Elektrons. Wenn die Polarität des oszillierenden Feldes wechselt, wird das Elektron abgebremst und wieder auf den Atomkern hin beschleunigt (siehe Abb. 2.1c). Dadurch können Elektron und Atomkern kollidieren (siehe Abb. 2.1d). Die Ionisationsenergie I_P wird dabei zusammen mit der aufgesammelten kinetischen Energie des Elektrons als breitbandige Strahlung emittiert [Cor93, Lew94].

Bei diesem Prozess spielt der exakte Ionisationszeitpunkt des Elektrons eine Schlüsselrolle. Denn je nachdem, zu welcher Phasenlage des Trägerfeldes das Elektron in Vakuumzustände tunneln und beschleunigt wird, sammelt es viel oder wenig kinetische Energie auf. Wird das Atom beispielsweise direkt bei einem Nulldurchgang des Lichtfeldes ionisiert, beschleunigt ein ganzer Halbzyklus des Lichts das Elektron weg vom Atomkern. Der folgende Halbzyklus reicht dann gerade aus, das Elektron im Vakuum zum Stehen zu bringen. In diesem Fall können Elektron und Atomkern nicht kollidieren und es werden keine Hohen Harmonischen emittiert.

Eine klassische Rechnung zum Drei-Schritt-Modell (für Details siehe Kapitel 5.2 und Gleichung 5.1) offenbart die verschiedenen möglichen Trajektorien und deren zugehörige Kollisionsenergie eines Elektrons abhängig vom genauen Ionisationszeitpunkt t_{ex} während des Treiberfeldes (siehe Abb. 2.2a). Die optimale Ionisationszeit, die zu maximaler kinetischer Kollisionsenergie führt, tritt bei Vernachlässigung der Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Atomkern bei einer Phasenlage der Lichtwelle von 17° auf [Cor93].

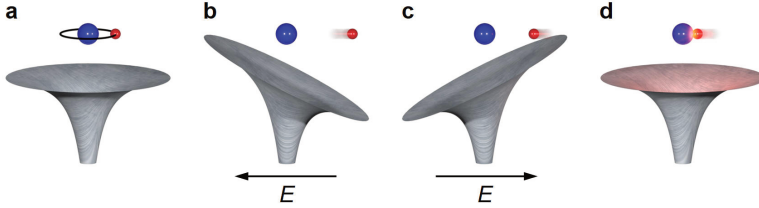


Abbildung 2.1. | Drei-Schritt-Modell zur Erklärung von HHG in Gasen.
a, Aufgrund der attraktiven Coulomb-Wechselwirkung (graue Potentialfläche) ist das Elektron (rote Kugel) fest an den Atomkern (blaue Kugel) gebunden. **b**, Durch ein elektrisches Feld $E(t)$ wird das Coulomb-Potential verkippt und das Elektron kann durch die verbliebene Potentialbarriere tunneln. Anschließend wird es vom Atomkern weg beschleunigt. **c**, Sobald sich die Polarität des elektrischen Feldes ändert, wird das Elektron wieder in Richtung des Atomkerns beschleunigt. **d**, Bei ausreichender Beschleunigung kann das Elektron mit dem Atomkern kollidieren, wobei die kinetische Energie bei Aufprall als hochenergetisches Licht emittiert wird.

Daneben gibt es für jede kleinere Kollisionsenergie des Elektrons zwei mögliche Trajektorien, die zu unterschiedlichen Zeitpunkten t_{ex} starten. Bei der sogenannten langen Trajektorie tunnelt das Elektron früh und wird weit vom Atomkern weg beschleunigt. Es kollidiert daher erst sehr viel später mit dem Atomkern. Bei der kurzen Trajektorie startet das Elektron seine Bewegung knapp vor dem Feldnull-durchgang und kollidiert bereits nach kurzer Zeit mit dem Atomkern.

Abbildung 2.2b zeigt die Kollisionsenergie des Elektrons als Funktion des Ionisationszeitpunkts t_{ex} . Nur wenn das Atom zwischen dem Feldmaximum und dem Feldnull-durchgang ionisiert wird, kommt es überhaupt zur Kollision. Bei Ionisation kurz nach dem Feldmaximum steigt die Kollisionsenergie schnell an und erreicht ein Maximum bei $t_{\text{ex}} = 2 \text{ fs}$, was bei einer Zentralfrequenz von 25 THz des Treiberfeldes der oben erwähnten Phasenlage von etwa 17° entspricht. Dieser Ionisationszeitpunkt führt zur höchsten Kollisionsenergie

$$h\nu_{\text{cutoff}} = I_P + 3.17 \cdot U_P, \quad (2.4)$$

und setzt dementsprechend auch eine Grenze für die Photonenenergie der höchsten harmonischen Ordnung [Cor93].

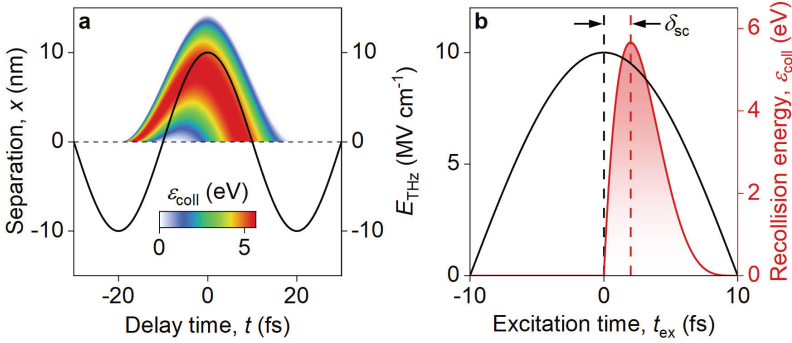


Abbildung 2.2. | Klassische Rechnung zum Drei-Schritt Modell. **a**, Das elektrische Feld $E_{\text{THz}}(t)$ eines intensiven THz-Impulses mit einer Spitzenfeldstärke von 10 MV cm^{-1} und einer Zentralfrequenz von 25 THz beschleunigt ein Elektron, was zu einer Auslenkung x weg vom Atomkern führt. Abhängig vom Ionisationszeitpunkt während des ersten Halbzyklus des gezeigten Trägerfeldes durchläuft das Elektron eine feste Trajektorie und kann bei $x = 0$ mit dem Atomkern rekollidieren. Die Rekollisionsenergie ϵ_{coll} ist als Farbe der Trajektorien dargestellt. **b**, Die Rekollisionsenergie ϵ_{coll} des Elektrons als Funktion des Ionisationszeitpunkts t_{ex} während eines Halbzyklus des Trägerfeldes ist bei $t_{\text{ex}} = 2 \text{ fs}$ maximal. Der Zeitversatz zwischen dem optimalen Ionisationszeitpunkt und dem Feldmaximum wird als Subzyklenverzögerung δ_{sc} bezeichnet.

Atomare Gase sind inversionssymmetrisch, weshalb es für Ionisation, Beschleunigung und Rekollision keine bevorzugte Feldrichtung gibt. Daher ist die Ladungsträgerdynamik für positive und negative Felder symmetrisch und der Prozess der HHG läuft während aller Halbzyklen gleichermaßen ab. Aus diesem Grund zeigt die bei Kollision emittierte breitbandige Strahlung eine spektrale Modulation bei der doppelten Frequenz des Treiberfeldes. Hohe Harmonische von atomaren Gasen zeigen deshalb nur ungerade harmonische Ordnungen.

Da das ponderomotorische Potential U_{P} für hohe Feldstärken und niedrige Treiberfrequenzen maximal wird (vgl. Gleichung 2.3), eignen sich vor allem hochintensive Impulse aus dem Mittelinfrarot-Spektralbereich (MIR) bestens, um möglichst breitbandige Hohe Harmonische zu erzeugen. Diese Impulse können atomare Feldstärken erreichen und durch ihre vergleichsweise lange Oszillationsdauer beschleunigen sie

Ladungsträger während eines Halbzyklus weit auseinander. Obwohl die Trajektorien der Ladungsträger dann einige Femtosekunden dauern, werden hohe Kollisionsenergien und damit breitbandige HHG nur für wenige Ionisationszeitpunkte innerhalb eines Halbzyklus erreicht. Dadurch werden die höchsten harmonischen Ordnungen nur während eines scharfen Zeitintervalls in Form ultrakurzer Impulse emittiert. Für den gegensätzlichen Extremfall, dass ultrakurze Nahinfrarot-Impulse (NIR) mit Oszillationsdauern von nur wenigen Femtosekunden die Ladungsträger kollidieren, beschränkt sich die Emission der höchsten harmonischen Ordnungen damit nur auf wenige hundert Attosekunden. Mit diesem Mechanismus konnten zum ersten Mal überhaupt Attosekunden-Impulse erzeugt werden, die das Feld der *Attosekundenphysik* eröffnet haben. In diesem Feld haben sich verschiedene Techniken gebildet, mit denen der Dynamik von Elektronen auf einer ultraschnellen Zeitskala gefolgt werden kann. Beim *Attosecond-Streaking* beispielsweise photoemittieren Attosekunden-Impulse Elektronen aus Festkörpern zu einem präzise kontrollierbaren Zeitpunkt. Ein zweites Lichtfeld, typischerweise ein ultrakurzer, CEP-stabiler NIR-Impuls, moduliert dann die kinetische Energie der Photoelektronen. Damit hängt die detektierte Energie der Elektronen empfindlich von der Phasenlage des NIR-Impulses ab, zu der sie photoemittiert wurden. Dieser Umstand kann genutzt werden, um mit Attosekunden-Präzision die Dynamik von Elektronen während der Photoemission zu vermessen [Cav07, Nep15, Tao16, Sie17, Oss18].

Eine weitere Möglichkeit, der Elektronendynamik auf dieser ultrakurzen Zeitskala zu folgen, besteht darin, die *transiente Absorption* eines Materials zu beobachten. Dabei induziert typischerweise ein NIR-Impuls dynamische Prozesse in einem Festkörper, die seine Absorptionseigenschaften modifizieren. Diese Änderungen zeigen sich im Spektrum eines Attosekunden-Impulses, der ebenfalls durch das Material propagiert. So lassen sich mit Sub-Femtosekunden-Zeitauflösung Rückschlüsse unter anderem auf Interbandanregungen [Sch14b, Luc16], Abschirmprozesse [Vol19] und Intrabandströme [Sch18] ziehen. In Materialien, deren Bandlücke die Photonenenergie des verwendeten NIR-Impulses übersteigt, konnte zudem der Aufbau einer Interbandpolarisation zwischen Valenz- und Leitungsband ultraschnell kontrolliert werden [Sch13, Mas16, Som16].

Mit diesen Techniken konnte auch der Einfluss von Vielteilchen-Wechselwirkungen innerhalb eines Atoms auf den genauen Zeitpunkt der Photoemission [Sch10, Sie17]

sowie deren Einfluss auf die Dynamik von sogenannten kernnahen Exzitonen untersucht werden [Mou17]. Allerdings sind die durch HHG erzeugten Attosekunden-Impulse energetisch auf die höchsten harmonischen Ordnungen, typischerweise im Bereich einiger 10 bis 100 eV, festgelegt. Mit diesen Photonenenergien liegen sie im *ultravioletten* beziehungsweise sogar *extrem ultravioletten* Bereich des elektromagnetischen Spektrums. Die hohen Photonenenergien limitieren also die erreichbare Energie Selektivität. So werden oft nur hochenergetische Energieniveaus und Übergänge in Festkörpern aufgelöst, die hauptsächlich zu lokalisierten, kernnahen Zuständen gehören.

Neben Elektronen in Atomen und Molekülen können auch Bloch-Elektronen in Festkörpern mit starken elektrischen Feldern beschleunigt werden. Die Ladungsträgerdynamik, die zu HHG in Festkörpern führt, ist im Allgemeinen jedoch komplexer als die bloße Beschleunigung freier Elektronen im Drei-Schritt-Modell. Die periodische Struktur von Kristallen führt beispielsweise dazu, dass die Wellenfunktion von Elektronen $\Psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ in Festkörpern über das gesamte Kristallgitter delokalisiert ist,

$$\Psi_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) = u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r}) \cdot e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}}. \quad (2.5)$$

Bloch-Elektronen lassen sich also als gitterperiodische Funktion $u_{n,\mathbf{k}}(\mathbf{r})$ beschreiben, die mit einer ebenen Welle mit Wellenvektor \mathbf{k} und Realraumposition \mathbf{r} moduliert wird [Blo29]. Als weitere direkte Folge des periodischen Kristallgitters nehmen Bloch-Elektronen je nach Wellenvektor nur bestimmte Energien $\varepsilon_n(\mathbf{k})$ an. Diese sogenannten Bänder mit Index n formen zusammen die Bandstruktur eines Festkörpers, die in erster Näherung grundlegende Eigenschaften wie Leitfähigkeit oder Lichtabsorption eines Materials festlegt [Gro18]. Sie folgt allein aus dem Ein-Teilchen-Bild und vernachlässigt daher Wechselwirkungen zwischen Bloch-Elektronen.

In gewöhnlichen Halbleitern liegen bei Raumtemperatur keine beweglichen Ladungsträger vor, da alle Bänder entweder vollständig gefüllt oder unbesetzt sind. Aus diesem Grund müssen analog zum Ionisationsprozess im Drei-Schritt-Modell erst Elektronen in energetisch höhere Zustände angeregt werden. Das passiert in Festkörpern durch Interbandanregungen, bei denen Elektronen beispielsweise vom Valenz- (siehe Abb. 2.3, rote Fläche) ins Leitungsband (blaue Fläche) übergehen. Grundvoraussetzung dafür ist ein endliches Übergangsdipol-Matrix-Element $d_{cv}(\mathbf{k})$ zwischen

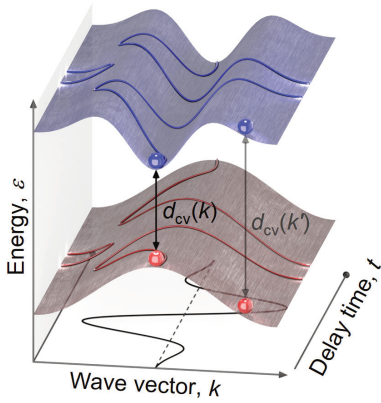


Abbildung 2.3. | Inter- und Intradynamik von Ladungsträgern. Valenz- (rote Fläche) und Leitungsband (blaue Fläche) eines Halbleiters sind über die Übergangsdipolelemente $d_{cv}(\mathbf{k})$ (schwarze Pfeile) gekoppelt. Ein intensives Treiberfeld (schwarze Kurve unten) kann somit Ladungsträger in das Leitungsband anregen. Bewegliche Elektronen im Leitungsband (blaue Kugeln) beziehungsweise Löcher im Valenzband (rote Kugeln) werden zudem durch das Feld innerhalb ihrer Bänder beschleunigt (blaue und rote Trajektorie). Erreichen die Ladungsträger den Rand der Brillouinzone, treten Blochoszillationen auf.

den beiden Bändern. Elektronen (blaue Kugeln) im Leitungsband lassen dabei eine Leerstelle im Valenzband zurück. Diese verhält sich wie ein positiv geladenes Quasiteilchen und wird als Loch (rote Kugeln) bezeichnet.

Ähnlich wie im Fall freier Teilchen im Vakuum übt ein elektrisches Feld $\mathbf{E}(t)$ eine Kraft auf Elektronen und Löcher im Festkörper aus. Diese Lichtfeldbeschleunigung lässt sich am besten im reziproken Raum durch das Blochsche Beschleunigungstheorem

$$\hbar \frac{d\mathbf{k}}{dt} = -e\mathbf{E}(t), \quad (2.6)$$

beschreiben [Blo29]. Die Änderungsrate des Kristallimpulses $\hbar\mathbf{k}$ ist demnach direkt proportional zum angelegten elektrischen Feld. Eine Änderung des Kristallimpulses von Bloch-Elektronen kann auch direkt in den Realraum übersetzt werden, da die Realraumgeschwindigkeit $\mathbf{v}(\mathbf{k})$ eines Ladungsträgers im Ein-Teilchen-Bild direkt mit der Steigung des Bandes mit Dispersion $\varepsilon(\mathbf{k})$ zusammenhängt [Gro18]:

$$\mathbf{v}(\mathbf{k}) = \frac{1}{\hbar} \frac{\partial \varepsilon(\mathbf{k})}{\partial \mathbf{k}}. \quad (2.7)$$

Während freie Ladungsträger im Vakuum einer quadratischen Dispersion folgen und die Realraumgeschwindigkeit damit direkt proportional zu ihrem Wellenvektor \mathbf{k} ist,

gilt diese Dispersionsrelation für Bloch-Elektronen in einem Festkörper üblicherweise nur näherungsweise für kleine Auslenkungen [Gro18]. Werden die Elektronen über große Bereiche der Bandstruktur beschleunigt, treten zunehmend anharmonische Beiträge auf und eine weitere Beschleunigung kann sogar zu einer Abbremsung der Ladungsträger führen. Durch die atomar starken Felder, die hochintensive Lichtimpulse erreichen können (siehe Abb. 2.3, schwarze Wellenform unten) [Sel08], werden Ladungsträger periodisch durch die Bandstruktur beschleunigt (rote und blaue Trajektorie) und können dabei sogar den Rand der Brillouinzone erreichen. Dort werden sie Bragg-reflektiert (angedeutet durch Lichtblitze), wodurch sich ihr Wellenvektor um einen reziproken Gittervektor ändert und sie die Brillouinzone von der gegenüberliegenden Seite startend erneut durchlaufen. Diese Blochoszillationen führen zur Abstrahlung Hoher Harmonischer und konnten mit atomar starken Lichtfeldern im Multi-THz-Bereich des elektromagnetischen Spektrums getrieben werden [Sch14a, Hoh15]. Hohe Harmonische können aber auch schon bei kleineren Auslenkungen effizient erzeugt werden, zum Beispiel in topologischen Isolatoren mit linearer Dispersionsrelation [Has10]. Am Dirac-Punkt tritt dabei eine Singularität auf und die Bandsteigung ändert abrupt ihr Vorzeichen. Diese extreme Nichtlinearität in der Bewegung von Ladungsträgern führt zu einer äußerst effizienten Erzeugung Hoher Harmonischer [Sch21].

Während Blochoszillationen und Intradbandströme generell als Quelle Hoher Harmonischer aufgefasst werden können, dürfen Interbandübergänge nicht vernachlässigt werden. Immerhin sind sie die Grundvoraussetzung für freie Ladungsträger in Halbleitern und können auch selbst zur Abstrahlung Hoher Harmonischer führen [Gol08, Gol11, Sch14a, Hoh15, Sch21]. Aus diesem Grund werden für HHG in Halbleitern intensive Lichtfelder benötigt, die sowohl Inter- als auch Intradbanddynamiken treiben können.

2.3. Seitenbänder hoher Ordnung

Dass Inter- und Intradbandprozesse simultan ablaufen, macht es aber auch schwierig, die genaue Subzyklendynamik von Ladungsträgern zu entschlüsseln. Außerdem induziert das Lichtfeld überall in der Bandstruktur Interbandanregungen zwischen Valenz- und Leitungsband, weshalb Ladungsträger keinen wohldefinierten Start-

punkt im Impulsraum besitzen. Eine Möglichkeit, die Beiträge von Inter- und Intra-banddynamiken zu separieren, bietet die Erzeugung von Seitenbändern hoher Ordnung (englisch: *high-order sideband generation*, kurz: HSG) [Zak12, Lan16, Lan18, Bor20, Cos21]. Hier regt zuerst typischerweise ein schwacher Lichtimpuls (siehe Abb. 2.4, rote Wellenform) mit Photonenenergie $h\nu_{\text{NIR}}$ Elektron-Loch-Paare (rote und blaue Kugeln) resonant an (I). Dadurch befinden sich zunächst alle beweglichen Ladungsträger bei dem Wellenvektor, bei dem auch die Bandlücke des Materials auftritt. Anschließend beschleunigt ein intensives Treiberfeld (schwarze Wellenform) mit der Frequenz ν_{THz} die Ladungsträger (II). Ein wichtiger Parameter ist hierbei die Phasenlage des Treiberfeldes, zu dem die Ladungsträger angeregt werden (roter Pfeil).

Gemäß dem Blochschen Beschleunigungstheorem (vgl. Gleichung 2.6) verändert sich unter der Wirkung des Treiberfeldes der Wellenvektor \mathbf{k} von Elektron und Loch gleichermaßen und wird im gezeigten Beispiel zunächst negativ. Da Valenz- und Leitungsband aber üblicherweise gegensätzliche Steigungen aufweisen, werden die Ladungsträger im Realraum auseinander beschleunigt, zumindest bis sich die Polarität des oszillierenden Lichtfelds ändert. Dann nimmt der Kristallimpuls $\hbar\mathbf{k}$ wieder zu und die Ladungsträger werden im Realraum zuerst abgebremst, und anschließend wieder aufeinander zugetrieben. Wenn sich Elektron und Loch dann wieder am gleichen Ort befinden, kollidieren sie und emittieren hochenergetische Strahlung (orange Wellenform, III).

Die Energie des emittierten Lichts entspricht dabei gerade der energetischen Separation der Bänder an dem Punkt in der Bandstruktur, an dem die Ladungsträger kollidieren. Hier ist der Bandabstand größer als die Bandlücke, wodurch die emittierte Strahlung höherenergetisch als der resonante Anregeimpuls ist. Analog zum Dreischritt-Modell kann die Energie des emittierten Lichts auch als die Summe aus der Photonenenergie des resonanten Anregeimpulses und der kinetischen Energie der Ladungsträger bei der Kollision aufgefasst werden. Da sich Elektron-Loch-Kollisionen periodisch bei jedem Halbzyklus des Treiberfeldes ereignen können, zeigt das Spektrum der emittierten Strahlung mehrere spektrale Komponenten der Ordnung n bei den Frequenzen ν_n [Zak12]:

$$\nu_n = \nu_{\text{NIR}} + n\nu_{\text{THz}}. \quad (2.8)$$

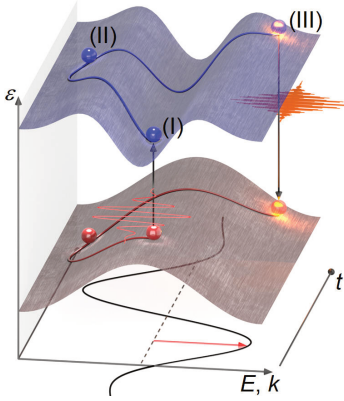


Abbildung 2.4. | HSG-Emission. Ein resonanter ultrakurzer Lichtimpuls (rote Wellenform) erzeugt zu einer bestimmten Verzögerungszeit t_{ex} (roter Pfeil) relativ zu einem intensiven Treiberfeld (schwarze Kurve unten) eine Interbandpolarisation bei $\mathbf{k} = 0$ (I). Das Treiberfeld beschleunigt anschließend die Ladungsträger entlang der Bänder (II) und bringt sie zur Kollision. Die Ladungsträger rekombinieren bei $\mathbf{k} \neq 0$ und emittieren hochenergetische Strahlung (orange Wellenform, III).

Die nullte harmonische Ordnung tritt bei der NIR-Frequenz auf, weshalb bei diesem Prozess auch von der Erzeugung von Seitenbändern hoher Ordnung gesprochen wird. Ein typisches HSG-Spektrum ist in Abb. 2.5 zu sehen. Hier wurden Elektron-Loch-Paare resonant in einem Wolframdiselelid-Volumenkristall mit einer Bandlücke von 392 THz angeregt und anschließend mit einem intensiven Multi-THz-Impuls mit einer Zentralfrequenz von 23 THz (im Bild rechts oben) beschleunigt [Lan16]. Das Spektrum zeigt ein Intensitätsmaximum bei der Bandlücke und daneben viele gerade Ordnungen bis hin zur 22. Ordnung. Außerdem treten auch negative Ordnungen auf, die aber im störungstheoretischen Regime der nichtlinearen Optik beschrieben werden können [Zak12]. Diese sowie niedrige positive Ordnungen fallen aber schnell mit zunehmender Ordnung in ihrer Intensität ab. Höhere Ordnungen entsprechen dem Starkfeldbild von Elektron-Loch-Kollisionen.

Da der hier verwendete Volumenkristall inversionssymmetrisch ist, laufen Elektron-Loch-Kollisionen für negative und positive Halbzyklen des Treiberfeldes symmetrisch ab. Dadurch weist die HSG-Emission eine doppelt so hohe zeitliche Periodizität wie das Treiberfeld auf, weshalb im Spektrum nur gerade Ordnungen auftreten.

Obwohl HHG und HSG mikroskopisch beide mit einem Drei-Schritt-Modell, das Anregung, Beschleunigung und Kollision von Ladungsträgern umfasst, beschrieben werden können, gibt es durch das Separieren von Ladungsträgeranregung und Intra-bandbeschleunigung fundamentale Unterschiede zwischen den beiden Prozessen.

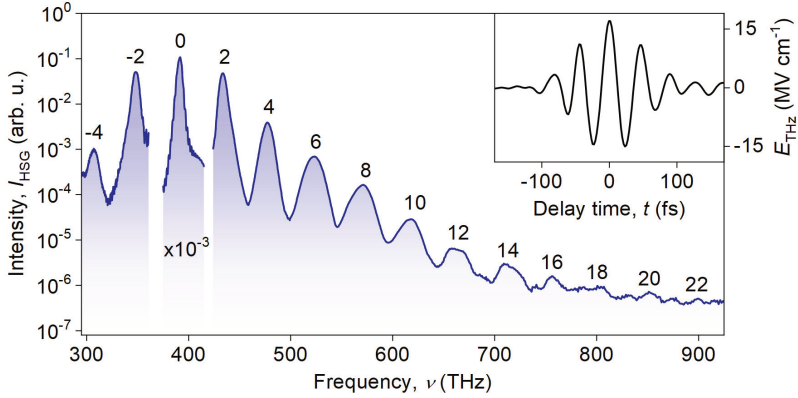


Abbildung 2.5. | Typisches HSG-Spektrum eines Halbleiters. Ein resonanter schmalbandiger NIR-Impuls mit einer Frequenz von 392 THz und einem Fluss von $19 \mu\text{J cm}^{-2}$ erzeugt eine kohärente Interbandpolarisation in einem Volumenkristall Wolframdiselelid und ein phasenstarrer Multi-THz-Impuls mit einer Spitzenfeldstärke von 17 MV cm^{-1} (siehe Wellenform rechts oben) beschleunigt diese. Dadurch werden Seitenbänder bis zur 22. Ordnung emittiert. Abbildung entnommen aus [Lan16].

Ohne zweites Lichtfeld, das resonant eine Interbandpolarisation aufbaut, werden bei HHG nur die Ladungsträger beschleunigt, die nichtresonant durch starke elektrische Felder in das Leitungsband angeregt werden. Dadurch werden hier sehr hohe elektrische Felder benötigt. Bei HSG kann die Feldstärke des Treiberfeldes bedeutend niedriger gewählt werden. Für Feldstärken von maximal $6,2 \text{ MV cm}^{-1}$, die in dieser Arbeit verwendet werden, ist ein Vergleich der numerisch berechneten emittierten HSG- und HHG-Strahlung in Abb. 2.6 gezeigt. Wird das anregende resonante Lichtfeld mit einem Fluss von $\Phi_{\text{NIR}} = 19 \mu\text{J cm}^{-2}$ ausgeschaltet (HHG), fällt die Intensität der Emission im gesamten gezeigten spektralen Fenster um zwei oder mehr Größenordnungen ab.

Insgesamt bietet HSG gegenüber HHG also die Vorteile, dass durch den separaten Anregimpuls besser zwischen Inter- und Intrabanddynamik unterschieden werden kann und Trajektorien von Bloch-Elektronen wohldefinierte Startpunkte aufweisen. Außerdem werden bei HHG vor allem für die nichtresonante Interbandanregung ho-

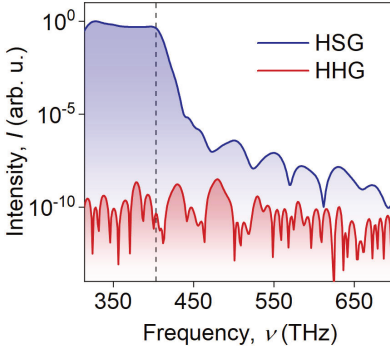


Abbildung 2.6. | Relative Stärke von HSG und HHG. Simuliertes HSG- (blau) und HHG-Spektrum (rot) einer Wolframdiselelid-Monolage. Es wurde ein Treiberfeld mit einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ verwendet. Die HSG, für die zusätzlich noch ein resonanter Anregeimpuls mit einer Frequenz von $\nu = 403 \text{ THz}$ (gestrichelte Linie) berücksichtigt wird, ist im gesamten gezeigten Frequenzbereich mehr als 100 mal effizienter als die HHG.

he Feldstärken benötigt. Da bei HSG Ladungsträger resonant durch einen zweiten Lichtimpuls ins Valenzband angeregt werden, führen bereits niedrige Feldstärken des Treiberfeldes zu einer starken HSG-Emission. Genau wie HHG nutzt aber auch HSG die Intrabandbeschleunigung von Ladungsträgern in starken elektrischen Feldern. Bei dieser Dynamik spielen die Symmetrie und Energiedispersion der elektronischen Bänder eine entscheidende Rolle. Denn zum einen emittieren inversionssymmetrische Kristalle beispielsweise keine Seitenbänder ungerader Ordnung. Zum anderen legt der Bandabstand von Elektron und Loch die maximale Photonenenergie der HSG-Strahlung fest. Diese Umstände wurden bereits genutzt, um charakteristische Signaturen im HSG-Spektrum nachzuweisen, wenn der Valley-Pseudospin (englisch: *valleys* als Bezeichnung für Bandtäler) mit atomar starken elektrischen Feldern innerhalb weniger Femtosekunden umgeschaltet wird [Lan18]. Außerdem konnte die Bandstruktur eines atomar dünnen Halbleiters rein optisch mittels HSG rekonstruiert werden [Bor20].

Mit einem ultrakurzen NIR-Impuls können kohärente Elektron-Loch-Paare im Material zudem zu einem präzise definierten Injektionszeitpunkt t_{ex} angeregt werden. Dadurch besitzen die Trajektorien der Ladungsträger nicht nur einen wohldefinierten Wellenvektor, bei dem sie starten, sondern auch der Startzeitpunkt ihrer Bewegung ist scharf festgelegt. Das erlaubt eine zeitliche Untersuchung der Ladungsträgerdynamik [Lan16]. Abbildung 2.7 zeigt die spektral- und zeitaufgelöste HSG-Emission eines 60 nm dicken WSe₂-Volumenkristalls. Ein 10 fs kurzer (Halbwertsbreite der

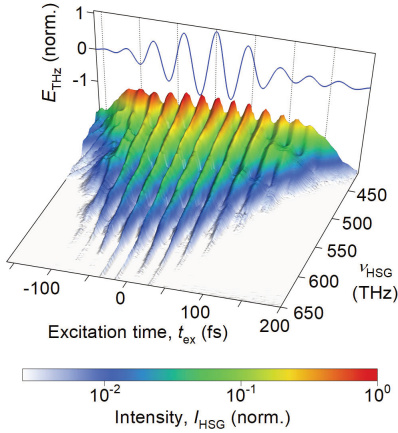


Abbildung 2.7. | Zeitaufgelöste Elektron-Loch-Kollisionen. Frequenz- und zeitaufgelöste HSG-Emission I_{HSG} eines 60 nm dicken WSe_2 -Volumenkristalls. Ein 10 fs kurzer NIR-Impuls regt zum Zeitpunkt t_{ex} resonant zur Bandlücke kohärente Exzitonen im Material an. Anschließend beschleunigt ein Multi-THz-Impuls (E_{THz} , blaue Kurve) mit einer Zentralfrequenz von $\nu_{\text{THz}} = 23$ THz und einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 17 \text{ MV cm}^{-1}$ die Elektron-Loch-Paare, was zu Kollisionen und zur Emission von HSG-Strahlung führt. Abbildung entnommen aus [Lan16].

Intensitätseinhüllenden; englisch: *full width at half maximum*, kurz: FWHM), resonanter NIR-Impuls regt dabei Exzitonen im Material an und ein hochintensiver Multi-THz-Impuls mit einer Zentralfrequenz von 23 THz kollidiert die Ladungsträger. Damit ist die Impulsdauer des NIR-Impulses kürzer als eine Oszillationsdauer des Multi-THz-Impulses. Für jede Verzögerungszeit t_{ex} zwischen NIR- und Multi-THz-Impuls wird die emittierte HSG-Strahlung spektral aufgelöst.

Die HSG-Emission ist zeitlich stark moduliert. Für eine Anregung der Ladungsträger kurz nach jeder Feldspitze des Treiberfeldes wird maximal viel HSG-Strahlung emittiert. Es gibt also optimale Injektionszeiten, die zu effizienten Quasiteilchenkollisionen und schlechte Zeitpunkte, die zu keinen geschlossenen Kollisionspfaden führen [Lan16]. Der hier realisierte Quasiteilchenbeschleuniger von gebundenen Exzitonen demonstriert, dass Kollisionsexperimente auch in Festkörpern genutzt werden können, um die Dynamik von wechselwirkenden Ladungsträgern präzise zu untersuchen.

Vielteilchen-Korrelationen in WSe₂

*Alone we can do so little; together we
can do so much.*

— Helen Keller

Wie eben beschrieben, ionisieren intensive Lichtfelder Atome in Gasen und kollidieren Elektronen mit ihrem Atomkern, was zu HHG führt. In Festkörpern können ähnlich dazu Quasiteilchenkollisionen ebenfalls zur Emission hochenergetischer Strahlung führen. Als Quasiteilchen werden dafür Bloch-Elektronen innerhalb eines Festkörpers beschleunigt, weshalb Vielteilchen-Wechselwirkungen die Bewegung der Ladungsträger und damit auch die Quasiteilchenkollisionen beeinflussen sollten. In dieser Arbeit soll der Effekt von Korrelationen auf die Trajektorie von Bloch-Elektronen systematisch untersucht werden. Als Materialplattform bietet sich dafür Wolframdiselenid (WSe₂) an, in dem die Stärke von Vielteilchen-Wechselwirkungen durch die Dicke des Materials variiert werden kann.

Wolframdiselenid gehört zu den Übergangsmetallchalkogeniden, einer Klasse besonders interessanter Halbleiter mit starken Korrelationen. Sie eignen sich hervorragend für diese Arbeit, da insbesondere in dünnen Kristallen dieser Materialklasse extrem erhöhte Coulomb-Wechselwirkungen auftreten. Im Grenzfall atomar dünner Monolagen entsteht zudem der Freiheitsgrad des Valley-Pseudospins, der völlig neue Wege für optoelektronische Anwendungen bereitet [Wan12]. Im Folgenden werden die grundlegenden Eigenschaften von Übergangsmetallchalkogeniden und insbesondere Wolframdiselenid erläutert, das in dieser Arbeit verwendet wird.

3.1. Kristall- und Bandstruktur von WSe_2

Im Allgemeinen haben Übergangsmetalldichalkogenide (englisch: *transition metal dichalcogenides*, kurz: TMDCs) die Strukturformel MX_2 , wobei M für ein Übergangsmetall und X für ein Chalkogen steht [Wil69]. Die für die Optoelektronik wichtigsten Vertreter dieser Materialklasse setzen sich aus den Übergangsmetallen Wolfram (W) oder Molybdän (Mo) und den Chalkogenen Selen (Se), Tellur (Te) oder Schwefel (S) zusammen und zählen zu den Halbmetallen und Halbleitern [Mak10, Eft17].

Die Atome in diesen Materialien sind in einzelnen atomar dünnen Lagen angeordnet, innerhalb derer zwischen den Konstituenten starke kovalente Bindungen bestehen. Zwischen den einzelnen Atomschichten wirken jedoch nur schwache van-der-Waals-Kräfte, weshalb sich leicht mikrometergroße Monolagen mechanisch abtragen lassen. Abbildung 3.1a zeigt das hexagonale Gitter einer einzelnen Atomschicht am Beispiel von WSe_2 . Eine Monolage von Übergangsmetalldichalkogeniden besitzt ein Dreiecksgitter mit einer zweiatomigen Basis und zeigt zwei Hochsymmetrierichtungen, die *zigzag*- (roter Pfeil) und die *armchair*-Richtung (blauer Pfeil). Mit ihrer dreizähligen Rotationssymmetrie gehört diese Kristallstruktur zur Raumgruppe D_{3h} . Die Seitenansicht (siehe Abb. 3.1b) veranschaulicht die Anordnung der Konstituenten innerhalb einer Monolage. Eine Schicht von Halbmetall-Atomen (hier Wolfram) wird dabei von zwei Schichten Chalkogen-Atomen (hier Selen) umgeben [Voß99].

TMDCs können zwei verschiedene Konfigurationen, 3R und 2H, einnehmen, die sich in der Stapelreihenfolge der einzelnen Atomschichten unterscheiden [Wil69]. Beim selteneren 3R-Polytyp ist die Stapelreihenfolge A-B-C, wodurch das Kristallgitter eine rhomboedrische Struktur annimmt. In dieser Arbeit wird die häufiger vorkommende Variante 2H- WSe_2 mit der Stapelreihenfolge A-B-A verwendet. Benachbarte Schichten innerhalb einer Monolage sind dabei um je 180° zueinander verdreht, wodurch mittig in jedem Dreiecksprisma, das von Chalkogen-Atomen aufgespannt wird, ein Halbmetall-Atom sitzt. In dieser Stapelung befindet sich das Wolfram-Atom einer Monolage exakt über den Selen-Atomen der benachbarten Monolage (siehe 3.1b). Das heißt nicht nur benachbarte Atomschichten, sondern auch benachbarte Monolagen werden um 60° beziehungsweise 180° zueinander verdreht. Dadurch entsteht für Volumenkristalle eine hexagonale Struktur, die zur D_{6h}^4 -Symmetriegruppe gehört und deren Einheitszelle in Abbildung 3.1c dargestellt ist. Die Atome einer einzelnen

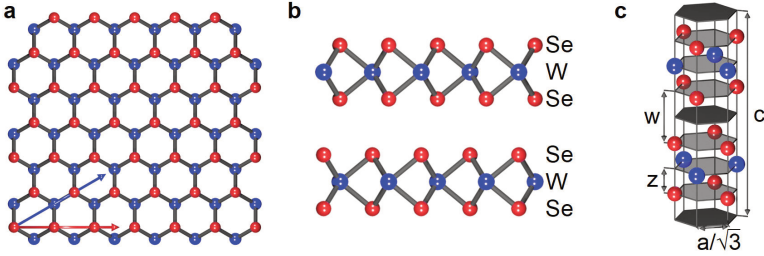


Abbildung 3.1. | Kristallstruktur von 2H- WSe_2 . **a**, Draufsicht eines WSe_2 -Kristalls. Die Selen- (rot) und Wolfram-Atome (blau) formen eine Honigwabenstruktur, bei der zwischen der *zigzag*- (roter Pfeil) und der *armchair*-Richtung (blauer Pfeil) als Hochsymmetrierichtungen unterschieden wird. **b**, Seitenansicht zweier durch die schwache van-der-Waals-Wechselwirkung gebundenen Kristallschichten, die einen Volumenkristall aufbauen. Benachbarte Schichten sind um 60° zueinander verdreht. **c**, Hexagonale Einheitszelle eines WSe_2 -Volumenkristalls, bei der die Stapelreihenfolge A-B-A zu erkennen ist. Die Gitterkonstante beträgt $a = 3,285 \text{ \AA}$ und der Abstand der Atomschichten innerhalb einer Lage $z = 1,671 \text{ \AA}$, während benachbarte Lagen einen größeren Abstand von $w = 3,133 \text{ \AA}$ aufweisen [Fin97, Voß99]. Insgesamt misst die Höhe der gezeigten Einheitszelle damit $c = 12,950 \text{ \AA}$.

Schicht sind $a = 3,285 \text{ \AA}$ und benachbarte Atomschichten innerhalb einer Monolage $z = 1,671 \text{ \AA}$ voneinander entfernt. Der Abstand benachbarter Monolagen ist mit $w = 3,133 \text{ \AA}$ etwa doppelt so groß. Insgesamt ergibt sich damit eine Höhe der Einheitszelle von $c = 12,950 \text{ \AA}$ [Fin97, Voß99].

Aufgrund der Stapelreihenfolge A-B-A einzelner Atomschichten ist die Inversionssymmetrie in einer 2H- WSe_2 -Monolage gebrochen [Xia12]. Dadurch besitzt sie eine endliche Suszeptibilität zweiter Ordnung $\chi^{(2)}$ [Li13]. Das ermöglicht die Erzeugung der zweiten Harmonischen (englisch: *second-harmonic generation*, kurz: SHG) von eingestrahlttem Licht, womit die kristallografischen Hochsymmetrierichtungen einer Monolage bestimmt werden können. Bei einer Bilage WSe_2 dagegen existiert ein Inversionszentrum zwischen den beiden Monolagen. Insgesamt weisen Volumenkristalle mit einer ungeraden Anzahl an Lagen kein Inversionszentrum und nur eine dreizählige Drehsymmetrie auf, während Kristalle mit einer geraden Anzahl an Lagen ein Inversionszentrum und eine sechsfache Drehsymmetrie besitzen.

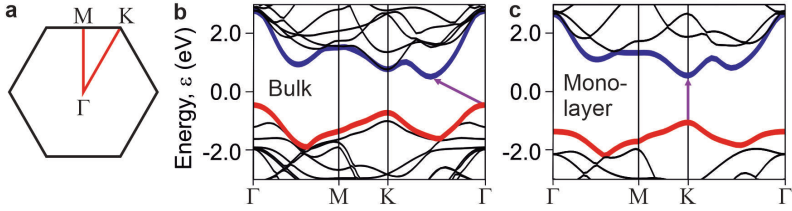


Abbildung 3.2. | Bandstruktur von WSe_2 . a, Hexagonale Brillouinzone von WSe_2 mit den Hochsymmetriepunkten Γ , M und K. Die $\Gamma - \text{M}$ -Richtung entspricht dabei der *armchair*- und die $\Gamma - \text{K}$ -Richtung der *zigzag*-Richtung. b, c, Bandstruktur eines WSe_2 -Volumenkristalls (b) und einer Monolage (c). Zwischen Valenz- (rot) und Leitungsband (blau) befindet sich im Fall des Volumenkristalls eine indirekte und im Fall der Monolage eine direkte Bandlücke. Die lila Pfeile zeigen den entsprechenden Übergang.

Doch nicht nur die Symmetrie von TMDCs ändert sich, wenn ihre Schichtdicke variiert wird. Viel wichtiger für Anwendungen ist, dass sich damit auch ihre elektronischen Eigenschaften maßschneidern lassen. Das lässt sich bereits in der Bandstruktur erkennen, in der für ein hexagonales Kristallgitter die drei Hochsymmetriepunkte Γ , M und K existieren (siehe Abb. 3.2a). Beim Volumenkristall WSe_2 (siehe Abb. 3.2b) tritt das Maximum des Valenzbandes (rot) am Γ -Punkt und das Minimum zwischen K- und Γ -Punkt auf. Damit ist dieses Material ein indirekter Halbleiter. Der direkte Übergang mit niedrigster Energie zwischen den beiden Bändern geschieht am K-Punkt. Hier besitzen die elektronischen Zustände in Valenz- und Leitungsband ungefähr die gleiche Energie wie im globalen Maximum des Valenz- beziehungsweise Minimum des Leitungsbandes.

Am K-Punkt werden Valenz- und Leitungsband hauptsächlich durch $d_{x^2-y^2}$ - und d_{xy} -Orbitale der Übergangsmetalle gebildet [Liu13, Liu15]. Damit sind Bloch-Elektronen am K-Punkt vor allem innerhalb einer einzelnen Atomschicht delokalisiert und reichen nicht in benachbarte Lagen [Wan12, Zen13]. Im Gegensatz dazu werden die Bänder am Γ -Punkt durch d_z -Orbitale der Übergangsmetalle und p_z -Orbitale der Chalkogen-Atome aufgebaut, sodass hier Elektronen zwischen den einzelnen Monolagen überlappen [Liu13, Liu15]. Insgesamt bleibt die Bandlücke am K-Punkt damit unabhängig von der Dicke des Kristalls ungefähr konstant, während sich

die Bänder am Γ -Punkt durch die Anzahl an Lagen im Kristall beeinflussen lassen [Kum12, Yeh15]. Tatsächlich führt eine Ausdünnung auf wenige Lagen beziehungsweise hin zu einer einzelnen Monolage dazu, dass das Valenzband am Γ -Punkt energetisch absinkt und das Leitungsband zwischen Γ und K ansteigt. Als Folge nehmen TMDCs als Monolage eine direkte Bandlücke am K-Punkt an (siehe Abb. 3.2c), während bei Volumenkristallen eine indirekte Bandlücke vorliegt [Mak10, Spl10, Ton13, Zha14]. Da die Photolumineszenz von Materialien mit einer direkten Bandlücke vielfach stärker als die von indirekten Halbleitern ist, kann diese Lichtemission genutzt werden, um eine Monolage von einem Volumenkristall zu unterscheiden und im Experiment zu finden (vgl. Abb. 4.8b).

3.2. Spin-Tal-Kopplung

Neben der bemerkenswerten Eigenschaft von TMDCs, dass sich die Natur ihrer Bandlücke von indirekt zu direkt ändert, wenn der Kristall auf eine einzige Monolage ausgedünnt wird, ändert sich wie oben diskutiert auch die Symmetrie des Kristalls. Denn im Gegensatz zu einem Volumenkristall ist eine Monolage nicht inversionssymmetrisch. Daraus folgen auch Symmetrieargumente für die Bandstruktur $\varepsilon(\mathbf{k})$ und es gilt für die Monolage mit gebrochener Inversionssymmetrie im Allgemeinen

$$\varepsilon_{\uparrow}(\mathbf{k}) \neq \varepsilon_{\uparrow}(-\mathbf{k}), \quad (3.1)$$

denn der Spin eines Elektrons (\uparrow für Spin *up*, \downarrow für Spin *down*) ändert sich bei Inversion des Systems nicht. Zeitgleich ist in der Monolage aber dennoch die Zeitumkehrsymmetrie erhalten, weshalb Zustände bei gegensätzlichem Spin und Kristallimpuls entartet sein müssen:

$$\varepsilon_{\downarrow}(\mathbf{k}) = \varepsilon_{\uparrow}(-\mathbf{k}). \quad (3.2)$$

Insgesamt ist damit die Spinentartung von Bändern in einem Material ohne Inversionssymmetrie, aber mit Zeitumkehrsymmetrie, aufgehoben:

$$\varepsilon_{\uparrow}(\mathbf{k}) \neq \varepsilon_{\downarrow}(\mathbf{k}). \quad (3.3)$$

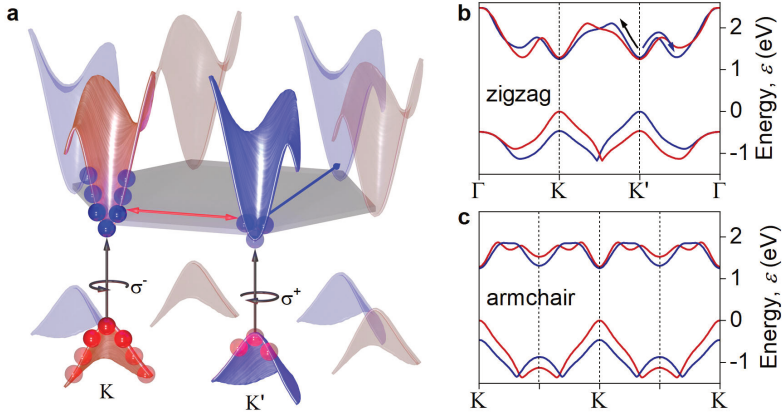


Abbildung 3.3. | Spin-Tal-Kopplung. **a**, Schema der spinpolarisierten Valenz- und Leitungsbander einer WSe_2 -Monolage. Die Spintextur der Bänder (blaue Fläche, Spin „up“; rote Fläche, Spin „down“) am K- und K'-Punkt ist invertiert, sodass links- (σ^-) beziehungsweise rechts-zirkular polarisiertes Licht (σ^+) resonant zur Bandlücke nur Übergänge im K- beziehungsweise K'-Tal verursacht. Ladungsträger (rote und blaue Kugeln) können damit nur in einem spezifischen Tal oder mit linear polarisiertem Licht in beiden Tälern gleichmäßig angeregt werden. **b**, **c**, Bandstruktur einer WSe_2 -Monolage entlang der *zigzag*- (**b**, roter Pfeil in **a**) und entlang der *armchair*-Richtung (**c**, blauer Pfeil in **a**) mit dazugehöriger Spintextur (blau, Spin „up“; rot, Spin „down“). Entlang der *zigzag*-Richtung ist die Symmetrie um K und K' gebrochen, was durch den blauen und schwarzen Pfeil verdeutlicht ist.

Im konkreten Fall einer WSe_2 -Monolage besteht das Valenzband wie oben beschrieben vor allem aus $d_{x^2-y^2}$ - und d_{xy} -Orbitalen der Wolfram-Atome [Liu13, Liu15]. Aufgrund der hohen magnetischen Quantenzahl $m = 2$ und den schweren Wolfram-Atomen ist hier die Spin-Bahn-Kopplung besonders stark, und führt zu einer Spinaufspaltung des Valenzbandes von etwa 460 meV [Ram12, Xia12, Zen13].

Da die hexagonale Kristallstruktur einer WSe_2 -Monolage aus einer zweiatomigen Basis verschiedener Atome besteht, treten an den Ecken in der hexagonalen Brillouinzone die beiden inäquivalenten Punkte K und K' auf (siehe Abb. 3.3a). An ihnen ist aufgrund der Zeitumkehrinvarianz die Spinaufspaltung der Bänder gegensätzlich und sie werden in der Regel als *Täler* bezeichnet. Je nachdem, welches Tal

betrachtet wird, liegt entweder das Valenzband mit Spin *up* (blaue Fläche) oder mit Spin *down* (rote Fläche) energetisch höher. Rechts-zirkular polarisiertes Licht (σ^+), das resonant zur Bandlücke ist, kann demnach nur an das K'-Tal koppeln und dort Ladungsträger (rote und blaue Kugeln) anregen. Im anderen Tal kann nur links-zirkular polarisiertes Licht Übergänge treiben, weshalb es in WSe₂-Monolagen zu einem zirkularen Dichroismus kommt [Cao12]. Da auf diese Weise der Spin der Ladungsträger fest an das entsprechende Tal gekoppelt ist, wird auch vom *Valley-Pseudospin* gesprochen. Dieser kann durch den Polarisationszustand des eingestrahnten Lichts direkt kontrolliert werden: Während zirkular polarisiertes Licht nur an einem Tal Ladungsträger anregt, verteilen sich diese für linear polarisiertes Licht auf beide Täler gleichmäßig (transparente Kugeln).

Darüber hinaus ist die Streuung von Ladungsträgern aus einem Tal in ein anderes aufgrund der stark unterschiedlichen Wellenvektoren erheblich unterdrückt [Wan12, Jon13]. Innerhalb eines einzelnen Tals dephasieren die Ladungsträger ebenfalls nur langsam aufgrund der Spinaufspaltung der Bänder. Der Valley-Pseudospin bleibt also lange erhalten [Mak12], weshalb er als Informationsträger in der sogenannten *Valleytronik* eingesetzt wird [Sch16]. 2018 gelang es *Langer et al.* den Valley-Pseudospin innerhalb einer einzigen Lichtschwingung zu schalten, indem zirkular polarisiertes Licht Ladungsträger in einem Tal anregt und sie ein starkes Lichtfeld innerhalb weniger Femtosekunden ins andere Tal transportiert [Lan18]. Das Gebiet der Lichtwellenelektronik mit dem der Valleytronik zu kombinieren, legt das Fundament für eine ultraschnelle Kontrolle des Valley-Pseudospins.

In der genannten Arbeit wurde zudem gefunden, wie Symmetrien der Bandstruktur die Emission von HSG-Strahlung beeinflussen. Vom K'-Tal einer WSe₂-Monolage ausgehend, hin zum K-Tal (siehe Abb. 3.3a, roter Pfeil), wird die *zigzag*-Richtung durchlaufen. Hier ist die Symmetrie der Bänder gebrochen (siehe Abb. 3.3b) und in Richtung des K-Tals steigt das Band schneller an (schwarzer Pfeil) als in Richtung des Γ -Punktes (blauer Pfeil). Für die *armchair*-Richtung ist das nicht der Fall und die Bänder verlaufen in gegensätzlichen Richtungen symmetrisch (siehe Abb. 3.3c). Dadurch werden bei Beschleunigung der Ladungsträger entlang der *zigzag*-Richtung ungerade Ordnungen im HSG-Spektrum erzeugt, entlang der *armchair*-Richtung dagegen nicht [Lan18].

3.3. Gebundene Elektron-Loch-Paare

Bisher wurden nur Symmetrien und die Bandstruktur von TMDCs betrachtet, weshalb sich die Beschreibung auf das Ein-Teilchen-Bild beschränkt hat. Wie zu Beginn dieser Arbeit dargestellt, spielen allerdings Vielteilchen-Korrelationen eine wesentliche Rolle in Festkörpern und bestimmen maßgeblich deren Eigenschaften. Beispielsweise beträgt die Bandlücke einer WSe_2 -Monolage unter Vernachlässigung der Vielteilchen-Wechselwirkungen 1,88 eV [Bor20]. In Experimenten können jedoch Resonanzen unterhalb dieser Energie beobachtet werden [Aro15, Che14, He14, Poe15]. Das liegt an der Bildung der anfangs eingeführten Exzitonen, die über das Ein-Teilchen-Bild der Bandstruktur hinausgehen [Wan37]. Bei ihnen handelt es sich um gebundene Zustände von Elektron-Loch-Paaren. Wird ein Elektron aus dem Valenzins Leitungsband angeregt, lässt es im Valenzband ein Loch zurück. Das verhält sich wie ein positiv geladenes Teilchen, das in das Valenzband eingebracht wurde. Zwischen dem negativ geladenen Elektron und dem positiv geladenen Loch wirkt die anziehende Coulomb-Wechselwirkung wie in einem Wasserstoff-Atom, was zu einer Absenkung der Bandlücke führt.

Beim Loch handelt es sich dabei nicht um ein reales Teilchen, sondern um ein Quasiteilchen. Denn eigentlich wechselwirkt das Elektron im Leitungsband mit allen verbliebenen Elektronen im Valenzband sowie allen Atomen im Kristallgitter. Alle diese Interaktionen können aber so aufgefasst werden, als würde das Elektron im Leitungsband lediglich mit einem einzigen fiktiven Teilchen wechselwirken. Diese Beschreibung mithilfe von Quasiteilchen, wie sie in der Einleitung dieser Arbeit angesprochen wurde, vereinfacht die Beschreibung des Systems erheblich [Che01].

In gewöhnlichen Halbleitern sind Elektron-Loch-Paare unter anderem aufgrund der niedrigen effektiven Massen nur schwach gebunden und zeigen Bindungsenergien im Bereich weniger Millielektronenvolt [Gru16]. Da die thermische Energie bei Raumtemperatur mit 25 meV diese Bindungsenergien oft übersteigt, sind für die Beobachtung von Exzitonen in diesen Materialien üblicherweise extrem niedrige Temperaturen notwendig. Diese Hürde verschwindet bei TMDCs, da hier die exzitonische Bindungsenergie eines Volumenkristalls bei etwa 60 meV liegt. Prinzipiell wird aber in jedem Volumenkristall das elektrische Feld zwischen Elektron und Loch durch das Material selbst abgeschirmt (siehe Abb. 3.4a), wodurch die exzitonische Bindungs-

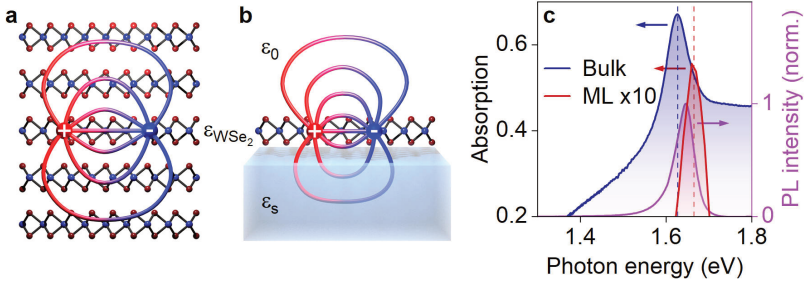


Abbildung 3.4. | Exzitonen in WSe₂-Volumenkristall und Monolage. **a,** Im Volumenkristall können ein negativ geladenes Elektron (blaue Kugel) und ein positiv geladenes Loch (rote Kugel) ein gebundenes wasserstoffähnliches Exziton formen. Die elektrischen Feldlinien zwischen den beiden Ladungsträgern reichen dabei bis in umliegende Kristallschichten mit dielektrischer Konstante ϵ_{WSe_2} . **b,** In einer Monolage verlaufen die elektrischen Feldlinien sowohl im Substrat (ϵ_s) als auch im Vakuum (ϵ_0), wo die dielektrische Abschirmung schwächer als im Kristall selbst ist. Dadurch wird der Bohr-Radius reduziert und die exzitonische Bindungsenergie erhöht. **c,** Bei Raumtemperatur gemessenes Absorptionsspektrum eines 60 nm dicken WSe₂-Volumenkristalls (Bulk, blau) und einer WSe₂-Monolage (ML, rot). Zur besseren Veranschaulichung wurde die Absorption der Monolage mit einem Faktor zehn skaliert. Der Volumenkristall zeigt ein Absorptionsmaximum bei 1,627 eV und die Monolage bei 1,665 eV. Die Absorption der Monolage entspricht hier etwa 5 %. Anhand der messbaren Photolumineszenz (lila) kann die Monolage im Experiment identifiziert werden.

energie verringert wird [Wan18]. In atomar dünnen Kristallen wirkt das elektrische Feld zwischen den Ladungsträgern aber auch außerhalb des Festkörpers. Im Fall einer WSe₂-Monolage, die auf einem Diamantsubstrat aufgebracht ist, werden die elektrischen Feldlinien im Substrat nur schwach und im Vakuum gar nicht abgeschirmt (siehe Abb. 3.4b). Zusätzlich sind die Ladungsträger in einer atomar dünnen Schicht räumlich stärker begrenzt als in einem Volumenkristall, was zusammen mit der geringeren dielektrischen Abschirmung zu einem kleineren Bohr-Radius und einer höheren exzitonischen Bindungsenergie führt [Yan91, Hau09]. In einer WSe₂-Monolage auf einem Diamantsubstrat erhöht sich die exzitonische Bindungsenergie damit fast um einen Faktor fünf auf bis zu 295 meV [Wan18]. Der genaue Wert der

Bindungsenergie ist auch abhängig von der Dichte an gebundenen Elektron-Loch-Paaren und kann zum Beispiel durch die Übergangsenergie der $1s$ - $2p$ -Resonanz bestimmt werden [Poe15].

Vielteilchen-Korrelationen modifizieren also elektronische Eigenschaften von Festkörpern. Beispielsweise verschiebt die Coulomb-Anziehung als Zwei-Teilchen-Korrelation Resonanzen in einem Kristall, da Elektronen mit weniger Energie ins Leitungsband angeregt werden können, wenn sie einen gebundenen exzitonischen Zustand eingehen. Absorptionsmessungen an einem WSe_2 -Volumenkristall (siehe Abb. 3.4c, blaue Kurve) zeigen eine Resonanz bei 1,627 eV, was der optischen Bandlücke, also dem Übergang eines Elektrons vom Valenzband in den $1s$ -Zustand des Exzitons, entspricht. Dabei kann auch schon Licht mit niedrigerer Photonenenergie Übergänge induzieren, was auf die indirekte Bandlücke zurückzuführen ist. Eine WSe_2 -Monolage absorbiert aufgrund der ultimativ kurzen Interaktionslänge nur maximal 5% des eingestrahlt Lichts bei der $1s$ -Resonanz mit einer Energie von 1,665 eV (rote Kurve). Insgesamt liegen die beiden direkten Übergänge mit niedrigster Energie von Volumenkristall und Monolage damit bis auf 40 meV beisammen. Aufgrund der direkten Bandlücke der Monolage kann auch deutliche Photolumineszenz beobachtet werden (lila Kurve). Damit können im Experiment (vgl. Abb. 4.8b) atomar dünne Bereiche des WSe_2 -Kristalls identifiziert werden.

Durch das Ausdünnen auf einzelne Monolagen lassen sich in TMDCs Vielteilchen-Wechselwirkungen empfindlich beeinflussen. Ein weiterer Freiheitsgrad, um Korrelationen maßzuschneidern, ergibt sich, wenn einzelne Monolagen wieder gestapelt werden [Gei13]. Dabei können nicht nur verschiedene Materialsorten kombiniert werden, sondern zusätzlich auch der Drehwinkel zwischen Monolagen angepasst werden [Kun18, Mer19, Mei23a]. Das kann unter anderem zu Bose-Einstein-Kondensation [Su08], einem Mott-Isolatorzustand [Cao18a] oder Supraleitung führen [Cao18b].

Atomar starke Felder mit Attosekunden-Stabilität

*The most fun part of my day is when I
get to play with my lasers.*

— Donna Strickland

Obwohl Vielteilchen-Wechselwirkungen also eine wichtige Rolle in der Festkörperphysik spielen [Bas11], konnte ihr Einfluss auf die Trajektorie von delokalisierten Bloch-Elektronen bisher nicht direkt in der Zeitdomäne beobachtet werden. Eine fundamentale Herausforderung besteht dabei in der niedrigen Elektronenmasse, weshalb die Elektronendynamik auf der Femtosekunden-Zeitskala oder sogar noch schneller abläuft. Deshalb sollten Signaturen von Vielteilchen-Effekten ebenfalls nur auf der Femto- oder Attosekunden-Zeitskala beobachtet werden können.

Zeitgleich ist der relevante Energiebereich für Bloch-Elektronen und ihre Wechselwirkungen typischerweise die Millielektronenvolt-Energieskala, weshalb Multi-THz-Felder bestens geeignet sind, um korrelationsbasierte Phänomene zu untersuchen. Die entscheidende Herausforderung besteht nun darin, die Attosekunden-Zeitskala mit der Millielektronenvolt-Energieskala zu kombinieren. Eigentlich sind diese Skalen aufgrund der Energie-Zeitunschärfe entkoppelt, die für gaußförmige Lichtimpulse mit spektraler Bandbreite $\Delta\nu$ (FWHM) eine Mindestimpulsdauer Δt (FWHM) gemäß

$$\Delta\nu \cdot \Delta t \geq 0.44, \tag{4.1}$$

vorschreibt. Niederenergetische Multi-THz-Felder mit Oszillationsdauern im Bereich einiger zehn Femtosekunden sind daher nicht schnell genug, um der Attosekunden-dynamik von Ladungsträgern zu folgen. Allerdings gilt die Unschärferelation nicht für den Zeitversatz zwischen zwei Lichtimpulsen, der beliebig genau eingestellt werden kann. Ein Quasiteilchenbeschleuniger, der Korrelationen in einem Festkörper untersuchen soll, nutzt demnach idealerweise erst einen NIR-Impuls, der resonant kohärente Elektron-Loch-Paare in WSe_2 anregt und dann ein intensives Multi-THz-Feld, das die Ladungsträger kollidiert. Für die notwendige zeitliche Attosekunden-Präzision müssen die Wellenform des Treiberfeldes extrem stabil und der Zeitversatz zwischen den beiden Lichtimpulsen entsprechend genau kontrollierbar sein. Das wird durch passive und aktive Stabilisierungsmechanismen erreicht und durch eine kontinuierliche Referenzierung des zeitlichen Überlapps zwischen den beiden Impulsen laufend überwacht. Die erreichte zeitliche Präzision beträgt damit wenige hundert Attosekunden. Im Folgenden wird der experimentelle Aufbau mit den zugehörigen Stabilisierungsmechanismen erläutert.

4.1. Optisch parametrischer Verstärker

Die Lichtquelle für den optischen Aufbau ist ein kommerzieller Titan-Saphir-Oszillator (Ti:Sa). Dieser emittiert mit einer Repetitionsrate von 80 MHz Lichtimpulse mit einer Zentralwellenlänge von $\lambda_c = 793 \text{ nm}$ und einer spektralen Bandbreite von $\Delta\lambda = 80 \text{ nm}$ (FWHM). Damit erreichen sie Impulsdauern von etwa 10 fs. In einem zweistufigen Ti:Sa-Verstärker wird die Impulsenergie der Oszillator-Impulse von 6 nJ auf letztendlich 5,5 mJ gesteigert. Dazu wird das Prinzip der Verstärkung gechirpter Impulse verwendet, für dessen Entwicklung der Nobelpreis in Physik 2018 an *Gérard Mourou* und *Donna Strickland* verliehen wurde [Str85]. Die Lichtimpulse aus dem Oszillator werden dafür zuerst an einem optischen Gitter zeitlich gestreckt. Dieser Schritt ist notwendig, um Schäden in nachfolgenden optischen Komponenten durch zu hohe Spitzenintensitäten vorzubeugen. In einem zweiten Schritt durchlaufen die gechirpten Impulse eine regenerative Verstärkerstufe. Dabei handelt es sich um einen optisch gepumpten Ti:Sa-Kristall in einem Spiegelresonator. Zwei Pockelszellen steuern die Ein- und Auskopplung der Impulse in den Resonator und passen dabei die Repetitionsrate des Systems auf 3 kHz an. Nach 16 Durchläufen durch

das optisch aktive Medium passiert der Lichtimpuls noch eine zweite Verstärkerstufe, in der seine Impulsenergie auf 5,5 mJ gesteigert wird. Während der Verstärkung ändert sich auch das Spektrum des Lichtimpulses, das am Ende eine Zentralwellenlänge $\lambda_c = 807 \text{ nm}$ mit einer Bandbreite $\Delta\lambda = 35 \text{ nm}$ (FWHM) aufweist. Im letzten Schritt korrigiert ein Gitterkompressor den zeitlichen Chirp des Impulses, der dann eine Impulsdauer von 31 fs erreicht.

Dieser Lichtimpuls erzeugt später das im Experiment verwendete hochintensive Multi-THz-Feld mittels Differenzfrequenzerzeugung zweier leicht verstimmter Impulse [Sel08, Kra11]. Dafür muss die Zentralwellenlänge des Verstärker-Impulses angepasst werden, was in dieser Arbeit durch einen optisch parametrischen Verstärker (englisch: *optical parametric amplifier*, kurz: OPA) erreicht wird. Genauer handelt es sich dabei um einen zweistufigen Doppel-OPA, der zwei Impulse mit unterschiedlichen Zentralwellenlängen emittiert. Abbildung 4.1 zeigt schematisch den experimentellen Aufbau, der 85 % der optischen Ausgangsleistung des Ti:Sa-Verstärkers nutzt. Zunächst wird der Verstärker-Impuls durch mehrere Strahlteiler in fünf Impulse aufgeteilt, von denen vier als Pumpimpulse für die beiden Verstärkerstufen des Doppel-OPAs fungieren. Der fünfte Impuls wird in einen Saphir-Kristall fokussiert, wo er zu zahlreichen nichtlinearen Effekten führt. Unter anderem kommt es zur Selbstfokussierung, wodurch die Spitzenintensität im Kristall sehr hohe Werte erreicht und der nichtlineare Prozess der Selbstphasenmodulation effizient abläuft [Bro99, Cou07, Pas08]. Dadurch wird das Licht spektral stark verbreitert, und ein sogenanntes *Superkontinuum*, das eine ganze optische Oktave umspannen kann, entsteht. Der folgende Zinkselenid-Kristall (ZnSe) mit hoher Dispersion chirpt das Superkontinuum. Anschließend wird das Licht durch einen Strahlteiler auf die beiden zweistufigen OPAs aufgeteilt und fungiert als Signalwelle für den nichtlinearen Prozess der parametrischen Verstärkung [Tza12, Pet10].

Dafür wird das Superkontinuum in einer ersten Stufe nichtkollinear mit einem intensiven Pumpimpuls in einen Bismuttriborat-Kristall (BiBO) fokussiert. Dadurch wird das Pumplicht in zwei spektrale Komponenten konvertiert, von denen eine mit der Photonenenergie des Signallichts übereinstimmt. Die genaue Wellenlänge des so verstärkten Teils des Superkontinuums kann einerseits durch die Phasenanpassung im doppelbrechenden BiBO-Kristall und andererseits durch den zeitlichen Überlapp zwischen Pump- und gechirptem Signallicht eingestellt werden. Der zu-

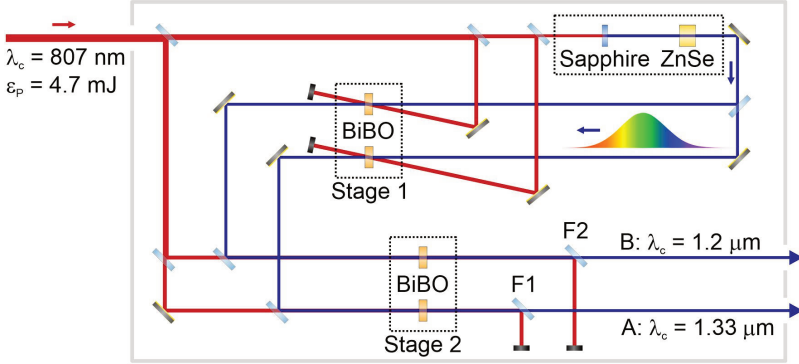


Abbildung 4.1. | Schematischer Aufbau des zweistufigen Doppel-OPAs. Vom Ti:Sa-Verstärker emittierte Lichtimpulse mit einer Zentralwellenlänge von $\lambda_c = 807 \text{ nm}$ und einer Impulsenergie von $\varepsilon_p = 4,7 \text{ mJ}$ pumpen den optisch parametrischen Verstärker. Nach mehreren Strahlteilern erzeugt ein kleiner Bruchteil des Lichts in einem Saphir-Kristall (Sapphire) ein Superkontinuum, das in einem Zinkselenid-Kristall (ZnSe) zeitlich gestreckt und anschließend auf zwei separate OPAs aufgeteilt wird. Hier werden das zuvor abgetrennte Pumplicht und das Superkontinuum nichtkollinear in einen Bismuttriborat-Kristall (BiBO) fokussiert, wodurch der mit dem Pumplicht zeitlich überlappende spektrale Teil des Superkontinuums verstärkt wird. Für OPA A liegt der verstärkte Spektralbereich bei $\lambda_c = 1,33 \mu\text{m}$ und für OPA B bei $\lambda_c = 1,2 \mu\text{m}$. Dieser Prozess wird in einer zweiten Verstärkerstufe (Stage 2) in einer kollinearen Geometrie wiederholt. Zuletzt trennen zwei dichroitische Strahlteiler (F1 und F2) das verstärkte Licht vom verbliebenen Pumplicht.

gängliche Wellenlängenbereich liegt zwischen $1,1 \mu\text{m}$ und $1,7 \mu\text{m}$. In einer zweiten Stufe wird die Signalwelle kollinear mit einem intensiven Pumpimpuls in einen weiteren BiBO-Kristall fokussiert, wodurch erneut der Prozess der optisch parametrischen Verstärkung abläuft. Nachdem spektrale Filter unerwünschtes Licht von der Signalwelle separieren, besitzt diese eine Impulsenergie von $0,4 \text{ mJ}$. In dieser Arbeit werden die OPA-Impulse konstant bei einer Zentralwellenlänge von $\lambda_c = 1,33 \mu\text{m}$ (OPA A) beziehungsweise $\lambda_c = 1,2 \mu\text{m}$ (OPA B) gehalten. Damit unterscheiden sich die Photonenenergien um 25 THz , weshalb später mittels Differenzfrequenzerzeugung hochintensive Felder im Multi-THz-Bereich generiert werden können.

4.2. Intensive, phasenstarre Multi-THz-Felder

Abbildung 4.2 zeigt schematisch den Messaufbau für die Erzeugung dieser Multi-THz-Felder. Zunächst dreht ein Periskop den Polarisationszustand des Impulses aus OPA A, sodass die beiden OPA-Impulse senkrecht zueinander polarisiert sind. Die so realisierte Typ-II-Phasenanpassung bei der Differenzfrequenzerzeugung später ist über einen breiten spektralen Bereich erfüllt. Die resultierende Multi-THz-Strahlung erreicht somit möglichst kurze Impulsdauern und damit auch sehr hohe Spitzenfeldstärken [Pas08].

Von OPA-Arm B wird ein kleiner Teil der optischen Leistung an einem Strahlteiler abgetrennt, womit später ultrakurze NIR-Impulse erzeugt werden, was Kapitel 4.3 genauer beschreibt. Ein dichroitischer Spiegel (DM) überlagert den durch den Strahlteiler transmittierten Impuls aus OPA B mit dem Impuls aus OPA A. Anschließend halbiert ein mechanischer Lichtzerhacker (C) die Wiederholrate der beiden OPA-Impulse auf 1,5 kHz. Damit kann später das elektrische Feld der erzeugten Multi-THz-Impulse per Modulationstechnik abgetastet werden. Ein Linsenteleskop verringert den Modendurchmesser der beiden OPA-Impulse, um die Effizienz der Multi-THz-Erzeugung mittels Differenzfrequenzerzeugung zu erhöhen. Diese geschieht direkt im Anschluss daran in einem 430 μm dicken Galliumselenid-Kristall (GaSe). Danach werden die eben erzeugten Multi-THz-Impulse vom verbliebenen Generationslicht durch einen Germanium-Wafer (Ge) separiert. Germanium besitzt eine Bandlücke von 160 THz und transmittiert damit die niederenergetische Multi-THz-Strahlung, während die OPA-Impulse reflektiert beziehungsweise absorbiert werden. Die isolierten Multi-THz-Impulse weisen dann eine Zentralfrequenz von $\nu_c = 25$ THz und eine Impulsenergie von $\varepsilon_P = 5 \mu\text{J}$ auf. In dieser Arbeit wird die Phasenanpassung im GaSe-Kristall so gewählt, dass die Multi-THz-Strahlung horizontal polarisiert ist.

Dieses Multi-THz-Feld kollidiert später Elektron-Loch-Paare. Damit dieser Prozess zeitaufgelöst untersucht werden kann, ist es von fundamentaler Wichtigkeit, dass sich die exakte Wellenform aufeinanderfolgender Multi-THz-Impulse nicht unterscheidet. Insbesondere muss die Träger-Einhüllenden-Phase (englisch: *carrier envelope phase*, kurz: CEP) konstant gehalten werden. Diese Voraussetzung wird dadurch erfüllt, dass die beiden OPA-Impulse aus dem gleichen Weißlicht erzeugt werden. Pha-

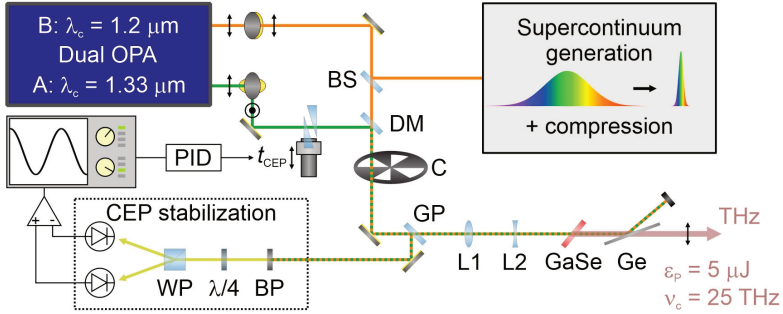


Abbildung 4.2. | Erzeugung hochintensiver, aktiv CEP-stabiler Multi-THz-Impulse. Die aus dem Doppel-OPA emittierten, horizontal polarisierten Impulse durchlaufen jeweils ein Periskop, wobei der Polarisationszustand des Lichts aus OPA A vertikal gedreht wird. Die relative optische Weglänge t_{CEP} dieses Arms im Vergleich zu OPA B kann zusätzlich noch mit Glaskeilen nanometergenau kontrolliert werden. Ein kleiner Teil der optischen Ausgangsleistung von OPA B, der an einem Strahlteiler (BS) reflektiert wird, erzeugt später ultrakurze Abtastimpulse. Der transmittierte Teil wird durch einen dichroitischen Spiegel mit dem Licht aus OPA A überlagert und zur Erzeugung der Multi-THz-Wellenformen verwendet. Dazu wird der Modendurchmesser über ein Linsenteleskop (L1 und L2) verkleinert, was die Konversionseffizienz der Differenzfrequenzerzeugung in einem $430 \mu\text{m}$ dicken Galliumselenid-Kristall (GaSe) erhöht. Die so erzeugte Multi-THz-Strahlung mit einer Zentralfrequenz von $\nu_c = 25 \text{ THz}$ und einer Impulsenergie von $\epsilon_P = 5 \mu\text{J}$ wird dann noch durch einen Germanium-Wafer (Ge) von den beiden OPA-Impulsen getrennt. Für die aktive Stabilisierung der CEP der Multi-THz-Wellenform spaltet ein Glasplättchen (GP) einen Bruchteil der beiden senkrecht zueinander polarisierten OPA-Impulse ab und analysiert den Polarisationszustand ihres spektralen Überlapps mit einem Bandpassfilter (BP), einem $\lambda/4$ -Plättchen und einem Wollaston-Prisma (WP). Dieses Signal speist einen Regler, der dann den relativen Zeitversatz t_{CEP} anpasst.

senfluktuationen der Ti:Sa-Verstärker-Impulse wirken sich somit auf beide OPA-Impulse gleichermaßen aus und bei der Differenzfrequenzerzeugung kürzen sie sich, was die resultierende Multi-THz-Strahlung passiv phasenstarr macht.

Für ultimativ präzise Messungen mit Attosekunden-Stabilität wird der relative Zeitversatz der beiden OPA-Impulse und damit die CEP der Multi-THz-Impulse aller-

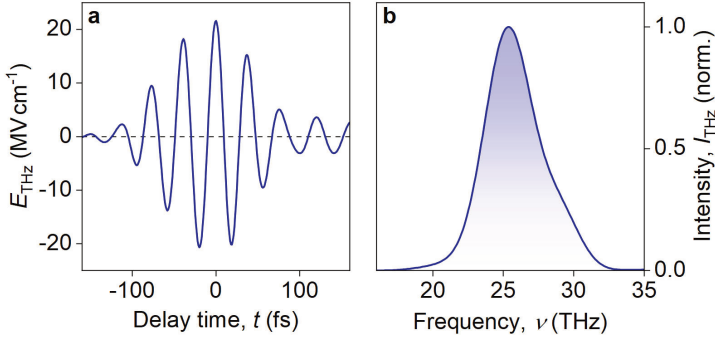


Abbildung 4.3. | Multi-THz-Wellenform und Frequenzspektrum. a, Elektro-optisch aufgezeichneter zeitlicher Verlauf des elektrischen Feldes des Multi-THz-Impulses mit einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 21,6 \text{ MV cm}^{-1}$ und einer Impulsdauer von $\tau_{\text{THz}} = 100 \text{ fs}$. b, Das zugehörige Intensitätsspektrum ist um $\nu_c = 25 \text{ THz}$ zentriert.

dings noch zusätzlich durch eine aktive Stabilisierung mit interferometrischer Genauigkeit kontrolliert. Die zugehörige Technik wurde zusammen mit *Manuel Meierhofer*, *Simon Maier*, *Dmytro Afanasiev*, *Josef Riepl*, *Jakob Helml*, *Christoph Schmid* und *Rupert Huber* speziell für diesen Aufbau entwickelt und in *Optics Letters* publiziert [Mei23b]. Für diese aktive Stabilisierung werden nach der räumlichen Überlagerung der beiden OPA-Impulse 3% der optischen Leistung mit einem Glasplättchen ausgekoppelt. Obwohl die beiden Impulse leicht verstimmt zueinander sind, besitzen sie einen kleinen spektralen Überlapp bei 1250 nm, den ein Bandpassfilter transmittiert. Da die beiden OPA-Impulse senkrecht zueinander polarisiert sind, hängt der Polarisationszustand des überlagerten Feldes vom genauen Zeitversatz t_{CEP} zwischen ihnen ab. Ein $\lambda/4$ -Plättchen, ein Wollaston-Prisma und zwei balancierte Dioden ermitteln laufend die Elliptizität des Signals. Unterschiedlich lange optische Weglängen der beiden OPA-Impulse werden so mit interferometrischer Präzision detektiert. Ausgehend davon steuert ein PID-Regler einen piezoelektrischen Verfahrweg, der einen Glaskeil in den Strahlengang von OPA A fährt, und so Unterschiede in den optischen Weglängen korrigiert. Fluktuationen im relativen Zeitversatz zwischen den beiden OPA-Impulsen, die sich als Fluktuationen auf die CEP der erzeugten Multi-THz-

Wellenform übersetzen würden, werden damit um eine Größenordnung auf 18 mrad reduziert. Bei einer Zentralfrequenz von 25 THz der Multi-THz-Impulse entspricht das einer erreichbaren zeitlichen Stabilität von 18 as [Mei23b].

Die Wellenform des Multi-THz-Impulses kann stroboskopisch mittels elektro-optischer Detektion (englisch: *electro-optic sampling*, kurz: EOS) abgetastet werden (siehe Abschnitt 4.4). Die in dieser Arbeit verwendete Multi-THz-Wellenform ist in Abb. 4.3a gezeigt. Sie erreicht eine Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 21,6 \text{ MV cm}^{-1}$, weist eine Impulsdauer von $\tau_{\text{THz}} = 100 \text{ fs}$ auf und besteht aus 2,5 Schwingungen. Abbildung 4.3 zeigt das zugehörige, um $\nu_c = 25 \text{ THz}$ zentrierte Intensitätsspektrum. Diese langsam oszillierende, hochintensive Wellenform ist perfekt geeignet, um Ladungsträger in Halbleitern zu beschleunigen. Damit deren Dynamik zeitlich untersucht werden kann, wird noch ein zweiter Lichtimpuls benötigt, der kohärente Elektron-Loch-Paare zu einem fest definierten Zeitpunkt anregt. Deshalb muss der zweite Lichtimpuls resonant zur optischen Bandlücke eines WSe₂-Volumenkristalls beziehungsweise einer Monolage gewählt werden können. Außerdem muss seine Impulsdauer kürzer als ein Halbzyklus des Multi-THz-Feldes sein, um Subzyklen-Zeitauflösung zu gewährleisten. Im Folgenden wird die Erzeugung ultrakurzer NIR-Impulse beschrieben, die diese beiden Bedingungen erfüllen.

4.3. Ultrakurze NIR-Impulse

Bei einer Zentralfrequenz von 25 THz der Multi-THz-Impulse erfordert Subzyklen-Zeitauflösung eine Impulsdauer der Anregeimpulse von weniger als 20 fs. Idealerweise sollten die Impulse für eine bessere Zeitauflösung aber noch kürzer sein. Die Energie-Zeit-Unschärfe schreibt wie anfangs beschrieben ein minimales Zeit-Bandbreite-Produkt von $\Delta t \cdot \Delta \nu \geq 0,44$ für gaußförmige Impulse vor [Laz95]. Konkret müssen 10 fs (FWHM) kurze Impulse eine Bandbreite von mindestens 180 meV (FWHM) aufweisen, was die Bindungsenergie von Exzitonen in einem WSe₂-Volumenkristall deutlich übersteigt (vgl. Abb. 3.4). Um in den Experimenten dieser Arbeit dennoch überwiegend nur 1s-Exzitonen anzuregen, wird das Spektrum der Anregeimpulse so gewählt, dass das kurzwellige Ende gerade noch die exzitonische 1s-Resonanz überspannt. Zu langen Wellenlängen hin wird das Spektrum so stark verbreitert, dass der Impuls möglichst kurze Impulsdauern erreicht.

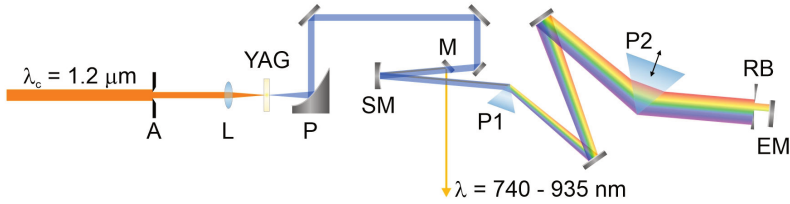


Abbildung 4.4. | Erzeugung ultrakurzer NIR-Impulse. Ein Teil der optischen Leistung aus OPA B mit einer Zentralwellenlänge von $\lambda_c = 1,2\mu\text{m}$ wird mit einer Linse (L) in einen 2 mm dicken Yttrium-Aluminium-Granat-Kristall (YAG) fokussiert. Die Impulsenergie und Fokusbedingung werden mit einer Blende (A) kontrolliert. Im YAG-Kristall kommt es zur Selbstfokussierung und Selbstphasenmodulation, wodurch ein Superkontinuum erzeugt wird. Dieses wird mit einem Parabolspiegel kollimiert und mit einem sphärischen Spiegel (SM) in einen Prismenkompressor aus zwei Quarzglasprismen (P1 und P2) fokussiert. Die Kompression des Superkontinuums wird über die Position des Prismas P2 kontrolliert. Außerdem kann über Rasierklingen (RB) das Spektrum des Superkontinuums nach Wunsch zugeschnitten werden. Nach einem Spiegel (EM) in der Fourier-Ebene durchläuft das Licht die Prismen in umgekehrter Reihenfolge mit leichtem vertikalen Versatz, sodass die komprimierten NIR-Impulse mit einem D-förmigen Spiegel (M) ausgekoppelt werden können.

Für das benötigte breitbandige Spektrum wird wie in Abschnitt 4.1 ein Superkontinuum erzeugt [Alf06, Cou07]. Als Generationslicht dient ein kleiner Teil der optischen Leistung von OPA B, den ein Strahlteiler absplattet (vgl. Abschnitt 4.2). Das Licht wird dann in einen Yttrium-Aluminium-Granat-Kristall (YAG) mit einer Dicke von 2 mm fokussiert (siehe Abb. 4.4). Eine Irisblende (A) reduziert dabei die Impulsenergie auf $0,5\mu\text{J}$ und passt den Modendurchmesser an, bevor eine Linse (L) das Licht in den Kristall fokussiert. Im YAG-Kristall kommt es zur spektralen Verbreiterung des Generationslichts durch Selbstfokussierung und Selbstphasenmodulation. Im Gegensatz zum OPA, bei dem Saphir für die Weißlichterzeugung verwendet wird (vgl. Abschnitt 4.1), wird hier YAG genutzt, da es eine effizientere Erzeugung spektraler Anteile im NIR-Bereich ermöglicht [Bra09]. Das breitbandige Superkontinuum wird mit einem Parabolspiegel kollimiert und muss anschließend noch auf eine möglichst kurze Impulsdauer komprimiert werden. Dazu fokussiert es ein sphärischer

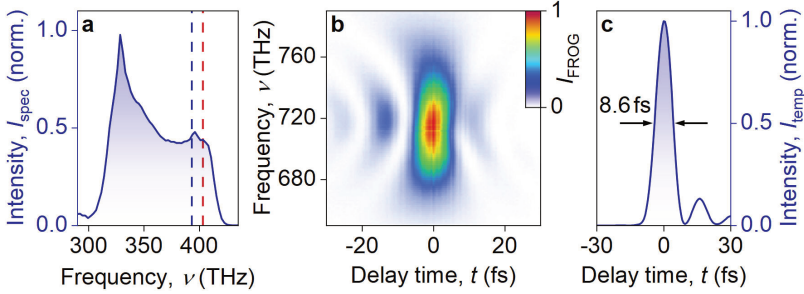


Abbildung 4.5. | Ultrakurzer NIR-Impuls in Zeit- und Frequenzdomäne. **a**, Intensitätsspektrum der NIR-Impulse, das auf den Frequenzbereich 320 THz - 413 THz zugeschnitten wurde. Die hochenergetische Grenze ist dabei so gewählt, dass die 1s-Exzitonen-Resonanzen des WSe₂-Volumenkristalls (blau gestrichelt, vgl. Abb. 3.4c) und der Monolage (rot gestrichelt) überspannt werden. **b**, Gemessenes SHG-FROG-Spektrogramm als Funktion der Verzögerungszeit t und der Frequenz ν . Die spektrale Intensität ist als Farbskala gezeigt. **c**, Rekonstruierter zeitlicher Verlauf der Intensitätseinhüllenden mit einer Halbwertsbreite von $\tau_{\text{NIR}} = 8,6$ fs.

Spiegel (SM) in einen Prismenkompressor, der aus zwei Quarzglas-Prismen (P1 und P2) besteht. In der Fourier-Ebene befinden sich zudem zwei Rasierklängen (RB), mit denen das Superkontinuum spektral nach Wunsch zugeschnitten werden kann. Im Fokus des sphärischen Spiegels steht der Endspiegel des Kompressors (EM), wodurch das räumlich aufgefächerte Weißlicht die beiden Prismen in umgekehrter Reihenfolge durchläuft und die verschiedenen spektralen Anteile wieder räumlich überlagern. Indem der Endspiegel leicht vertikal verkippt im Strahlengang steht, trifft der rücklaufende Impuls tiefer auf den sphärischen Spiegel und kann mit einem zusätzlichen Spiegel (DM) ausgekoppelt werden.

Die beiden Rasierklängen in der Fourier-Ebene des Prismenkompressors schneiden das Spektrum des NIR-Impulses auf den Bereich zwischen 320 und 413 THz (FWHM) zu (siehe Abb. 4.5a). Damit überdeckt der hochenergetische Teil des NIR-Spektrums gerade noch die optische Bandlücke der WSe₂-Monolage (rot gestrichelt) und des Volumen kristalls (blau gestrichelt). In der Monolage werden dadurch ausschließlich 1s-Exzitonen angeregt. Durch die niedrigere exzitonische Bindungsenergie im Volumen kristall und den dadurch verringerten energetischen Abstand verschiedener

exzitonischer Resonanzen werden hier auch höhere Zustände wie das $2s$ -Exziton angeregt. Wegen der geringeren Oszillatorstärke dieser angeregten Zustände liegen aber dennoch hauptsächlich $1s$ -Exzitonen im Volumenkristall vor.

Das Spektrum des NIR-Impulses mit einer Bandbreite von 93 THz (FWHM) ermöglicht eine Impulsdauer (FWHM) von unter 10 fs, was mittels einer frequenz aufgelösten Autokorrelation bei der zweiten Harmonischen (englisch: *second-harmonic generation frequency-resolved optical gating*, kurz: SHG-FROG) überprüft wird [Tre97, Kan93]. Dazu wird der ultrakurze NIR-Impuls in zwei identische Impulse aufgeteilt und diese überkreuzend in einen 50 μm dicken β -Bariumborat-Kristall fokussiert. In diesem Kristall kommt es zur Erzeugung der zweiten Harmonischen. Indem der Zeitversatz zwischen den beiden identischen Impulsen variiert wird, entsteht zudem bei zeitlichem Überlapp ein Mischsignal aus den beiden Impulsen, das ebenfalls bei der zweiten Harmonischen auftritt und spektral aufgelöst als Funktion des Zeitversatzes in Abb. 4.5b gezeigt ist. Ein iterativer Rekonstruktionsalgorithmus berechnet aus diesem Spektrogramm den zeitlichen Verlauf des ursprünglichen Impulses [Gei19]. Der in dieser Arbeit verwendete NIR-Impuls besitzt eine Impulsdauer von $\tau_{\text{NIR}} = 8,6 \text{ fs}$ (FWHM) und ist damit kurz genug, um Subzyklen-Zeitauflösung bei dem Treiberfeld aus Abschnitt 4.2 zu erreichen. Zusammen mit dem maßgeschneiderten Spektrum, das gezielt nur einzelne elektronische Resonanzen sowohl im WSe_2 -Volumenkristall als auch in der Monolage anregt, ist dieser NIR-Impuls das perfekte Werkzeug, um Bloch-Elektronen auf geschlossene Quantentrajektorien mit präzise definierten Startparametern zu schicken. Damit kann die Dynamik von Elektronen nun mit Attosekunden-Präzision vermessen werden.

4.4. Kontrolle der Ladungsträgerdynamik mit Attosekunden-Präzision

Abbildung 4.6 zeigt schematisch den Messaufbau zur Lichtwellen-Beschleunigung von Bloch-Elektronen in Halbleitern. Zuerst spaltet ein Strahlteiler (BS) einen Teil der optischen Leistung des NIR-Impulses ab, da später eine Kopie des NIR-Impulses zur Kontrolle der zeitlichen Stabilität des Aufbaus benötigt wird. Der am Strahlteiler reflektierte ultrakurze NIR-Impuls regt kohärente Exzitonen in WSe_2 zu einem

scharf definierten Zeitpunkt an. Dafür durchläuft er zunächst noch einen variablen Neutraldichte-Filter (ND), was die Lichtintensität und damit die angeregte Ladungsträgerdichte in der Probe reguliert. Mit einer Verzögerungsstrecke wird zudem der Zeitpunkt der Ladungsträgeranregung t_{ex} und mit einem Dünnpolarisator sowie einem $\lambda/4$ -Plättchen der Polarisationszustand des NIR-Impulses eingestellt.

Der Multi-THz-Impuls mit passiv und aktiv stabilisierter CEP durchläuft zwei drehbare Polarisatoren, die die Spitzenfeldstärke regeln. An einem mit Indiumzinnoxid beschichteten Quarzglasfenster wird er anschließend reflektiert. Der NIR-Impuls wird durch dieses Fenster transmittiert und somit mit dem Multi-THz-Impuls räumlich überlagert. Ein Parabolspiegel mit einer Brennweite von 5 cm fokussiert dann beide Impulse auf die Probe. Die Halbwertsbreite der Intensitätsverteilung der Multi-THz-Impulsmode beträgt im Fokus $60\,\mu\text{m}$ und ist damit größer als die des NIR-Impulses mit $22\,\mu\text{m}$. Im Probenfokus befindet sich entweder ein 500 nm dicker Galliumselenid-Kristall, mit dem die Multi-THz-Wellenform elektro-optisch abgetastet werden kann, oder ein WSe_2 -Kristall, in dem Elektron-Loch-Kollisionen zur Emission von HSG-Strahlung führen. Beide Kristalle befinden sich auf demselben Diamantsubstrat, das ein zweidimensional motorgesteuerter Verstell Tisch mit Mikrometer-Präzision in der Fokalebene positioniert. Die Probe steht dabei senkrecht im Strahlengang und wird bei Raumtemperatur gehalten. Ein zweiter Parabolspiegel kollimiert das transmittierte Multi-THz- und NIR-Licht sowie die erzeugte HSG-Strahlung. Anschließend transmittiert ein erster Germanium-Wafer den Multi-THz-Impuls, während er das übrige Licht reflektiert. Letzteres teilt ein dichroitischer Spiegel mit einer Grenzwellenlänge von 650 nm weiter auf: Der NIR-Impuls mit seinem Spektrum zwischen 740 nm und 935 nm wird für EOS genutzt. Dafür wird dessen Polarisationszustand mit einem $\lambda/4$ -Plättchen und einem Wollaston-Prisma mittels balancierter Detektion vermessen und so die Multi-THz-Wellenform bestimmt [Kno17]. Dabei wird auch die Detektorantwort des GaSe-Kristalls korrigiert. Die hochenergetische HSG-Strahlung wird dagegen in ein Spektrometer eingekoppelt, das aus einem Beugungsgitter und einer auf $-80\,^\circ\text{C}$ gekühlten Kamera besteht. Da das Gitter verschiedene Wellenlängen unterschiedlich stark reflektiert und die Silizium-basierte Kamera auf verschiedene Photonenenergien unterschiedlich empfindlich reagiert, wurden alle in dieser Arbeit gezeigten Spektren auf die Beugungseffizienz des Gitters und die Detektorantwort der Kamera korrigiert.

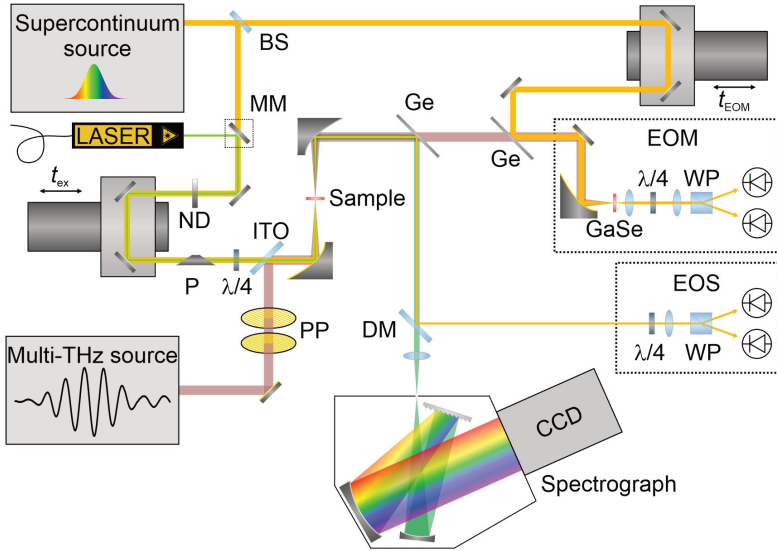


Abbildung 4.6. | Aufbau zur Attosekunden-Kontrolle von Ladungsträgern in Festkörpern. Der breitbandige NIR-Impuls wird an einem Strahlteiler (BS) in zwei Kopien aufgeteilt. Intensität, Zeitversatz t_{ex} und Polarisationszustand des am Strahlteiler reflektierten Anregimpulses können mit einem Neutraldichtefilter (ND), einer Verzögerungsstrecke, und einem Dünnschichtpolarisator (P) sowie einem $\lambda/4$ -Plättchen eingestellt werden. Danach werden NIR-Impuls und Multi-THz-Feld durch ein mit Indiumzinnoxid beschichtetes Quarzglasfenster (ITO) überlagert. Zwei Golddraht-Polarisatoren erlauben die Kontrolle über die Spitzenfeldstärke des Multi-THz-Impulses, bevor ihn ein Parabolspiegel zusammen mit dem NIR-Impuls auf die Probe fokussiert. Ein zweiter Parabolspiegel kollimiert die beiden Impulse nach dem Fokus sowie die in der Probe erzeugte HSG-Strahlung. Germanium-Wafer und ein dichroitischer Spiegel separieren verschiedene Teile dieses Lichts. Die HSG-Strahlung wird in einem Spektrometer mit einer Silizium-basierten CCD spektral aufgelöst. Für EOS wird ein GaSe-Kristall in den Probenfokus gesetzt und der Polarisationszustand des NIR-Impulses mit einem $\lambda/4$ -Plättchen und einem Wollaston-Prisma (WP) analysiert. Die Stabilität der Multi-THz-Wellenform wird per elektro-optischer Detektion überwacht (EOM). Dazu wird der Multi-THz-Impuls mit dem am Strahlteiler BS transmittierten und um t_{EOM} verzögerten Abtastimpuls überlagert und in einen GaSe-Kristall fokussiert. Mit einem 532 nm-Dauerstrich-Laser (LASER) können Transmission und Photolumineszenz der WSe_2 -Probe im Fokus gemessen werden.

Um Attosekunden-Präzision zu gewährleisten, müssen sämtliche potentielle zeitlichen Instabilitäten aus dem Messaufbau beseitigt werden. Wie in Abschnitt 4.2 gezeigt, ist die CEP der Multi-THz-Wellenform passiv phasenstarr, was Fluktuationen zwischen zwei Laserschüssen ausschließt. Langsamere Schwankungen der CEP werden zudem durch die bereits beschriebene, aktive interferometrische Stabilisierung unterdrückt [Mei23b]. Für Attosekunden-Präzision muss allerdings auch zusätzlich der zeitliche Versatz zwischen NIR-Impuls, der die Elektron-Loch-Paare anregt, und Multi-THz-Impuls, der sie dann auf geschlossene Quantentrajektorien zwingt, präzise eingestellt und während einer Messreihe stabil gehalten werden. Da eine Messreihe mehrere Stunden dauern kann, muss der zeitliche Überlapp zwischen NIR- und Multi-THz-Impuls laufend überwacht werden. Dafür wird der Teil des NIR-Impulses, der am ersten Strahlteiler (BS) transmittiert wurde, über eine separate Verzögerungsstrecke geführt, die den Zeitversatz t_{EOM} einstellt. Ein Germanium-Wafer überlagert den NIR-Impuls mit dem Multi-THz-Impuls nach dem Probenfokus und ein Parabolspiegel fokussiert beide Impulse in einen weiteren 5 μm dicken GaSe-Kristall. Ein $\lambda/4$ -Plättchen, ein Wollaston-Prisma und zwei balancierte Photodioden lösen den Polarisationszustand des NIR-Impulses auf. Die Multi-THz-Wellenform kann so durch Variation des Zeitversatzes t_{EOM} elektro-optisch abgetastet werden. Im Gegensatz zu EOS im Probenfokus ist diese Form der elektro-optischen Referenzierung (englisch: *electro-optic monitoring*, kurz: EOM) der Multi-THz-Wellenform auch möglich, wenn sich gerade ein WSe_2 -Kristall im Probenfokus befindet. Aus diesem Grund kann damit die zeitliche Stabilität fortlaufend evaluiert werden, auch wenn währenddessen ein HSG-Spektrum aufgenommen wird.

Während im ersten Probenfokus eine einzige HSG-Messung läuft, wird damit eine Vielzahl an Transienten im zweiten Fokus erfasst (siehe Abb. 4.7a). Im gezeigten Fall dauerte die HSG-Messung etwa eine Stunde und in dieser Zeit wurden 31 Wellenformen per EOM aufgezeichnet. Die Transienten zeigen keine erkennbare zeitliche Verschiebung. Deshalb ist davon auszugehen, dass auch im Probenfokus, wo HSG-Spektren gemessen werden, der Zeitversatz zwischen Multi-THz- und NIR-Impuls präzise eingestellt werden konnte. Um das quantitativ zu bestimmen, werden die per EOM gemessenen Wellenformen durch eine Modellwellenform angepasst und daraus deren zeitliche Verschiebung Δt_{EOM} während der HSG-Messung bestimmt (siehe Abb. 4.7b). Über den Zeitraum einer Stunde zeigt der so ermittelte zeitliche

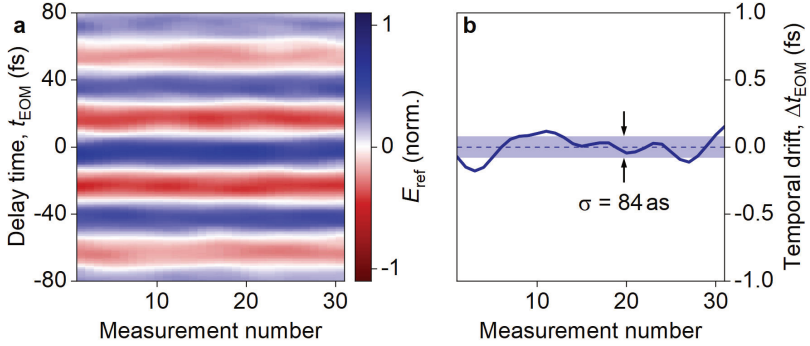


Abbildung 4.7. | Attosekunden-Stabilität des Versuchsaufbaus. a, Wasserfallplot der per EOM aufgenommenen Multi-THz-Wellenformen für 31 aufeinanderfolgende Messungen. Das elektrische Feld der Multi-THz-Impulse ist als Farbskala dargestellt. b, Durch numerisches Anpassen der Multi-THz-Wellenformen aus a extrahierte zeitliche Verschiebung Δt_{EOM} zwischen den 31 Messungen. Der Zeitversatz Δt_{EOM} weist eine Standardabweichung von 84 as auf (blau schattierter Bereich), was dem optischen Aufbau Attosekunden-Präzision bescheinigt [Fre22].

Nullpunkt eine Standardabweichung von 84 as. Also können mit dem optischen Aufbau zeitliche Verschiebungen auf der Attosekunden-Zeitskala aufgelöst werden.

Diese Genauigkeit wird allerdings nur erreicht, wenn der optische Aufbau nicht durch äußere Einflüsse gestört wird. Außerdem muss für die Reproduzierbarkeit der Messungen die Probe präzise im Fokus positioniert werden können, um Messartefakte, beispielsweise durch Inhomogenitäten der verwendeten Kristalle, auszuschließen. Aus diesen Gründen wird die Probe im Fokus mit einem motorisierten Positioniertisch mit Mikrometer-Präzision bewegt. Um weiter die HSG-Emission verschiedener Kristalle quantitativ miteinander vergleichen zu können und zeitliche Verschiebungen durch die Gouy-Phase zu unterdrücken, müssen diese auch in die exakt gleiche longitudinale Position gebracht werden. Dazu wird ein WSe₂-Kristall verwendet, der sowohl aus atomar dünnen als auch dickeren Bereichen besteht (siehe Abb. 4.8a). Der Kristall wird auf ein Diamantsubstrat aufgebracht und mittels Rasterkraftmikroskopie die Dicke der verschiedenen Bereiche bestimmt. Dabei besitzt der Volumenkristall Regionen mit einer Dicke von 60 nm (siehe Abb. 4.8a, bläulicher Bereich

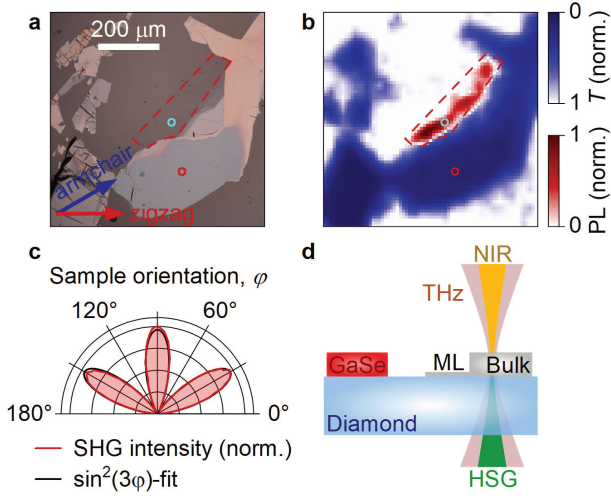


Abbildung 4.8. | Charakterisierung der verwendeten WSe₂-Probe. a, Optisches Mikroskopbild der exfolierten Probe auf einem Diamantsubstrat. Rot gestrichelt ist die Kontur der Monolage eingezeichnet. Der rote und blaue Punkt markieren die Stellen, auf denen die Messungen in Kapitel 5 durchgeführt wurden und entsprechen dem Durchmesser des Anregeimpulses im Fokus. **b,** Transmission (blaue Farbskala) sowie Photolumineszenz (rote Farbskala) der Probe unter Verwendung eines 532 nm-Lasers, um Volumenkristall und Monolage zu identifizieren. **c,** SHG-Emission der WSe₂-Monolage in Abhängigkeit vom Probenwinkel φ . Dargestellt ist die SHG-Intensität (rot) parallel zum einfallenden NIR-Licht mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm. Die schwarze Linie zeigt eine Fitfunktion der Form $\sin^2(3\varphi)$. **d,** Schematischer Querschnitt der Probe. Volumenkristall (Bulk) und Monolage (ML) befinden sich direkt nebeneinander auf einem Diamantsubstrat (Diamond). NIR- und Multi-THz-Impuls treffen senkrecht auf die Probe, wodurch HSG-Strahlung emittiert wird, die zusammen mit den beiden einlaufenden Lichtfeldern durch das Substrat transmittiert wird.

unten) als auch mit einer Dicke von 25 nm (rötlicher Bereich rechts). Für die Identifikation der Monolage (rot eingegrenzter Bereich) wird ausgenutzt, dass sie im Gegensatz zum WSe₂-Volumenkristall eine direkte Bandlücke aufweist und damit auch messbare Photolumineszenz. Indem die Probe mit einem 532 nm-Dauerstrich-Laser

(siehe Abb. 4.6) bestrahlt wird, kann so die Monolage gefunden werden. Die starke Photolumineszenz-Signatur (siehe Abb. 4.8b) deutet ebenfalls auf eine hohe Probenqualität hin. Für die Charakterisierung der WSe₂-Monolage hat *Kai-Qiang Lin* aus der Gruppe von *John Lupton* außerdem die Hochsymmetrierichtungen des Kristalls mittels SHG identifiziert. Dazu wurde NIR-Licht auf die Monolage fokussiert und die Erzeugungseffizienz der resultierenden zweiten Harmonischen polarisationsaufgelöst detektiert (siehe Abb. 4.8c). Ist das NIR-Licht entlang der *zigzag*-Richtung polarisiert, tritt keine SHG-Emission parallel dazu auf [Li13]. Die so identifizierten Hochsymmetrierichtungen der WSe₂-Monolage sind in Abb. 4.8a eingezeichnet. Der WSe₂-Volumenkristall zeigt weder messbare Photolumineszenz noch ein SHG-Signal, absorbiert aber das 532-nm-Laserlicht, sodass dieser Teil des Kristalls anhand der Transmission des Dauerstrichlasers gefunden werden kann (siehe Abb. 4.8b). Ein Vergleich von Photolumineszenz und Transmission des WSe₂-Kristalls mit dem Mikroskopbild (siehe Abb. 4.8a) erlaubt eine eindeutige Identifikation der Monolage und von Bereichen des Volumenkristalls unterschiedlicher Dicke.

Mit einer Abmessung von $70\text{ }\mu\text{m} \times 400\text{ }\mu\text{m}$ bietet die Monolage ausreichend Platz, dass der $22\text{ }\mu\text{m}$ messende NIR-Impuls im Fokus nur die Monolage ausleuchtet (siehe Abb. 4.8a und b, blauer Kreis). Auf dem Volumenkristall wurde für die Messungen ein Punkt $200\text{ }\mu\text{m}$ von der Monolage entfernt gewählt, an dem der Volumenkristall 60 nm dick ist (siehe Abb. 4.8a und b, roter Kreis). Das Diamantsubstrat, auf dem der WSe₂-Kristall liegt, befindet sich senkrecht im Strahlengang.

Der Querschnitt der verwendeten Probe ist in Abb. 4.8d schematisch dargestellt. WSe₂-Volumenkristall (Bulk) und Monolage (ML) befinden sich als Teil eines einzelnen Kristalls direkt nebeneinander auf einem Diamantsubstrat. Daneben befindet sich auf demselben Diamantsubstrat ein 500 nm dicker GaSe-Kristall, der für die EOS-Messung der Multi-THz-Wellenform im Probenfokus verwendet wird. NIR- und Multi-THz-Impuls treffen senkrecht auf die Probe. Die im WSe₂-Kristall erzeugte HSG-Strahlung wird durch das darunterliegende Diamantsubstrat transmittiert und kann spektral analysiert werden. Das verbleibende Multi-THz-Licht wird ebenfalls transmittiert und kann per EOM stroboskopisch abgetastet werden. Für den Fall, dass die Multi-THz-Wellenform im Probenfokus vermessen werden soll, wird der GaSe-Kristall in den Fokus gefahren und der Polarisationszustand des transmittierten NIR-Impulses für EOS aufgelöst.

Attosekunden-Stoppuhr für Kristalle

Nicht das Ziel allein ist wichtig.

— Sebastian Kienle

Der eben beschriebene Versuchsaufbau erlaubt es, den Einfluss von Vielteilchen-Korrelationen auf die Trajektorie von delokalisierten Bloch-Elektronen in Festkörpern direkt in der Zeitdomäne mit Attosekunden-Präzision zu untersuchen. Durch den Vergleich der HSG-Emission eines WSe_2 -Volumenkristalls und einer Monolage können zeitliche Verschiebungen in der Subzyklendynamik von korrelierten Elektron-Loch-Paaren mit einer Genauigkeit von 300 as aufgelöst werden. Das entspricht 0,7 % der Oszillationsdauer des Multi-THz-Treiberfeldes. Die in der Monolage verstärkten Coulomb-Korrelationen führen zu einem zeitlichen Versatz des optimalen Injektionszeitpunktes der Ladungsträgerpaare von $1,2 \pm 0,3$ fs. Weiterhin beeinflussen die Treiberfeldstärke und Quanteneigenschaften wie der Valley-Pseudospin die Dynamik der Ladungsträger. Die Experimente wurden in Zusammenarbeit mit *Manuel Meierhofer, Dmytro Afanasiev, Christoph Schmid, Fabian Sandner, Marlene Liebich, Anna Schmid, Matthias Knorr* und *Rupert Huber* an der *Universität Regensburg* durchgeführt. Die zugehörigen Simulationen stammen von *Markus Borsch* und *Mackillo Kira* von der *University of Michigan*. Die gezeigten Ergebnisse wurden in *Nature* publiziert [Fre22]. Teile der Abbildungen und der Interpretation der Ergebnisse stammen aus dieser Publikation.

5.1. Attosekundenchronoskopie von Bloch-Elektronen

Abbildung 5.1a zeigt schematisch das Messprinzip, das auf Lichtwellen-getriebenen Quasiteilchenkollisionen beruht. Aufbauend auf Kapitel 2 sind hier die Kollisions-trajektorien im Phasenraum dargestellt. Zuerst regt ein resonanter NIR-Impuls zu einer variabel einstellbaren Verzögerungszeit t_{ex} kohärente Elektron-Loch-Paare in einem Halbleiter an. Ein intensives Multi-THz-Treiberfeld (graue Fläche) dient als ultraschnelle Vorspannung und beschleunigt Elektron (blaue Kugel) und Loch (rote Kugel) auseinander. Im Phasenraum wachsen deshalb der Abstand x zwischen den Ladungsträgern sowie deren Wellenvektor k an. Nach einer gewissen Zeit t_{in} nach Erzeugung des Elektron-Loch-Paares ändert sich die Polarität des Treiberfeldes und der Wellenvektor der Ladungsträger wird kleiner. Für einen guten Injektionszeitpunkt t_{ex} , beispielsweise kurz vor einem Nulldurchgang des Treiberfeldes, kann der Wellenvektor negative Werte annehmen, sodass auch der Abstand zwischen Elektron und Loch wieder sinkt. Treffen Elektron und Loch dabei wieder aufeinander, kommt es bei $x = 0$ zur Kollision (blaue Trajektorie). Voraussetzung hierfür ist zusätzlich, dass die exzitonische Kohärenz die Zeitspanne T_{coll} zwischen Injektion und Kollision überdauert. Die Ladungsträger kollidieren zwar bei $x = 0$, allerdings ist zu diesem Zeitpunkt der Kristallimpuls $\hbar k$ im Allgemeinen ungleich null. Die Ladungsträger kollidieren also mit einer endlichen kinetischen Energie. Diese wird bei der Rekombination von Elektron und Loch zusätzlich zur Anregungsenergie des Exzitons als hochenergetische HSG-Strahlung emittiert (vgl. Gleichung 2.8).

Wie in Kapitel 2 gezeigt, hängt die Dynamik der Elektron-Loch-Paare empfindlich von der Phase des Treiberfeldes ab, zu der sie injiziert werden und zu der dadurch ihre Trajektorie startet. Werden Exzitonen beispielsweise kurz nach einem Feldnullobergang des Multi-THz-Impulses angeregt (schwarze Trajektorie), werden Elektron und Loch innerhalb des ersten Halbzyklus zu weit auseinander beschleunigt, als dass sie der nachfolgende Teil des Multi-THz-Feldes mit gespiegelter Polarität zur Kollision bringen könnte. In diesem Fall entfernen sich Elektron und Loch immer weiter voneinander und die Kollisionsbedingung $x = 0$ ist nicht erfüllt. Die zugehörige Trajektorie wird also nie geschlossen. Während der Lebensdauer des Exzitons kommt es daher nicht zur Kollision und es wird keine HSG-Strahlung emittiert.

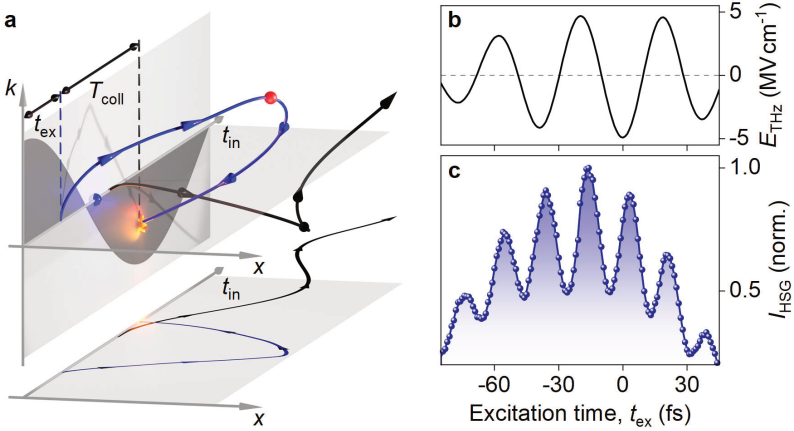


Abbildung 5.1. | Elektron-Loch-Kollisionen für freie Ladungsträger. **a**, Schematische Phasenraum-Trajektorien. Kohärente Elektron-Loch-Paare werden zur Zeit t_{ex} erzeugt und von der Multi-THz-Wellenform (graue Fläche) beschleunigt. Dadurch ändert sich ihr relativer Abstand x und Kristallimpuls $\hbar k$. Startet die Trajektorie der Ladungsträger kurz vor einem Nulldurchgang des Treiberfeldes können Elektron und Loch nach einer Zeit T_{coll} bei $x = 0$ rekombinieren (blaue Trajektorie), was zur Emission von HSG-Strahlung führt. Ladungsträger, die kurz nach einem Feldnulldurchgang injiziert werden, erfüllen die Bedingung $x = 0$ nicht und kollidieren daher auch nicht (schwarze Trajektorie). Unten ist die Projektion der Trajektorien auf die x - t_{in} -Ebene gezeigt. **b**, Verwendetes Treiberfeld mit einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$. **c**, Zwischen den Photonenenergien 2,0 und 2,64 eV spektral integrierte HSG-Emission eines 60 nm dicken WSe_2 -Volumenkristalls (Datenpunkte) als Funktion der Injektionszeit t_{ex} . Die durchgezogene Linie zeigt eine quadratische Regression.

Im Experiment (vgl. Kapitel 4) werden $1s$ -A-Exzitonen in einem 60 nm dicken WSe_2 -Volumenkristall durch einen resonanten NIR-Impuls mit einer Impulsdauer von $\tau_{\text{NIR}} = 8,6 \text{ fs}$ und einem Fluss von $\Phi_{\text{NIR}} = 14 \mu\text{J cm}^{-2}$ angeregt. Dadurch werden Elektron-Loch-Paare zu einem scharf definierten Zeitpunkt erzeugt und starten durch den direkten Übergang am K- beziehungsweise K'-Punkt mit wohldefiniertem Kristallimpuls. Ein linear polarisierter Multi-THz-Impuls mit einer Zentralfrequenz von $\nu_{\text{THz}} = 25 \text{ THz}$ und einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$ (siehe

Abb. 5.1b) beschleunigt die frisch erzeugten Elektron-Loch-Paare anschließend entlang der $K - K'$ -Richtung periodisch hin und her und verursacht so Elektron-Loch-Kollisionen. Die emittierte HSG-Strahlung wird spektral aufgelöst als Funktion der Verzögerungszeit t_{ex} zwischen NIR- und Multi-THz-Impuls detektiert.

Abbildung 5.1c zeigt die zwischen 2,0 und 2,64 eV spektral integrierte HSG-Emission I_{HSG} . Die emittierte HSG-Intensität besitzt in erster Näherung eine gaußförmige Einhüllende, die in etwa der des Multi-THz-Impulses entspricht. Allerdings tritt die maximale HSG-Emission bei $t_{\text{ex}} \approx -15$ fs auf, und damit in etwa eine halbe Schwingungsdauer vor dem Maximum des Treiberfeldes. Diese Verschiebung ist eine Ausprägung des ballistischen Charakters der Elektron-Loch-Kollisionen. Damit die Ladungsträger während des Feldmaximums rekombinieren, müssen sie bereits einen Halbzyklus vorher angeregt werden [Lan16].

Die genaue Zeitstruktur der HSG-Emission zeigt eine tiefe zeitliche Modulation mit einer Periodizität, die der halben Schwingungsdauer des Treiberfeldes entspricht. Nicht alle Injektionszeitpunkte führen also zu einer gleich starken HSG-Emission. Tatsächlich kann der genaue Zeitpunkt der Ladungsträgeranregung innerhalb einer einzelnen Lichtschwingung des Multi-THz-Impulses die emittierte HSG-Intensität um einen Faktor zwei verstärken beziehungsweise unterdrücken. Maximale HSG-Emission tritt hauptsächlich für Injektionszeitpunkte t_{ex} kurz nach Extrema des Treiberfeldes auf. Werden Elektron-Loch-Paare zu diesen Zeitpunkten erzeugt, folgen sie vor allem geschlossenen Trajektorien und kollidieren während des nachfolgenden Halbzyklus mit hoher kinetischer Energie (siehe Abb. 5.1a, blaue Trajektorie). Für eine Erzeugung von kohärenten Exzitonen kurz nach den Feldnulldurchgängen sinkt die HSG-Emission dagegen auf etwa 50 % ab, da hier die Rekombinationswahrscheinlichkeit für die Elektron-Loch-Paare stark abnimmt. Weil die Dynamik der Ladungsträger im inversionssymmetrischen WSe₂-Volumenkristall für positive und negative Halbzyklen des Multi-THz-Feldes symmetrisch abläuft, treten gleichwertige HSG-Emissionsmaxima zweimal pro Oszillationsperiode des Treiberfeldes auf. Die Modulationstiefe ist ein Maß für den Kontrast zwischen optimalen und ungünstigen Injektionszeitpunkten und steigt mit der Treiberfeldstärke an [Lan16].

In einem WSe₂-Volumenkristall beträgt die exzitonische Bindungsenergie 60 meV [Aro15]. Damit übersteigt sie die thermische Energie von 25 meV bei Raumtemperatur. Wird allerdings eine atomar dünne Schicht WSe₂, wie in dieser Arbeit, auf ein

Diamantsubstrat gebracht, steigt die exzitonische Bindungsenergie aufgrund der reduzierten Abschirmung elektrischer Felder im Vakuum um einen Faktor fünf auf etwa 295 meV an [Poe15, Wan18]. Die dadurch verstärkten Vielteilchen-Wechselwirkungen nehmen direkt Einfluss auf die Trajektorie von Elektron-Loch-Paaren. Während im WSe₂-Volumenkristall mit seinen vergleichsweise schwachen Coulomb-Wechselwirkungen vor allem die Ein-Teilchen-Bandstruktur die Bewegung von Elektron-Loch-Paaren festlegt, ist der Einfluss von Korrelationen in einer Monolage nicht mehr vernachlässigbar. Abbildung 5.2a zeigt schematisch, wie beispielsweise die exzitonische Bindung (lila Feldlinien) oder Streuprozesse und Wechselwirkung mit anderen Ladungsträgern (rote Kugeln) die Trajektorie (rot) von Elektron-Loch-Paaren modifizieren können. Dadurch ändert sich auch die Zeitspanne T_{coll} zwischen Injektion und Kollision. Dieser durch Vielteilchen-Wechselwirkungen verursachte Unterschied kann sich in einer Verschiebung der optimalen Injektionszeit während eines Halbzyklus des Treiberfeldes zeigen. Im Schema werden die optimalen Trajektorien mit den zugehörigen Injektionszeitpunkten t_{ex} (gestrichelt) für den Fall quasifreier (blaue Projektion unten) sowie stark wechselwirkender (rot) Elektron-Loch-Paare verglichen. Eine attraktive Coulomb-Wechselwirkung zwischen Elektron und Loch führt dazu, dass die Ladungsträger gegen die anziehende Kraft länger im äußeren Treiberfeld beschleunigt werden müssen, um dennoch eine hohe Auslenkung und damit einhergehend eine effiziente und hochenergetische Kollision während des nachfolgenden Halbzyklus zu erreichen. Aus diesem Grund müssen die Ladungsträger für eine optimale Kollision um ein Zeitintervall Δt früher angeregt werden. Diese Zeitverschiebung lässt sich im Experiment messen. Der Zeitversatz zwischen NIR- und Multi-THz-Impuls, der dafür kontrolliert werden muss, unterliegt wie anfangs erwähnt nicht der Energie-Zeit-Unschärfe und kann daher beliebig genau bestimmt werden. Lediglich das experimentell erzielbare Signal-Rausch-Verhältnis und die zeitliche Stabilität des Messaufbaus limitieren die erreichbare zeitliche Präzision. Wie in Kapitel 4 gesehen, erlaubt der Messaufbau mit seinen Stabilisierungsmechanismen aber eine Präzision von bis zu 84 as, was weniger als 0,3 % der Oszillationsdauer des Treiberfeldes entspricht.

Um zu überprüfen, wie Korrelationen die Dynamik delokalisierter Bloch-Elektronen beeinflussen, wird im Experiment die zeitlich aufgelöste HSG-Emission sowohl eines WSe₂-Volumenkristalls (vgl. Abb. 5.1) als auch einer WSe₂-Monolage gemessen. Da

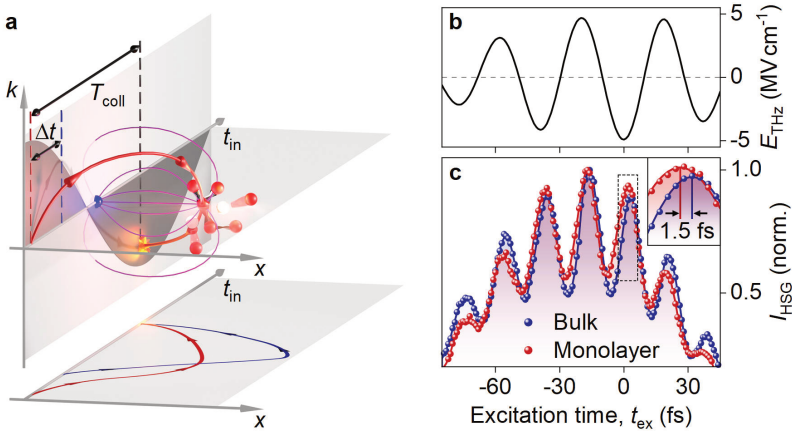


Abbildung 5.2. | Elektron-Loch-Kollisionen für korrelierte Ladungsträger. **a**, Schematische Phasenraum-Trajektorien. Korrelationen zwischen den Elektron-Loch-Paaren, wie zum Beispiel eine starke Coulomb-Wechselwirkung (lila Feldlinien) oder Streuung mit anderen Ladungsträgern (rote Kugeln) beeinflussen ihre Bewegung (rote Trajektorie). Die optimale Injektionszeit für korrelierte Elektron-Loch-Paare (rot, gestrichelt) ist damit um Δt im Vergleich zum Fall freier Ladungsträger (blau, gestrichelt) verschoben. Die x - t_{in} -Ebene unten zeigt, dass sich außerdem die maximal erreichte Auslenkung x ändern kann. **b**, Verwendetes Treiberfeld mit einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$. **c**, Spektral integrierte HSG-Emission eines 60 nm-dicken WSe₂-Volumenkristalls (blau) und einer WSe₂-Monolage (rot) als Funktion der Injektionszeit t_{ex} für einen NIR-Fluss $\Phi_{\text{NIR}} = 14 \mu\text{J cm}^{-2}$. Die durchgezogenen Linien entsprechen einer quadratischen Anpassung an die Datenpunkte. Die Vergrößerung des Emissionsmaximums bei $t_{\text{ex}} \approx 0 \text{ fs}$ (Bild rechts) zeigt eine relative Verschiebung der Emissionsmaxima von $\Delta t = 1,5 \text{ fs}$ zwischen Volumenkristall und Monolage.

im atomar dünnen Kristall die exzitonische Bindungsenergie um einen Faktor fünf erhöht ist, kann die Monolage als Prototyp für den Fall starker Korrelationen und der Volumenkristall für den Fall quasifreier Elektron-Loch-Paare angesehen werden. Damit ist dieses Materialsystem bestens geeignet, die oben aufgestellte Hypothese zu überprüfen. Abbildung 5.2b zeigt das für beide Kristalle verwendete Treiberfeld mit einer Spitzenfeldstärke von $4,9 \text{ MV cm}^{-1}$. Die zeitlich aufgelöste HSG-Emission

der beiden Proben sieht qualitativ identisch aus (siehe Abb. 5.2c). Wie der Volumenkristall (blau) zeigt auch die Monolage eine zeitlich stark modulierte HSG-Emission (rot), was den Kontrast zwischen optimalen und schlechten Injektionszeitpunkten t_{ex} verdeutlicht. Besonders bemerkenswert ist aber, dass die Emissionsmaxima der beiden Kristalle zeitlich nicht synchronisiert sind, sondern einen kleinen zeitlichen Versatz aufweisen. So sind die Injektionszeiten t_{ex} , zu denen maximale HSG-Emission auftritt, für den Fall der Monolage systematisch zu früheren Zeitpunkten verschoben, verglichen mit dem Volumenkristall. Als Beispiel zeigt eine vergrößerte Darstellung des Emissionsmaximums bei $t_{\text{ex}} \approx 0$ fs, wie die optimalen Injektionszeitpunkte für Volumenkristall und Monolage um 1,5 fs zueinander verschoben sind. Für eine präzise Bestimmung des optimalen Injektionszeitpunktes können die Datenpunkte lokal sowohl mit einer gaußförmigen (gezeigt als durchgezogene Linie in der vergrößerten Darstellung) als auch mit einer quadratischen Ausgleichsfunktion (gezeigt als durchgezogene Linie im Hauptbild) angenähert werden. Beide Verfahren liefern identische Ergebnisse, was später genauer diskutiert wird (vgl. Abb. 5.4).

Wie die starke zeitliche Modulation der HSG-Emission sowie die kleine zeitliche Verschiebung zwischen WSe₂-Volumenkristall und Monolage zeigen, hängt die genaue Trajektorie der Elektron-Loch-Paare extrem empfindlich von der Phasenlage des Treiberfeldes ab, zu der die Ladungsträger angeregt werden. Für quantitative Aussagen über ihre Subzyklendynamik muss daher die Wellenform des Multi-THz-Impulses auf der exakt gleichen Zeitachse wie die HSG-Emission aufgelöst werden. Im Experiment wird dazu das elektrische Treiberfeld mittels EOS (siehe Abb. 5.3a) detektiert, sowohl vor (blau) als auch nach (rot) jedem aufgenommenen HSG-Spektrogramm. Indem diese beiden Wellenformen korreliert werden, können sogar kleinste zeitliche Instabilitäten des optischen Aufbaus von bis zu 10 as während einer Messung aufgelöst werden. Obwohl in Abb. 5.3a die beiden Wellenformen nahezu deckungsgleich sind, was dem optischen Aufbau eine hervorragende Stabilität attestiert, ist bei der Vergrößerung auf einen Feldnulldurchgang eine verbleibende zeitliche Verschiebung von 130 as ersichtlich. Bei der Datenanalyse wird das korrigiert, indem die Zeitachsen der beiden EOS-Messungen so verschoben werden, dass die Wellenformen möglichst deckungsgleich aufeinander liegen. Unter der Annahme, dass sich die Instabilität des optischen Aufbaus kontinuierlich während einer HSG-Messung entwickelt hat, kann auch die Zeitachse der HSG-Emission (siehe Abb.

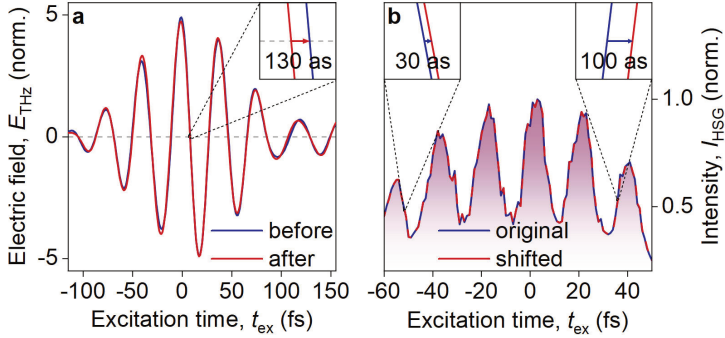


Abbildung 5.3. | Korrektur von Instabilitäten während einer Messung. **a,** Mittels EOS detektierte Multi-THz-Wellenform im Probenfokus vor (blau) und nach (rot) einer HSG-Messung. Die beiden Wellenformen sind 130 as zueinander verschoben (siehe Vergrößerung rechts oben). **b,** Spektral integrierte HSG-Emission einer einzelnen Messung, dargestellt auf der Zeitachse, wie sie per Verzögerungsstrecke eingestellt wurde (blau) und auf der Zeitachse, die die zeitliche Verschiebung aus **a** kompensiert (rot). Die Vergrößerungen oben zeigen die Streckung der Zeitachse. Für frühe Injektionszeiten beträgt die Korrektur beispielhaft 30 as (links) und für späte Injektionszeiten 100 as (rechts).

5.3b, blau), die zwischen den beiden EOS-Messungen aufgenommen wurde, in erster Ordnung korrigiert werden. Im Experiment werden Ladungsträger erst zu sehr frühen Zeitpunkten t_{ex} injiziert und dann wird t_{ex} kontinuierlich erhöht. Zu jedem Zeitpunkt wird ein volles HSG-Spektrum aufgenommen. Aus diesem Grund sollte die HSG-Emission zu frühen t_{ex} eher zum EOS-Transienten vor der Messung passen. Für späte t_{ex} dagegen sollte vor allem die zeitliche Struktur der nachfolgenden EOS-Messung relevant sein. Dazwischen wird die Zeitachse linear gestreckt beziehungsweise gestaucht (rot), je nachdem ob die Wellenform nach einer HSG-Messung zu positiven oder negativen t_{ex} verschoben ist. Im gezeigten Beispiel wird der Injektionszeitpunkt $t_{\text{ex}} \approx -50$ fs um 30 as und $t_{\text{ex}} \approx 35$ fs um 100 as korrigiert.

Anhand der HSG-Emission mit dieser Zeitkorrektur kann anschließend die Dynamik der Elektron-Loch-Paare präzise studiert werden. Die relevante Größe ist dabei die Subzyklenverzögerung δ_{sc} als der Zeitversatz zwischen einem HSG-Emissionsmaximum und der nächstgelegenen Feldspitze des Multi-THz-Impulses [Lan16]. Für eine

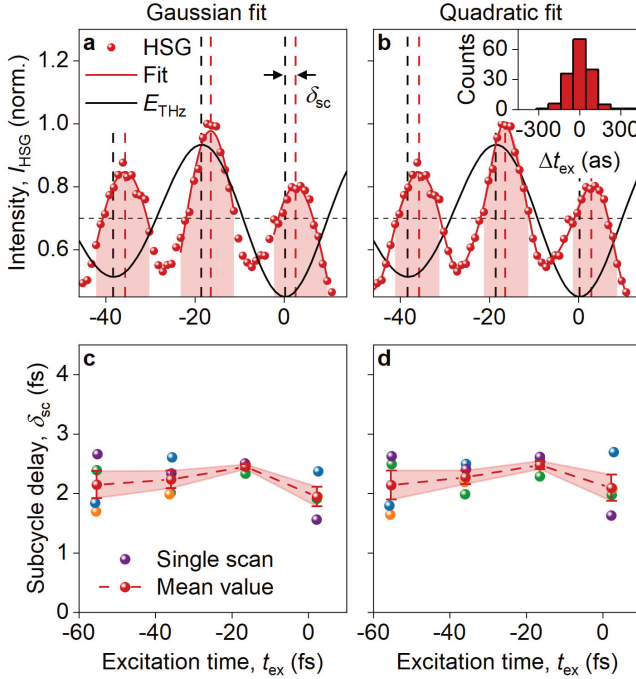


Abbildung 5.4. | Berechnung der Subzyklenverzögerung. **a, b,** Die spektral integrierte HSG-Emission (Datenpunkte) wird in einem kleinen Zeitfenster (roter Bereich) mit einer gaußschen (**a**) beziehungsweise quadratischen (**b**) Ausgleichsfunktion (rote Linie) angenähert. Als Referenz ist das Treiberfeld auf der gleichen Zeitachse eingezeichnet (schwarze Kurve). Die zeitliche Position der extrahierten Intensitätsmaxima (rot gestrichelte Linien) wird mit den Feldspitzen des Treiberfeldes (schwarz gestrichelte Linien) verglichen, was die Subzyklenverzögerung δ_{sc} ergibt. **c, d,** Die für vier identische Messungen extrahierten Subzyklenverzögerungen von vier verschiedenen HSG-Emissionsmaxima. Durch Mittelung ergibt sich der Erwartungswert (rote Datenpunkte) sowie der Standardfehler (rote Fläche).

quantitative Analyse muss daher die exakte zeitliche Position der entsprechenden Maxima ermittelt werden (siehe Abb. 5.4a und b). Dazu werden die Feldspitzen der Multi-THz-Wellenform (schwarz) in einem Zeitintervall von je 12 fs um die jeweili-

ge Feldspitze durch gaußförmige Ausgleichsfunktionen angenähert. Die Analyse der Zeitstruktur der HSG-Emission (rote Datenpunkte) nutzt zwei verschiedene Verfahren. Bei der ersten Möglichkeit (siehe Abb. 5.4a) werden die verschiedenen HSG-Maxima wieder in einem Zeitintervall von 12 fs (rot schattierte Fläche) durch eine gaußförmige Ausgleichsfunktion angenähert. Eine zweite Möglichkeit besteht darin, die Emissionsmaxima durch eine quadratische Ausgleichsfunktionen zu modellieren (siehe Abb. 5.4b, rot schattierte Fläche). Letztere Methode kann nicht nur einzelne Maxima, sondern auch die gesamte HSG-Emission lokal durch eine quadratische Regression interpolieren (durchgezogene rote Linie). Durch Vergleich der Rohdaten mit der gemittelten Kurve der HSG-Emission kann auch das Signal-Rausch-Verhältnis abgeschätzt werden. Im Durchschnitt weichen die experimentellen Daten um 1,1 % von der glatten Kurve ab. Um zu modellieren, welchen Effekt experimentelles Rauschen auf die Bestimmung der optimalen Injektionszeit hat, kann in einem Modell wiederholt eine hypothetische HSG-Emission mit vergleichbarem Signal-Rausch-Verhältnis zufällig erzeugt und ausgewertet werden. So kann abgeschätzt werden, dass das hier auftretende Rauschniveau die Zeitauflösung Δt_{ex} im Experiment auf 100 as begrenzt (siehe Histogramm). Die ermittelten optimalen Injektionszeiten (rot gestrichelt) werden zuletzt mit den Feldmaxima (schwarz gestrichelt) verglichen, um die Subzyklenverzögerung δ_{sc} zu bestimmen. Üblicherweise ist δ_{sc} positiv, was bedeutet, dass die HSG-Emissionsmaxima kurz nach den Feldextrema auftreten.

Für eine ausreichend aussagekräftige Statistik wird jede HSG-Messung typischerweise viermal wiederholt und, wie eben beschrieben, ausgewertet. Dabei wird sowohl vor als auch nach jeder einzelnen HSG-Messung die Wellenform des Treiberfeldes mittels EOS bestimmt. Abbildungen 5.4c und d zeigen für vier konsekutive Messungen die jeweils extrahierten Subzyklenverzögerungen (bunte Datenpunkte) für vier verschiedene HSG-Emissionsmaxima. Unabhängig davon, ob die Subzyklenverzögerung mittels einer gaußförmigen Fitfunktion (siehe Abb. 5.4c) oder mittels quadratischer Anpassung (siehe Abb. 5.4d) bestimmt wurde, ergeben sich nahezu identische Werte für δ_{sc} . Die extrahierte Subzyklenverzögerung ist demnach robust gegenüber der genauen Form der Datenanalyse. Indem über die vier einzelnen Messungen gemittelt wird, kann ein Erwartungswert für die Subzyklenverzögerung (rote Datenpunkte) sowie deren Standardfehler als Fehlerbalken angegeben werden. Für die über alle betrachteten HSG-Emissionsmaxima gemittelte Subzyklenverzögerung $\langle \delta_{\text{sc}} \rangle$ wird

der Mittelwert über die Subzyklenverzögerungen der einzelnen Maxima gebildet und deren Standardfehler ebenfalls gemittelt, um einen Fehlerbalken für den Mittelwert $\langle \delta_{\text{sc}} \rangle$ zu erhalten. Für den Unterschied in der Subzyklenverzögerung zwischen Volumenkristall und Monolage $\Delta t = \delta_{\text{sc}}^{\text{ML}} - \delta_{\text{sc}}^{\text{bulk}}$ wechseln die HSG-Messungen stets zwischen den beiden Kristallen ab. Deshalb wird zuerst der Unterschied Δt zwischen zwei aufeinanderfolgenden Messungen bestimmt, am Ende über die vier Messreihen gemittelt und entsprechend der Standardfehler als Fehlerbalken berechnet.

5.2. Vermessen von Coulomb-Korrelationen

Abbildung 5.5a zeigt die Subzyklenverzögerung δ_{sc} für die vier intensivsten Emissionsmaxima des WSe₂-Volumenkristalls (blau) und Monolage (rot). Für die experimentellen Daten (Kugeln) wurde ein Multi-THz-Impuls mit einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$ und ein NIR-Impuls mit einem Fluss von $\Phi_{\text{NIR}} = 14 \text{ } \mu\text{J cm}^{-2}$ verwendet (vgl. Abb. 5.2). Für alle ausgewerteten Emissionsmaxima liegt die Subzyklenverzögerung des Volumenkristalls $\delta_{\text{sc}}^{\text{bulk}}$ signifikant über der der Monolage $\delta_{\text{sc}}^{\text{ML}}$. Gemittelt über die vier Emissionsmaxima (gestrichelte Linie und schattierte Fläche) ergibt sich für den Volumenkristall $\langle \delta_{\text{sc}}^{\text{bulk}} \rangle = 3,2 \pm 0,2 \text{ fs}$ und für die Monolage $\langle \delta_{\text{sc}}^{\text{ML}} \rangle = 2,1 \pm 0,2 \text{ fs}$. Es tritt also eine systematische Verschiebung der optimalen Injektionszeit t_{ex} auf, die auch schon beim direkten Vergleich der HSG-Emission von Volumenkristall und Monolage auffällt (vgl. Abb. 5.2c). Für den Unterschied in der Subzyklenverzögerung zwischen den beiden Proben $\Delta t = \delta_{\text{sc}}^{\text{ML}} - \delta_{\text{sc}}^{\text{bulk}}$ ergeben sich deshalb strikt negative Werte (siehe Abb. 5.5b, Kugeln). Der Mittelwert $\langle \Delta t \rangle = -1,2 \pm 0,3 \text{ fs}$ ist dabei signifikant. Mit Fehlerbalken, die 300 as nicht übersteigen, kann die Subzyklenverzögerung 130 mal besser als die Dauer einer einzelnen Schwingung des Treiberfeldes bestimmt werden. Damit übertrifft die hier vorgestellte Attosekundenchronoskopie die sonst durch die Energie-Zeit-Unschärfe limitierte Zeitauflösung deutlich. Eine detaillierte Diskussion, wie insbesondere die Impulsdauer des NIR-Impulses die erreichbare zeitliche Präzision der Attosekundenchronoskopie beeinflusst, befindet sich in Anhang A.

Für einen quantitativen Vergleich der HSG-Emission von Volumenkristall und Monolage müssen sämtliche Messartefakte beseitigt werden, die zu einem systematischen Fehler in der Bestimmung der Subzyklenverzögerung führen könnten. Beispielswei-

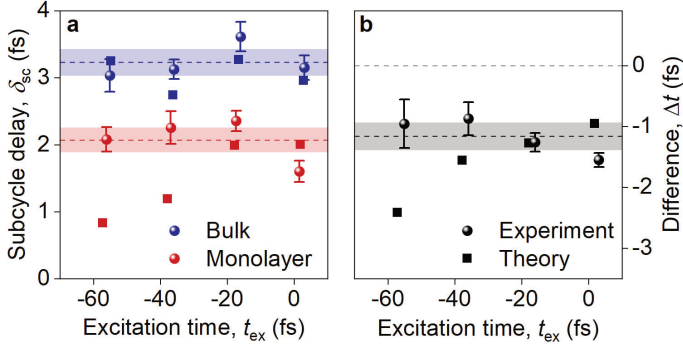


Abbildung 5.5. | Einfluss von Korrelationen auf die Subzyklenverzögerung. **a**, Subzyklenverzögerung δ_{sc} , bestimmt aus dem Experiment (Kugeln) und aus QDCE-Rechnungen (Quadrate), für vier verschiedene HSG-Emissionsmaxima als Funktion der optimalen Injektionszeit t_{ex} für eine Spitzenfeldstärke $E_{peak} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$ und einen NIR-Fluss $\Phi_{NIR} = 14 \mu\text{J cm}^{-2}$. In beiden Fällen nimmt die Subzyklenverzögerung für die Monolage (rot) kleinere Werte an als für den Volumenkristall (blau). Durch Mittelung über alle gezeigten Datenpunkte ergeben sich Erwartungswert und Standardfehler (gestrichelte Linie und schattierte Fläche) von $\langle \delta_{sc}^{bulk} \rangle = 3,2 \pm 0,2 \text{ fs}$ für den Volumenkristall und $\langle \delta_{sc}^{ML} \rangle = 2,1 \pm 0,2 \text{ fs}$ für die Monolage. **b**, Differenz Δt der Subzyklenverzögerung in Volumenkristall und Monolage mit einem Mittelwert von $\langle \Delta t \rangle = -1,2 \pm 0,3 \text{ fs}$ über die vier gezeigten Datenpunkte.

se werden in den Messungen unerwünschte zeitliche Verschiebungen aufgrund der Gouy-Phase des fokussierten Multi-THz-Impulses unterdrückt, indem alle verwendeten Kristalle in die exakt gleiche longitudinale Position im Fokus positioniert werden. Dafür wurde ein kompaktes Probandesign gewählt, bei dem sowohl der GaSe- als auch die WSe₂-Kristalle auf einem gemeinsamen Diamantsubstrat aufgebracht wurden (vgl. Abb. 4.8d). Insbesondere wurde darauf geachtet, dass der Abstand der Kristalle nur wenige hundert Mikrometer beträgt, sodass keine großen lateralen Verschiebungen nötig sind, um von einer EOS- auf eine HSG-Messung zu wechseln. Der Abstand zwischen WSe₂-Volumenkristall und Monolage wurde sogar auf das absolute Minimum reduziert, indem ein Kristall gewählt wurde, der sowohl dicke als auch atomar dünne Bereiche aufweist. Damit beträgt der Abstand zwischen dem Messpunkt für Volumenkristall und Monolage gerade einmal 200 μm (vgl. Abb. 4.8a und

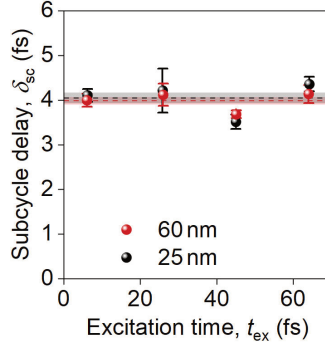


Abbildung 5.6. | Einfluss von Propagationseffekten auf die Subzyklenverzögerung. An zwei verschiedenen Stellen des Volumenkristalls gemessene Subzyklenverzögerung δ_{sc} für $E_{\text{peak}} = 6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ und $\Phi_{\text{NIR}} = 12 \mu\text{J cm}^{-2}$. Gestrichelte und schattierte Flächen zeigen den Erwartungswert und den Standardfehler bei Mittelung über alle vier HSG-Emissionsmaxima. 60 nm (rot) und 25 nm (schwarz) dicke Stellen des Volumenkristalls weisen durchweg innerhalb der Fehlerbalken identische Subzyklenverzögerungen auf.

b, Kreise). Indem zusätzlich das Diamantsubstrat senkrecht zum Strahlengang mit einer maximalen Abweichung von 1° im Fokus positioniert wird, kann abgeschätzt werden, dass sich die verschiedenen Messpunkte um nicht mehr als $3,5 \mu\text{m}$ in ihrer longitudinalen Position unterscheiden. Mittels EOS wurde gefunden, dass die Gouy-Phase zu einer zeitlichen Verschiebung der Feldspitzen des Multi-THz-Impulses von $1,3 \text{ fs}$ führt, wenn die Probe um $100 \mu\text{m}$ entlang der Strahlrichtung verfahren wird. Insgesamt können also mit dem kompakten Probedesign zeitliche Verschiebungen zwischen Volumenkristall und Monolage aufgrund der Gouy-Phase auf unter 45 as reduziert werden.

Zusätzlich kann experimentell überprüft werden, dass einfache lineare oder nichtlineare Propagationseffekte im WSe_2 -Volumenkristall die Subzyklenverzögerung nicht maßgeblich beeinflussen. Dazu wird die HSG-Emission von zwei unterschiedlich dicken Regionen des Volumenkristalls gemessen und für die jeweils vier intensivsten Emissionsmaxima die Subzyklenverzögerung bestimmt (siehe Abb. 5.6). Der 60 nm (rot) und der 25 nm (schwarz) dicke Bereich des WSe_2 -Volumenkristalls zeigen für

alle vier ausgewerteten Emissionsmaxima im Rahmen der Fehlerintervalle identische Subzyklenverzögerungen δ_{sc} . Die über alle Datenpunkte gemittelte Subzyklenverzögerung $\langle \delta_{sc} \rangle$ beträgt $4,0 \pm 0,2$ fs für den dickeren und $4,1 \pm 0,3$ fs für den dünneren Bereich. Somit tritt hier kein signifikanter Unterschied auf. Auch der erwartete Laufzeitunterschied des NIR- und Multi-THz-Impulses durch einen 60 nm versus einen 25 nm dicken WSe₂-Volumenkristall ist mit 90 as deutlich kleiner als die Fehlerintervalle. Da im Gegensatz dazu die vorigen Messungen einen Unterschied zwischen Volumenkristall und Monolage von $\langle \Delta t \rangle = -1,2 \pm 0,3$ fs ergeben haben (vgl. Abb. 5.5), können Propagationseffekte als Erklärung des beobachteten Versatzes ausgeschlossen werden.

Um den wahren Ursprung der Attosekunden-Verschiebung zwischen Volumenkristall und Monolage zu finden und mit Vielteilchen-Wechselwirkungen in Verbindung zu bringen, werden die Experimente mit einem voll quantenmechanischen Ansatz modelliert. Die Theorie basiert dabei auf einer quantendynamischen Cluster-Entwicklung (englisch: *quantum-dynamic cluster-expansion*, kurz: QDCE) [Kir12]. Um die Lichtwellen-getriebene Dynamik der Elektron-Loch-Paare unter dem gleichzeitigen Einfluss von Vielteilchen-Wechselwirkungen quantitativ beschreiben zu können, werden sowohl die volle Bandstruktur als auch die geometrische Phase der gesamten Brillouinzone von Volumenkristall und Monolage berücksichtigt. Der NIR-Lichtimpuls erzeugt in einem ersten Schritt eine elektronische Besetzung sowie eine Interbandpolarisation, die als sogenannte *Singlets* zunächst nicht mit anderen Ladungsträgern wechselwirken. Vielteilchen- sowie Licht-Materie-Korrelationen bauen sich anschließend auf [Kir06a, Kir06b, Kir12, Kir15, Bor23]. Die Ein-Teilchen-Dynamik wird durch die Halbleiter-Bloch-Gleichungen beschrieben [Kir12]. Damit lassen sich physikalische Größen wie die makroskopische Polarisation berechnen, die zur Erzeugung von Seitenbändern hoher Ordnung führen. Die nachfolgend gezeigten Rechnungen wurden von *Markus Borsch* und *Mackillo Kira* von der *University of Michigan* durchgeführt. Sie modellieren die zugrundeliegende Lichtwellen-getriebene Ladungsträgerdynamik unter Berücksichtigung von Vielteilchen-Korrelationen, woraus die spektral und zeitlich aufgelöste HSG-Emission berechnet werden kann.

Analog zur Datenanalyse der experimentellen Ergebnisse werden die simulierten Spektren im Energiebereich zwischen 2,0 und 2,64 eV integriert und so die HSG-Emission als Funktion der Injektionszeit t_{ex} ermittelt. Abbildung 5.7 vergleicht die

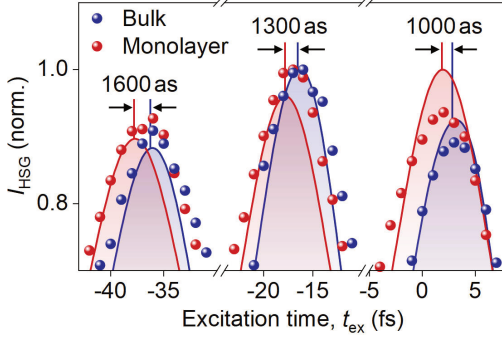


Abbildung 5.7. | Zeitaufgelöste HSG-Emission in Experiment und Theorie. Zeitstruktur der HSG-Emission für drei verschiedene Emissionsmaxima für $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$ und $\Phi_{\text{NIR}} = 14 \mu\text{J cm}^{-2}$. Sowohl Experiment (Datenpunkte) als auch QDCE-Rechnungen (durchgezogene Linien) zeigen einen konsistenten Zeitversatz zwischen Volumenkristall (blau) und Monolage (rot). Der aus der Theorie bestimmte Unterschied zwischen dem extrahierten optimalen Timing des Injektionszeitpunktes ist beschriftet.

experimentell gemessene (Datenpunkte) mit der aus den QDCE-Rechnungen bestimmte HSG-Emission (durchgezogene Linie) für die drei intensivsten Emissionsmaxima von Volumenkristall und Monolage. Die Parameter der Lichtimpulse wurden in den Rechnungen dabei an das Experiment angepasst, sodass ein NIR-Fluss von $\Phi_{\text{NIR}} = 14 \mu\text{J cm}^{-2}$ und eine Multi-THz-Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$ im Vakuum verwendet wurde. Hier ist noch zu berücksichtigen, dass die Multi-THz-Strahlung teilweise an den Kristallen reflektiert wird, sodass die effektive Feldstärke in Wolframdisenid auf 55 % abfällt. Sowohl für den WSe₂-Volumenkristall (blau) als auch die Monolage (rot) beschreibt die QDCE-Theorie die gemessene HSG-Emission quantitativ. Außerdem reproduziert sie die Attosekunden-Verschiebung zwischen den beiden Kristallen, die für die drei gezeigten Maxima zwischen 1000 und 1600 as liegt. Das wird auch in Abb. 5.5 deutlich, die darstellt, wie die QDCE-Rechnung (Quadrate) sowohl die Subzyklenverzögerung δ_{sc} von Volumenkristall und Monolage als auch deren durchweg negativen Unterschied Δt quantitativ reproduziert.

Die voll quantenmechanische QDCE-Theorie erlaubt es, den physikalischen Ursprung der Attosekunden-Verschiebung zwischen Volumenkristall und Monolage zu entschlüsseln. Wie experimentell bereits gezeigt wurde, können weder lineare noch nichtlineare Propagationseffekte im Kristall die signifikante Differenz Δt erklären. Daher muss der Grund für diesen Zeitversatz in anderen Eigenschaften der Kristalle liegen. Die Hauptunterschiede zwischen Volumenkristall und Monolage sind zum einen deren Bandstruktur, da der Volumenkristall im Gegensatz zur Monolage eine indirekte Bandlücke aufweist. Zum anderen besitzt die Monolage stärkere Vielteilchen-Wechselwirkungen, insbesondere Coulomb-Korrelationen, aufgrund ihrer reduzierten Dimensionalität und der schwächeren dielektrischen Abschirmung. Die quantitative QDCE-Theorie erlaubt es, den Einfluss dieser beiden Eigenschaften auf die Trajektorie der Ladungsträger zu separieren. Dazu wird die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung in den beiden Kristallen künstlich mit einem Faktor s_C skaliert. Mit anderen Worten wird die exzitronische Bindungsenergie in den beiden Systemen kontinuierlich durchgestimmt, während alle anderen Eigenschaften, wie die genaue Form der Bandstruktur, konstant gehalten werden.

Abbildung 5.8 zeigt, wie sich die Subzyklenverzögerung des Volumenkristalls (blau) und der Monolage (rot) als Funktion der Bindungsenergie E_{1s} des $1s$ -Exzitons verändert. In beiden Fällen nimmt die Subzyklenverzögerung mit steigender exzitronischer Bindungsenergie beziehungsweise Stärke von Coulomb-Korrelationen ab. Diese Abhängigkeit ist näherungsweise linear mit einer Steigung von -9 as meV^{-1} , sodass die Kurven für Volumenkristall und Monolage fast parallel aber verschoben zueinander verlaufen. Die eingezeichneten Punkte und gestrichelten Linien zeigen die echten exzitronischen Bindungsenergien von $E_{1s} = 60 \text{ meV}$ beziehungsweise 295 meV für Volumenkristall beziehungsweise Monolage. Für den Volumenkristall beträgt die Subzyklenverzögerung $\delta_{sc} = 2,3 \text{ fs}$. Wird die Bindungsenergie in der Monolage künstlich so verschoben, dass sie dem des Volumenkristalls entspricht, ergibt sich eine Subzyklenverzögerung von $\delta_{sc} = 3,8 \text{ fs}$, was $1,5 \text{ fs}$ über dem Wert für den Volumenkristall liegt. Das bedeutet, dass Details der Bandstruktur, in denen sich Volumenkristall und Monolage unterscheiden, die Subzyklenverzögerung um $1,5 \text{ fs}$ verändern und in der Monolage zu einer höheren Subzyklenverzögerung führen. Im Gegensatz dazu sinkt δ_{sc} um $2,1 \text{ fs}$ ab, wenn die exzitronische Bindungsenergie in der Monolage von 60 meV , also dem Wert im Volumenkristall, auf 295 meV , dem echten Wert in

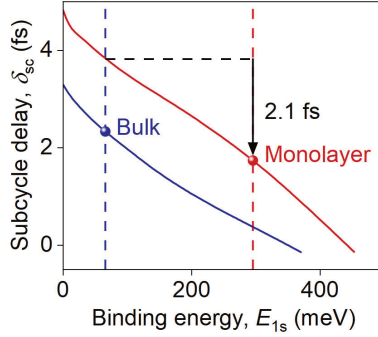


Abbildung 5.8. | Einfluss von Coulomb-Korrelationen auf die Subzyklenverzögerung. Berechnete Subzyklenverzögerung δ_{sc} für Volumenkristall (blau) und Monolage (rot) als Funktion der Bindungsenergie E_{1s} des $1s$ -Exzitons. Die beiden Punkte entsprechen der Subzyklenverzögerung bei der real auftretenden Bindungsenergie von $E_{1s} = 60$ meV für den Volumenkristall und $E_{1s} = 295$ meV für die Monolage. Werden die Coulomb-Wechselwirkungen ausgehend von ihrer Stärke im Volumenkristall künstlich bis hin zur Stärke in der Monolage erhöht, ergibt sich eine Änderung der Subzyklenverzögerung von 2,1 fs.

der Monolage, erhöht wird. Damit übersteigt die Änderung aufgrund der stärkeren Coulomb-Korrelationen die Änderung aufgrund von Bandstrukturdetails, also reiner Ein-Teilchen-Eigenschaften, um 40 %. Da zusätzlich die Subzyklenverzögerung in der Monolage unter Vernachlässigung der gesteigerten exzitonenischen Bindungsenergie höher ausfallen würde als im Volumenkristall und im Experiment das genaue Gegenteil, nämlich eine geringere Subzyklenverzögerung für die Monolage, beobachtet wird, ist die Attosekunden-Verschiebung zwischen Volumenkristall und Monolage von der Veränderung der Vielteilchen-Korrelationen dominiert.

Dass Details der Bandstruktur nur einen untergeordneten Einfluss auf die Verschiebung der Subzyklenverzögerung zwischen Volumenkristall und Monolage haben, wird auch beim direkten Vergleich der Bandstruktur plausibel (vgl. Abb. 3.2). Zwar unterscheidet sich die Art der Bandlücke der beiden Systeme fundamental, da ein Volumenkristall eine indirekte und eine Monolage eine direkte Bandlücke aufweisen. Allerdings werden in beiden Fällen die Elektron-Loch-Paare anhand einer

direkten Interbandanregung am K-Punkt erzeugt, da der Impuls der anregenden NIR-Photonen vernachlässigbar klein ist. Im Vergleich zu HHG werden für die Quasiteilchenkollisionen nur moderate Feldstärken von etwa 5 MV cm^{-1} benötigt, was zu einer verhältnismäßig kleinen Auslenkung im k -Raum von maximal $0,6 \text{ \AA}^{-1}$ führt. Das entspricht 30% der Größe der Brillouinzone. Die Ladungsträger bleiben daher in der Nähe des K-Punktes, wo sich die Bandstrukturen von Volumenkristall und Monolage ähneln.

Um weiter die dominante Rolle der Vielteilchen-Wechselwirkungen bei der Attosekunden-Verschiebung zwischen Volumenkristall und Monolage zu verdeutlichen, kann die Dynamik der Elektron-Loch-Kollisionen ergänzend zur voll quantenmechanischen und quantitativen QDCE-Rechnung durch ein klassisches Modell qualitativ beschrieben werden. Diese Simulationen wurden in Zusammenarbeit mit *Christoph Schmid* und *Rupert Huber* durchgeführt. Das Modell berücksichtigt in der klassischen Bewegungsgleichung

$$m_e \ddot{x}(t) = eE(t) - \frac{\alpha e^2}{4\pi\epsilon_r\epsilon_0 x(t)^2} \quad (5.1)$$

lediglich zwei Kräfte, die zwischen einem beweglichen Elektron und einem als fix angenommenen Loch wirken: Die Kraft durch das elektrische Treiberfeld $E(t)$ sowie die Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch. Letztere skaliert invers quadratisch mit dem Abstand $x(t)$ zwischen den Ladungsträgern und hängt noch von der relativen Permittivität ϵ_r sowie α , einem Maß für die relative Coulomb-Stärke im klassischen Modell, ab. Die Differentialgleichung wird für ein sinusförmiges Treiberfeld mit einer Spitzenfeldstärke von 3 MV cm^{-1} gelöst, wobei als Startbedingung davon ausgegangen wird, dass der Anfangsabstand x_0 zwischen Elektron und Loch dem Bohr-Radius entspricht. Dadurch wird verhindert, dass die Coulomb-Anziehung für $x(t) = 0$ divergiert. Sofern der Abstand zwischen Elektron und Loch nach Start ihrer Beschleunigung auf einen Wert kleiner als x_0 abfällt, kommt es in diesem Modell zur Kollision und die kinetische Energie ϵ_{coll} des Elektrons zum entsprechenden Zeitpunkt t^* dient als Maß für die Stärke der Kollision.

In Abb. 5.9a ist ϵ_{coll} als Funktion des Injektionszeitpunkts t_{ex} während des Treiberfeldes (grau schattiert) gezeigt. Nicht alle Injektionszeitpunkte t_{ex} führen zu einer Kollision. Für den Fall, dass keine Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch

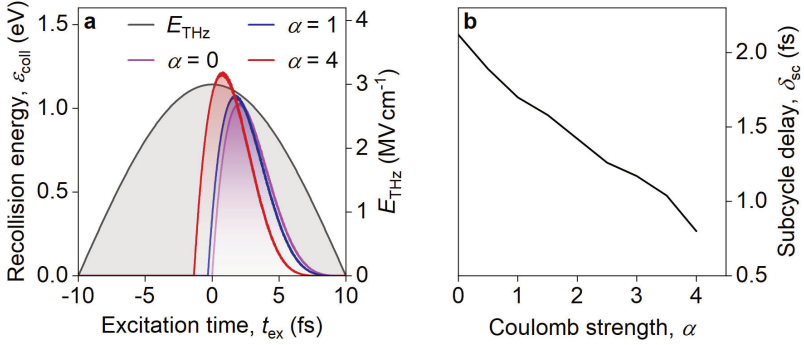


Abbildung 5.9. | Klassisches Modell für den Einfluss von Korrelationen. a, Zwischen einem Elektron und einem positiv geladenen Atomkern wirkt die attraktive Coulomb-Wechselwirkung mit der relativen Stärke α . Zusätzlich erfährt das Elektron noch eine Beschleunigung durch ein elektrisches Wechselfeld, das die Ladungsträger zuerst auseinander treibt und dann unter bestimmten Bedingungen kollidieren lässt. Aufgetragen ist die Kollisionsenergie $\varepsilon_{\text{coll}}$ dieses Prozesses als Funktion des Zeitpunkts t_{ex} , zu dem das Elektron seine Bewegung startet. Das sinusförmige Wechselfeld mit der Spitzenfeldstärke $E_{\text{peak}} = 3 \text{ MV cm}^{-1}$ (grau) ist als Referenz auf der gleichen Zeitachse eingezeichnet. Für stärkere Coulomb-Korrelationen tritt das Maximum der Kollisionsenergie für frühere Injektionszeitpunkte auf. Gezeigt sind die Ergebnisse für den Fall freier Ladungsträger ($\alpha = 0$, lila) und zwei weitere relative Stärken der Coulomb-Wechselwirkung, stellvertretend für den Fall eines Volumenkristalls ($\alpha = 1$, blau) und einer Monolage ($\alpha = 4$, rot). b, Subzyklenverzögerung δ_{sc} als Funktion der relativen Coulomb-Stärke α .

wirkt ($\alpha = 0$, lila) kommt es nur zur Kollision, wenn die Ladungsträger nach dem Feldmaximum injiziert werden. Sobald die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung erhöht wird ($\alpha = 1$, blau und $\alpha = 4$, rot), kollidieren die Ladungsträger auch für leicht frühere t_{ex} . Auffallend ist, dass auch der optimale Injektionszeitpunkt umso weiter zu negativen Zeitpunkten verschoben ist, je stärker die Coulomb-Anziehung gewählt wird. Die beiden Werte $\alpha = 1$ (blau) und $\alpha = 4$ (rot) stehen dabei stellvertretend für Volumenkristall und Monolage. Die Simulationen zeigen, dass für eine stärkere Coulomb-Bindung das Elektron länger im ersten Halbzyklus des Treiberfeldes beschleunigt werden kann, was neben des früheren optimalen Injektionszeitpunktes ebenfalls zu einer insgesamt erhöhten Kollisionsenergie führt.

Unter der Annahme, dass eine hohe Kollisionsenergie in den HSG-Experimenten zu einer intensiven Emission von Licht führt, kann auch in diesem klassischen Modell die Subzyklenverzögerung δ_{sc} extrahiert werden, indem der Zeitversatz zwischen dem Feldmaximum und dem optimalen Injektionszeitpunkt t_{ex} bestimmt wird. Sie ist in Abb. 5.9b als Funktion der Coulomb-Stärke α gezeigt. Analog zu den QDCE-Rechnungen fällt δ_{sc} auch in diesem anschaulichen klassischen Modell nahezu linear mit zunehmender Stärke der Coulomb-Wechselwirkung ab (vgl. Abb. 5.8). Für den Fall freier Teilchen ($\alpha = 0$) ergibt sich $\delta_{\text{sc}} \approx 2,1$ fs. Das entspricht bei einer Treiberfrequenz von 25 THz einer Phasenlage von etwa 18° und stimmt mit der Erwartung aus dem Drei-Schritt-Modell für HHG überein [Cor93]. Zwischen den prototypischen Fällen für den Volumenkristall ($\alpha = 1$) und für die Monolage ($\alpha = 4$) ergibt sich eine Änderung der Subzyklenverzögerung $\Delta t = 0,9$ fs. Die attraktive Coulomb-Wechselwirkung erfordert eine höhere Wirkung des ersten Halbzyklus des Treiberfeldes, um die Ladungsträger noch weit genug für eine effiziente Kollision zu separieren. Während des kollidierenden Halbzyklus beschleunigt die Coulomb-Anziehung die Ladungsträger zusätzlich aufeinander zu. Dadurch ist es möglich, die Ladungsträger schon zu frühen Zeitpunkten t_{ex} zu injizieren, und die maximal mögliche Kollisionsenergie nimmt mit der Coulomb-Stärke zu.

Mit diesem intuitiven Bild wird klar, dass nicht nur der optimale Injektionszeitpunkt, sondern auch der Zeitpunkt der Kollision empfindlich von Korrelationen beeinflusst wird. Mit den QDCE-Rechnungen ist es möglich, die gesamte Dynamik der Ladungsträger zu rekonstruieren, sodass nicht nur eine Subzyklenverzögerung δ_{sc} ermittelt werden kann, sondern die ganze Trajektorie der Elektron-Loch-Paare. Insbesondere kann damit bestimmt werden, zu welcher Zeit t nach Injektion der Exzitonen HSG-Strahlung emittiert wird. Abbildung 5.10 zeigt die zeitliche Abfolge dieser Dynamik. Zuerst werden zum Injektionszeitpunkt t_{ex} Exzitonen durch den NIR-Impuls (lila) erzeugt. Anschließend werden die kohärenten Elektron-Loch-Paare durch das Treiberfeld (Absolutbetrag, grau) beschleunigt und emittieren nach einer Zeit t nach Injektion im Volumenkristall (blau) und in der Monolage (rot) HSG-Strahlung. Dabei fällt auf, dass in beiden Fällen erst einen Halbzyklus nach der Erzeugung, zum Zeitpunkt $t = T_{\text{coll}}$, eine starke HSG-Emission einsetzt. Es ergibt sich also eine dreiteilige Sequenz der Elektronendynamik: Injektion durch den NIR-Impuls, Beschleunigung im externen Treiberfeld und zuletzt die Elektron-Loch-Kollision, die zur Emission

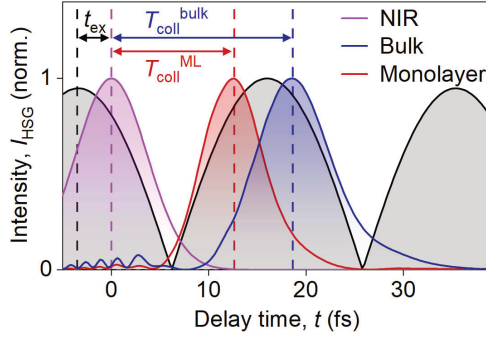


Abbildung 5.10. | Zeitpunkt der HSG-Emission. Kohärente Exzitonen werden durch den 8,6 fs langen NIR-Impuls erzeugt (lila) und durch das Multi-THz-Feld beschleunigt (grau, $|E_{\text{THz}}|$). Im folgenden Halbzyklus kollidieren die Ladungsträger und emittieren HSG-Strahlung, deren Intensität als Funktion der verstrichenen Zeit t seit Anregung für Volumenkristall (blau) und Monolage (rot) aufgetragen ist. Während das Maximum der HSG-Emission (gestrichelte Linien) für den Volumenkristall bei $T_{\text{coll}}^{\text{bulk}} = 18,6$ fs nach der Injektion auftritt, setzt die HSG-Emission in der Monolage viel früher, bei $T_{\text{coll}}^{\text{ML}} = 12,6$ fs nach Anregung, ein.

von HSG-Strahlung führt. Während die starke Coulomb-Anziehung in der Monolage eine längere Beschleunigung der Ladungsträger während der Separationsphase erfordert um große Auslenkungen zu erreichen, ist ihre Wirkung während des kollidierenden Halbzyklus invertiert. Denn hier beschleunigt die Coulomb-Anziehung zusätzlich zum Treiberfeld die Ladungsträger aufeinander zu, sodass die Ladungsträger in der Monolage bereits kurz nach dem Feldnulldurchgang nach einer Zeit $T_{\text{coll}}^{\text{ML}} = 12,6$ fs kollidieren. Im Volumenkristall kollidieren die Elektron-Loch-Paare erst viel später, nach dem Feldmaximum, zum Zeitpunkt $T_{\text{coll}}^{\text{bulk}} = 18,6$ fs. Damit ergibt sich eine um 6,0 fs kürzere Trajektorie für die Monolage, was sich auch auf die optimale Injektionszeit t_{ex} und damit die Subzyklenverzögerung δ_{sc} auswirkt.

Für ein tieferes Verständnis, wie die HSG-Emission und die Kollision der Quasiteilchen genau zusammenhängen, werden für die verschiedenen Kollisionszeiten in Volumenkristall und Monolage die jeweilige Wigner-Funktion $W_{\text{HSG}}(x, k)$ berechnet und in Abb. 5.11 gezeigt [Wig32]. In Analogie zur Wahrscheinlichkeitsdichte,

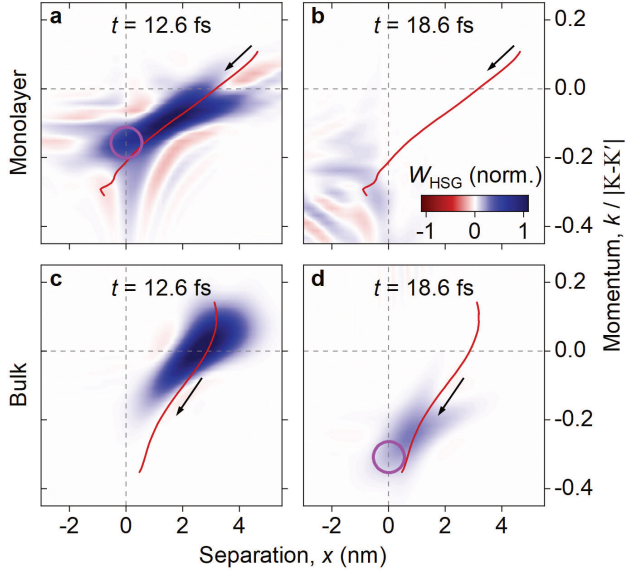


Abbildung 5.11. | Wigner-Funktionen bei Kollision. Wigner-Funktionen der exzitonischen Polarisation $W_{\text{HSG}}(x, k)$ (Farbskala) in Monolage (**a** und **b**) und Volumenkristall (**c** und **d**) zum Zeitpunkt der Kollision in der Monolage $T_{\text{coll}}^{\text{ML}} = 12,6 \text{ fs}$ (**a** und **c**) und zum Zeitpunkt der Kollision im Volumenkristall $T_{\text{coll}}^{\text{bulk}} = 18,6 \text{ fs}$ (**b** und **d**). Die rote Linie beschreibt jeweils die Trajektorie des Schwerpunkts der Wigner-Funktionen. Während bei $t = 12,6 \text{ fs}$ in der Monolage ein signifikanter Teil der Wigner-Funktion die Bedingung $x = 0$ (lila Kreis) erfüllt, ist dies im Volumenkristall nicht der Fall. Umgekehrt weist die Wigner-Funktion in der Monolage zum Zeitpunkt $t = 18,6 \text{ fs}$ kaum Überlapp mit der Achse $x = 0$ auf, im Volumenkristall aber schon (lila Kreis).

dass sich ein Teilchen mit Impuls p am Ort x aufhält, kann auch eine quantenmechanische Wellenfunktion mit Wellenvektor k durch $W_{\text{HSG}}(x, k)$ im Phasenraum dargestellt werden. Allerdings kann die Wigner-Funktion dabei im Gegensatz zur Wahrscheinlichkeitsdichte klassischer Teilchen auch negative Werte annehmen. Mit ihr lassen sich die Erwartungswerte im Phasenraum ($\langle x \rangle(t)$, $\langle k \rangle(t)$) bestimmen. Rote Linien in Abb. 5.11 zeichnen deren zeitliche Dynamik für Elektron-Loch-Kollisionen

nach. In der Monolage weist $W_{\text{HSG}}(x, k)$ für den Kollisionszeitpunkt $T_{\text{coll}}^{\text{ML}} = 12,6 \text{ fs}$ (siehe Abb. 5.11a) einen deutlichen Anteil bei $x = 0$ auf (lila Kreis), sodass hier Elektron und Loch mit großer Wahrscheinlichkeit kollidieren. Für spätere Zeiten ist die Kollisionsbedingung nicht mehr erfüllt (siehe Abb. 5.11b). Im Volumenkristall ergibt sich ein umgekehrtes Bild: Hier sind zum Zeitpunkt $t = 12,6 \text{ fs}$ noch keine Kollisionen möglich (siehe Abb. 5.11c), dafür aber 6,0 fs später, also zur Kollisionszeit $T_{\text{coll}}^{\text{bulk}} = 18,6 \text{ fs}$ (siehe Abb. 5.11d), wenn sich wieder ein wesentlicher Teil der Wigner-Funktion bei $x = 0$ zeigt (lila Kreis). Insgesamt ist damit die HSG-Emission (vgl. Abb. 5.10) perfekt mit den Elektron-Loch-Kollisionen (vgl. Abb. 5.11) synchronisiert. Beim Vergleich der Wigner-Funktionen von Volumenkristall und Monolage fällt zudem auf, dass die starken Vielteilchen-Korrelationen in Verbindung mit der Lichtwellen-getriebenen Beschleunigung der Ladungsträger einerseits die Trajektorie ändern und andererseits zu negativen Werten in $W_{\text{HSG}}(x, k)$ führen. Diese deutlichen Signaturen befinden sich jenseits einer semiklassischen Beschreibung und sind daher eine quantenmechanische Besonderheit der Ladungsträgedynamik.

5.3. Dynamische Dephasierungszeiten

Durch die präzise Analyse der optimalen Injektionszeit t_{ex} kann also die Subzyklendynamik von Lichtwellen-getriebenen Ladungsträgern unter dem Einfluss von Vielteilchen-Wechselwirkungen untersucht werden. Dabei wird die relevante Größe, die Subzyklenverzögerung δ_{sc} , dominant durch die Stärke der Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch festgelegt. Umgekehrt können Korrelationen anhand der HSG-Emission studiert werden. Bisher wurde allerdings noch nicht berücksichtigt, dass die emittierte HSG-Strahlung nicht nur als Funktion der Injektionszeit t_{ex} betrachtet werden kann, sondern im hier verwendeten Aufbau auch stets spektral aufgelöst wird. HSG-Emission geschieht, wenn Ladungsträger kollidieren, also innerhalb einer kurzen Zeitspanne, bei der die Kollisionsenergie als breitbandiges Licht abgestrahlt wird. Die spektrale Form der HSG-Emission könnte daher ebenfalls Informationen über die Ladungsträgedynamik enthalten.

Spektral aufgelöst ergibt die HSG-Emission in Abhängigkeit von der Injektionszeit t_{ex} ein zweidimensionales Spektrogramm, wie in Abb. 5.12 gezeigt. Für das experimentell gemessene HSG-Spektrogramm der WSe_2 -Monolage (oben) wurde ein

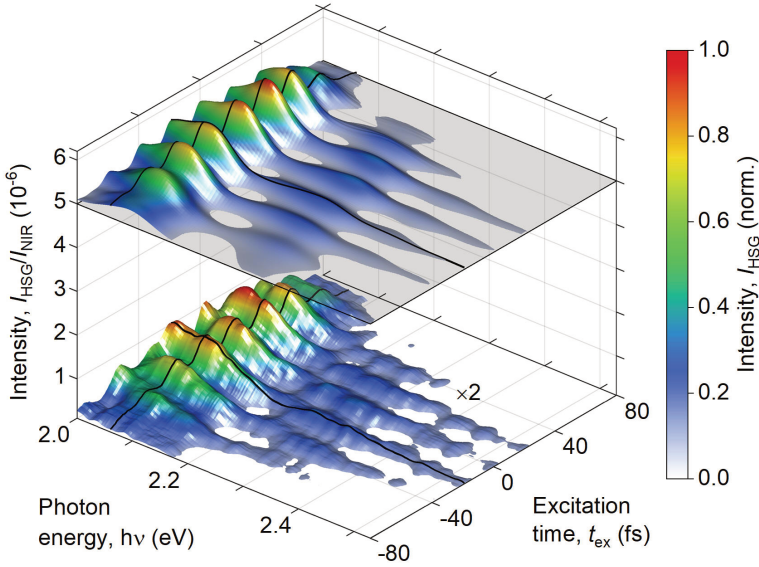


Abbildung 5.12. | HSG-Spektrogramm. Frequenz- und zeitaufgelöste HSG-Emission einer WSe₂-Monolage für eine Spitzenfeldstärke des Treiberfeldes von $E_{\text{peak}} = 6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ und einem NIR-Fluss von $\Phi_{\text{NIR}} = 9,5 \mu\text{J cm}^{-2}$. Die spektrale Intensität I_{HSG} ist relativ zur Intensität des NIR-Impulses I_{NIR} aufgetragen. QDCE-Rechnung (oben) und Experiment (unten) zeigen eine quantitative Übereinstimmung. Für eine übersichtlichere Darstellung weisen die Spektrogramme einen vertikalen Versatz auf und die experimentellen Daten wurden mit einem Faktor zwei skaliert. Die schwarzen Linien deuten Schnitte an, die in Abb. 5.13 gezeigt sind.

Multi-THz-Impuls mit einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ und ein NIR-Impuls mit einem Fluss von $\Phi_{\text{NIR}} = 9,5 \mu\text{J cm}^{-2}$ verwendet. Farblich kodiert ist auf der z-Achse die HSG-Intensität I_{HSG} relativ zur Intensität des NIR-Impulses I_{NIR} dargestellt. Mithilfe der QDCE-Theorie können die für die Ladungsträgerdynamik und HSG-Emission relevanten Größen wie die makroskopische Polarisation berechnet werden, was ebenfalls eine spektral aufgelöste Analyse der HSG-Strahlung

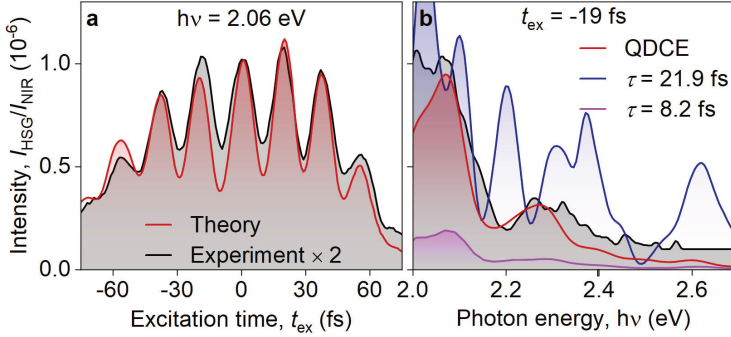


Abbildung 5.13. | Quantitative Berechnung von HSG-Spektren. **a**, Relative HSG-Intensität $I_{\text{HSG}}/I_{\text{NIR}}$ aus Abb. 5.12 als Funktion der Injektionszeit t_{ex} bei der Photonenenergie $h\nu = 2,06$ eV. Verglichen werden Experiment (grau) und QDCE-Rechnung (rot). **b**, Gemessene (grau) und mittels QDCE-Rechnung ermittelte (rot) relative HSG-Intensität $I_{\text{HSG}}/I_{\text{NIR}}$ aus Abb. 5.12 als Funktion der Photonenenergie $h\nu$ bei fester Injektionszeit $t_{\text{ex}} = -19$ fs. Zusätzlich sind die Resultate von Rechnungen mit konstanten Dephasierungszeiten $\tau = 21,9$ fs (blau) und $\tau = 8,2$ fs (lila) eingezeichnet. Allerdings kann nur die volle QDCE-Rechnung das Experiment quantitativ beschreiben.

erlaubt. Indem stets die relative Größe $I_{\text{HSG}}/I_{\text{NIR}}$ bestimmt und in den QDCE-Rechnungen die gleiche Intensität für den NIR-Impuls wie im Experiment verwendet wird, können Experiment und Theorie nicht nur qualitativ, sondern sogar quantitativ verglichen werden. Das mit den QDCE-Rechnungen bestimmte HSG-Spektrogramm der Monolage (siehe Abb. 5.12 unten) entspricht den Messungen (oben) bis ins Detail.

Die perfekte Übereinstimmung zwischen Experiment und Theorie wird in eindimensionalen Schnitten durch die Spektrogramme direkt ersichtlich. Abbildung 5.13 zeigt dabei jeweils einen Querschnitt entlang der Zeitachse bei der Photonenenergie $h\nu = 2,06$ eV (siehe Abb. 5.13a) beziehungsweise entlang der Energieachse bei der Injektionszeit $t_{\text{ex}} = -19$ fs (siehe Abb. 5.13b) für Experiment (grau) und QDCE-Theorie (rot). Die QDCE-Rechnung beschreibt nicht nur qualitativ die spektrale Form aus dem Experiment. Vielmehr stimmt die HSG-Emission I_{HSG} relativ zur NIR-Intensität I_{NIR} sogar quantitativ mit dem Experiment überein. Und das, ob-

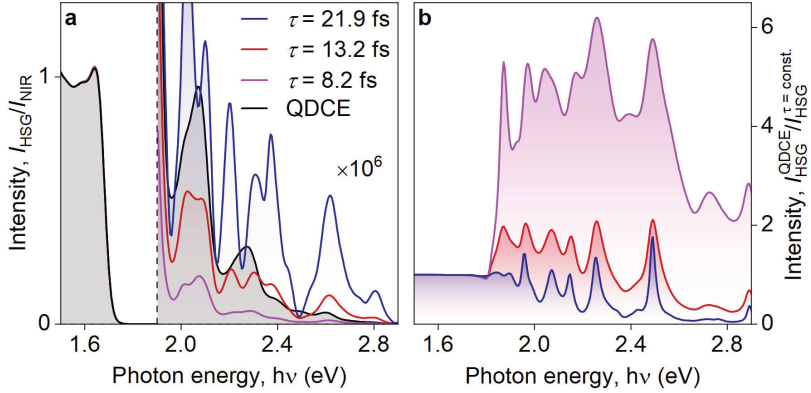


Abbildung 5.14. | Auswirkung von Dephasierung auf HSG-Spektren. **a.** HSG-Spektren aus Rechnungen mit konstanter Dephasierungszeit τ (farbig) sowie aus der vollen QDCE-Rechnung (grau). Oberhalb der Photonenenergie $h\nu = 1,9$ eV sind die Spektren für eine klarere Darstellung mit einem Faktor 10^6 skaliert. **b.** Relative Intensität des HSG-Spektrums aus der QDCE-Rechnung $I_{\text{HSG}}^{\text{QDCE}}$ im Vergleich zur Intensität der HSG-Spektren aus Rechnungen mit konstanter Dephasierungszeit $I_{\text{HSG}}^{\tau=\text{const.}}$ aus **a.** Durch die Annahme konstanter Dephasierungszeiten treten zusätzliche Modulationen im Spektrum auf, die im Experiment nicht beobachtet werden.

wohl wegen des nichtlinearen Charakters der HSG bereits eine kleine Änderung der Feldstärke des Treiberfeldes die hier gezeigten Seitenbänder der vierten bis achten Ordnung empfindlich beeinflussen kann.

In der QDCE-Rechnung ist die Dephasierungszeit für die $1s$ -A-Exzitonen nicht konstant, sondern abhängig vom genauen Zustand in der Brillouinzone, in dem sich Elektron und Loch gerade befinden [Kir12]. So beträgt die Dephasierungszeit in der Monolage kurz nach Erzeugung der kohärenten Elektron-Loch-Paare $\tau = 21,9$ fs. Durch die starke Beschleunigung aufgrund des intensiven Treiberfeldes sinkt die Dephasierungszeit dann aber auf $\tau = 8,2$ fs. Einfachere Modelle, die keine zustandsabhängige, sondern konstante Dephasierungszeiten annehmen, schaffen es nicht, das gemessene Spektrogramm hinreichend zu beschreiben. So weicht für eine konstante Dephasierungszeit $\tau = 21,9$ fs (siehe Abb. 5.13b, blau) die spektrale Form von den Experimenten ab. Für ein Modell mit $\tau = 8,2$ fs (lila) wird die HSG-Emission I_{HSG}

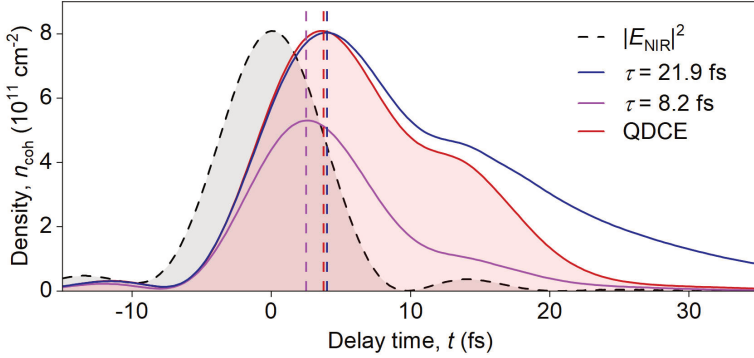


Abbildung 5.15. | Kohärenz der Ladungsträger in der QDCE-Rechnung. Dichte von kohärenten Exzitonen als Funktion der Zeit t nach Anregung durch den NIR-Impuls (schwarz). In der QDCE-Rechnung (rot) folgt die Ladungsträgerdichte kurz nach Anregung dem gleichen Verlauf wie im Modell einer konstanten Dephasierungszeit $\tau = 21,9$ fs (blau). Später, wenn die Ladungsträger im Multi-THz-Feld beschleunigt werden und somit ausgelenkte Zustände besetzen, zerfällt die kohärente Exzitondichte schneller und nähert sich dem Verlauf mit einer konstanten Dephasierungszeit $\tau = 8,2$ fs (lila) an. Vertikale Linien zeigen das Maximum der Ladungsträgerdichte in den verschiedenen Modellen.

um eine ganze Größenordnung unterschätzt, da zu viele Elektron-Loch-Paare ihre Kohärenz verlieren und somit nicht mehr zur Erzeugung von Seitenbändern hoher Ordnung beitragen können.

Um weiter zu verdeutlichen, warum nur die QDCE-Theorie die HSG-Spektren hinreichend beschreibt, werden in Abb. 5.14 drei Modelle mit konstanter Dephasierungszeit mit der QDCE-Rechnung verglichen. Die relative Stärke der HSG-Emission $I_{\text{HSG}}/I_{\text{NIR}}$ (siehe Abb. 5.14a) weicht für alle drei Modelle mit $\tau = 21,9$ fs (blau), 13,2 fs (rot) beziehungsweise 8,2 fs (lila) im Bereich über 2 eV sowohl in Form als auch Quantität von der QDCE-Rechnung (grau) ab. Um reine Änderungen in der spektralen Form durch die Modelle mit konstanter Dephasierungszeit zu verdeutlichen, stellt Abb. 5.14b das Verhältnis aus der HSG-Emission der QDCE-Rechnung $I_{\text{HSG}}^{\text{QDCE}}$ und der drei Modelle $I_{\text{HSG}}^{\tau=\text{const.}}$ dar. Dabei treten bei höheren Photonenenergien deutliche Oszillationen auf, die im Experiment und den QDCE-Daten nicht beobach-

tet werden. Damit ergibt sich, dass dynamisch angepasste Streuprozesse aufgrund der starken Coulomb-Wechselwirkung während der Beschleunigung von Ladungsträgern empfindlich die HSG-Emission der Monolage beeinflussen.

Mikroskopisch betrachtet zerstört Dephasierung die Kohärenz der Exzitonen und verringert dadurch die Anzahl an Elektron-Loch-Paaren, die zur HSG-Emission beitragen können. In Abb. 5.15 ist die Dichte kohärenter Exzitonen n_{coh} in Abhängigkeit von der Zeit t nach Anregung durch den NIR-Impuls (schwarz) gezeigt. Zunächst steigt die Ladungsträgerdichte schnell an und folgt im QDCE-Modell (rot) den Simulationen mit der längsten Dephasierungszeit von $\tau = 21,9$ fs (blau) bis die maximale Dichte erreicht wird. Danach fällt n_{coh} schneller ab und folgt für späte Zeiten t dem Verlauf der Simulation mit einer kürzeren Dephasierungszeit $\tau = 8,2$ fs (lila). Die Streuung der Ladungsträger fängt also zunächst relativ langsam an, nachdem die kohärenten Elektron-Loch-Paare erzeugt werden. Denn zu Beginn liegen 1s-Exzitonen vor, die vergleichsweise langsam dephasieren. Sobald sie das externe Treiberfeld allerdings beschleunigt und in höherenergetische Zustände bringt, nimmt die Streuung zu [Kir06a]. Aus diesem Grund lässt sich die Dephasierungszeit in den Simulationen nicht auf eine feste Konstante reduzieren, sondern muss dynamisch je nach Zustand der Exzitonen angepasst werden.

5.4. Externes Feld versus Coulomb-Anziehung

Bisher wurde untersucht, wie sich die Coulomb-Wechselwirkung sowie Streuprozesse auf zeitliche und spektrale Aspekte der HSG-Emission auswirken. Die Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch wirkt dabei der Lichtwellen-getriebenen Beschleunigung der Ladungsträger im externen Feld entgegen, zumindest während der Separationsphase. Aus diesem Grund sollte vor allem das Verhältnis zwischen äußerer, treibender Kraft und der intern wirkenden Coulomb-Wechselwirkung für die Subzyklendynamik der Exzitonen von Bedeutung sein. Tatsächlich fällt bei genauer Betrachtung von Abb. 5.5 auf, dass die Subzyklenverzögerung in Volumenkristall und Monolage für die zentralen Halbzyklen des Treiberfeldes tendenziell leicht erhöht ist im Vergleich zu den schwächeren Halbzyklen. Abbildung 5.16 stellt diesen Umstand direkt dar. Hier ist die Subzyklenverzögerung δ_{sc} (rot) für jeden Halbzyklus des äußeren Treiberfeldes gezeigt, dessen Absolutbetrag (schwarz) mit einem

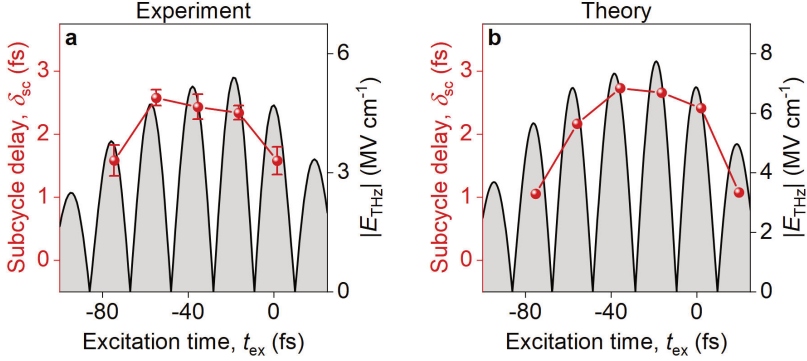


Abbildung 5.16. | Abnahme der Subzyklenverzögerung für schwache Halbzyklen. **a**, Experimentell gemessene Subzyklenverzögerung δ_{sc} (rot) als Funktion der Injektionszeit t_{ex} . Das Treiberfeld (grau) mit einer Spitzenfeldstärke von $E_{peak} = 5,5 \text{ MV cm}^{-1}$ ist als Referenz auf der gleichen Zeitskala gezeigt. **b**, Die zugehörigen QDCE-Rechnungen reproduzieren die für kleine Feldstärken charakteristische geringere Subzyklenverzögerung für die weniger intensiven Halbzyklen des Treiberfeldes.

Spitzenwert von $E_{peak} = 5,5 \text{ MV cm}^{-1}$ im Experiment eingezeichnet ist. Sowohl im Experiment (siehe Abb. a) als auch mit den QDCE-Rechnungen (siehe Abb. b) ergibt sich für die intensivsten Halbzyklen die höchste Subzyklenverzögerung. Hier gilt zu beachten, dass nicht nur die Feldstärke des Injektionshalbzyklus, sondern auch des darauffolgenden Halbzyklus, während dessen die Ladungsträger kollidieren, berücksichtigt werden muss. Für weniger intensive Halbzyklen nimmt δ_{sc} ab.

Um systematisch zu überprüfen, wie sich die relative Stärke zwischen Coulomb-Anziehung und Lichtwellen-Beschleunigung auf die Dynamik von kohärenten Elektron-Loch-Paaren auswirkt und die neue Messmethode der Attosekundenchronoskopie zu testen, wird im Experiment die Intensität des Multi-THz-Impulses variiert. Abbildung 5.17a zeigt die Subzyklenverzögerung $\langle \delta_{sc} \rangle$ in Abhängigkeit von der Spitzenfeldstärke E_{peak} des Treiberfeldes. Für die gemittelte Subzyklenverzögerung wurden dabei die drei intensivsten HSG-Emissionsmaxima zwischen $t_{ex} \approx -40 \text{ fs}$ und $t_{ex} \approx 0 \text{ fs}$ berücksichtigt. Außerhalb dieses Zeitintervalls erreichen die Halbzyklen des Multi-THz-Impulses nur einen Bruchteil der maximalen Feldstärke, weshalb

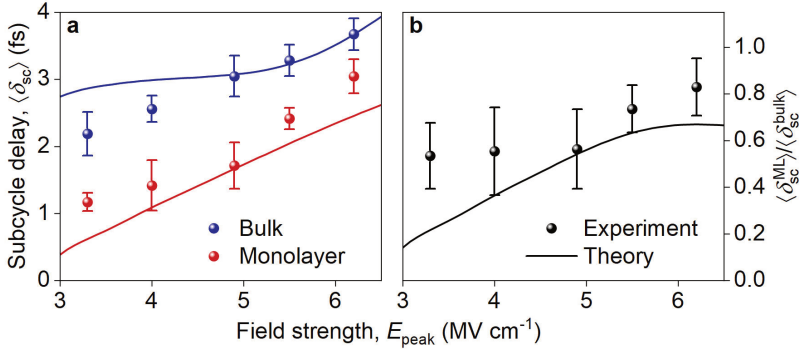


Abbildung 5.17. | Lichtwellen-Beschleunigung versus Coulomb-Anziehung. **a**, Über drei HSG-Emissionsmaxima zwischen $t_{ex} \approx -40$ fs und $t_{ex} \approx 0$ fs gemittelte Subzyklenverzögerung $\langle \delta_{sc} \rangle$ im WSe₂-Volumenkristall (blau) und Monolage (rot) für verschiedene Multi-THz-Spitzenfeldstärken E_{peak} . Sowohl Experiment (Datenpunkte) als auch QDCE-Rechnung (Linien) zeigen eine höhere Subzyklenverzögerung bei höheren Feldstärken. **b**, Verhältnis aus gemittelter Subzyklenverzögerung im Volumenkristall $\langle \delta_{sc}^{bulk} \rangle$ und in der Monolage $\langle \delta_{sc}^{ML} \rangle$ aus Experiment (Datenpunkte) und Theorie (Linie). Für hohe Spitzenfeldstärken nähert sich das Verhältnis dem Wert 1 an.

sie weniger empfindlich auf Änderungen von E_{peak} reagieren. Mit einer maximalen Spitzenfeldstärke von $E_{peak} = 6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ setzt noch keine HHG ein (vgl. Abb. 2.6 und Referenz [Lan16]). In der Monolage (rote Punkte) steigt $\langle \delta_{sc} \rangle$ mit zunehmender Feldstärke monoton von $1,2 \pm 0,2$ fs auf $3,0 \pm 0,3$ fs an. Im Volumenkristall (blaue Punkte) ergibt sich ebenfalls eine lineare Zunahme von $\langle \delta_{sc} \rangle$, allerdings ist hier die Subzyklenverzögerung für alle Feldstärken größer als für die Monolage aufgrund der schwächeren Coulomb-Korrelationen. Der streng monotone Zuwachs von $\langle \delta_{sc} \rangle$ in Abhängigkeit von E_{peak} wird ebenfalls von den QDCE-Rechnungen (durchgezogene Linie) bestätigt. Im Fall der Monolage zeigen die Rechnungen einen nahezu linearen Zusammenhang zwischen der Subzyklenverzögerung und der Treiberfeldstärke.

Bei immer stärkeren Feldern E_{peak} wird die Trajektorie der Elektron-Loch-Paare zunehmend durch das eingestrahlte Feld bestimmt und der Einfluss von Korrelationen auf die Ladungsträgerdynamik fällt vergleichsweise geringer aus. Dadurch ähneln

die Trajektorien bei höheren Feldern denen quasifreier Elektron-Loch-Paare und die Subzyklenverzögerung $\langle \delta_{\text{sc}} \rangle$ steigt an. Zudem können starke Felder Ladungsträger weiter auslenken, sodass diese in einen größeren Phasenraum streuen können und somit schneller dephasieren. Also werden kürzere Trajektorien über längere bevorzugt, was bedeutet, dass Injektionszeitpunkte unmittelbar vor einem Nulldurchgang des Treiberfeldes zu effizienterer HSG-Emission führen. Genau wie die zunehmend vernachlässigbaren Korrelationen bei starken eingestrahnten Feldern übersetzt sich dieses Verhalten in eine größere Subzyklenverzögerung, was den experimentell beobachteten Verlauf der Daten erklärt.

Dass immer stärkere Spitzenfelder E_{peak} irgendwann die Coulomb-Korrelationen im Kristall dominieren, zeigt auch der Quotient der Subzyklenverzögerungen in Volumenkristall und Monolage $\langle \delta_{\text{sc}}^{\text{ML}} \rangle / \langle \delta_{\text{sc}}^{\text{bulk}} \rangle$ (siehe Abb. 5.17b). Er steigt sowohl im Experiment (Datenpunkte) als auch in der QDCE-Theorie (durchgezogene Linie) an. Für die stärksten verwendeten Felder nähert sich der Quotient dem Wert 1 an. Hier spielen die unterschiedlich starken Coulomb-Korrelationen in Volumenkristall und Monolage nur noch eine untergeordnete Rolle, da die Elektronentrajektorie vor allem durch die Lichtwellen-Beschleunigung geprägt ist.

Im klassischen Modell der Beschleunigung von Elektron-Loch-Paaren in einem äußeren Treiberfeld (vgl. Abb. 5.9) treten zwei Terme auf, die genau diese beiden konkurrierenden Kräfte beschreiben (vgl. Gleichung 5.1). Wird hier die Stärke der Coulomb-Wechselwirkung α konstant gehalten und die Spitzenfeldstärke des Treiberfeldes erhöht, kann ebenso die Abhängigkeit der Subzyklenverzögerung von E_{peak} untersucht werden. Abbildung 5.18a (rote Datenpunkte) offenbart dabei wie im Experiment eine lineare Zunahme von δ_{sc} mit E_{peak} . Allerdings können mit der bisherigen klassischen Beschreibung keine Subzyklenverzögerungen größer als ungefähr $\delta_{\text{sc}} = 2,12 \text{ fs}$ erreicht werden, was dem Fall freier Ladungsträger ($\alpha = 0$) entspricht. Dieser Grenzfall tritt für sehr hohe Felder ein, bei denen die Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch vernachlässigt werden kann. Um die im Experiment beobachtete Subzyklenverzögerung von teilweise über $\delta_{\text{sc}} = 3 \text{ fs}$ reproduzieren zu können, wird im klassischen Modell ein zusätzlicher Mechanismus benötigt, der kürzere Trajektorien bevorzugt und damit größere Subzyklenverzögerungen unterstützt. Das kann beispielsweise mit Streuung realisiert werden. Unter der vereinfachenden Annahme, dass die kohärenten Elektron-Loch-Paare mit einer festen Zeitkonstante

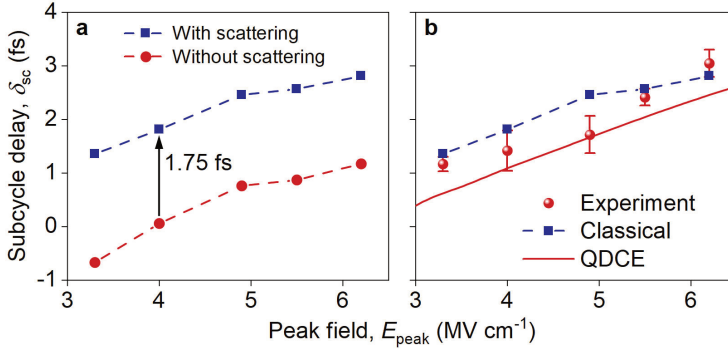


Abbildung 5.18. | Einfluss der Multi-THz-Feldstärke im klassischen Modell. **a**, Subzyklenverzögerung δ_{sc} im klassischen Modell als Funktion der Multi-THz-Spitzenfeldstärke E_{peak} ohne (rot) und mit Dephasierung (blau) der Elektron-Loch-Paare. Durch eine konstante Dephasierungszeit von $\tau = 9$ fs erhöht sich die Subzyklenverzögerung um 1,75 fs. **b**, Sowohl die voll quantenmechanische QDCE-Rechnung (rote Linie) als auch das klassische Modell mit konstanter Dephasierung (blaue Datenpunkte) können die experimentell beobachtete Skalierung der Subzyklenverzögerung (rote Datenpunkte) quantitativ beschreiben.

$\tau = 9$ fs dephasieren, werden auch im klassischen Modell Werte $\delta_{sc} > 2,12$ fs möglich (siehe Abb. 5.18a, blaue Datenpunkte). Tatsächlich führt die Berücksichtigung von Streuung zu einem Verlauf von δ_{sc} in Abhängigkeit von E_{peak} parallel zum Verlauf ohne Streuung (rote Datenpunkte), allerdings mit einem Versatz von 1,75 fs. Sowohl stärkere Treiberfelder als auch eine erhöhte Dephasierung führen also zu einer größeren Subzyklenverzögerung.

Hier soll aber angemerkt sein, dass mit dem klassischen Modell die HSG-Emission nicht spektral aufgelöst werden kann. Kapitel 5.3 hat bereits gezeigt, dass Streuprozesse empfindlich die spektrale Form und Intensität der HSG-Strahlung beeinflussen. Insbesondere reichen konstante Streuzeiten nicht aus, um die Dynamik der Ladungsträger präzise zu beschreiben. Vielmehr müssen zustandsabhängige Streuprozesse berücksichtigt werden. Deshalb stellt die feste Dephasierungszeit im klassischen Modell eine starke Vereinfachung dar und dient eher zur Veranschaulichung der Elektronendynamik. Insgesamt kann aber der experimentell beobachtete, nahe-

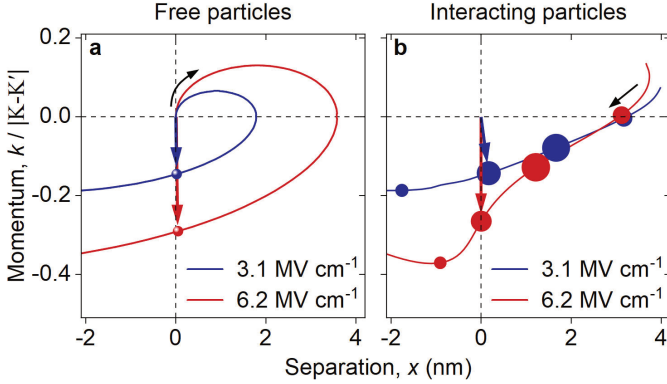


Abbildung 5.19. | Einfluss der Multi-THz-Feldstärke auf exzitonische Trajektorien. a, Aus QDCE-Rechnungen ermittelte Trajektorien für den Fall freier Ladungsträger, die zum Zeitpunkt $t_{\text{ex}} = -16,5 \text{ fs}$ angeregt werden und in einem Feld mit der Spitzenfeldstärke $E_{\text{peak}} = 3,1 \text{ MV cm}^{-1}$ (blau) beziehungsweise $E_{\text{peak}} = 6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ (rot) beschleunigt werden. Die farbigen Pfeile markieren die (x, k) -Koordinaten zum Zeitpunkt der Kollision $20,9 \text{ fs}$ nach Anregung der Ladungsträger. Diese sind für die beiden Trajektorien perfekt synchronisiert. Der schwarze Pfeil zeigt die Durchlaufrichtung der Trajektorie. b, Trajektorien für den Fall wechselwirkender Ladungsträger in einer WSe_2 -Monolage. Die Pfeile markieren die (x, k) -Koordinaten $15,9 \text{ fs}$ nach Anregung der Ladungsträger. Das ist der Zeitpunkt, zu dem die Ladungsträger für $E_{\text{peak}} = 6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ kollidieren. Hier sind die beiden gezeigten Trajektorien nicht mehr synchronisiert, da die Kollision für die niedrigere Feldstärke erst kurze Zeit später geschieht. Der Durchmesser der Kreise entspricht dem Anteil der exzitonischen Polarisation, der zur HSG-Emission beiträgt.

zu lineare Verlauf von δ_{sc} in Abhängigkeit von E_{peak} sowohl mit dem klassischen als auch mit dem quantenmechanischen QDCE-Modell richtig beschrieben werden (siehe Abb. 5.18b).

Dass δ_{sc} von der verwendeten Treiberfeldstärke abhängt, bedeutet bereits, dass die relative Stärke zwischen Lichtwellen-Beschleunigung und Vielteilchen-Wechselwirkungen wichtig ist und somit, dass Korrelationen die Dynamik der Ladungsträger beeinflussen. Um das mikroskopisch zu verstehen, kann die Elektron-Loch-Kohärenz im Phasenraum als Trajektorie dargestellt werden. Für quasifreie Ladungsträger, die

in keinerlei Art und Weise wechselwirken und eine quadratische Dispersion aufweisen, zeigt Abb. 5.19a zwei beispielhafte Trajektorien für den Fall einer moderaten Feldstärke von $E_{\text{peak}} = 3,1 \text{ MV cm}^{-1}$ (blau) und für eine hohe Feldstärke von $6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ (rot). In beiden Fällen beträgt der Injektionszeitpunkt $t_{\text{ex}} = -16,5 \text{ fs}$. Die Trajektorien sehen qualitativ identisch aus, mit dem einzigen Unterschied, dass für die doppelte Feldstärke auch doppelt so hohe Auslenkungen im Phasenraum erreicht werden. Da aber die Geschwindigkeit der freien Ladungsträger linear mit der Auslenkung im k -Raum skaliert, sind die beiden Trajektorien immer noch perfekt synchronisiert. Das wird durch die farbigen Pfeile verdeutlicht, die die (x, k) -Koordinate der Trajektorien zum Kollisionszeitpunkt $T_{\text{coll}} = 20,9 \text{ fs}$ nach der Injektion anzeigen. Sie sind unabhängig von der verwendeten Feldstärke parallel ausgerichtet, sodass im Fall freier Teilchen keine Abhängigkeit der Subzyklenverzögerung von der Feldstärke erwartet wird.

Korrelationen beeinflussen die Dynamik von Elektron-Loch-Paaren in der WSe₂-Monolage, für die wie zuvor der Schwerpunkt der Wigner-Funktion $W_{\text{HSG}}(x, k)$ mittels QDCE-Rechnungen bestimmt wird. Für den gleichen Injektionszeitpunkt $t_{\text{ex}} = -16,5 \text{ fs}$ wie im Fall quasifreier Ladungsträger sind die Trajektorien in Abb. 5.19b dargestellt. Der Anteil der exzitonischen Polarisation, der zur HSG-Emission beiträgt, ist dabei als Durchmesser der Kreise gezeigt. Sowohl für moderate als auch für starke Felder steigt dieser Anteil zunächst schnell an, da die Ladungsträger im externen Feld Energie aufnehmen. Kurz nach der Kollisionsbedingung $x = 0$ nimmt er aber aufgrund von Kollisionen und Streuprozessen abrupt ab. Wird die Treiberfeldstärke von $3,1 \text{ MV cm}^{-1}$ (blau) auf $6,2 \text{ MV cm}^{-1}$ (rot) verdoppelt, ändert sich die Form der Trajektorie. Die farbigen Pfeile deuten auf die (x, k) -Koordinate der Trajektorien $15,9 \text{ fs}$ nach Anregung der Ladungsträger. Während diese Zeit der Kollisionszeit T_{coll} für die hohe Feldstärke entspricht, kollidieren die Ladungsträger für $E_{\text{peak}} = 3,1 \text{ MV cm}^{-1}$ erst ein wenig später, nämlich bei $T_{\text{coll}} = 16,2 \text{ fs}$. Aus diesem Grund sind die Pfeile nicht mehr gleich ausgerichtet und damit die Trajektorien nicht mehr synchronisiert. Das bedeutet, dass sich auch δ_{sc} mit der Feldstärke verändert. Damit führen Colomb-Korrelationen und Streuprozesse nicht nur zu einer Verringerung der Kollisionszeit, sondern auch zu einer Feldstärke-Abhängigkeit der Ladungsträgerdynamik, wie sie experimentell beobachtet wird (vgl. Abb. 5.17).

5.5. Spin-Tal-Kopplung und Pauli-Verbot

Bis hierhin konnten mit der neu entwickelten Methode der Attosekundenchronoskopie die Stärke von Coulomb-Korrelationen, dynamische Streuprozesse sowie der Einfluss des Treiberfeldes in der Elektronendynamik entschlüsselt werden. Zum Abschluss bleibt noch offen, ob auch Quanteneigenschaften von Festkörpern die Trajektorie von Bloch-Elektronen prägen und damit direkt in der Zeitdomäne beobachtet werden können. Um diese Frage zu beantworten, kann beispielsweise die Spin-Tal-Kopplung in TMDC-Monolagen genutzt werden (vgl. Kapitel 3). Aufgrund der starken Spin-Bahn-Wechselwirkung und der gebrochenen Inversionssymmetrie in einer WSe₂-Monolage können die inäquivalenten Hochsymmetriepunkte K und K' der Brillouinzone selektiv mit zirkular polarisiertem Licht angeregt werden (vgl. Abb. 3.3). Zudem ist die Bandstruktur entlang der K – K'-Richtung asymmetrisch. Konkret besitzt das Leitungsband vom K- beziehungsweise K'-Tal startend hin zum anderen Tal eine steilere Steigung als in Richtung des Γ -Punktes.

Abbildung 5.20 zeigt auf einer logarithmischen Skala die zeit- und frequenz aufgelöste HSG-Emission einer WSe₂-Monolage, in der kohärente Exzitonen ausschließlich im K-Tal mit einem links-zirkular polarisierten NIR-Impuls (siehe Abb. 5.20a) beziehungsweise im K'-Tal mit einem rechts-zirkular polarisierten NIR-Impuls (siehe Abb. 5.20b) erzeugt werden. Der Multi-THz-Impuls mit einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$ (im Bild jeweils oben) beschleunigt die Ladungsträger entlang der K – K'-Richtung. Beide Spektrogramme zeigen eine starke Modulation als Funktion der Injektionszeit t_{ex} , die vor allem bei der vierten harmonischen Ordnung zwischen 484 und 526 THz sichtbar wird. In diesem Bereich sind die HSG-Spektrogramme unter links- und rechts-zirkular polarisierter Anregung identisch. Bei höheren Ordnungen macht sich aber ein deutlicher Unterschied in der HSG-Emission bemerkbar: Während das Seitenband der achten Ordnung zwischen 577 und 638 THz für links-zirkular polarisierte NIR-Impulse vor allem für eine Injektion während positiver Halbzyklen des Treiberfeldes auftritt, ist das für rechts-zirkular polarisierte NIR-Impulse vor allem für negative Halbzyklen der Fall.

Dieser Umstand wird besonders deutlich, wenn die HSG-Emission spektral über die einzelnen Ordnungen integriert wird. Abbildung 5.21 zeigt die gesamte Intensität der vierten (a), sechsten (b) sowie achten (c) Ordnung als Funktion der Injekti-

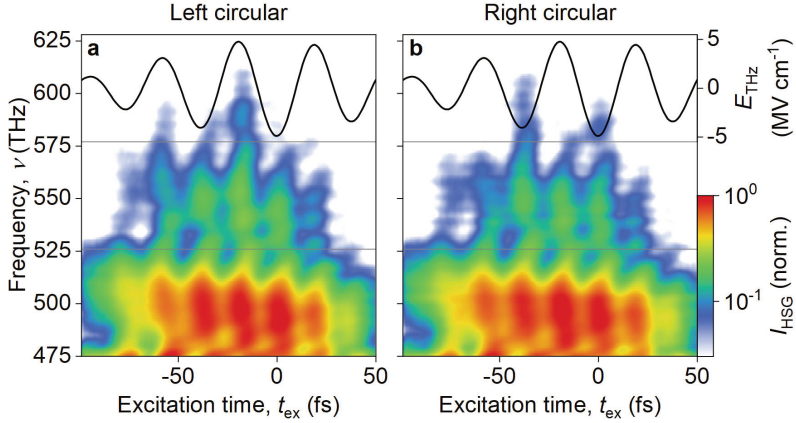


Abbildung 5.20. | HSG-Emission Valley-polarisierter Elektron-Loch-Paare. a, b, Spektral aufgelöste HSG-Emission einer WSe₂-Monolage als Funktion der Injektionszeit t_{ex} für links- (a) und rechts-zirkular (b) polarisierte NIR-Impulse. Das Multi-THz-Treiberfeld (schwarze Kurve oben) besitzt eine Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$ und der NIR-Fluss beträgt $\Phi_{\text{NIR}} = 14 \mu\text{J cm}^{-2}$. Die horizontalen grauen Linien unterteilen die Spektrogramme in die Bereiche der vierten (unten, 484 – 526 THz), der sechsten (Mitte, 526 – 577 THz) und der achten Ordnung (oben, 577 – 638 THz). Besonders bei der höchsten gezeigten Ordnung ist zu erkennen, wie die HSG-Emission für links-zirkular polarisierte NIR-Impulse zunimmt (abnimmt), wenn die Ladungsträger während positiver (negativer) Halbzyklen des Treiberfeldes angeregt werden. Für rechts-zirkular polarisierte Injektionsimpulse ist das Verhalten umgekehrt.

onszeit t_{ex} für links-zirkular (blau), rechts-zirkular (rot) sowie linear polarisierte Anregung (schwarz gestrichelt) der Ladungsträger. Für die niedrigste Ordnung (a) treten keine Unterschiede für die unterschiedlichen Polarisationen auf und positive wie negative Halbzyklen des Treiberfeldes führen gleichermaßen zur Emission von HSG-Strahlung. Das ändert sich bei der sechsten Ordnung (b), bei der links-zirkular polarisierte Anregung während eines positiven Halbzyklus zu einer starken und während eines negativen Halbzyklus zu einer etwas abgeschwächten HSG-Emission führt. Der Kontrast zwischen positiven und negativen Halbzyklen wird bei der achten Ordnung (c) maximal und die HSG-Emissionsmaxima für negative Halbzyklen sind na-

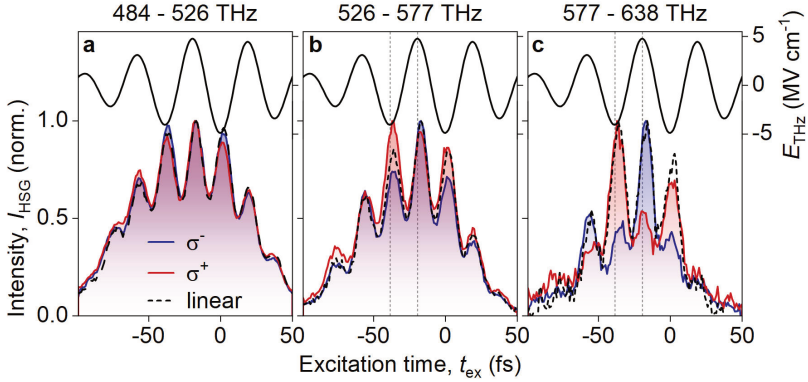


Abbildung 5.21. | Gebrochene Symmetrie der HSG-Emission. Spektral integrierte und normierte HSG-Emission einer WSe₂-Monolage als Funktion der Injektionszeit t_{ex} . Das Fenster für die spektrale Integration erstreckt sich dabei wie in Abb. 5.20 eingezeichnet über die vierte (a, 484 – 526 THz), die sechste (b, 526 – 577 THz) und die achte Ordnung (c, 577 – 638 THz). Das Treiberfeld (oben) weist eine Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$ auf. Während bei der vierten Ordnung (a) die HSG-Emission sowohl für links- (blau) und rechts-zirkular (rot) als auch für linear polarisierte (schwarz gestrichelt) NIR-Impulse identisch aussieht, sind leichte Abweichungen für die sechste Ordnung (b) erkennbar. Hier wird mehr HSG-Strahlung emittiert, wenn die Ladungsträger während eines positiven (für links-zirkular polarisierte Anregung) beziehungsweise eines negativen (für rechts-zirkular polarisierte Anregung) Halbzyklus des Treiberfeldes injiziert werden. Für linear polarisierte NIR-Impulse ist keine Symmetriebrechung für negative und positive Halbzyklen des Treiberfeldes zu sehen. Für die achte Ordnung (c) wird die Symmetriebrechung noch stärker. Gestrichelte vertikale Linien markieren die Position des zentralen positiven und negativen Halbzyklus des Treiberfeldes.

hezu komplett unterdrückt. Für die gegensätzliche Helizität des NIR-Impulses ist dieses Muster invertiert und eine Anregung während negativer Halbzyklen führt zu einer effizienten HSG-Emission. Ein linear polarisierter NIR-Impuls bedingt eine von der Polarität des Treiberfeldes unabhängige HSG-Emission.

Dass die HSG-Emission unter zirkular polarisierter Anregung für positive und negative Halbzyklen unterschiedlich ausfällt, bedeutet, dass die Ladungsträgersdynamik für positive Felder nicht der für negative Felder entspricht (siehe Abb. 5.22).

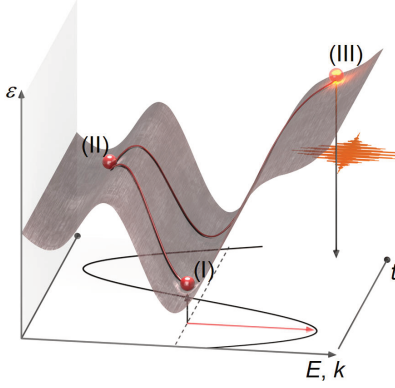


Abbildung 5.22. | HSG-Emission in einem einzelnen Tal. Ein links-zirkular polarisierter NIR-Impuls regt Elektronen im K-Tal zum Zeitpunkt t_{ex} an (I, roter Pfeil). Geschieht dies während eines positiven Halbzyklus des Treiberfeldes (schwarze Kurve unten), werden die Elektronen zunächst in den flachen Teil der Bandstruktur beschleunigt (II). Der folgende negative Halbzyklus treibt die Ladungsträger dann aber in Richtung des steilen Bandanstiegs, wo sie mit viel Energie kollidieren und effizient HSG-Strahlung emittieren (III).

Mit links-zirkular polarisiertem Licht werden kohärente Elektron-Loch-Paare nur im K-Tal erzeugt (I). Für einen Injektionszeitpunkt während eines positiven Halbzyklus des Treiberfeldes beschleunigt das positive Feld die Ladungsträger zunächst in den Bereich der Bandstruktur, in dem das Band erst kurz ansteigt und für höhere Auslenkungen wieder abfällt (II). Der folgende negative Halbzyklus führt dann zu Elektron-Loch-Kollisionen, also wenn die Ladungsträger in Richtung des steileren Anstiegs der Bandenergie beschleunigt werden (III). Damit können die Ladungsträger energiereich kollidieren, was zu einer effizienten HSG-Emission führt. Werden die Elektron-Loch-Paare während eines negativen Halbzyklus angeregt, kollidieren sie im flachen Teil der Bandstruktur, was zu keiner starken HSG-Emission führt. Für die entgegengesetzte Helizität des Anregeimpulses wird das K' -Tal bevölkert und Injektionszeitpunkte während negativer Halbzyklen führen zu Kollisionen im dispersiven Teil des Bandes. Diese Diskrepanz zwischen positiven und negativen Halbzyklen tritt allerdings erst dann auf, wenn die Ladungsträger bis in asymmetrische Bereiche der Bandstruktur ausgelenkt werden. Aus diesem Grund nimmt der Kontrast zwischen negativen und positiven Halbzyklen mit der Ordnung der Seitenbänder zu. Linear polarisierte Anregung führt zu einer gleichmäßigen Bevölkering der beiden gespiegelten Täler, was die Symmetrie der HSG-Emission wiederherstellt.

Somit lassen sich Symmetrien der Bandstruktur in der HSG-Emission wiederfinden, wie es schon in früheren Arbeiten nachgewiesen wurde [Lan18, Bor20]. Doch

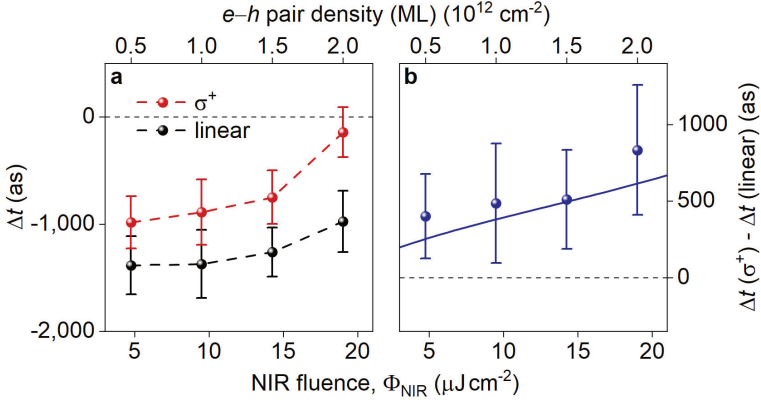


Abbildung 5.23. | Dynamik korrelierter, Valley-polarisierter Ladungsträger. **a**, Differenz Δt der gemittelten Subzyklenverzögerung in WSe_2 -Volumenkristall und Monolage in Abhängigkeit vom NIR-Fluss Φ_{NIR} (untere x-Achse) beziehungsweise der Exzitonendichte in der Monolage (obere x-Achse) für rechts-zirkular (rot) und linear polarisierte Anregung (schwarz). Das Treiberfeld hat eine Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 4,9 \text{ MV cm}^{-1}$. Für die gezeigten Datenpunkte wurde über fünf HSG-Emissionsmaxima zwischen $t_{\text{ex}} \approx -60 \text{ fs}$ und $t_{\text{ex}} \approx 20 \text{ fs}$ gemittelt. **b**, Gemessener (Datenpunkte) und per Simulation berechneter (durchgezogene Linie) Unterschied in der Subzyklenverzögerung zwischen rechts-zirkular und linear polarisierter Anregung $\Delta t(\sigma^+) - \Delta t(\text{linear})$ der in **a** gezeigten Daten.

die Valley-Polarisation kann sich auch auf Korrelationen auswirken. Daher besteht die für diese Arbeit relevante Frage darin, ob Signaturen der Valley-Polarisation auch jenseits des Ein-Teilchen-Bildes in der Trajektorie von Ladungsträgern gefunden werden können. Dazu wird der Unterschied in der Subzyklenverzögerung Δt zwischen WSe_2 -Volumenkristall und Monolage in Abhängigkeit vom verwendeten NIR-Fluss Φ_{NIR} beziehungsweise der in der Monolage angeregten Exzitonendichte betrachtet (siehe Abb. 5.23a). Sowohl für rechts-zirkular (rot) als auch linear polarisierte NIR-Impulse (schwarz) wächst Δt monoton mit der Exzitonendichte an. Bei linear polarisierter Anregung liegt Δt im Bereich zwischen -1400 und -950 as . Für zirkular polarisiertes Licht liegt der Mittelwert von Δt stets über den Werten für linear polarisiertes Licht und erreicht für den höchsten im Experiment

verwendeten NIR-Fluss $\Phi_{\text{NIR}} = 19,0 \mu\text{J cm}^{-2}$ sogar einen Wert von gerade einmal $\Delta t = -140 \pm 230$ as. Damit entspricht die Subzyklenverzögerung in der Monolage $\langle \delta_{\text{sc}}^{\text{ML}} \rangle$ im Rahmen der Fehler der des Volumenkristalls $\langle \delta_{\text{sc}}^{\text{bulk}} \rangle$. Abbildung 5.23b zeigt die Differenz $\Delta t(\sigma^+) - \Delta t(\text{linear})$ der beiden Messkurven in Abb. 5.23a. Sie steigt von 250 auf 750 as als Funktion des NIR-Flusses an. QDCE-Rechnungen (durchgezogene Linie) reproduzieren diesen Trend.

Die mikroskopische Ursache für dieses Verhalten liegt in der Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung $V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$ zwischen Elektronen mit den Wellenvektoren \mathbf{k} und \mathbf{k}' . Elektronen mit Wellenvektor \mathbf{k} reduzieren $V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$ aufgrund des Pauli-Verbots [Kir12]. Ohne angeregte Ladungsträger ist die Coulomb-Wechselwirkung in der Monolage sehr viel stärker als im Volumenkristall, wo es ohnehin eine dominante dielektrische Abschirmung gibt. Dadurch verändern angeregte Ladungsträger die Abschirmung in der Monolage um einen größeren Betrag als im Volumenkristall und rufen somit einen stärkeren Effekt auf die Coulomb-Wechselwirkung hervor. Im Volumenkristall bleibt die exzitronische Bindungsenergie unabhängig von der Dichte von Elektron-Loch-Paaren weitestgehend konstant. Eine ausführliche Diskussion dieses Umstands findet sich in Anhang B. Insgesamt gleichen sich die Coulomb-Korrelationen in Monolage und Volumenkristall für höhere Ladungsträgerdichten immer weiter an und Δt tendiert gegen null (vgl. Abb. 5.23a).

Interessanterweise zeigen die QDCE-Rechnungen, dass die Coulomb-Abschirmung von $V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$ effizienter funktioniert, wenn \mathbf{k} und \mathbf{k}' ähnlich groß sind. Das bedeutet insbesondere, dass der Effekt durch die Coulomb-Abschirmung maximal wird, wenn alle Elektron-Loch-Paare in einem Tal erzeugt werden und somit denselben Valley-Pseudospin aufweisen. Der zur Verfügung stehende Phasenraum für Exzitonen ist dann halbiert. Bei Anregung mit zirkular polarisiertem Licht wird $V_{\mathbf{k},\mathbf{k}'}$ also noch effizienter durch andere Ladungsträger abgeschwächt. Der Fall $\Delta t \approx 0$ tritt auf, wenn die Exzitonen in der Monolage so schwach gebunden sind, dass sie das quasifreie Limit des Volumenkristalls erreicht haben. Insgesamt führt das Pauli-Verbot in Verbindung mit Abschirmeffekten und einem gefüllten Phasenraum zu Attosekunden-Verschiebungen in den Trajektorien von Bloch-Elektronen, die mit der hier gezeigten Messmethode erfolgreich aufgelöst werden können.

Kapitel 6

Ausblick: Elektronendynamik bei Phasenübergängen

Curiosity is not a sin.

— Albus Dumbledore

Die neu entwickelte Technik der Attosekundenchronoskopie schafft es, Vielteilchen-Wechselwirkungen direkt in der Zeitdomäne nachzuweisen. Dabei können sich Korrelationen nicht nur in der exzitonischen Bindungsenergie, sondern auch drastischer, zum Beispiel in einem Phasenübergang äußern. Hier können Interaktionen zwischen Ladungsträgern zu einer abrupten Veränderung in grundlegenden Eigenschaften eines Festkörpers führen. Als eine besonders vielversprechende Anwendung der Attosekundenchronoskopie könnte also getestet werden, ob sich damit auch Phasenübergänge untersuchen lassen.

6.1. Attosekundenchronoskopie von Phasenübergängen

In Abschnitt 5.5 wurde gezeigt, dass eine Erhöhung der Ladungsträgerdichte in einer WSe₂-Monolage zu einer Abschirmung der Coulomb-Wechselwirkung und dadurch zu einer Verschiebung um mehrere hundert Attosekunden in der Trajektorie

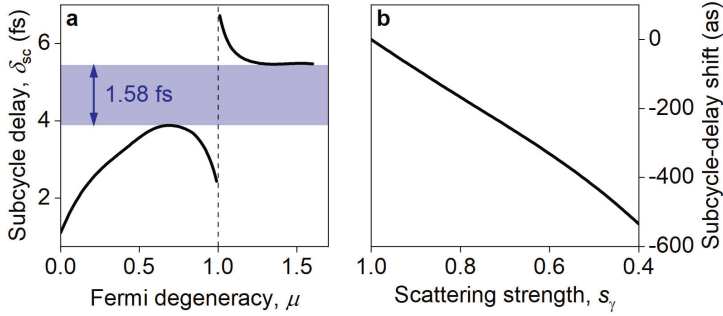


Abbildung 6.1. | Nachweis von Phasenübergängen anhand der Attosekunden-Dynamik. **a**, Aus Simulationen berechnete Subzyklenverzögerung δ_{sc} einer WSe₂-Monolage als Funktion der Fermi-Entartung μ . Die vertikale Linie zeigt den Übergang von der isolierenden ($\mu < 1$) zur metallischen Phase ($\mu > 1$) des Halbleiters. **b**, Aus Simulationen berechnete Änderung der Subzyklenverzögerung in Abhängigkeit von der relativen Stärke von Streuprozessen s_γ .

von Bloch-Elektronen führt. Prinzipiell können immer mehr Ladungsträger im Kristall angeregt werden, sodass die Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch immer schwächer wird. Ab einer kritischen Ladungsträgerdichte ist die exzitoni-sche Bindung dann nicht mehr stabil und es formt sich ein Elektron-Loch-Plasma [Kap05, Che15, Ste17, Wan19, Sid22]. Dieser Phasenübergang äußert sich makro-skopisch zum Beispiel dadurch, dass gebundene Exzitonen keinen Ladungstransport erlauben, ein Elektron-Loch-Plasma allerdings schon. Das Material geht also von isolierend zu elektrisch leitend über. Als Ordnungsparameter für diese Phase kann die Fermi-Entartung μ betrachtet werden, die das Verhältnis der thermischen Energie zur Fermi-Energie $\mu = k_B T / \varepsilon_F$ angibt [Zag19]. Experimentell kann μ unter anderem durch elektrische Kontakte oder optisch mit einem Lichtimpuls durchgestimmt werden [Wan19]. Variieren von μ bringt das System von der isolierenden ($\mu < 1$) zur elektrisch leitenden Phase ($\mu > 1$), bei der die exzitoni-sche Bindung aufgebrochen ist. Allerdings ist der Fall $\mu > 1$ durch einen optischen Anregeimpuls nur schwer zu erreichen, da die resonante Absorption des Kristalls bereits vorher sättigt.

Abbildung 6.1a zeigt die berechnete Subzyklenverzögerung δ_{sc} in Abhängigkeit von der Fermi-Entartung μ . Von $\mu = 0$ startend steigt δ_{sc} zunächst an, was auch experi-

mentell beobachtet wird (vgl. Abb. 5.23b). Durch das verstärkte Pauli-Verbot nimmt die exzitonische Bindung ab. Beim exzitonischen Mott-Übergang ($\mu = 1$) ergibt sich eine nahezu divergierende Diskontinuität von δ_{sc} und eine Lücke zwischen den beiden Phasen von 1,58 fs. In der metallischen Phase stellt sich dann eine konstante Subzyklenverzögerung ein. Attosekundenchronoskopie könnte daher verwendet werden, um den Übergang von einer elektrisch isolierenden zu einer metallischen Phase beim Mott-Übergang aufzulösen. Für eine WSe₂-Monolage beträgt die kritische Ladungsträgerdichte für diesen Übergang etwa $7 \cdot 10^{12} \text{ cm}^{-2}$ [Sid22], was die in dieser Arbeit erreichte Dichte um den Faktor drei übersteigt. Damit dürfte die größte Herausforderung vor allem darin liegen, genügend Exzitonen im Material anzuregen.

Ein weiteres Beispiel für einen exotischen Phasenübergang tritt bei exzitonischen Isolatorzuständen auf. In Halbmetallen, bei denen die exzitonische Bindungsenergie die Bandlücke übersteigt, bilden sich auch im Grundzustand Exzitonen, da sie energetisch unterhalb des Valenzbandes liegen [Jér67, Wak09]. In den letzten Jahren gab es Hinweise, dass dieser Phasenübergang in Monolagen von WTe₂ stattfinden kann [Jia22, Sun22]. Ein neuer Grundzustand der Exzitonen bei diesem Phasenübergang könnte sich beispielsweise in einer stark unterdrückten Streuung äußern [Smi10]. Abbildung 6.1b stellt dar, wie sich die Subzyklenverzögerung verändert, wenn die Streurate in Rechnungen künstlich mit einem Faktor s_γ skaliert wird. Für einen kleinen Wert von s_γ wird Streuung unterdrückt und δ_{sc} reduziert, weil längere Trajektorien der Ladungsträger ermöglicht werden. Diese Situation ist vergleichbar mit dem Verwenden geringer Treiberfeldstärken (vgl. Abb. 5.17a), die die Exzitonen nicht ionisieren und dadurch zu niedrigeren δ_{sc} führen. Beim abrupten Phasenübergang zum exzitonischen Isolatorzustand kommt es zu einer instantanen Änderung der Dephasierungszeit und somit auch zu einer sprunghaften Änderung der Subzyklendynamik, die experimentell ermittelt werden kann.

In der Vergangenheit wurde bereits versucht, Erzeugung Hoher Harmonischer als Nachweis für Phasenübergänge zu nutzen [Sil18, Alc22]. Hier besteht allerdings die Herausforderung darin, dass sich bei Phasenübergängen und thermischen Anpassungen auch die lineare optische Antwort und damit der Brechungsindex sowie Reflexions- und Absorptionskoeffizienten eines Materials ändern können. Dadurch wird auch die Intensität und Dispersion des Treiberfeldes beeinflusst, was drastische Auswirkungen auf die Erzeugung Hoher Harmonischer hat. Es lässt sich dann nur

schwer sagen, ob der Phasenübergang direkt in den Hohen Harmonischen nachgewiesen werden kann, oder ob lediglich die veränderten linearen optischen Eigenschaften des Materials die Erzeugungseffizienz der Hohen Harmonischen beeinflussen. Bei Attosekundenchronoskopie werden auf einer Subzyklenzeitskala Änderungen der Elektronendynamik untersucht. Und diese zeitlichen Signaturen sind von Natur aus weitestgehend von thermischen oder linearen optischen Eigenschaften entkoppelt, sodass diese Technik neue vielversprechende Möglichkeiten bei der Untersuchung von Phasenübergängen eröffnet.

6.2. HSG in Halbmetallen

Das zweite Beispiel für einen exotischen Phasenübergang, das im vorigen Kapitel diskutiert wurde, der exzitonische Isolatorzustand, benötigt eine Bandlücke, die geringer als die exzitonische Bindungsenergie ausfällt. Damit kommen nur Halbmetalle, nicht aber gewöhnliche Halbleiter mit zu großen Bandlücken in Frage. Obwohl die Rechnungen in Abb. 6.1 zeigen, dass die Phase eines Materials direkten Einfluss auf die Subzyklenverzögerung hat, stellt sich die Frage, ob HSG in Metallen oder Halbmetallen überhaupt experimentell möglich ist. Immerhin wird Licht an solchen Materialien stärker reflektiert als an Halbleitern, wodurch geringere Feldstärken im Innern der Probe erreicht werden. Bisher wurde noch kein exzitonischer Isolatorzustand experimentell zweifelsfrei nachgewiesen. Allerdings gibt es Hinweise auf diese Phase in einer WTe_2 -Monolage [Jia22, Sun22]. Dabei handelt es sich um ein Halbmetall mit einer Bandlücke von etwa 50 meV und einer exzitonischen Bindungsenergie von mehr als 100 meV [Sun22]. Damit wäre die Bildung von Exzitonen selbst im thermischen Gleichgewicht möglich. Um zu überprüfen, ob dieser Kandidat für den exzitonischen Isolatorzustand die Emission von HSG-Strahlung unterstützt, wurde ein 20 nm dicker WTe_2 -Volumenkristall hergestellt. Wie in den vorigen Kapiteln werden dann NIR- und Multi-THz-Impuls auf die Probe fokussiert.

Da das Halbmetall die Multi-THz-Feldstärke im Material stark abschwächt, wird ein intensiver Multi-THz-Impuls mit einer Zentralfrequenz von $\nu_{\text{THz}} = 32 \text{ THz}$ und einer Spitzenfeldstärke von $E_{\text{peak}} = 8,5 \text{ MV cm}^{-1}$ in Vakuum verwendet (siehe Abb. 6.2a). Die deutliche HSG-Emission kann spektral und als Funktion der Injektionszeit t_{ex} aufgelöst werden (siehe Abb. 6.2b). Das HSG-Spektrogramm besitzt, wie auch schon

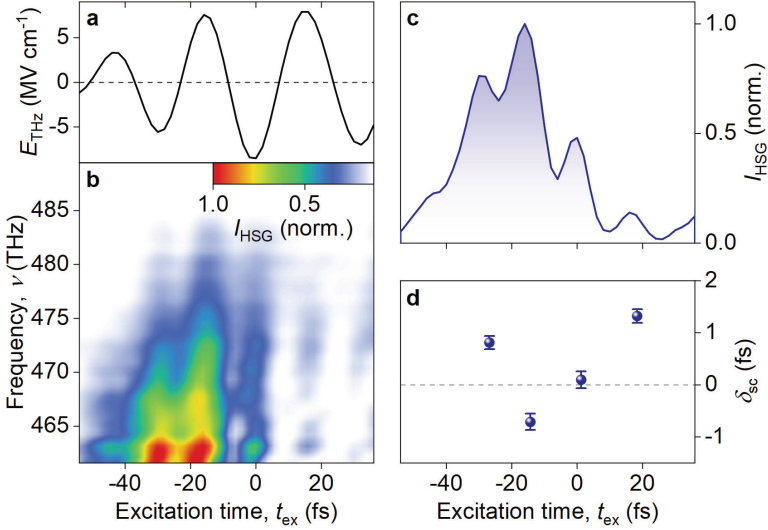


Abbildung 6.2. | HSG-Erzeugung im Halbmatal WTe_2 . a, Im Experiment verwendetes Treiberfeld mit einer Spitzenfeldstärke $E_{\text{peak}} = 8,5 \text{ MV cm}^{-1}$ und einer Zentralfrequenz $\nu_{\text{THz}} = 32 \text{ THz}$. b, Spektral aufgelöstes HSG-Spektrogramm eines 20 nm dicken WTe_2 -Volumenkristalls als Funktion der Verzögerungszeit t_{ex} zwischen Multi-THz- und NIR-Impuls mit einem NIR-Fluss $\Phi_{\text{NIR}} = 9,5 \mu\text{J cm}^{-2}$. c, Die zwischen 459 und 490 THz integrierte HSG-Intensität I_{HSG} zeigt eine typische Subzyklenmodulation. d, Extrahierte Subzyklenverzögerung δ_{sc} für vier verschiedene HSG-Emissionsmaxima. Die Fehlerbalken wurden aus der Ungenauigkeit der numerischen Anpassung der HSG-Emissionsmaxima aus c bestimmt.

in WSe_2 , eine klare zeitliche Modulation. Abbildung 6.2c zeigt die spektral integrierte HSG-Emission, aus der die Subzyklenverzögerung δ_{sc} (siehe Abb. 6.2d) bestimmt wird. Dabei nimmt δ_{sc} Werte zwischen -700 und 1300 as an. Die Fehlerbalken ergeben sich aus der Unsicherheit bei der Bestimmung der zeitlichen Position der HSG-Emissionsmaxima und sind im gezeigten Beispiel kleiner als 200 as. Damit reicht die HSG-Emission des WTe_2 -Volumenkristalls für Attosekundenchronoskopie aus. Es sollte daher prinzipiell möglich sein, auch in einer WTe_2 -Monolage Korrelationen und etwaige Phasenübergänge zu vermessen. Dafür muss ein WTe_2 -Einkristall auf das

atomare Limit ausgedünnt werden und darf dabei nicht mit Luft in Berührung kommen, da er sonst oxidiert. Außerdem müssen die HSG-Messungen bei Temperaturen durchgeführt werden, die den Phasenübergang zum exzitonischen Isolatorzustand erlauben. Das ist bei etwa 100 K der Fall und kann mit einem Helium-Durchfluss-Kryostaten erreicht werden [Sun22]. Mit Attosekundenchronoskopie könnte der Phasenübergang potentiell rein optisch und kontaktfrei nachgewiesen werden. Außerdem könnten auf der Subzyklenzeitskala, auf der Elektron-Loch-Kollisionen stattfinden, elektronische und strukturelle Mechanismen hinter Phasenübergängen unterschieden werden.

6.3. Dynamik von Floquet-Bloch-Zuständen in topologischen Isolatoren

Attosekundenchronoskopie ist dabei nicht auf Phasen von Materialien im thermischen Gleichgewicht beschränkt. Vielmehr ermöglicht die Lichtwellen-Beschleunigung von Elektronen auch stark getriebene Systeme auf der Subzyklenzeitskala zu untersuchen. Besonders lohnenswert wäre es, mit Licht die Bandstruktur eines Festkörpers maßzuschneidern [Ike20]. Beispielsweise könnten auf diese Art und Weise flache Bänder erzeugt und so besonders starke Korrelationen induziert werden, die dann wiederum zu Phasenübergängen führen [Cao18b, Cao18a]. Es wäre eine vielversprechende Herangehensweise, Materialien mit einer transienten Bandstruktur mittels Attosekundenchronoskopie zu charakterisieren. Um einen ersten Schritt in diese Richtung zu gehen, wurden mit dem in dieser Arbeit bereits verwendeten Multi-THz-Impuls Bloch-Elektronen im Oberflächenzustand des topologischen Isolators Bismutellurid (Bi_2Te_3) beschleunigt und die transiente Bandstruktur und Elektronenbesetzung mittels winkelaufgelöster Photoelektronenspektroskopie (englisch: *angle-resolved photoelectron spectroscopy*, kurz: ARPES) aufgezeichnet. Damit konnte zum ersten Mal überhaupt auf der Subzyklenzeitskala aufgenommen werden, wie in einem völlig kohärenten Regime Elektronen vor- und zurückbeschleunigt werden, dabei mit sich selbst interferieren und Floquet-Bloch-Bänder entstehen. Dieses Projekt wurde in Zusammenarbeit mit *Suzu Ito*, *Johannes Reimann*, *Jens Gütde* und *Ulrich Höfer* von der *Universität Marburg* sowie *Manuel Meierhofer*, *Stefan*

Schlauderer, Dmytro Afanasiev und Rupert Huber von der Universität Regensburg durchgeführt. Michael Schüler und Michael Sentef trugen die Theorie bei. Die folgenden Ergebnisse wurden in *Nature* veröffentlicht [Ito23].

Sind Bloch-Elektronen dem zeitlich periodischen Potential von Licht mit der Frequenz ν ausgesetzt, entstehen sogenannte Floquet-Bloch-Zustände als Kopie der Gleichgewichtsbandstruktur, die in der Energie um Vielfache von $\hbar\nu$ versetzt sind [Wan13, Sen15, Oka19]. Obwohl verschiedene Aspekte wie die Hybridisierung verschiedener Floquet-Bloch-Zustände [Oka09, Lin11, Hüb17] oder ihre Rolle beim Licht-induzierten anomalen Hall-Effekt bereits untersucht wurden [McI20], konnte bis jetzt weder aufgelöst werden, wie sich Floquet-Bloch-Zustände auf der Subzyklenzeitskala aufbauen, noch wie Elektronen von einem Floquet-Bloch-Band in ein anderes übergehen. Außerdem blieb bisher das Zusammenspiel aus der elektronischen Intrabanddynamik, die sich schneller als eine Schwingung von Licht abspielt, und Floquet-Bloch-Zuständen, die sich erst in einem zeitlich periodischen Potential bilden, ein ungelöstes Geheimnis.

Elektronen im topologisch geschützten Oberflächenzustand von Bi_2Te_3 besitzen eine quasirelativistische Dispersion und aufgrund der Spin-Impuls-Kopplung auch extrem lange Streuzeiten von mehr als einer Pikosekunde [Rei18]. Dadurch kann sie ein Multi-THz-Impuls (siehe Abb. 6.3a) völlig ballistisch beschleunigen. Mit einem ultrakurzen UV-Impuls mit einer Impulsdauer von 17 fs werden zu einer variablen Verzögerungszeit t relativ zum Treiberfeld ARPES-Schnappschüsse von Bi_2Te_3 aufgenommen (siehe Abb. 6.3b). Die ARPES-Spektren werden durch Berechnung der 2D-Krümmung C_{2D} gefiltert [Zha11, Zha18]. Bevor das Multi-THz-Feld auf die Elektronen wirkt, bevölkern sie bis zur Fermi-Energie ε_F symmetrisch den topologischen Oberflächenzustand (TSS) mit seiner charakteristischen linearen Dispersion. Bei einer Verzögerungszeit von $t = -100$ fs, während eines schwachen Oszillationshalbzyklus des Treiberfeldes vor dem Hauptimpuls, ist eine messbare Auslenkung der Fermi-Fläche zu beobachten. Das entspricht einem Lichtwellen-getriebenen Strom [Rei18]. Einen Oszillationszyklus später ($t = -60$ fs) werden die Elektronen extrem stark ausgelenkt und, überraschenderweise entfernt sich die elektronische Besetzung von der Gleichgewichtsbandstruktur und bevölkert einen Teil im Energie-Impuls-Raum, in dem im thermischen Gleichgewicht gar keine Zustände existieren. Nach einem weiteren Halbzyklus ($t = -40$ fs) schnürt sich diese Besetzung

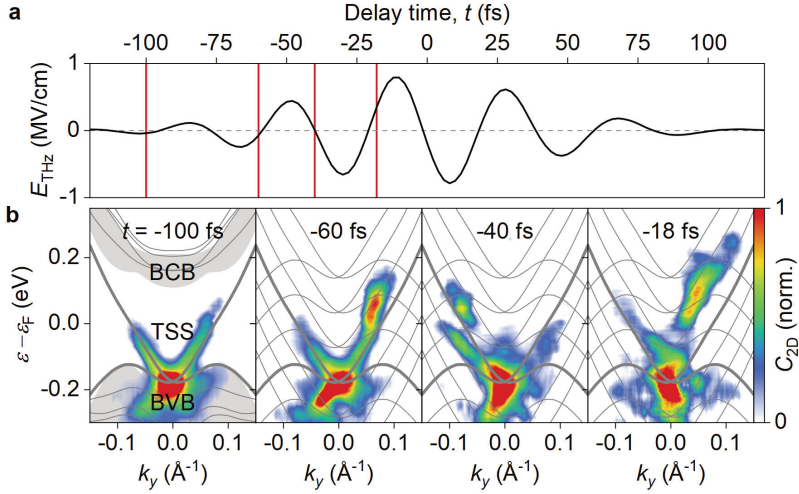


Abbildung 6.3. | Subzyklendynamik von Floquet-Bloch-Zuständen. **a**, Elektrisches Treiberfeld E_{THz} an der Oberfläche des topologischen Isolators Bi_2Te_3 . Die Spitzenfeldstärke in der Probe beträgt $0,8 \text{ MV cm}^{-1}$ und die Zentralfrequenz 25 THz. Rote vertikale Linien deuten die Zeitpunkte an, zu denen die ARPES-Schnappschüsse in **b** aufgezeichnet wurden. **b**, Photoemissionsspektren zu verschiedenen Zeitpunkten t während des Treiberfeldes. Gezeigt ist die krümmungsgefilterte ARPES-Intensität $C_{2\text{D}}$. In grau ist die per DFT-Rechnung bestimmte Bandstruktur angedeutet. Der Fall $t = -100 \text{ fs}$ entspricht dem Gleichgewichtszustand, bevor der Multi-THz-Impuls auf die Probe trifft. Hier liefert die Besetzung des Valenzbandes des Volumenkristalls (BVB, schattierte Fläche) den stärksten Beitrag, während das Volumen-Leitungsband (BCB) komplett leer ist. Oberflächenzustände sind als Linien eingezeichnet, wobei der topologisch geschützte (TSS) hervorgehoben ist. Er ist zu Beginn bis zur Fermi-Energie ε_F gefüllt.

ab und es ist deutlich zu erkennen, wie Floquet-Bloch-Seitenbänder entstehen. Die Dispersion der Seitenbänder (graue Linien) folgt dabei der des topologischen Oberflächenzustands, allerdings mit einem Versatz, der einem ganzzahligen Vielfachen von 100 meV, also der Photonenenergie des Treiberfeldes mit einer Zentralfrequenz von 25 THz, entspricht. Gleichzeitig werden die Elektronen innerhalb der Seitenbänder hin und her beschleunigt. Intra- und Interbanddynamik tritt daher nicht

nur in der Gleichgewichtsbandstruktur auf, sondern auch in der transienten, Licht-induzierten Floquet-Bloch-Bandstruktur. Knapp vor dem Maximum des Multi-THz-Treiberfeldes ($t = -18$ fs) bevölkert die Mehrheit der Elektronen das erste Floquet-Bloch-Seitenband.

Elektronen werden also entlang der Bänder kohärent hin und her beschleunigt, was zu Quanteninterferenzen und damit zur Entstehung von Floquet-Bloch-Seitenbändern führt. Diese transiente Bandstruktur baut sich dabei ultraschnell auf, denn überraschenderweise genügt bereits eine einzige Schwingung von Licht, um eine ausreichend starke Interferenz der Elektronen für die Beobachtung von Floquet-Bloch-Seitenbändern zu erhalten [Ito23].

Für die zweite Hälfte des Multi-THz-Impulses (siehe Abb. 6.4a) sind die ARPES-Schnappschüsse in Abb. 6.4b gezeigt. Ungefähr zum Zeitpunkt des Feldmaximums ($t = -12$ fs) besetzen die Elektronen immer höhere Floquet-Bloch-Seitenbänder. Sobald sie dabei mit dem Volumen-Leitungsband überlappen ($t = 22$ fs), hybridisieren Volumen- und Oberflächenzustände und Elektronen können kohärent in die Volumenzustände übergehen. Dort ist die Spin-Impuls-Kopplung allerdings aufgehoben, sodass die erhöhte Streuung die Kohärenz der Ladungsträger zerstört, sich eine inkohärente Besetzung des Volumenzustands aufbaut ($t = 46$ fs) und die Floquet-Bloch-Seitenbänder verschwinden. Nach dem Multi-THz-Impuls ($t = 120$ fs) sind keine Floquet-Bloch-Seitenbänder mehr sichtbar, allerdings bleibt eine endliche Population des Volumen-Leitungsbandes zurück. Die direkte Volumen-Bandlücke von Bi_2Te_3 ist mit 0,3 eV zu groß, als dass Elektronen durch resonante Interbandanregung ins Leitungsband übergehen könnten. Das Experiment zeigt, wie Elektronen dennoch über eine Leiter aus Floquet-Bloch-Seitenbändern dynamisch das Volumen-Leitungsband erreichen können. Da das Treiberfeld stark genug für die Erzeugung Hoher Harmonischer in Bi_2Te_3 ist, zeigen diese ARPES-Spektren direkt in der Bandstruktur die zugrundeliegende Elektronendynamik [Sch21].

Mit intensiven Lichtfeldern können Elektronen also völlig ballistisch beschleunigt werden. Behalten sie ihre Kohärenz dabei für mindestens eine Lichtschwingung, können sie mit sich selbst interferieren und Floquet-Bloch-Seitenbänder formen. Es kommt dann zeitgleich zur Intrabandbeschleunigung innerhalb sowie zu einem Elektronentransfer zwischen den Bändern, was den Elektronen einen neuen dynamischen Pfad in höhere Energieniveaus eröffnet. Für all das reicht bereits eine einzelne

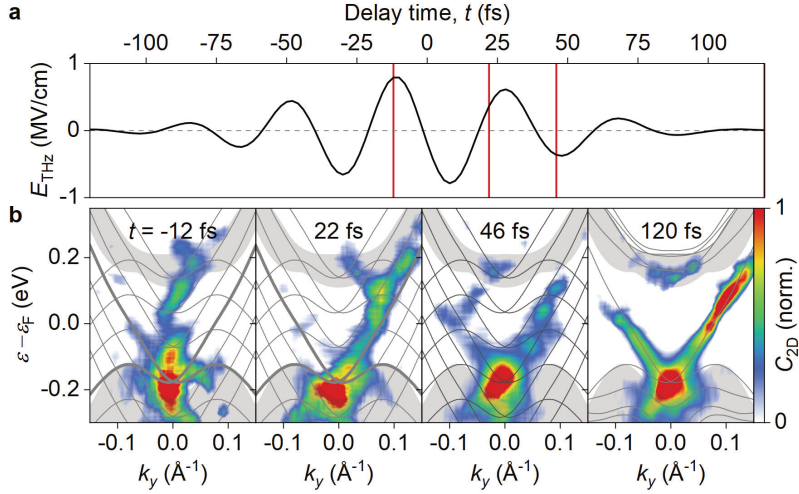


Abbildung 6.4. | Interbandanregung durch die Kopplung von Floquet-Bloch- und Volumen-Zuständen. **a**, Elektrisches Treiberfeld E_{THz} mit einer Spitzenfeldstärke von $0,8 \text{ MV cm}^{-1}$ und einer Zentralfrequenz von 25 THz. Rote vertikale Linien deuten die Zeitpunkte an, zu denen die ARPES-Schnappschüsse in **b** aufgezeichnet wurden. **b**, Photoemissionsspektren wie in Abb. 6.3b zu verschiedenen Zeitpunkten t . Das letzte Bild ($t = 120 \text{ fs}$) zeigt die elektronische Besetzung nach dem Multi-THz-Impuls. Es ist eine deutliche Bevölkering des Volumen-Leitungsbandes (grau schattierte Fläche) zu erkennen.

Schwingung von Licht aus. Diese Experimente zeigen das Zusammenspiel aus Intra- und Interbanddynamik zum ersten Mal unter den Bedingungen der HHG direkt in der Bandstruktur und liefern daher ein intuitives Bild der Starkfeldphysik.

Künftig könnten neben HHG auch andere Starkfeldprozesse direkt im Impulsraum mit Subzyklen-Zeitaufösung studiert werden. Unter anderem könnten Quasiteilchenkollisionen komplementär zu dieser Arbeit auch in der Bandstruktur aufgelöst werden und damit das Verständnis von HSG vertieft werden. ARPES beziehungsweise Impulsmikroskopie von Photoelektronen erlaubt es zudem, verschiedene Täler der Bandstruktur direkt aufzulösen [Wal21]. Intensive Multi-THz-Felder könnten also den Valley-Freiheitsgrad von Ladungsträgern in Quantenmaterialien auf ei-

ner ultraschnellen Zeitskala manipulieren und ultrakurze UV-Impulse die Dynamik direkt in der Bandstruktur aufnehmen [Lan18]. Das wäre ein wichtiger Meilenstein in der Valleytronik. Des Weiteren bleibt es bis zum heutigen Tag eine offene Herausforderung, Blochoszillationen direkt zu beobachten. Atomar starke Felder gepaart mit ARPES könnten auch dieses fundamentale Prinzip der Festkörperphysik zum ersten Mal in der Bandstruktur eines Materials einfangen.

Zusammenfassung und Ausblick

*Damit das Mögliche entsteht, muß
immer wieder das Unmögliche versucht
werden.*

— Franz Kafka

In dieser Arbeit wurde mit der Attosekundenchronoskopie eine Technik entwickelt, die es ermöglicht, Vielteilchen-Korrelationen in Festkörpern direkt in der Zeitdomäne quantitativ zu untersuchen. Dafür werden hochintensive Lichtfelder ausgenutzt, die kohärente Elektron-Loch-Paare auf geschlossene Trajektorien zwingen. Klare Attosekunden-Änderungen der Kollisionsdynamik zeigen dabei, wie Vielteilchen-Wechselwirkungen die Bewegung von Bloch-Elektronen beeinflussen. Um den Kollisionspfad von Elektron-Loch-Paaren zeitlich präzise zu vermessen, stabilisiert ein aktiver, interferometrischer Mechanismus die Träger-Einhüllenden-Phase des Treiberfeldes auf 18 mrad [Mei23b]. Indem auch noch laufend der Zeitüberlapp zwischen dem anregenden Lichtimpuls und dem Treiberfeld kontrolliert wird, erreicht der voll automatisierte optische Aufbau eine zeitliche Präzision von 84 as. Eine geeignete statistische Analyse der emittierten HSG-Strahlung korrigiert verbleibende zeitliche Instabilitäten, sodass sich die optimale Injektionszeit und damit auch die relevante Subzyklenverzögerung mit einem Standardfehler kleiner als 300 as ermitteln lassen. Das entspricht lediglich 0,7 % der Oszillationsdauer des Treiberfeldes.

Nur bestimmte Injektionszeiten der kohärenten Ladungsträger führen zu hochenergetischen Elektron-Loch-Kollisionen und damit zu einer intensiven HSG-Emission.

Der Vergleich der HSG-Emission eines WSe_2 -Volumenkristalls und einer Monolage zeigt einen signifikanten Unterschied in der Subzyklenverzögerung von $-1,2 \pm 0,3$ fs [Fre22]. Aufgrund der erhöhten Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch in der Monolage muss das Treiberfeld während der Separationsphase länger auf die Ladungsträger wirken, um hochenergetische Kollisionen zu ermöglichen. Eine voll quantenmechanische QDCE-Theorie beschreibt die Ladungsträgerdynamik quantitativ und bestätigt den dominanten Einfluss der unterschiedlichen Coulomb-Korrelationen in Volumenkristall und Monolage auf die Änderung der Subzyklenverzögerung. Ein veranschaulichendes Modell, basierend auf einer klassischen Behandlung der Elektron-Loch-Dynamik, reproduziert ebenfalls die experimentellen Ergebnisse qualitativ und unterstreicht damit, wie stark Coulomb-Korrelationen die Subzyklendynamik der Ladungsträger beeinflussen.

Wird die HSG-Emission spektral aufgelöst, kann auch gezeigt werden, wie sich Streuprozesse auf die Kollisionsdynamik der Ladungsträger auswirken. Die Dynamik kann dabei nur durch zustandsabhängige Dephasierungszeiten beschrieben werden. Vor allem bei maximaler Auslenkung der Ladungsträger im äußeren Lichtfeld nimmt die Streurate erheblich zu. Immer höhere eingestrahlte Felder verändern dabei die Trajektorie gebundener Elektron-Loch-Paare, denn starke Felder dominieren irgendwann über die Coulomb-Anziehung zwischen den Ladungsträgern und führen ultimativ zu einer Dynamik, die der quasifreier Teilchen entspricht.

In einer WSe_2 -Monolage beeinflusst auch der Valley-Pseudospin die Trajektorie von Bloch-Elektronen. Ladungsträger mit ähnlichem Wellenvektor schirmen Coulomb-Wechselwirkungen effizient ab. Mit zirkular polarisiertem Licht können Elektron-Loch-Paare wahlweise nur im K- beziehungsweise K' -Tal der Bandstruktur angeregt werden. Das halbiert den zugänglichen Phasenraum, verstärkt das Pauli-Verbot und schwächt die Coulomb-Wechselwirkung ab. Insgesamt nähert sich die Subzyklenverzögerung in einer WSe_2 -Monolage der des Volumenkristalls an, wenn entweder mehr kohärente Exzitonen oder alle im gleichen Tal erzeugt werden.

Attosekundenchronoskopie offenbart direkt in der Zeitdomäne, wie Vielteilchen-Wechselwirkungen die Trajektorie von delokalisierten Bloch-Elektronen beeinflussen. Korrelationsbasierte Attosekunden-Änderungen können dabei mit einer Präzision von 300 as aufgelöst werden. Damit wurde in dieser Arbeit erstmalig das Feld der Attosekundenphysik mit den in Kristallen relevanten niederenergetischen Korre-

lationen verbunden. Das zeigt, dass auch in der Festkörperphysik die Attosekunden-Zeitskala eine fundamental wichtige Rolle spielt. Attosekundenchronoskopie eröffnet damit völlig neue Möglichkeiten, exotische Phasenübergänge oder quantendynamische Effekte relevant für zukünftige Elektronik, Optoelektronik und Quanteninformationstechnologien zu untersuchen.

Im Unterschied zu herkömmlichen Teilchenbeschleunigern bleibt bei der hier gezeigten ballistischen Kontrolle von Ladungsträgern ihre quantenmechanische Phase erhalten. Das kann ausgenutzt werden, um Elektronen vollkommen ballistisch zu beschleunigen. Die Elektronen interferieren dann mit sich selbst und formen Floquet-Bloch-Zustände [Ito23]. Und während intensive Lichtfelder Ladungsträger durch weite Teile der Bandstruktur schicken, prägen abstrakte Quanteneigenschaften die Ladungsträgedynamik. Beispielsweise kann eine nichttriviale Berry-Krümmung wie ein effektives Magnetfeld wirken und Ladungsträger auf gekrümmte Bahnen zwingen. Die resultierende anomale Geschwindigkeitskomponente könnte dann im Polarisationszustand der emittierten HSG-Strahlung nachgewiesen und für die Rekonstruktion der zugrundeliegenden Topologie genutzt werden. Mit Attosekundenchronoskopie ist es nicht nur möglich, Korrelationen auf eine völlig neue Art und Weise zu vermessen, sondern sie eröffnet auch die Möglichkeit, der Dynamik von stark beschleunigten Ladungsträgern auf den kürzesten Zeitskalen zu folgen, was den Schlüssel zu einer ganz neuen Welt kohärenter Quantenphänomene formt.

Erreichbare zeitliche Präzision der NIR-Impulse

Die Impulsdauer des resonanten NIR-Impulses hat direkten Einfluss auf die HSG-Spektrogramme. Beispielsweise führt ein sehr langer NIR-Impuls dazu, dass über den gesamten Multi-THz-Impuls verteilt kohärente Ladungsträgerpaare in Wolframdiselenid angeregt werden. Dadurch verringert sich der Kontrast zwischen der HSG-Emission zu optimalen und schlechten Injektionszeitpunkten. Ein zu kurzer NIR-Impuls dagegen erfordert ein breitbandiges Spektrum, das ab einer bestimmten Bandbreite mit der emittierten HSG-Strahlung spektral überlappen und daher ebenfalls die Messungen beeinflussen würde.

Im Experiment wird die Zeitstruktur des NIR-Impulses mittels SHG-FROG bestimmt, was eine Halbwertsbreite der Intensitätseinhüllenden von 8,6 fs offenbart (siehe Abb. A.1a, blaue Kurve). Das Treiberfeld (schwarze Kurve) besitzt eine Zentralfrequenz von 25 THz. Also beträgt die Dauer eines Halbzyklus 20 fs. Bei Attosekundenchronoskopie geht es um die Anregung von kohärenten Elektron-Loch-Paaren. Daher ist es vor allem wichtig, in welchem Zeitintervall wie viel Impulsenergie des NIR-Lichts enthalten ist. Mit dem experimentell verwendeten NIR-Impuls werden 50 % der Exzitonen innerhalb des zentralen Zeitbereichs mit einer Breite von 5 fs erzeugt. Das entspricht der halben Zeitdauer zwischen einem Feldmaximum und dem folgenden Nulldurchgang des Treiberfeldes und ist damit auch bedeutend kürzer als die Halbwertsbreite der Intensitätseinhüllenden des NIR-Impulses. Aus

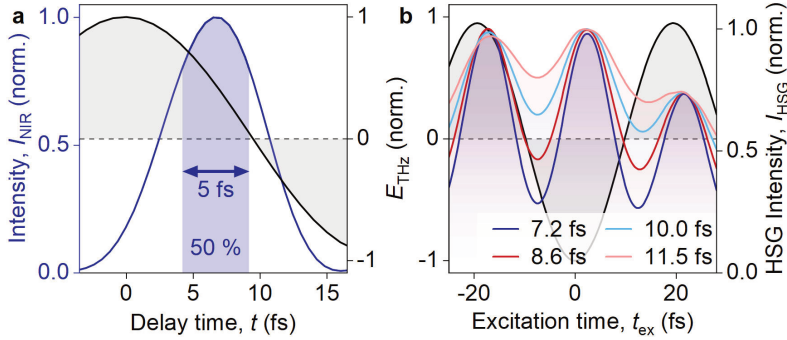


Abbildung A.1. | Zeitliche Auflösung der NIR-Impulse in den HSG-Experimenten. **a**, Normierte NIR-Intensität (blau) und Multi-THz-Feld (grau) in der Zeitdomäne. Die blau schattierte Fläche mit einer Breite von 5 fs beinhaltet 50 % des Flusses des gesamten NIR-Impulses. Bei einer Zentralfrequenz von 25 THz entsprechen 5 fs der halben Dauer zwischen Multi-THz-Feldmaximum und Nulldurchgang. **b**, Aus QDCE-Rechnungen ermittelte HSG-Intensität als Funktion von der Injektionszeit t_{ex} für verschiedene NIR-Impulsdauern von $\tau_{\text{NIR}} = 7,2$ fs (dunkelblau), $\tau_{\text{NIR}} = 8,6$ fs (dunkelrot), $\tau_{\text{NIR}} = 10$ fs (hellblau) und $\tau_{\text{NIR}} = 11,5$ fs (hellrot). Das Multi-THz-Treiberfeld ist als Referenz in schwarz eingezeichnet.

diesem Grund ist die zeitliche Modulation der HSG-Emission im Experiment deutlich sichtbar. Zudem ist für die Bestimmung der Subzyklenverzögerung der optimale Zeitversatz zwischen NIR- und Multi-THz-Impuls wichtig. Da dieser beliebig genau eingestellt werden kann, wird mit Attosekundenchronoskopie insgesamt eine weitaus bessere Präzision von 300 as erreicht. Die QDCE-Rechnungen berücksichtigen die genaue zeitliche Struktur des NIR-Impulses, sodass sie das Experiment möglichst genau abbilden.

In den Simulationen kann außerdem die NIR-Impulsdauer künstlich variiert werden. Abbildung A.1b zeigt die HSG-Emission für unterschiedlich lange NIR-Impulse. Während der Kontrast zwischen optimalen und weniger optimalen Injektionszeitpunkten t_{ex} abnimmt, sind die Intensitätsmaxima vor allem für Impulsdauern unter $\tau = 10,0$ fs nahezu perfekt synchronisiert. Eine quantitative Analyse ergibt, dass selbst mit einer Impulsdauer von 10,0 fs die Subzyklenverzögerung mit einer Präzision von weniger als 90 as bestimmt werden kann [Fre22].

Elektrostatische Abschirmung im WSe₂-Volumenkristall

Im Haupttext wird argumentiert, dass ein höherer NIR-Fluss zu mehr angeregten Exzitonen führt. Diese schirmen die Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch zunehmend ab, was eine Absenkung der exzitonischen Bindungsenergie vor allem in der Monolage zur Folge hat. Das wird am Unterschied in der Subzyklenverzögerung zwischen Volumenkristall und Monolage $\Delta t = \delta_{\text{sc}}^{\text{ML}} - \delta_{\text{sc}}^{\text{bulk}}$ deutlich, der für höhere Ladungsträgerdichten langsam verschwindet (vgl. Abb. 5.23a). Um den Einfluss der Ladungsträgerdichte und damit von Abschirmeffekten im Volumenkristall direkt zu beobachten, kann die Subzyklenverzögerung $\delta_{\text{sc}}^{\text{bulk}}$ betrachtet werden. Abbildung B.1 zeigt die über fünf HSG-Emissionsmaxima gemittelte Subzyklenverzögerung $\langle \delta_{\text{sc}} \rangle$ eines 60 nm dicken WSe₂-Volumenkristalls als Funktion des NIR-Flusses. Der NIR-Impuls ist dabei linear polarisiert. Aus den Daten wird keine Abhängigkeit der Subzyklenverzögerung vom NIR-Fluss ersichtlich. Stattdessen scheint $\langle \delta_{\text{sc}} \rangle$ innerhalb der Fehlerbalken von 300 as konstant zu bleiben. Das wird auch am Überlapp der Fehlerintervalle der vier gezeigten Messpunkte deutlich (blau schattierte Fläche), in dem nahezu alle Messwerte liegen.

Dass die Subzyklenverzögerung konstant bleibt, selbst wenn eine hohe Dichte an kohärenten Exzitonen erzeugt wird, liegt auch daran, dass im Volumenkristall weniger NIR-Licht pro Atomschicht absorbiert wird als in der Monolage. Dadurch bleibt die Exzitonendichte geringer und Abschirmeffekte werden unterdrückt. Im Vergleich zur

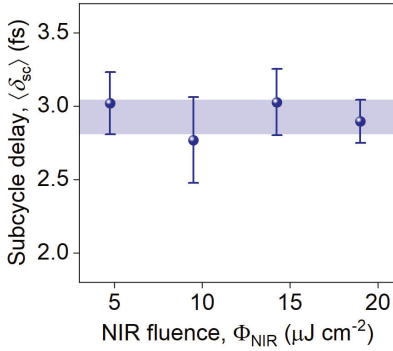


Abbildung B.1. | Abschirmeffekte im WSe₂-Volumenkristall. Die experimentell gemessene und über fünf Emissionsmaxima zwischen $t_{ex} \approx -60$ und $t_{ex} \approx 20$ gemittelte Subzyklenverzögerung $\langle \delta_{sc} \rangle$ bleibt als Funktion des NIR-Flusses Φ_{NIR} innerhalb der Fehlerbalken von etwa 300 as konstant. Der NIR-Impuls ist linear polarisiert und die Multi-THz-Feldstärke beträgt $4,9 MV cm^{-1}$. Die blau schattierte Fläche deutet den Überlapp aller Fehlerintervalle an und umfasst nahezu alle gezeigten Datenpunkte.

Monolage ist die Coulomb-Anziehung zwischen Elektron und Loch außerdem sowie so schon stark abgeschirmt (vgl. Kapitel 3), weshalb kleine zusätzliche Änderungen der Coulomb-Wechselwirkung weniger ins Gewicht fallen. Für zirkular polarisierte Anregung ergibt sich das gleiche Bild wie für linear polarisierte, da es im Volumenkristall keine Kopplung zwischen dem Valley- und Spin-Freiheitsgrad gibt.

Publikationen

Publikationen in Peer-Review-Fachzeitschriften:

- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnglhuber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attosecond clocking of correlations between Bloch electrons
Nature **610**, 290-295 (2022).
- S. Ito, M. Schüler, M. Meierhofer, S. Schlauderer, **J. Freudenstein**, J. Reimann, D. Afanasiev, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, J. Gädde, M. A. Sentef, U. Höfer und R. Huber.
Build-up and dephasing of Floquet-Bloch bands on subcycle timescales
Nature **616**, 696-701 (2023).
- M. Meierhofer, S. Maier, D. Afanasiev, **J. Freudenstein**, J. Riepl, J. Helml, C. P. Schmid und R. Huber.
Interferometric carrier-envelope phase stabilization for ultrashort pulses in the mid-infrared
Optics Letters **48**, 1112-1115 (2023).
- M. J. Gray, **J. Freudenstein**, S. Y. F. Zhao, R. O'Connor, S. Jenkins, N. Kumar, M. Hoek, A. Kopec, S. Huh, T. Taniguchi, K. Watanabe, R. Zhong, C. Kim, G. D. Gu und K. S. Burch.

Evidence for helical hinge zero modes in an Fe-based superconductor
Nano letters **19**, 4890-4896 (2019).

Beiträge in anderen Fachzeitschriften:

- **J. Freudenstein**, M. Meierhofer, M. Kira und R. Huber.
Attosekunden-Stoppuhr für Kristalle
Physik in unserer Zeit **54**, 6-7 (2023).

Vorträge auf internationalen Konferenzen und Seminaren:

- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnguber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Clocking the dynamics of correlated Bloch electrons on an attosecond time scale
DPG-Tagung 2022, Regensburg, Deutschland (04. - 09.09.2022).
- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnguber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attosecond chronoscopy of correlations between Bloch electrons
Frontiers in Optics and Laser Science (FiO + LS), Rochester, USA (17. - 20.10.2022).
Post-Deadline Vortrag
- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnguber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attosecond chronoscopy of Bloch electrons
International Ultrafast Knowledge Coffee House, Online-Seminar (19.12.2022).
Eingeladener Vortrag
- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnguber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attoclocking Bloch electrons in atomically thin solids
Organic Interfaces and Orbital Tomography (Tagung des SFB 1083), Marburg, Deutschland (06. - 07.03.2023).
Eingeladener Vortrag

-
- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnghuber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attosecond clocking of correlations in quantum materials
 5th Erwin Schrödinger Symposium 2023: Challenges in Nanoscience & Application, Mauterndorf, Österreich (13. - 15.03.2023).
Eingeladener Vortrag
 - **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnghuber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attosecond shifts in the dynamics of interacting Bloch electrons
 Microstructure, Magnetic and Electronic Ordering: Interplay and Interactions, Bad Honnef, Deutschland (16. - 19.04.2023).
Eingeladener Vortrag
 - **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnghuber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Clocking correlations between Bloch electrons on the attosecond time scale
 Laser Science to Photonic Applications (CLEO 2023), San Jose, USA (07. - 12.05.2023).
 - **J. Freudenstein**, M. Meierhofer, M. Borsch, D. Afanasiev, M. Liebich, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attosecond chronoscopy of correlations between conducting electrons in quantum materials
 10th Ultrafast Dynamics and Ultrafast Bandgap Photonics Symposium, Kreta, Griechenland (04. - 10.06.2023).
Eingeladener Vortrag
 - **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnghuber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attosecond chronoscopy of many-body correlations between Bloch electrons
 CLEO/Europe-EQEC 2023, München, Deutschland (26. - 30.06.2023).
 – Auszeichnung mit dem *EPS-QEOD Travel Grant Student Award*

- **J. Freudenstein**, M. Meierhofer, S. Ito, M. Borsch, M. Schüler, J. Güdde, M. Sentef, U. Höfer, M. Kira und R. Huber.
Sculpting the quantum trajectories of Bloch electrons with phase-locked multi-terahertz fields
Control of Ultrafast (Attosecond and Strong Field) Processes Using Structured Light, Dresden, Deutschland (03. - 05.07.2023).
Eingeladener Vortrag
- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, M. Kira und R. Huber.
Clocking Coulomb correlations between delocalized Bloch electrons
9th International Conference on Attosecond Science and Technology, Jeju-do, Südkorea (09. - 14.07.2023).
- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnguber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.
Attoclocking delocalized Bloch electrons with multi-terahertz fields
48th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, Montreal, Kanada (17. - 22.09.2023).
– Auszeichnung mit dem 1. Preis des *Best Student Presentation Award*
- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, M. Kira und R. Huber.
Attosecond chronoscopy of interacting Bloch electrons
Ultrafast Surface Dynamics 2024, Göttingen, Deutschland (26. - 31.05.2024).
Eingeladener Vortrag
- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, M. Kira und R. Huber.
Sculpting the quantum trajectories of Bloch electrons with lightwaves
Fundamental Optical Processes in Semiconductors (FOPS) 2024, St. John's, Kanada (21. - 26.07.2024).
Eingeladener Vortrag
- **J. Freudenstein**, S. Ito, M. Schüler, M. Meierhofer, S. Schlauderer, J. Reimann, D. Afanasiev, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, J. Güdde, M. A. Sentef, R. Huber und U. Höfer.

Subcycle formation of Floquet-Bloch bands

49th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves,
Perth, Australien (01. - 06.09.2024).

Vorträge auf internen Tagungen der Universität:

- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, M. Kira und R. Huber.

Lightwave electronics in a monolayer of WSe₂

Tagung des SFB 1277, Waldsassen, Deutschland (04. - 06.10.2021).

- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnghuber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.

Attosecond clocking of correlations between Bloch electrons

Sommerschule der integrierten Graduiertenschule (Poster), Nürnberg, Deutschland (16. - 19.10.2022).

- **J. Freudenstein**, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnghuber, M. Knorr, M. Kira und R. Huber.

Clocking the dynamics of correlated Bloch electrons on the attosecond time scale

Tagung des SFB 1277, Waldsassen, Deutschland (10. - 12.10.2022).

Literaturverzeichnis

- [Afa21] D. Afanasiev, J. R. Hortensius, B. A. Ivanov, A. Sasani, E. Bousquet, Y. M. Blanter, R. V. Mikhaylovskiy, A. V. Kimel, and A. D. Caviglia, *Ultrafast control of magnetic interactions via light-driven phonons*, Nature Materials **20**, 607–611 (2021).
- [Alc22] J. Alcalà, U. Bhattacharya, J. Biegert, M. Ciappina, U. Elu, T. Graß, P. T. Grochowski, M. Lewenstein, A. Palau, T. P. H. Sidiropoulos, T. Steinle, and I. Tyulnev, *High-harmonic spectroscopy of quantum phase transitions in a high- T_c superconductor*, Proceedings of the National Academy of Sciences of the United States of America **119**, e2207766119 (2022).
- [Alf06] R. R. Alfano, *The Supercontinuum Laser Source*, Springer, New York, 2006.
- [Aro15] A. Arora, M. Koperski, K. Nogajewski, J. Marcus, C. Faugeras, and M. Potemski, *Excitonic resonances in thin films of WSe_2 : from monolayer to bulk material*, Nanoscale **7**, 10421–10429 (2015).
- [ATL12] ATLAS Collaboration, *Observation of a new particle in the search for the Standard Model Higgs boson with the ATLAS detector at the LHC*, Physics Letters B **716**, 1–29 (2012).
- [Azo19] D. Azoury, O. Kneller, S. Rozen, B. D. Bruner, A. Clergerie, Y. Mairesse, B. Fabre, B. Pons, N. Dudovich, and M. Krüger, *Electronic wavefunctions probed by all-optical attosecond interferometry*, Nature Photonics **13**, 54–59 (2019).

- [Ban17] H. B. Banks, Q. Wu, D. C. Valovcin, S. Mack, A. C. Gossard, L. Pfeiffer, R.-B. Liu, and M. S. Sherwin, *Dynamical Birefringence: Electron-Hole Recollisions as Probes of Berry Curvature*, Physical Review X **7**, 041042 (2017).
- [Bar57] J. Bardeen, L. N. Cooper, and J. R. Schrieffer, *Theory of Superconductivity*, Physical Review **108**, 1175–1204 (1957).
- [Bas11] D. N. Basov, R. D. Averitt, D. van der Marel, M. Dressel, and K. Haule, *Electrodynamics of correlated electron materials*, Reviews of Modern Physics **83**, 471–541 (2011).
- [Bee14] C. W. J. Beenakker, *Annihilation of colliding Bogoliubov quasiparticles reveals their Majorana nature*, Physical Review Letters **112**, 070604 (2014).
- [Blo29] F. Bloch, *Über die Quantenmechanik der Elektronen in Kristallgittern*, Zeitschrift für Physik **52**, 555–600 (1929).
- [Bor20] M. Borsch, C. P. Schmid, L. Weigl, S. Schlauderer, N. Hofmann, C. Lange, J. T. Steiner, S. W. Koch, R. Huber, and M. Kira, *Super-resolution light-wave tomography of electronic bands in quantum materials*, Science **370**, 1204–1207 (2020).
- [Bor23] M. Borsch, M. Meierhofer, R. Huber, and M. Kira, *Lightwave electronics in condensed matter*, Nature Reviews Materials **8**, 668–687 (2023).
- [Boy08] R. W. Boyd, *Nonlinear optics*, 3. ed., Elsevier/Academic Press, Amsterdam, 2008.
- [Bra00] T. Brabec and F. Krausz, *Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics*, Reviews of Modern Physics **72**, 545–591 (2000).
- [Bra09] M. Bradler, P. Baum, and E. Riedle, *Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub- μ J pump pulses*, Applied Physics B **97**, 561–574 (2009).

- [Bro99] A. Brodeur and S. L. Chin, *Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media*, Journal of the Optical Society of America B **16**, 637 (1999).
- [But16] J. M. Butterworth, *The Standard Model: how far can it go and how can we tell?*, Philosophical transactions. Series A, Mathematical, physical, and engineering sciences **374**, 20150260 (2016).
- [Cao12] T. Cao, G. Wang, W. Han, H. Ye, C. Zhu, J. Shi, Q. Niu, P. Tan, E. Wang, B. Liu, and J. Feng, *Valley-selective circular dichroism of monolayer molybdenum disulphide*, Nature Communications **3**, 887 (2012).
- [Cao18a] Y. Cao, V. Fatemi, A. Demir, S. Fang, S. L. Tomarken, J. Y. Luo, J. D. Sanchez-Yamagishi, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, R. C. Ashoori, and P. Jarillo-Herrero, *Correlated insulator behaviour at half-filling in magic-angle graphene superlattices*, Nature **556**, 80–84 (2018).
- [Cao18b] Y. Cao, V. Fatemi, S. Fang, K. Watanabe, T. Taniguchi, E. Kaxiras, and P. Jarillo-Herrero, *Unconventional superconductivity in magic-angle graphene superlattices*, Nature **556**, 43–50 (2018).
- [Car96] J. M. Carpinelli, H. H. Weitering, E. W. Plummer, and R. Stumpf, *Direct observation of a surface charge density wave*, Nature **381**, 398–400 (1996).
- [Cav07] A. L. Cavalieri, N. Müller, T. Uphues, V. S. Yakovlev, A. Baltuska, B. Horvath, B. Schmidt, L. Blümel, R. Holzwarth, S. Hendel, M. Drescher, U. Kleineberg, P. M. Echenique, R. Kienberger, F. Krausz, and U. Heinzmann, *Attosecond spectroscopy in condensed matter*, Nature **449**, 1029–1032 (2007).
- [Cha04] J. M. Chamberlain, *Where optics meets electronics: recent progress in decreasing the terahertz gap*, Philosophical transactions. Series A, Mathematical, physical, and engineering sciences **362**, 199–211; discussion 212–3 (2004).
- [Che01] D. S. Chemla and J. Shah, *Many-body and correlation effects in semiconductors*, Nature **411**, 549–557 (2001).

- [Che14] A. Chernikov, T. C. Berkelbach, H. M. Hill, A. Rigosi, Y. Li, O. B. Aslan, D. R. Reichman, M. S. Hybertsen, and T. F. Heinz, *Exciton binding energy and nonhydrogenic Rydberg series in monolayer WS₂*, Physical Review Letters **113**, 076802 (2014).
- [Che15] A. Chernikov, C. Ruppert, H. M. Hill, A. F. Rigosi, and T. F. Heinz, *Population inversion and giant bandgap renormalization in atomically thin WS₂ layers*, Nature Photonics **9**, 466–470 (2015).
- [Chi01] A. H. Chin, O. G. Calderón, and J. Kono, *Extreme midinfrared nonlinear optics in semiconductors*, Physical Review Letters **86**, 3292–3295 (2001).
- [Cor93] Corkum, *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*, Physical Review Letters **71**, 1994–1997 (1993).
- [Cor07] P. B. Corkum and F. Krausz, *Attosecond science*, Nature Physics **3**, 381–387 (2007).
- [Cos21] J. B. Costello, S. D. O’Hara, Q. Wu, D. C. Valovcin, L. N. Pfeiffer, K. W. West, and M. S. Sherwin, *Reconstruction of Bloch wavefunctions of holes in a semiconductor*, Nature **599**, 57–61 (2021).
- [Cou07] A. Couairon and A. Mysyrowicz, *Femtosecond filamentation in transparent media*, Physics Reports **441**, 47–189 (2007).
- [Dhi17] S. S. Dhillon, M. S. Vitiello, E. H. Linfield, A. G. Davies, M. C. Hoffmann, J. Booske, C. Paoloni, M. Gensch, P. Weightman, G. P. Williams, E. Castro-Camus, D. R. S. Cumming, F. Simoons, I. Escorcia-Carranza, J. Grant, S. Lucyszyn, M. Kuwata-Gonokami, K. Konishi, M. Koch, C. A. Schmuttenmaer, T. L. Cocker, R. Huber, A. G. Markelz, Z. D. Taylor, V. P. Wallace, J. Axel Zeitler, J. Sibik, T. M. Korter, B. Ellison, S. Rea, P. Goldsmith, K. B. Cooper, R. Appleby, D. Pardo, P. G. Huggard, V. Kroezer, H. Shams, M. Fice, C. Renaud, A. Seeds, A. Stöhr, M. Naftaly, N. Ridler, R. Clarke, J. E. Cunningham, and M. B. Johnston, *The 2017 terahertz science and technology roadmap*, Journal of Physics D: Applied Physics **50**, 043001 (2017).

- [Eft17] A. Eftekhari, *Tungsten dichalcogenides (WS_2 , WSe_2 , and WTe_2): materials chemistry and applications*, Journal of Materials Chemistry A **5**, 18299–18325 (2017).
- [Eng64] F. Englert and R. Brout, *Broken Symmetry and the Mass of Gauge Vector Mesons*, Physical Review Letters **13**, 321–323 (1964).
- [Fin97] T. Finteis, M. Hengsberger, T. Straub, K. Fauth, R. Claessen, P. Auer, P. Steiner, S. Hüfner, P. Blaha, M. Vögt, M. Lux-Steiner, and E. Bucher, *Occupied and unoccupied electronic band structure of WSe_2* , Physical Review B **55**, 10400–10411 (1997).
- [Fre22] J. Freudenstein, M. Borsch, M. Meierhofer, D. Afanasiev, C. P. Schmid, F. Sandner, M. Liebich, A. Girnguber, M. Knorr, M. Kira, and R. Huber, *Attosecond clocking of correlations between Bloch electrons*, Nature **610**, 290–295 (2022).
- [Gar16] M. Garg, M. Zhan, T. T. Luu, H. Lakhota, T. Klostermann, A. Guggenmos, and E. Goulielmakis, *Multi-petahertz electronic metrology*, Nature **538**, 359–363 (2016).
- [Gei13] A. K. Geim and I. V. Grigorieva, *Van der Waals heterostructures*, Nature **499**, 419–425 (2013).
- [Gei19] N. C. Geib, M. Zilk, T. Pertsch, and F. Eilenberger, *Common pulse retrieval algorithm: a fast and universal method to retrieve ultrashort pulses*, Optica **6**, 495 (2019).
- [Ghi11] S. Ghimire, A. D. DiChiara, E. Sistrunk, P. Agostini, L. F. DiMauro, and D. A. Reis, *Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal*, Nature Physics **7**, 138–141 (2011).
- [Gol08] D. Golde, T. Meier, and S. W. Koch, *High harmonics generated in semiconductor nanostructures by the coupled dynamics of optical inter- and intraband excitations*, Physical Review B **77**, 075330 (2008).

- [Gol11] D. Golde, M. Kira, T. Meier, and S. W. Koch, *Microscopic theory of the extremely nonlinear terahertz response of semiconductors*, Physica Status Solidi (b) **248**, 863–866 (2011).
- [Gro18] R. Gross and A. Marx, *Festkörperphysik*, De Gruyter, 2018.
- [Gru16] M. Grundmann, *The Physics of Semiconductors: An Introduction Including Nanophysics and Applications*, 3. ed., Graduate Texts in Physics, Springer, Cham, 2016.
- [Haf18] H. A. Hafez, S. Kovalev, J.-C. Deinert, Z. Mics, B. Green, N. Awari, M. Chen, S. Germanskiy, U. Lehnert, J. Teichert, Z. Wang, K.-J. Tiel-rooij, Z. Liu, Z. Chen, A. Narita, K. Müllen, M. Bonn, M. Gensch, and D. Turchinovich, *Extremely efficient terahertz high-harmonic generation in graphene by hot Dirac fermions*, Nature **561**, 507–511 (2018).
- [Has10] M. Z. Hasan and C. L. Kane, *Colloquium: Topological insulators*, Reviews of Modern Physics **82**, 3045–3067 (2010).
- [Hau09] H. Haug and S. W. Koch, *Quantum Theory of the Optical and Electronic Properties of Semiconductors*, World Scientific, 2009.
- [He14] K. He, N. Kumar, L. Zhao, Z. Wang, K. F. Mak, H. Zhao, and J. Shan, *Tightly bound excitons in monolayer WSe₂*, Physical Review Letters **113**, 026803 (2014).
- [Hen01] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, *Atto-second metrology*, Nature **414**, 509–513 (2001).
- [Hig64] P. W. Higgs, *Broken Symmetries and the Masses of Gauge Bosons*, Physical Review Letters **13**, 508–509 (1964).
- [Hoh15] M. Hohenleutner, F. Langer, O. Schubert, M. Knorr, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, *Real-time observation of interfering crystal electrons in high-harmonic generation*, Nature **523**, 572–575 (2015).

-
- [Hub01] R. Huber, F. Tauser, A. Brodschelm, M. Bichler, G. Abstreiter, and A. Leitenstorfer, *How many-particle interactions develop after ultrafast excitation of an electron-hole plasma*, Nature **414**, 286–289 (2001).
- [Hüb17] H. Hübener, M. A. Sentef, U. D. Giovannini, A. F. Kemper, and A. Rubio, *Creating stable Floquet-Weyl semimetals by laser-driving of 3D Dirac materials*, Nature Communications **8**, 13940 (2017).
- [Ike20] T. N. Ikeda and M. Sato, *General description for nonequilibrium steady states in periodically driven dissipative quantum systems*, Science Advances **6** (2020).
- [Ito23] S. Ito, M. Schüler, M. Meierhofer, S. Schlauderer, J. Freudenstein, J. Reimann, D. Afanasiev, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, J. Gädde, M. A. Sentef, U. Höfer, and R. Huber, *Build-up and dephasing of Floquet-Bloch bands on subcycle timescales*, Nature **616**, 696–701 (2023).
- [Jam95] L. K. James (ed.), *Nobel laureates in chemistry, 1901 - 1992*, 2. printing ed., History of modern chemical sciences, American Chemical Society, Washington, DC, 1995.
- [Jér67] D. Jérôme, T. M. Rice, and W. Kohn, *Excitonic Insulator*, Physical Review **158**, 462–475 (1967).
- [Jia22] Y. Jia, P. Wang, C.-L. Chiu, Z. Song, G. Yu, B. Jäck, S. Lei, S. Klemenz, F. A. Cevallos, M. Onyszczak, N. Fishchenko, X. Liu, G. Farahi, F. Xie, Y. Xu, K. Watanabe, T. Taniguchi, B. A. Bernevig, R. J. Cava, L. M. Schoop, A. Yazdani, and S. Wu, *Evidence for a monolayer excitonic insulator*, Nature Physics **18**, 87–93 (2022).
- [Jon13] A. M. Jones, H. Yu, N. J. Ghimire, S. Wu, G. Aivazian, J. S. Ross, B. Zhao, J. Yan, D. G. Mandrus, Di Xiao, W. Yao, and X. Xu, *Optical generation of excitonic valley coherence in monolayer WSe₂*, Nature Nanotechnology **8**, 634–638 (2013).

- [Kam13] T. Kampfrath, K. Tanaka, and K. A. Nelson, *Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients*, Nature Photonics **7**, 680–690 (2013).
- [Kan93] D. J. Kane and R. Trebino, *Characterization of arbitrary femtosecond pulses using frequency-resolved optical gating*, IEEE Journal of Quantum Electronics **29**, 571–579 (1993).
- [Kap05] L. Kappei, J. Szczytko, F. Morier-Genoud, and B. Deveaud, *Direct observation of the mott transition in an optically excited semiconductor quantum well*, Physical Review Letters **94**, 147403 (2005).
- [Kei15] B. Keimer, S. A. Kivelson, M. R. Norman, S. Uchida, and J. Zaanen, *From quantum matter to high-temperature superconductivity in copper oxides*, Nature **518**, 179–186 (2015).
- [Kel65] L. W. Keldysh, *Ionization in the field of a strong electromagnetic wave*, Soviet Physics Journal of Experimental and Theoretical Physics **20**, 1307–1314 (1965).
- [Kib66] T. W. B. Kibble, *Refraction of Electron Beams by Intense Electromagnetic Waves*, Physical Review Letters **16**, 1054–1056 (1966).
- [Kir06a] M. Kira and S. W. Koch, *Many-body correlations and excitonic effects in semiconductor spectroscopy*, Progress in Quantum Electronics **30**, 155–296 (2006).
- [Kir06b] M. Kira and S. W. Koch, *Quantum-optical spectroscopy of semiconductors*, Physical Review A **73**, 013813 (2006).
- [Kir12] M. Kira and S. W. Koch, *Semiconductor quantum optics*, Cambridge University Press, Cambridge, 2012.
- [Kir15] M. Kira, *Coherent quantum depletion of an interacting atom condensate*, Nature Communications **6**, 6624 (2015).
- [Kir25] M. Kira and R. Huber, *Unlocking Lightwave Electronics*, Optics and Photonics News **36**, 28–37 (2025).

-
- [Kno17] M. Knorr, J. Raab, M. Tauer, P. Merkl, D. Peller, E. Wittmann, E. Riedle, C. Lange, and R. Huber, *Phase-locked multi-terahertz electric fields exceeding 13 MV/cm at a 190 kHz repetition rate*, Optics Letters **42**, 4367–4370 (2017).
- [Kra09] F. Krausz and M. Ivanov, *Attosecond physics*, Reviews of Modern Physics **81**, 163–234 (2009).
- [Kra11] G. Krauss, D. Fehrenbacher, D. Brida, C. Riek, A. Sell, R. Huber, and A. Leitenstorfer, *All-passive phase locking of a compact Er:fiber laser system*, Optics Letters **36**, 540–542 (2011).
- [Kum12] A. Kumar and P. K. Ahluwalia, *Electronic structure of transition metal dichalcogenides monolayers $1H-MX_2$ ($M = Mo, W$; $X = S, Se, Te$) from ab-initio theory: new direct band gap semiconductors*, The European Physical Journal B **85**, 18–22 (2012).
- [Kun18] J. Kunstmann, F. Mooshammer, P. Nagler, A. Chaves, F. Stein, N. Paradiso, G. Plechinger, C. Strunk, C. Schüller, G. Seifert, D. R. Reichman, and T. Korn, *Momentum-space indirect interlayer excitons in transition-metal dichalcogenide van der Waals heterostructures*, Nature Physics **14**, 801–805 (2018).
- [Lan57] L. D. Landau, *The theory of a Fermi Liquid*, Soviet Physics Journal of Experimental and Theoretical Physics **3**, 920–925 (1957).
- [Lan16] F. Langer, M. Hohenleutner, C. P. Schmid, C. Poellmann, P. Nagler, T. Korn, C. Schüller, M. S. Sherwin, U. Huttner, J. T. Steiner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, *Lightwave-driven quasiparticle collisions on a subcycle timescale*, Nature **533**, 225–229 (2016).
- [Lan17] F. Langer, M. Hohenleutner, U. Huttner, S. W. Koch, M. Kira, and R. Huber, *Symmetry-controlled time structure of high-harmonic carrier fields from a solid*, Nature Photonics **11**, 227–231 (2017).
- [Lan18] F. Langer, C. P. Schmid, S. Schlauderer, M. Gmitra, J. Fabian, P. Nagler, C. Schüller, T. Korn, P. G. Hawkins, J. T. Steiner, U. Huttner, S. W. Koch,

- M. Kira, and R. Huber, *Lightwave valleytronics in a monolayer of tungsten diselenide*, Nature **557**, 76–80 (2018).
- [Laz95] P. Lazaridis, G. Debarge, and P. Gallion, *Time-bandwidth product of chirped sech(2) pulses: application to phase-amplitude-coupling factor measurement*, Optics Letters **20**, 1160–1162 (1995).
- [Lee06] P. A. Lee, N. Nagaosa, and X.-G. Wen, *Doping a Mott insulator: Physics of high-temperature superconductivity*, Reviews of Modern Physics **78**, 17–85 (2006).
- [Lew94] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Y. Ivanov, A. L’Huillier, and P. B. Corkum, *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*, Physical Review A **49**, 2117–2132 (1994).
- [L’H93] A. L’Huillier and P. Balcou, *High-order harmonic generation in rare gases with a 1-ps 1053-nm laser*, Physical Review Letters **70**, 774–777 (1993).
- [Li13] Y. Li, Y. Rao, K. F. Mak, Y. You, S. Wang, C. R. Dean, and T. F. Heinz, *Probing symmetry properties of few-layer MoS₂ and h-BN by optical second-harmonic generation*, Nano Letters **13**, 3329–3333 (2013).
- [Lin11] N. H. Lindner, G. Refael, and V. Galitski, *Floquet topological insulator in semiconductor quantum wells*, Nature Physics **7**, 490–495 (2011).
- [Liu13] G.-B. Liu, W.-Y. Shan, Y. Yao, W. Yao, and Di Xiao, *Three-band tight-binding model for monolayers of group-VIB transition metal dichalcogenides*, Physical Review B **88**, 1–10 (2013).
- [Liu15] G.-B. Liu, Di Xiao, Y. Yao, X. Xu, and W. Yao, *Electronic structures and theoretical modelling of two-dimensional group-VIB transition metal dichalcogenides*, Chemical Society Reviews **44**, 2643–2663 (2015).
- [Liu17] H. Liu, Y. Li, Y. S. You, S. Ghimire, T. F. Heinz, and D. A. Reis, *High-harmonic generation from an atomically thin semiconductor*, Nature Physics **13**, 262–265 (2017).

-
- [Luc16] M. Lucchini, S. A. Sato, A. Ludwig, J. Herrmann, M. Volkov, L. Kasmi, Y. Shinohara, K. Yabana, L. Gallmann, and U. Keller, *Attosecond dynamical Franz-Keldysh effect in polycrystalline diamond*, Science **353**, 916–919 (2016).
- [Luu18] T. T. Luu and H. J. Wörner, *Measurement of the Berry curvature of solids using high-harmonic spectroscopy*, Nature Communications **9**, 916 (2018).
- [Mai60] T. H. Maiman, *Stimulated Optical Radiation in Ruby*, Nature **187**, 493–494 (1960).
- [Mak10] K. F. Mak, C. Lee, J. Hone, J. Shan, and T. F. Heinz, *Atomically thin MoS_2 : a new direct-gap semiconductor*, Physical Review Letters **105**, 136805 (2010).
- [Mak12] K. F. Mak, K. He, J. Shan, and T. F. Heinz, *Control of valley polarization in monolayer MoS_2 by optical helicity*, Nature Nanotechnology **7**, 494–498 (2012).
- [Mas16] H. Mashiko, K. Oguri, T. Yamaguchi, A. Suda, and H. Gotoh, *Petahertz optical drive with wide-bandgap semiconductor*, Nature Physics **12**, 741–745 (2016).
- [McI20] J. W. McIver, B. Schulte, F.-U. Stein, T. Matsuyama, G. Jotzu, G. Meier, and A. Cavalleri, *Light-induced anomalous Hall effect in graphene*, Nature Physics **16**, 38–41 (2020).
- [Mei23a] S. Meier, Y. Zhumagulov, M. Dietl, P. Parzefall, M. Kempf, J. Holler, P. Nagler, P. E. Faria Junior, J. Fabian, T. Korn, and C. Schüller, *Emergent trion-phonon coupling in atomically reconstructed MoSe_2 – WSe_2 heterobilayers*, Physical Review Research **5**, L032036 (2023).
- [Mei23b] M. Meierhofer, S. Maier, D. Afanasiev, J. Freudenstein, J. Riepl, J. Helml, C. P. Schmid, and R. Huber, *Interferometric carrier-envelope phase stabilization for ultrashort pulses in the mid-infrared*, Optics Letters **48**, 1112–1115 (2023).

- [Mer19] P. Merkl, F. Mooshammer, P. Steinleitner, A. Girnghuber, K.-Q. Lin, P. Nagler, J. Holler, C. Schüller, J. M. Lupton, T. Korn, S. Ovesen, S. Brem, E. Malic, and R. Huber, *Ultrafast transition between exciton phases in van der Waals heterostructures*, Nature Materials **18**, 691–696 (2019).
- [Mou17] A. Moulet, J. B. Bertrand, T. Klostermann, A. Guggenmos, N. Karpowicz, and E. Goulielmakis, *Soft x-ray excitonics*, Science **357**, 1134–1138 (2017).
- [Nag20] K. Nagai, K. Uchida, N. Yoshikawa, T. Endo, Y. Miyata, and K. Tanaka, *Dynamical symmetry of strongly light-driven electronic system in crystal-line solids*, Communications Physics **3**, 137 (2020).
- [Nep15] S. Neppl, R. Ernstorfer, A. L. Cavalieri, C. Lemell, G. Wachter, E. Magerl, E. M. Bothschafter, M. Jobst, M. Hofstetter, U. Kleineberg, J. V. Barth, D. Menzel, J. Burgdörfer, P. Feulner, F. Krausz, and R. Kienberger, *Direct observation of electron propagation and dielectric screening on the atomic length scale*, Nature **517**, 342–346 (2015).
- [Nie22] L. Nie, K. Sun, W. Ma, D. Song, L. Zheng, Z. Liang, P. Wu, F. Yu, J. Li, M. Shan, D. Zhao, S. Li, B. Kang, Z. Wu, Y. Zhou, K. Liu, Z. Xiang, J. Ying, Z. Wang, T. Wu, and X. Chen, *Charge-density-wave-driven electronic nematicity in a kagome superconductor*, Nature **604**, 59–64 (2022).
- [Odo06] B. Odom, D. Hanneke, B. D’Urso, and G. Gabrielse, *New measurement of the electron magnetic moment using a one-electron quantum cyclotron*, Physical Review Letters **97**, 030801 (2006).
- [Oka09] T. Oka and H. Aoki, *Photovoltaic Hall effect in graphene*, Physical Review B **79**, 081406 (2009).
- [Oka19] T. Oka and S. Kitamura, *Floquet Engineering of Quantum Materials*, Annual Review of Condensed Matter Physics **10**, 387–408 (2019).
- [Oss18] M. Osslander, J. Riemensberger, S. Neppl, M. Mittermair, M. Schäffer, A. Duensing, M. S. Wagner, R. Heider, M. Wurzer, M. Gerl, M. Schnitzgenbaumer, J. V. Barth, F. Libisch, C. Lemell, J. Burgdörfer, P. Feulner,

- and R. Kienberger, *Absolute timing of the photoelectric effect*, Nature **561**, 374–377 (2018).
- [Pas08] R. Paschotta, *Encyclopedia of laser physics and technology*, Wiley-VCH, Weinheim, 2008.
- [Pau01] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Auge, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, *Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation*, Science **292**, 1689–1692 (2001).
- [Pet10] V. Petrov, M. Ghotbi, O. Kokabee, A. Esteban-Martin, F. Noack, A. Gaydardzhiev, I. Nikolov, P. Tzankov, I. Buchvarov, K. Miyata, A. Majchrowski, I. V. Kityk, F. Rotermund, E. Michalski, and M. Ebrahim-Zadeh, *Femtosecond nonlinear frequency conversion based on BiB_3O_6* , Laser & Photonics Reviews **4**, 53–98 (2010).
- [Poe15] C. Poellmann, P. Steinleitner, U. Leierseder, P. Nagler, G. Plechinger, M. Porer, R. Bratschitsch, C. Schüller, T. Korn, and R. Huber, *Resonant internal quantum transitions and femtosecond radiative decay of excitons in monolayer WSe_2* , Nature Materials **14**, 889–893 (2015).
- [Ram12] A. Ramasubramaniam, *Large excitonic effects in monolayers of molybdenum and tungsten dichalcogenides*, Physical Review B **86**, 115409 (2012).
- [Rei18] J. Reimann, S. Schlauderer, C. P. Schmid, F. Langer, S. Baierl, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, A. Kimura, C. Lange, J. Gädde, U. Höfer, and R. Huber, *Subcycle observation of lightwave-driven Dirac currents in a topological surface band*, Nature **562**, 396–400 (2018).
- [Rut11] E. Rutherford, *The scattering of α and β particles by matter and the structure of the atom*, The London, Edinburgh, and Dublin Philosophical Magazine and Journal of Science **21**, 669–688 (1911).
- [Sca21] G. Scappucci, C. Kloeffer, F. A. Zwanenburg, D. Loss, M. Myronov, J.-J. Zhang, S. de Franceschi, G. Katsaros, and M. Veldhorst, *The germanium quantum information route*, Nature Reviews Materials **6**, 926–943 (2021).

- [Sch10] M. Schultze, M. Fiess, N. Karpowicz, J. Gagnon, M. Korbman, M. Hofstetter, S. Neppl, A. L. Cavalieri, Y. Komninos, T. Mercouris, C. A. Nicolaides, R. Pazourek, S. Nagele, J. Feist, J. Burgdörfer, A. M. Azzeer, R. Ernstorfer, R. Kienberger, U. Kleineberg, E. Goulielmakis, F. Krausz, and V. S. Yakovlev, *Delay in photoemission*, Science **328**, 1658–1662 (2010).
- [Sch13] M. Schultze, E. M. Bothschafter, A. Sommer, S. Holzner, W. Schweinberger, M. Fiess, M. Hofstetter, R. Kienberger, V. Apalkov, V. S. Yakovlev, M. I. Stockman, and F. Krausz, *Controlling dielectrics with the electric field of light*, Nature **493**, 75–78 (2013).
- [Sch14a] O. Schubert, M. Hohenleutner, F. Langer, B. Urbanek, C. Lange, U. Huttner, D. Golde, T. Meier, M. Kira, S. W. Koch, and R. Huber, *Sub-cycle control of terahertz high-harmonic generation by dynamical Bloch oscillations*, Nature Photonics **8**, 119–123 (2014).
- [Sch14b] M. Schultze, K. Ramasesha, C. D. Pemmaraju, S. A. Sato, D. Whitmore, A. Gandman, J. S. Prell, L. J. Borja, D. Prendergast, K. Yabana, D. M. Neumark, and S. R. Leone, *Attosecond band-gap dynamics in silicon*, Science **346**, 1348–1352 (2014).
- [Sch16] J. R. Schaibley, H. Yu, G. Clark, P. Rivera, J. S. Ross, K. L. Seyler, W. Yao, and X. Xu, *Valleytronics in 2D materials*, Nature Reviews Materials **1**, 1–15 (2016).
- [Sch18] F. Schlaepfer, M. Lucchini, S. A. Sato, M. Volkov, L. Kasmi, N. Hartmann, A. Rubio, L. Gallmann, and U. Keller, *Attosecond optical-field-enhanced carrier injection into the GaAs conduction band*, Nature Physics **14**, 560–564 (2018).
- [Sch21] C. P. Schmid, L. Weigl, P. Grössing, V. Junk, C. Gorini, S. Schlauderer, S. Ito, M. Meierhofer, N. Hofmann, D. Afanasiev, J. Crewse, K. A. Kokh, O. E. Tereshchenko, J. Gädde, F. Evers, J. Wilhelm, K. Richter, U. Höfer, and R. Huber, *Tunable non-integer high-harmonic generation in a topological insulator*, Nature **593**, 385–390 (2021).

- [Sel08] A. Sell, A. Leitenstorfer, and R. Huber, *Phase-locked generation and field-resolved detection of widely tunable terahertz pulses with amplitudes exceeding 100 MV/cm*, Optics Letters **33**, 2767–2769 (2008).
- [Sen15] M. A. Sentef, M. Claassen, A. F. Kemper, B. Moritz, T. Oka, J. K. Fredericks, and T. P. Devereaux, *Theory of Floquet band formation and local pseudospin textures in pump-probe photoemission of graphene*, Nature Communications **6**, 7047 (2015).
- [Sid22] T. Siday, F. Sandner, S. Brem, M. Zizlsperger, R. Perea-Causin, F. Schiegl, S. Nerreter, M. Plankl, P. Merkl, F. Mooshammer, M. A. Huber, E. Malic, and R. Huber, *Ultrafast Nanoscopy of High-Density Exciton Phases in WSe₂*, Nano Letters **22**, 2561–2568 (2022).
- [Sie17] F. Siek, S. Neb, P. Bartz, M. Hensen, C. Strüber, S. Fiechter, M. Torrent-Sucarrat, V. M. Silkin, E. E. Krasovskii, N. M. Kabachnik, S. Fritzsche, R. D. Muiño, P. M. Echenique, A. K. Kazansky, N. Müller, W. Pfeiffer, and U. Heinzmann, *Angular momentum-induced delays in solid-state photoemission enhanced by intra-atomic interactions*, Science **357**, 1274–1277 (2017).
- [Sil18] R. E. F. Silva, I. V. Blinov, A. N. Rubtsov, O. Smirnova, and M. Ivanov, *High-harmonic spectroscopy of ultrafast many-body dynamics in strongly correlated systems*, Nature Photonics **12**, 266–270 (2018).
- [Smi10] R. P. Smith, J. K. Wahlstrand, A. C. Funk, R. P. Mirin, S. T. Cundiff, J. T. Steiner, M. Schafer, M. Kira, and S. W. Koch, *Extraction of many-body configurations from nonlinear absorption in semiconductor quantum wells*, Physical Review Letters **104**, 247401 (2010).
- [Som16] A. Sommer, E. M. Bothschafter, S. A. Sato, C. Jakubeit, T. Latka, O. Razskazovskaya, H. Fattahi, M. Jobst, W. Schweinberger, V. Shirvanyan, V. S. Yakovlev, R. Kienberger, K. Yabana, N. Karpowicz, M. Schultze, and F. Krausz, *Attosecond nonlinear polarization and light-matter energy transfer in solids*, Nature **534**, 86–90 (2016).

- [Spe21] J. Spencer, *Learning many-electron wavefunctions with deep neural networks*, Nature Reviews Physics **3**, 458 (2021).
- [Spl10] A. Splendiani, L. Sun, Y. Zhang, T. Li, J. Kim, C.-Y. Chim, G. Galli, and F. Wang, *Emerging photoluminescence in monolayer MoS₂*, Nano Letters **10**, 1271–1275 (2010).
- [Ste17] A. Steinhoff, M. Florian, M. Rösner, G. Schönhoff, T. O. Wehling, and F. Jahnke, *Exciton fission in monolayer transition metal dichalcogenide semiconductors*, Nature Communications **8**, 1166 (2017).
- [Str85] D. Strickland and G. Mourou, *Compression of amplified chirped optical pulses*, Optics Communications **55**, 447–449 (1985).
- [Su08] J.-J. Su and A. H. MacDonald, *How to make a bilayer exciton condensate flow*, Nature Physics **4**, 799–802 (2008).
- [Sun22] B. Sun, W. Zhao, T. Palomaki, Z. Fei, E. Runburg, P. Malinowski, X. Huang, J. Cenker, Y.-T. Cui, J.-H. Chu, X. Xu, S. S. Ataei, D. Varsano, M. Palummo, E. Molinari, M. Rontani, and D. H. Cobden, *Evidence for equilibrium exciton condensation in monolayer WTe₂*, Nature Physics **18**, 94–99 (2022).
- [Tao16] Z. Tao, C. Chen, T. Szilvási, M. Keller, M. Mavrikakis, H. Kapteyn, and M. Murnane, *Direct time-domain observation of attosecond final-state lifetimes in photoemission from solids*, Science **353**, 62–67 (2016).
- [Ton13] P. Tonndorf, R. Schmidt, P. Böttger, X. Zhang, J. Börner, A. Liebig, M. Albrecht, C. Kloc, O. Gordan, D. R. T. Zahn, S. Michaelis de Vasconcellos, and R. Bratschitsch, *Photoluminescence emission and Raman response of monolayer MoS₂, MoSe₂, and WSe₂*, Optics Express **21**, 4908–4916 (2013).
- [Tre97] R. Trebino, K. W. DeLong, D. N. Fittinghoff, J. N. Sweetser, M. A. Krumbühl, B. A. Richman, and D. J. Kane, *Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating*, Review of Scientific Instruments **68**, 3277–3295 (1997).

- [Tza12] P. Tzankov, O. Isaienko, I. Shumay, D. Stockwell, L. Xu, N. Moisan, and D. Boschetto, *Generation of Sub-50-fs Pulses in the Near Infrared by Optical Parametric Amplifiers Based on BIBO Crystals*, Conference on Lasers and Electro-Optics 2012 (Washington, D.C.), OSA, 2012.
- [UN24] A. J. Uzan-Narovlansky, L. Faeyrman, G. G. Brown, S. Shames, V. Narovlansky, J. Xiao, T. Arusi-Parpar, O. Kneller, B. D. Bruner, O. Smirnova, R. E. F. Silva, B. Yan, Á. Jiménez-Galán, M. Ivanov, and N. Dudovich, *Observation of interband Berry phase in laser-driven crystals*, *Nature* **626**, 66–71 (2024).
- [Vam15] G. Vampa, T. J. Hammond, N. Thiré, B. E. Schmidt, F. Légaré, C. R. McDonald, T. Brabec, D. D. Klug, and P. B. Corkum, *All-Optical Reconstruction of Crystal Band Structure*, *Physical Review Letters* **115**, 193603 (2015).
- [Vol19] M. Volkov, S. A. Sato, F. Schlaepfer, L. Kasmi, N. Hartmann, M. Lucchini, L. Gallmann, A. Rubio, and U. Keller, *Attosecond screening dynamics mediated by electron localization in transition metals*, *Nature Physics* **15**, 1145–1149 (2019).
- [Voß99] D. Voß, P. Krüger, A. Mazur, and J. Pollmann, *Atomic and electronic structure of WSe_2 from ab initio theory: Bulk crystal and thin film systems*, *Physical Review B* **60**, 14311–14317 (1999).
- [Wak09] Y. Wakisaka, T. Sudayama, K. Takubo, T. Mizokawa, M. Arita, H. Namatame, M. Taniguchi, N. Katayama, M. Nohara, and H. Takagi, *Excitonic insulator state in Ta_2NiSe_5 probed by photoemission spectroscopy*, *Physical Review Letters* **103**, 026402 (2009).
- [Wal21] R. Wallauer, R. Perea-Causin, L. Münster, S. Zajusch, S. Brem, J. Gädde, K. Tanimura, K.-Q. Lin, R. Huber, E. Malic, and U. Höfer, *Momentum-Resolved Observation of Exciton Formation Dynamics in Monolayer WS_2* , *Nano Letters* **21**, 5867–5873 (2021).
- [Wan37] G. H. Wannier, *The Structure of Electronic Excitation Levels in Insulating Crystals*, *Physical Review* **52**, 191–197 (1937).

- [Wan12] Q. H. Wang, K. Kalantar-Zadeh, A. Kis, J. N. Coleman, and M. S. Strano, *Electronics and optoelectronics of two-dimensional transition metal dichalcogenides*, Nature Nanotechnology **7**, 699–712 (2012).
- [Wan13] Y. H. Wang, H. Steinberg, P. Jarillo-Herrero, and N. Gedik, *Observation of Floquet-Bloch states on the surface of a topological insulator*, Science **342**, 453–457 (2013).
- [Wan18] G. Wang, A. Chernikov, M. M. Glazov, T. F. Heinz, X. Marie, T. Amand, and B. Urbaszek, *Colloquium: Excitons in atomically thin transition metal dichalcogenides*, Reviews of Modern Physics **90**, 021001 (2018).
- [Wan19] J. Wang, J. Ardelean, Y. Bai, A. Steinhoff, M. Florian, F. Jahnke, X. Xu, M. Kira, J. Hone, and X.-Y. Zhu, *Optical generation of high carrier densities in 2D semiconductor heterobilayers*, Science Advances **5**, eaax0145 (2019).
- [Wig32] E. Wigner, *On the Quantum Correction For Thermodynamic Equilibrium*, Physical Review **40**, 749–759 (1932).
- [Wig34] E. Wigner, *On the Interaction of Electrons in Metals*, Physical Review **46**, 1002–1011 (1934).
- [Wil69] J. A. Wilson and A. D. Yoffe, *The transition metal dichalcogenides discussion and interpretation of the observed optical, electrical and structural properties*, Advances in Physics **18**, 193–335 (1969).
- [Wya07] T. Wyatt, *High-energy colliders and the rise of the standard model*, Nature **448**, 274–280 (2007).
- [Xia12] D. Xiao, G. Liu, W. Feng, X. Xu, and W. Yao, *Coupled spin and valley physics in monolayers of MoS₂ and other group-VI dichalcogenides*, Physical Review Letters **108**, 196802 (2012).
- [Yan91] X. L. Yang, S. H. Guo, F. T. Chan, K. W. Wong, and W. Y. Ching, *Analytic solution of a two-dimensional hydrogen atom. I. Nonrelativistic theory*, Physical Review A **43**, 1186–1196 (1991).

-
- [Yeh15] P.-C. Yeh, W. Jin, N. Zaki, D. Zhang, J. T. Liou, J. T. Sadowski, A. Al-Mahboob, J. I. Dadap, I. P. Herman, P. Sutter, and R. M. Osgood, *Layer-dependent electronic structure of an atomically heavy two-dimensional dichalcogenide*, Physical Review B **91**, 041407 (2015).
- [Yos17] N. Yoshikawa, T. Tamaya, and K. Tanaka, *High-harmonic generation in graphene enhanced by elliptically polarized light excitation*, Science **356**, 736–738 (2017).
- [Zag19] M. Zaghoo, T. R. Boehly, J. R. Rygg, P. M. Celliers, S. X. Hu, and G. W. Collins, *Breakdown of Fermi Degeneracy in the Simplest Liquid Metal*, Physical Review Letters **122**, 085001 (2019).
- [Zak12] B. Zaks, R. B. Liu, and M. S. Sherwin, *Experimental observation of electron-hole recollisions*, Nature **483**, 580–583 (2012).
- [Zen13] H. Zeng, G.-B. Liu, J. Dai, Y. Yan, B. Zhu, R. He, L. Xie, S. Xu, X. Chen, W. Yao, and X. Cui, *Optical signature of symmetry variations and spin-valley coupling in atomically thin tungsten dichalcogenides*, Scientific Reports **3**, 1608 (2013).
- [Zha11] P. Zhang, P. Richard, T. Qian, Y.-M. Xu, X. Dai, and H. Ding, *A precise method for visualizing dispersive features in image plots*, Review of Scientific Instruments **82**, 043712 (2011).
- [Zha14] Y. Zhang, T.-R. Chang, B. Zhou, Y.-T. Cui, H. Yan, Z. Liu, F. Schmitt, J. Lee, R. Moore, Y. Chen, H. Lin, H.-T. Jeng, S.-K. Mo, Z. Hussain, A. Bansil, and Z.-X. Shen, *Direct observation of the transition from indirect to direct bandgap in atomically thin epitaxial MoSe₂*, Nature Nanotechnology **9**, 111–115 (2014).
- [Zha18] P. Zhang, K. Yaji, T. Hashimoto, Y. Ota, T. Kondo, K. Okazaki, Z. Wang, J. Wen, G. D. Gu, H. Ding, and S. Shin, *Observation of topological superconductivity on the surface of an iron-based superconductor*, Science **360**, 182–186 (2018).

- [Zho21] Y. Zhou, J. Sung, E. Brutschea, I. Esterlis, Y. Wang, G. Scuri, R. J. Gelly, H. Heo, T. Taniguchi, K. Watanabe, G. Zaránd, M. D. Lukin, P. Kim, E. Demler, and H. Park, *Bilayer Wigner crystals in a transition metal dichalcogenide heterostructure*, Nature **595**, 48–52 (2021).
- [Zho23] S. Zhou, C. Bao, B. Fan, F. Wang, H. Zhong, H. Zhang, P. Tang, W. Duan, and S. Zhou, *Floquet Engineering of Black Phosphorus upon Below-Gap Pumping*, Physical Review Letters **131**, 116401 (2023).

Danksagung

*I wouldn't be up here if it weren't for
some very important people in my life.*

— Sheldon Cooper

Während der letzten vier Jahre wurde nicht nur meine wissenschaftliche Arbeit, sondern auch meine Persönlichkeit von vielen Menschen geprägt. Ich möchte all jenen danken, die sowohl direkt einen Beitrag zu dieser Arbeit geleistet haben, als auch indirekt daran mitgewirkt haben, indem sie mich während dieser Zeit begleitet haben. Ganz besonders möchte ich mich bedanken bei:

- Meinem herausragenden Mentor **Prof. Dr. Rupert Huber** als führende Hand in den letzten sechs Jahren. Gerne erinnere ich mich an den 28. Mai 2019 zurück, als ich zum ersten Mal - aufgeregt - in seinem Büro saß, um eine mögliche Masterarbeit zu besprechen. Seine ansteckende Begeisterung für die Lichtwellenelektronik hat auch mich sofort gepackt und ließ mich während meiner gesamten Zeit an seinem wunderbaren Lehrstuhl nicht mehr los. Und auch wenn der damals versprochene Reichtum von drei Autos und fünf Häusern auf Ibiza noch nicht eingetreten ist, so hat er mir doch so viele Erfahrungen mitgegeben, die mindestens zehn Autos wert sind und mich zu mindestens zehn Konferenzen an Orte geschickt, die allesamt schöner als Ibiza sind. Ich bin Rupert unglaublich dankbar für die exzellente und auf Vertrauen basierte Zusammenarbeit insbesondere während des ersten Jahres meiner Doktorarbeit, die dank seines unermüdlichen Einsatzes gleich zu einem erfolgreichen Pro-

jekt geführt hat. Ich möchte mich herzlich bei ihm bedanken, dass er mir eine enorme persönliche Entwicklung, eine nicht gekannte Freude an der täglichen Arbeit, eine Gelassenheit in stressigen Zeiten, eine Standhaftigkeit, sich an schwierige Aufgaben zu wagen und das Arbeiten an so einzigartigen Projekten ermöglicht hat. Es war mir eine riesige Freude und Ehre, mit einer so enthusiastischen Person, die immer ein offenes Ohr für Probleme oder neue Daten hatte, zusammenzuarbeiten.

- Den Mitgliedern des Prüfungsausschusses **Prof. Dr. Christoph Lehner**, **Prof. Dr. Jörg Wunderlich** und insbesondere dem Zweitgutachter **Prof. Dr. Christian Schüller** für ihre Zeit, diese Arbeit zu bewerten.
- Unseren Kooperationspartnern aus Michigan **Prof. Dr. Mackillo Kira** und **Dr. Markus Borsch** für die großartige und vertrauensvolle Zusammenarbeit, ohne die das Attosekunden-Projekt nicht möglich gewesen wäre.
- Unseren Kooperationspartnern aus Marburg, **Prof. Dr. Ulrich Höfer**, **Prof. Dr. Jens Güdde** und **Dr. Suzu Ito** für ihre enge und professionelle Zusammenarbeit. Sie verdienen meine tiefste Anerkennung, ein komplexes Projekt wie das Floquet-Projekt trotz aller Widrigkeiten zum Erfolg geführt zu haben.
- Meinem Betreuer, Vorbild und sehr guten Freund **Dr. Stefan Schlauderer**, der mir während der Masterarbeit alles im und außerhalb des Labors beigebracht hat, was ich auch während meiner Promotion brauchte. Stefan hat mich durch seine gelassene und professionelle Art stets inspiriert. Seinem Erfolg in seiner Doktorarbeit gerecht zu werden, war zudem täglicher Ansporn für mich, selbst das Beste aus meiner Promotion herauszuholen.
- Meinem Co-Betreuer, Vorbild und sehr guten Freund **Dr. Christoph Schmid**, der mich hervorragend in das Gebiet der HSG und dem dazugehörigen Aufbau im Labor eingeführt hat. Sein 100-prozentiger Einsatz im Labor war auch für mich Antrieb und Inspiration. Ich schätze Christoph wirklich sehr für seine Intelligenz und Rückendeckung in herausfordernden Zeiten, die mir stets ein Gefühl der Sicherheit gegeben hat. Vielen Dank auch für seinen ansteckenden Enthusiasmus und seine sportliche Unterstützung.

- Meinem langjährigen Wegbegleiter, Ideengeber, Stütze in schwierigen Zeiten und sehr guten Freund **Manuel Meierhofer**. Ich respektiere an Manuel nicht nur sein umfangreiches physikalisches Wissen, von dem ich oft profitiert habe, sondern auch seinen ansteckenden Fleiß bei der Arbeit und seine bedingungslose Treue. Die Zusammenarbeit mit ihm hat unglaublich viel Spaß gemacht. Vielen Dank auch für das brüderliche Teilen von Konferenzbeiträgen.
- Meinem Mitstreiter im kHz-Labor und guten Freund **Dr. Dmytro Afanasiev** für seine pragmatische Art und seine spannende Art und Weise, Wissenschaft zu machen. Das hat mir einige neue Blickwinkel auf das Leben eröffnet. Ich erinnere mich sehr gerne an den überwältigenden Moment mit ihm, als die ersten Attosekunden-Messungen erfolgreich waren.
- Meinen engsten Freunden schon vor der gemeinsamen Zeit am Lehrstuhl **Josef Riepl** und **Johannes Hayes**. Vielen Dank, dass sie mir einen Weg vorgezeigt und diesen dann auch gemeinsam mit mir bestritten haben. Insbesondere auch außerhalb der Arbeit haben sie mir das Leben versüßt. Ich freue mich sehr darüber, sie zu meinen engsten Freunden zählen zu dürfen.
- Den besten Unterstützern, die man sich als Betreuer wünschen kann, **Michael Aschenbrenner**, **Daniel Riese** und **Philipp Weißenberger**. Zuerst hatte ich Angst vor der Aufgabe, andere Wissenschaftler anzuleiten, aber sie haben mein Leben durch ihre tatkräftige Hilfe wahrhaft erleichtert. Vielen Dank auch für die kurzweiligen Stammtische und sonstigen Freizeitaktivitäten. Ich wünsche ihnen viel Erfolg bei ihrer weiteren Laufbahn, und bin mir sicher, dass sie allesamt ihren Weg erfolgreich finden werden.
- Den fleißigen Helfern **Jakob Helml**, **Felix Dotzler**, **Michael Weiß**, **Sebastian Ritter** und **Adrian Bories**, die das kHz-Labor mit ihren Bachelor- und Projektarbeiten unterstützt haben.
- Meinen Kollegen und sehr guten Freunden **Simon Maier**, **Dr. Carmen Roelcke**, **Anna Schmid**, **Martin Zizlsperger** und **Dr. Joshua Mornhinweg** für die gemeinsamen wundervollen Erlebnisse. Insbesondere möchte ich mich für die feierabendlichen Laufrunden, die gemeinsamen Konferenzen und

den geteilten Weg zur Arbeit bedanken. Die tiefgehenden Gespräche und die sportliche Betätigung haben mich nachhaltig geprägt. Außerdem danke ich **Dr. Matthias Knorr**, **Marlene Liebich** und **Dr. Fabian Sandner** für ihre wichtigen Beiträge zum Attosekunden-Projekt.

- Meinem zeitweisen Bürokollegen **Prof. Dr. Hrvoje Petek** für eine sehr kurzweilige, abwechslungsreiche und sicherlich auch ungewöhnliche Freundschaft. Ich schätze an Herrn Petek vor allem seine nahbare Art und seinen entspannten Lebensstil.
- Den guten Seelen und dem unverwüstlichen Rückgrat des Lehrstuhls **Ulla Franzke**, **Martin Furthmeier**, **Matthias Heintl**, **Imke Gronwald** und **Ignaz Läßle** für ihre wertvolle Hilfe bei bürokratischen, technischen, elektrischen und chemischen Angelegenheiten. Insbesondere möchte ich mich bei Ulla bedanken, dass sie trotz ihres stressigen Arbeitsalltags immer eine offene Tür und eine helfende Hand hatte.
- Allen Mitgliedern des **Huber-Lehrstuhls**, die ich weniger als Kollegen und mehr als Freunde sehe. Dank ihnen hat sich kein Tag Arbeit nach Arbeit angefühlt, sondern eher so, als würde man gute Freunde treffen. Ich respektiere alle als brillante Physiker und hilfsbereite Kollegen.
- Den Triathletinnen und Triathleten des **SV Schalding-Heining** für ihr gemeinschaftliches Miteinander und die sportlichen Ziele, die man sich gemeinsam gesteckt hat.
- Meiner **Familie** für so viel mehr, als Tinte und Papier festhalten könnten.

