



Universität Hamburg
DER FORSCHUNG | DER LEHRE | DER BILDUNG

FAKULTÄT
FÜR MATHEMATIK, INFORMATIK
UND NATURWISSENSCHAFTEN

Messaufbau für zeitauflösende Atom- und Molekülspektroskopie im extrem ultravioletten Spektralbereich

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
an der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften
Fachbereich Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von
Markus Pfau
aus
Pirna

Hamburg
2019

Gutachter/innen der Dissertation:

Prof. Dr. Ulrike Frühling
PD. Dr. Michael Martins

Zusammensetzung der Prüfungskommission:

Prof. Dr. Ulrike Frühling
PD. Dr. Michael Martins
Prof. Dr. Ludwig Mathey
PD. Dr. Tim Laarmann
Prof. Dr. Klaus Sengstock

Vorsitzender der Prüfungskommission:

Prof. Dr. Ludwig Mathey

Datum der Disputation:

13.02.2020

Vorsitzender des Fach-Promotionsausschusses Physik: Prof. Dr. Günter Hans Walter Sigl

Leiter des Fachbereichs Physik:

Prof. Dr. Wolfgang Hansen

Dekan der Fakultät MIN:

Prof. Dr. Heinrich Graener

Lachen ist der letzte Schritt der Verzweiflung
– *Unbekannt*

Zusammenfassung

Die vorliegende Arbeit stellt einen Beitrag zur Entwicklung eines Messaufbaus für zeitauflösende Atom- und Molekülspektroskopie dar. Die Anregung und Ionisation der Proben erfolgt über extrem ultraviolette Strahlung, welche durch die Erzeugung höherer Harmonischer eines kommerziellen Ultrakurzpulslasersystems bereitgestellt wird. Die Zeitauflösung wird durch die Überlagerung der ionisierenden, extrem ultravioletten Strahlung mit Terahertzstrahlung, welche aus optischer Gleichrichtung der Laserpulse in einem Lithiumniobatkristall erzeugt wird, erhalten. Dieses Konzept ist unter dem Namen lichtfeldgetriebene Streak Kamera bekannt. Die im Ionisationsprozess entstehenden Elektronen werden von zwei gegenüberliegenden Elektronenflugzeitspektrometern detektiert.

Diese Arbeit fügt dem Instrument der lichtfeldgetriebenen Streak Kamera einen Femtosekundenmonochromator mit hohem Transmissionsgrad hinzu. Dieser ermöglicht es, zeitaufgelöste Untersuchungen mit separierten Harmonischen an gasförmigen Präparaten über einen breiten Frequenzbereich durchzuführen ohne Umbauten vornehmen zu müssen. Die Arbeit zeigt die Machbarkeit eines derartigen Instrumentes, stellt dessen Grenzen dar und untersucht auftretende, unerwartete Effekte.

Abstract

This work is a contribution to the development of a setup for time-resolved molecular spectroscopy. The excitation and ionization of the targets were performed via extreme ultraviolet radiation. This radiation is provided by the generation of higher harmonics of an ultrashort pulse laser system. The time resolution is obtained by the superposition of the ionizing radiation with terahertz radiation. The terahertz radiation is generated via optical rectification of the laser pulses in a lithium niobate crystal. This concept is known as light field driven streak camera. The electrons produced in the ionization process are detected by two electron time-of-flight spectrometers.

In this work a high transmittance femtosecond monochromator is added to the streak camera device. This enables time resolved investigations of gaseous targets over a wide frequency range without modifications to the setup. The work demonstrates the feasibility of such an instrument, presents its limitations and examines occurring, unexpected effects.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen zeitaufgelöster Molekülspektroskopie	5
2.1	Licht-Materie-Wechselwirkung	5
2.1.1	Photoionisation	5
2.1.2	Pulspropagation in Materie	6
2.1.3	Frequenzverdopplung	9
2.1.4	Erzeugung höherer Harmonischer	10
2.1.5	Erzeugung von THz-Strahlung	15
2.2	Monochromator für Femtosekundenpulse	16
2.3	THz-Streaking	22
2.4	Molekülzerfall nach Photoanregung	28
3	Simulationsrechnungen	31
3.1	Simulationen zum Monochromator	31
3.1.1	Simulationen zum geometrischen Aufbau	31
3.1.2	Erwartete Pulsdauer in der Wechselwirkungszone	33
3.2	Simulationen zum erwarteten Streakingverhalten	35
4	Experimenteller Aufbau	43
4.1	Lasersystem	45
4.2	Vakuumsystem	45
4.3	Harmonischenquelle	47
4.4	Monochromator	55
4.5	THz-Quelle	58
4.6	Experimentierkammer	61
5	Charakterisierung des Messaufbaus	67
5.1	Charakterisierung der Harmonischenquelle	67
5.2	Charakterisierung der THz-Quelle	75
5.3	Störungen des erwarteten Streakverhaltens	88
6	Zeitaufgelöste Messungen mit THz-Streaking	95
6.1	Zeitliche Charakterisierung der Harmonischenstrahlung	95
6.2	Auger-Meitner Elektronen in Iodmethan	99

7 Fazit und Ausblick	105
Literaturverzeichnis	119
Eidesstattliche Versicherung	125
Danksagung	127

1 Einleitung

Im Jahr 1916, vor etwas über 100 Jahren, beschrieb Albert Einstein erstmalig die stimulierte Emission als Umkehr der Absorption [Ein16]. Die erste experimentelle Realisierung von Strahlungsverstärkung durch stimulierte Emission gelang durch C.H. Townes im Mikrowellenbereich [GZT54]. Im Jahr 1960 folgte die erste Lichtverstärkung durch stimulierte Emission von Strahlung durch T. Maiman [Mai60]. Der Laser, „light amplification by stimulated emission of radiation“ kurz Laser, war geboren.

Seit diesem Zeitpunkt führte die Entwicklung von Gaslaser über Farbstoff- und Halbleiterlaser bis zu den verschiedensten Bauformen von Festkörperlaser. Mit jeder Entwicklungsstufe stieg die Anzahl der Forschungsgegenstände an Lasern selbst. Mit steigender Anzahl an verfügbaren Wellenlängen und Leistungsklassen wuchs auch die Anzahl der Anwendungen rasant. Der Laser ist nicht nur in der Physik, sondern in allen Naturwissenschaften und der Medizin ein wichtiges Hilfsmittel geworden. Abseits der Wissenschaft hat er sich auch in der Technik als unverzichtbares Instrument mit verschiedensten Anwendungen unter anderem von Messtechnik bis Materialbearbeitung etabliert.

Mit der Entwicklung des Titan-Saphir Lasers in den 1980er Jahren begann die Ära der Ultrakurzpulslaser [Mou82]. Durch die zur Verfügung stehenden Pulse im Femtosekundenbereich ist es nun möglich, Elektronendynamiken, welche auf der Zeitskala von Femtosekunden ablaufen, im Labor zu untersuchen. Dies ist ein wichtiger Baustein für das große Ziel des „molecular movie“, der Detektion und Darstellung chemischer Reaktionen mit atomarer Auflösung auf der für die Dynamik maßgebenden Zeitskala [MEH⁺10].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ein kommerzielles Titan-Saphir Lasersystem genutzt. Es stellt mit seinen Ausgangspulsdauer von 35 fs einen optimalen Ausgangspunkt für zeitaufgelöste Experimente im Bereich von einigen 10 fs dar. Zu dem bietet es die Möglichkeit, über kommerzielle Produkte die Pulse zu manipulieren und Pulsdiagnostik durchzuführen. Die Erzeugung der Pulse beruht auf der Technik, für die G. Mourou und D. Strickland im Jahr 2018 mit dem Nobelpreis in Physik ausgezeichnet wurden, der so genannten „Chirped Pulse Amplification“ [SM85].

Neben der Zeitauflösung ist eine weitere Voraussetzung zur Untersuchung der Elektronendynamiken das Erreichen der für den Prozess notwendigen Photonenenergie. Für Elektronen auf äußeren und den nächst tiefer gelegenen Orbitalen, welche auch die maßgeblichen Akteure bei chemischen Reaktionen sind, befindet sich dieser Energiebereich typischerweise bei einigen 10 eV. Dieser Energiebereich kann hervorragend durch die Erzeugung höherer Harmonischer eines treibenden Laserfeldes erreicht werden und ist seit den 1990er Jahren Gegenstand intensiver Forschung und Anwendung [Cor93].

Für diese Arbeit wurde eine Harmonischenquelle mit Zwei-Farben Erzeugungsschema entwickelt und aufgebaut. Sie liefert Harmonischenpulse bis in den Bereich der 40. Harmonischenordnung und damit in einem Energiebereich von $1,5 \text{ eV}$ bis über 60 eV , wobei zwischen den benachbarten Harmonischen ein Energieabstand von etwa $1,5 \text{ eV}$ auftritt. Durch Manipulation der Zentralwellenlänge lässt sich insbesondere für höhere Harmonischenordnungen der Energiebereich fast lückenlos abdecken. Sie bietet zudem den Vorteil, variabel im niedrigen oder höheren Energiebereich gute Konversionseffizienzen zu erzielen und damit ein breites Spektrum an Elektronenübergängen zugänglich zu machen.

Die hier vorliegende Arbeit stellt einen Beitrag zur Entwicklung eines Messaufbaus für zeitauflösende Spektroskopie zur Untersuchung von Elektronendynamiken in Atomen und Molekülen dar. Das hier vorgestellte Instrument kombiniert dabei die Vorteile des großen Energiebereichs der Erzeugung höherer Harmonischer eines Ultrakurzpulslasers mit den Vorteilen eines Gitterspektrometers, ohne dabei die für die Untersuchung der Dynamik wichtige Zeitauflösung zu verlieren. Zudem ist es als Laborexperiment um Größenordnungen kosteneffizienter als die Nutzung von beschleunigerbasierten Freie-Elektronenlasern.

Für die Selektion der einzelnen Harmonischenordnungen wurde eine neue Art von Gittermonochromator entwickelt und aufgebaut. Die räumliche Trennung der Harmonischenordnungen ist über den untersuchten Energiebereich hervorragend. Die Transmission des Monochromators übertrifft dabei bisher vorgestellte Monochromatoren ähnlicher Bauart. Durch die Möglichkeit der Selektion der Harmonischenordnungen ohne Umbauten vornehmen zu müssen, stellt dieses System einen wichtigen Schritt in der Entwicklung eines zeitauflösenden Spektrometers dar.

Die Zeitauflösung des hier vorgestellten Instrumentes wird durch die Nutzung der lichtfeldgetriebenen THz-Streak Technik ermöglicht [FWG⁺09]. Diese Technik stellt eine hervorragende Möglichkeit dar, Prozesse zeitaufgelöst zu untersuchen, ohne dabei den Prozess selbst entscheidend zu beeinflussen. Dabei wird der untersuchte Prozess durch THz Strahlung, welche ebenfalls aus der Strahlung des genutzten Ultrakurzpulslasersystems erzeugt wird, überlagert. Der Vorteil dieser Technik ist, dass sowohl die Harmonischenstrahlung als auch die THz Strahlung intrinsisch synchronisiert sind, da sie aus ein und demselben Laserpuls erzeugt werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurden erste Messungen zur Charakterisierung der Harmonischenpulse durchgeführt und dabei Pulsdauern unter 50 fs gemessen. Zudem wurden erste Messungen an Molekülübergängen durchgeführt, um die Nutzbarkeit des Systems für zeitauflösende Molekülspektroskopie zu zeigen.

Nach einer Einleitung im ersten Kapitel der vorliegenden Arbeit werden die theoretischen Grundlagen der hier genutzten zeitaufgelösten Molekülspektroskopie im zweiten Kapitel vorgestellt. Dabei werden insbesondere die zu Grunde liegenden Licht-Materie-Wechselwirkungen dargestellt. Anschließend folgt ein Abschnitt über die theoretischen

Grundlagen des hier vorgestellten Monochromators für Femtosekundenpulse. Nach einer Einführung in die Theorie der genutzten lichtfeldgetriebenen Streak Kamera wird exemplarisch ein Molekülzerfall in Iodmethan als Anwendung des vorgestellten Instrumentes theoretisch beschrieben. Im dritten Kapitel werden die durchgeführten Simulationen zum Aufbau des Experimentes und zu dem erwarteten Verhalten der im Experiment gemessenen Spektrogramme präsentiert. Es folgt ein Kapitel mit der Beschreibung und Messungen zum experimentellen Aufbau, bevor im folgenden Kapitel der Messaufbau ausführlich charakterisiert wird. Das sechste Kapitel stellt die durchgeführten zeitaufgelösten Messungen und daraus erhaltenen Ergebnisse vor. Die Arbeit schließt mit einem Fazit und Ausblick auf potentielle, künftige Weiterentwicklungen eines derartigen Instrumentes.

2 Theoretische Grundlagen zeitaufgelöster Molekülspektroskopie

Dieses Kapitel beschreibt die theoretischen Grundlagen zum Verständnis der folgenden Arbeit. Es ist dabei in 4 Abschnitte unterteilt. Der erste Abschnitt widmet sich der Licht-Materie-Wechselwirkung, welche die Grundlage für jedes lasergestützte Experiment ist. Dabei wird auf die Photoionisation, die Propagation kurzer Pulse in Medien und die genutzten Effekte zur Erzeugung der verwendeten Strahlungsarten eingegangen. Konkret handelt es sich dabei um die Frequenzverdopplung, die Erzeugung höherer Harmonischer und die Erzeugung von THz-Strahlung. Im zweiten Abschnitt des Kapitels werden die Grundlagen für den für diese Arbeit aufgebauten Monochromator präsentiert, wobei insbesondere auf die Einflüsse des Monochromators auf die Pulsdauer eingegangen wird. Der dritte Abschnitt beschreibt den genutzten Mechanismus der zeitaufgelösten Messungen, die so genannte THz-Streak-Kamera. Im vierten und letzten Abschnitt des Kapitels erfolgt eine Beschreibung des Iodmethan-Moleküls, in welchem ein Autoionisationsübergang zur Demonstration der Leistungsfähigkeit des experimentellen Aufbaus vermessen wurde.

2.1 Licht-Materie-Wechselwirkung

Der vorliegende Abschnitt beschreibt die Licht-Materie-Wechselwirkung. Dabei werden die fundamentalen Prozesse, welche zwischen Photonen als Repräsentanten des Lichtes und als Austauschteilchen der elektromagnetischen Wechselwirkung mit Elektronen als Hauptakteuren der Materie stattfinden und für diese Arbeit wichtig sind, beschrieben. An einigen Stellen wird jedoch auch auf das durch den Welle-Teilchen-Dualismus zulässige Bild der elektromagnetischen Welle als Repräsentant des Lichtes zurückgegriffen.

2.1.1 Photoionisation

Die Photoionisation, genauer der äußere photoelektrische Effekt, wurde 1905 von Albert Einstein in seiner Veröffentlichung „Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt“ erklärt [Ein05]. Wenn ein Photon mit einem Elektron, welches in einem Atom gebunden ist, wechselwirkt, so kann dieses Photon absorbiert werden. Dabei wird die gesamte Energie des Photons auf das Elektron übertragen. Wenn die Energie des Photons größer als die Bindungsenergie des beteiligten

Elektrons ist, wird das Elektron ins Kontinuum angeregt. Die kinetische Energie E_{Elektron} des so befreiten Elektrons ist gegeben durch

$$E_{\text{Elektron}} = h\nu_{\text{photon}} - I_{\text{Pot}}. \quad (2.1)$$

Dabei ist h das Plancksche Wirkungsquantum, ν_{photon} die Frequenz des anregenden Photons und I_{Pot} das Ionisationspotential des wechselwirkenden Elektrons. Die Wahrscheinlichkeit für einen derartigen Vorgang lässt sich durch den Wirkungsquerschnitt σ mit folgender Formel abschätzen:

$$\sigma \propto Z^5 E_{\text{photon}}^{-3,5}. \quad (2.2)$$

Dabei bezeichnet Z die Ordnungszahl des Elementes und $E_{\text{photon}} = h * \nu_{\text{photon}}$ die Energie des Photons. Mit steigender Ordnungszahl steigt dementsprechend die Ionisationswahrscheinlichkeit, während mit steigender Photonenenergie der Wirkungsquerschnitt abnimmt, bevor die Energie zur Ionisation des Elektrons mit der nächsthöheren Bindungsenergie erreicht wird und der Wirkungsquerschnitt für dieses Elektron sprunghaft ansteigt. Es ist zu dem möglich, dass bei genügender Photonendichte mehrere Photonen von einem Elektron absorbiert werden. Dies wird als Multiphotonenabsorbition bezeichnet. Dadurch können auch Elektronen mit größerem Ionisierungspotential als der Photonenenergie ins Kontinuum angeregt werden. Formel (2.1) erweitert sich dabei zu

$$E_{\text{Elektron}} = nh\nu_{\text{photon}} - I_{\text{Pot}}, \quad (2.3)$$

wobei n die Anzahl der Photonen bezeichnet.

2.1.2 Pulspropagation in Materie

Dieser Abschnitt folgt den Erklärungen in [DR06]. Licht kann auf Grund des Welle-Teilchen-Dualismus als elektromagnetische Welle beschrieben werden. Betrachtet man Lichtpulse, so liegt das elektromagnetische Feld als Wellenpaket vor und folgt im semi-klassischen Ansatz den Maxwell-Gleichungen. Für den elektrischen Feldvektor \mathbf{E} gilt

$$\left(\frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial z^2} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \mathbf{E}(x, y, z, t) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}(x, y, z, t), \quad (2.4)$$

wobei μ_0 die magnetische Feldkonstante und \mathbf{P} die Polarisation ist. Für das komplexe, elektrische Feld mit positiven Trägerfrequenzen ω_l gilt:

$$\tilde{\mathbf{E}}^+(t) = 1/2 \tilde{\mathcal{E}}(t) \exp(i\omega_l t), \quad (2.5)$$

wobei $\tilde{\mathcal{E}}(t)$ die komplexe Feldeinhüllende beschreibt der elektromagnetischen Welle. Die Beschreibung über Einhüllende und Trägerfrequenz ist nur in einem Frequenzintervall $\Delta\omega$ mit $\Delta\omega/\omega_l \ll 1$ sinnvoll, was im vorliegenden Fall für nah-infrarotes, sichtbares

und extrem-ultraviolettes Licht bei Pulsdauern um 35 fs gegeben ist. Die Form der Einhüllenden ist abhängig von der Pulsform. In der vorliegenden Arbeit wird sich auf die Betrachtung von gaussförmigen Pulsen beschränkt und es gilt:

$$\tilde{\mathcal{E}}(t) = \tilde{\mathcal{E}}_0 \exp(-(t/\tau_G)^2), \quad (2.6)$$

wobei $\tilde{\mathcal{E}}_0$ die Amplitude der Schwingung angibt und der Parameter τ_G die Pulsdauer eines gaussförmigen Pulses über $\tau_G = \tau_p / \sqrt{2 \ln 2}$ mit der Halbwertsbreite τ_p verknüpft ist und von der Pulsform abhängt. Auf Grund des Zusammenhangs über die Fourier-Transformation zwischen zeitlicher Breite und spektraler Breite lässt sich das Zeit - Bandbreiten - Produkt finden als:

$$\Delta\omega_p \tau_p \geq 2\pi c_B, \quad (2.7)$$

wobei c_B eine numerische, pulsformabhängige Konstante ist, welche für gaussförmige Pulse 0,441 beträgt. Pulse, welche Gleichung (2.7) mit Gleichheit erfüllen, werden als bandbreitenlimitiert oder fourier-limitiert bezeichnet.

Es lässt sich zeigen, dass die Anwendung der Unschärferelation auf die Beziehung zwischen Zeit und Frequenz Ω zu einer Formulierung in der Form:

$$\langle t^2 \rangle \langle \Omega^2 \rangle = \frac{M^4}{4} \geq \frac{1}{4}, \quad (2.8)$$

führt, wobei der Formfaktor M^2 dabei die Abweichung zu einer idealen Gaussform angibt.

Eine weitere wichtige Eigenschaft von ultrakurzen Laserpulsen ist der sogenannte Chirp. Er beschreibt die Änderung der Phase ϕ über das Spektrum und kann sowohl zeitlich als auch räumlich auftreten. Der Chirp ändert die Zentralfrequenz $\langle \Omega \rangle = \omega_l$ nicht, führt jedoch zu einer zeitlichen Verbreiterung des Pulses im Vergleich zum ungechirpten Fall mit $\langle t^2 \rangle_0$ durch:

$$\langle t^2 \rangle = \langle t^2 \rangle_0 + \left[\frac{d^2 \phi}{d\Omega^2} \Big|_{\Omega_0} \right]^2 \langle \Omega^2 \rangle. \quad (2.9)$$

Diese zeitliche Verbreiterung ist direkt übertragbar mit einer zeitlichen Phasenmodulation von $\varphi(t) = \frac{d\varphi}{dt} \Big|_{t_0} t^2$ auf eine spektrale Verbreiterung eines ungechirpten Pulses mit $\langle \Omega^2 \rangle$ mit:

$$\langle \Omega^2 \rangle = \langle \Omega^2 \rangle_0 + \left[\frac{d^2 \varphi}{dt^2} \Big|_{t_0} \right]^2 \langle t^2 \rangle. \quad (2.10)$$

Die quadratische Änderung der Phase wird dabei auf Grund der direkten Proportionalität zu $\left[\frac{d^2 \varphi}{dt^2} \Big|_{t_0} \right]^2$ als linearer Chirp bezeichnet. Eine Anwendung von (2.9) und (2.10) auf (2.8) führt zu:

$$\langle t^2 \rangle \langle \Omega^2 \rangle = \frac{M^4}{4} \kappa_c \geq \frac{1}{4}. \quad (2.11)$$

Für diesen Faktor κ_c lässt sich finden, dass:

$$\kappa_c = 1 + \frac{M^4}{4 \langle t^2 \rangle_0^2} \left[\left. \frac{d^2 \phi}{d\Omega^2} \right|_{\Omega_0} \right]^2, \quad (2.12)$$

respektive:

$$\kappa_c = 1 + \frac{M^4}{4 \langle \Omega^2 \rangle_0^2} \left[\left. \frac{d^2 \phi}{dt^2} \right|_{t_0} \right]^2 \quad (2.13)$$

ist.

Bei der Propagation durch Medien ist die Gruppengeschwindigkeit v_g gegeben durch:

$$v_g = \left(\left. \frac{dk}{d\Omega} \right|_{\Omega_0} \right)^{-1}. \quad (2.14)$$

Dabei ist k der Wellenvektor. Auf Grund der Abhängigkeit des Brechungsindex n_0 von der Wellenlänge λ des Lichtes ist die Gruppengeschwindigkeit verschieden von der Phasengeschwindigkeit v_p :

$$v_p = c/n_0, \quad (2.15)$$

wobei c die Lichtgeschwindigkeit ist und es gilt:

$$\frac{1}{v_g} = \frac{n_0}{c} - \frac{\lambda}{c} \left. \frac{dn}{d\lambda} \right|_{\lambda_0}. \quad (2.16)$$

Die Abhängigkeit des Brechungsindex von der Wellenlänge ist dadurch verantwortlich für die Dispersion der Welle. Für die so genannte Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD, engl. für group velocity dispersion), welche die zweite Ableitung des Wellenvektors mit, $k_l'' = \left. \frac{\partial^2 k}{\partial \Omega^2} \right|_{\omega_l} = -\frac{1}{v_g^2} \left. \frac{dv_g}{d\Omega} \right|_{\omega_l}$, ist, gilt folglich:

$$GVD(\Omega) = \frac{2}{c} \frac{dn}{d\Omega} + \frac{\Omega}{c} \frac{d^2 n}{\Omega^2} = \left(\frac{\lambda}{2\pi c} \right) \frac{1}{c} \left(\lambda^2 \frac{d^2 n}{d\lambda^2} \right). \quad (2.17)$$

Sinnvollerweise kann diese Abhängigkeit über die Sellmeiergleichungen, welche materialspezifische, empirisch ermittelte Funktionen der Form:

$$n^2(\lambda) = 1 + \frac{B_1 \lambda}{\lambda^2 - C_1} + \frac{B_2 \lambda}{\lambda^2 - C_2} + \frac{B_3 \lambda}{\lambda^2 - C_3} \quad (2.18)$$

sind, wobei $B_{1,2,3}$ dimensionslose Konstanten sind und $C_{1,2,3}$ meist in der Einheit μm^2 angegeben werden und als Sellmeier-Koeffizienten bezeichnet werden, berechnet werden.

Für die Pulsdauer τ_G eines gaussförmigen Pulses beim dem Durchgang durch ein Medium der Länge z gilt:

$$\tau_G(z) = \tau_{G0} \sqrt{1 + \left(\frac{2z|k''|}{\tau_{G0}^2} \right)^2}. \quad (2.19)$$

2.1.3 Frequenzverdopplung

Ein weiterer Effekt der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie ist die sogenannte Frequenzverdopplung und soll in diesem Kapitel erläutert werden. Dieses Kapitel folgt dabei den Ausführungen in [Hec14]. Frequenzverdopplung ist ein Fall der nichtlinearen Wechselwirkung und ein Spezialfall der Summenfrequenzmischung. Beim Durchgang durch ein Medium wechselwirkt das elektrische Feld des Laserstrahls mit den Elektronen des Materials. Ein angelegtes elektrisches Feld $\mathbf{E}(\mathbf{t})$ induziert im Medium eine Polarisation $\mathbf{P}(\mathbf{t})$ und wird beschrieben durch:

$$\mathbf{P}(\mathbf{t}) = \epsilon_0 \sum \chi^{(n)} \mathbf{E}(\mathbf{t})^n \quad (2.20)$$

dabei ist χ der dielektrische Suszeptibilitätstensor und ϵ_0 die absolute Dielektrizitätskonstante im Vakuum. Der Wert n gibt die Ordnung des Prozesses an. Für geringe Intensitäten ist die Betrachtung des linearen Anteils mit $n = 1$ ausreichend, während für große Intensitäten die Beiträge höherer Ordnungen $n = 2, 3, \dots$ einen größeren Einfluss bekommen. Betrachtet man den Term zweiter Ordnung mit dem Ansatz $E(t) = E_0 * \sin(\omega t)$ folgt:

$$P(t)^{(2)} = \epsilon_0 \chi^2 E(t)^2 = \epsilon_0 E(t)_0^2 \chi^2 \sin^2(\omega t) = \frac{\epsilon_0 E(t)_0^2 \chi^2}{2} - \frac{\epsilon_0 E(t)_0^2 \chi^2}{2} \cos(2\omega t). \quad (2.21)$$

Das bedeutet, dass die erzeugende Lichtwelle eine Polarisationswelle mit der doppelten Frequenz im Medium hervor ruft, der so genannten Frequenzverdoppelten oder zweiten Harmonischen. Voraussetzung ist das Fehlen eines Inversionszentrums im Medium. In Medien mit Inversionszentrum dreht sich bei einer Umkehr des elektrischen Feldes auch die Richtung der Polarisation um. Dadurch verschwinden die Terme mit gerader Ordnung n und eine Erzeugung von geraden Harmonischen ist nicht möglich.

Die erzeugende und erzeugte Welle sind zu Beginn kohärent. Bei einem Unterschied in den Ausbreitungsgeschwindigkeiten beider Wellen wird jedoch eine Phasenverschiebung eingeführt und die Interferenz beider Wellen wird mit zunehmender Verschiebung destruktiv. Für die Intensität der zweiten Harmonischen lässt sich eine charakteristische Kohärenzlänge l_c mit:

$$l_c = \frac{\lambda_0}{4 |n_{\omega} - n_{2\omega}|} \quad (2.22)$$

finden. Zur effizienten Erzeugung einer zweiten Harmonischen muss also die Dispersion der Fundamentalwelle mit der der zweiten Harmonischen angepasst werden, das heißt,

es gilt einen Zustand mit $n_\omega = n_{2\omega}$ zu erreichen.

Häufig wird dies durch die Nutzung doppelbrechender Kristalle erreicht. Die Brechungsindizes dieser Kristalle erzeugen ein so genanntes Indexellipsoid. Sie sind neben der Wellenlänge abhängig von der Polarisierung und dem Winkel bezüglich der Kristallachsen. Für eine orthogonale Polarisierung zwischen erzeugender und erzeugter Welle, welche sich entlang der ordentlichen o respektive außerordentlichen e Kristallachse ausbreiten, lässt sich ein Winkel finden, welcher $n_{\omega,o} = n_{2\omega,e}$ erfüllt. Dies ist beispielsweise für den im Experiment verwendeten Kristall Betabariumborat (BBO) der Fall.

2.1.4 Erzeugung höherer Harmonischer

Zur Untersuchung von Moleküldynamiken sind Strahlungsquellen notwendig, welche zum einen den Energiebereich des zu untersuchenden Prozesses abdecken und zum anderen hinreichend kurze Pulse bieten um diesen zeitlich auflösen zu können. Die Dynamik innerhalb von Molekülen ist eng verknüpft mit der Bewegung von Elektronen. Ein signifikanter Anteil dieser Prozesse wird durch Elektronenübergänge im Energiebereich von einigen Zehn bis Hundert Elektronenvolt ausgelöst. Dies entspricht dem spektralen Bereich des Vakuumultravioletts, über das extreme Ultraviolett bis hin zum schwachen Röntgenbereich. Die Zeitskala der Bewegung der Elektronen im Molekül ist dabei im Atto- und Femtosekundenbereich. Strahlungsquellen die diese Anforderungen erfüllen sind zum einen beschleunigerbasierte Freie-Elektronen Laser. Da diese Großanlagen sehr kostenintensiv sind, hat sich als weitere Strahlungsquelle die Erzeugung höherer Harmonischer von Ultrakurzpulslasern durchgesetzt. Sie bietet den Vorteil platzsparend und kostengünstig Lichtpulse vom VUV bis in den schwachen Röntgenbereich bereit zu stellen und dabei die zur Untersuchung der Elektronendynamiken benötigte Pulsdauer im Atto- bis Femtosekundenbereich zu gewährleisten. Das folgende Kapitel beschreibt die theoretischen Grundlagen der Erzeugung höherer Harmonischer und ist dabei stark an [WSG08] angelehnt.

Ebenso wie die im vorangegangenen Kapitel beschriebene Frequenzverdopplung ist auch die Erzeugung von höheren Harmonischen ein nichtlinearer Prozess. Im Unterschied zu der Erzeugung der zweiten Harmonischen ist die Erzeugung höherer Harmonischer jedoch ein hochgradig nichtlinearer Prozess der Wechselwirkung zwischen Licht und gasförmigen Medien und erfordert aus diesem Grund sehr viel höhere Intensitäten. Beim Prozess der Erzeugung höherer Harmonischer wird dabei ein ganzzahliges Vielfaches der treibenden Laserfrequenz generiert.

Der Prozess wird im semi-klassischen Ansatz treffend mit dem Drei-Stufen-Modell von Corkum [Cor93] beschrieben. Es handelt sich dabei um die Betrachtung eines einzelnen aktiven Elektrons im starken Laserfeld. Abbildung 2.1 zeigt schematisch die drei Stufen. Im ersten Schritt verzerrt das elektrische Feld eines ultrakurzen, hochintensiven Laserpulses das Coulombpotential eines Atoms oder Moleküls derart, dass Tunnelprozesse möglich werden. Dadurch wird ein Elektron ohne Anfangsgeschwindigkeit freigesetzt.

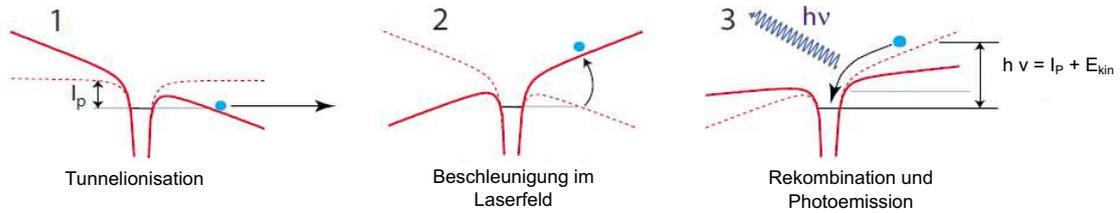


Abbildung 2.1: Darstellung des Drei-Stufen-Modells der Erzeugung höherer Harmonischer. (1) stellt den Prozess der Ionisation des Elektrons dar, (2) die Beschleunigung im Laserfeld und (3) die Rekombination des Elektrons unter Aussendung eines hochenergetischen Photons. Darstellung adaptiert von [WSG08].

Im zweiten Schritt wird das so befreite Elektron durch dieses Laserfeld beschleunigt und folgt dabei klassischen Trajektorien. Die gemittelte Schwingungsenergie des Elektrons im elektrischen Wechselfeld E_L des Lasers ist direkt proportional zur Intensität I des Lasers und zum Quadrat seiner Wellenlänge λ . Sie wird als ponderomotorische Energie U_P bezeichnet und berechnet sich zu:

$$U_P = \frac{e^2 E_{Laser}^2}{4m_e \omega_L^2} \propto I \lambda^2, \quad (2.23)$$

wobei ω_L die Frequenz des treibenden Laserfeldes angibt und e die Elementarladung und m_e die Masse des Elektrons darstellen. Daraus folgt, dass die Energie direkt proportional zur Intensität und quadratisch von der Wellenlänge des Laserfeldes abhängt.

Wenn das elektrische Feld des Lasers sein Vorzeichen wechselt, wird das Elektron abgebremst und schließlich in die entgegengesetzte Richtung, zurück zum Elternion, beschleunigt. Eine mögliche Folge ist die Rekombination des Elektrons mit dem Ionenkern, wobei ein Photon mit der im Beschleunigungsprozess akkumulierten Energie und der Ionisationsenergie emittiert wird. Dabei gilt für die Energie des emittierten Photons:

$$\hbar\omega = I_p + E_{kin}(\varphi), \quad (2.24)$$

wobei φ die Phase des elektrischen Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation angibt. Die maximal mögliche Energie kann durch eine Analyse aller möglichen Elektronentrajektorien bestimmt werden. Dabei ergibt sich sowohl für die klassische als auch die quantenmechanische Betrachtung eine numerische Maximalenergie von:

$$E_{max} = \hbar\omega_{max} = I_p + 3,17U_P, \quad (2.25)$$

welche auch als cutoff-Energie bezeichnet wird. Die exakte Berechnung dieser Energie weicht leicht von (2.25) ab, wie [LBI⁺94] zeigen, der numerische Wert bleibt jedoch nahezu unverändert. Dies entspricht einer Phase von $\varphi = 17^\circ$, welche nahe am Maximum der Ionisationsrate ist.

Die Erzeugung von Harmonischen mit niedriger Ordnung kann mit Hilfe der Stö-

nungstheorie beschrieben werden. Aus diesem Ansatz geht hervor, dass die abnehmende Intensität I der Harmonischen mit zunehmender Ordnung q einem Verhalten von I^{-q} folgt. Die Nutzung der Störungstheorie ist jedoch nur zulässig, so lange das elektrische Laserfeld kleiner ist als das Coulombfeld des Atoms. Eine Betrachtung der Intensitäten über einen größeren Bereich liefert ein Intensitätsprofil, welches in 2.2 dargestellt ist. Für niedrige Ordnungen der Harmonischen nimmt die Intensität exponentiell nach dem Gesetz der Störungstheorie ab. Es folgt ein so genannter Plateaubereich, über den die Intensitäten konstant sind. Für Harmonischenordnungen nahe der Maximalenergie fällt die Intensität wieder exponentiell ab.

Der Prozess der Erzeugung hochenergetischer Photonen am Einzelatom erzeugt einen femto- oder subfemtosekunden Puls. Durch die Wiederholung des Prozesses jede halbe Oszillation des elektrischen Feldes des Lasers ergibt die Kombination aller Halbzyklen dann einen Pulszug aus Femto- oder Attosekundenpulsen, welcher damit einen Harmonischenpuls im Femtosekundenbereich darstellt.

Eine weitere Folge der salvenartigen Emission der hochenergetischen Photonen ist der charakteristische Abstand zwischen den benachbarten Harmonischenordnungen. Da ein erzeugender Puls aus mehreren Halbzyklen besteht, werden die Salven mit einem zeitlichen Abstand von $T/2$, wobei T die Periodendauer der treibenden Laserfrequenz ist, emittiert. Dies resultiert in einem Abstand von 2ω im Spektrum der Harmonischen. Dies kann zum einen über den reziproken Zusammenhang zwischen Zeitdomäne und spektraler Amplitude als Fouriertransformation voneinander verstanden werden. Zum anderen liefern aufeinanderfolgende Elektron-Atom-Rekombinationen aus unterschiedlichen Richtungen die gleiche spektrale Amplitude, unterscheiden sich jedoch im Vorzeichen, wodurch sie destruktiv interferieren.

Im vorliegenden Experiment werden jedoch auch gerade Harmonische erzeugt. Ursache für das Auftreten von geraden Harmonischen ist eine Symmetriebrechung. Dies kann zum Beispiel durch Erzeugendenpulse erfolgen, welche lediglich über eine Schwingungsamplitude verfügen. Im vorliegenden Fall ist die Erzeugung der Harmonischen mit den treibenden Frequenzen ω und 2ω die Ursache. Dadurch werden sowohl $(2p+1)\omega$ als auch $2(2p+1)\omega$ erzeugt. Die Ordnungen $2p2\omega$ ergeben sich durch verschiedene Mischprozesse bei der Überlagerung beider Laserfelder und damit dem Brechen der Symmetrie. Die Steigerung der Konversionseffizienz im Vergleich zum Erzeugungsprozess mit nur einem treibenden Laserfeld ist damit begründet, dass auch ungerade Harmonische durch verschiedene Mischprozesse bei der Überlagerung erzeugt werden können. Es stehen in der Summe also mehr mögliche Elektronentrajektorien zur Erzeugung derselben Energie zur Verfügung.

Ein wichtiger Punkt bei der Erzeugung höherer Harmonischer ist die Phasenanpassung zwischen erzeugendem und erzeugtem Puls zur Steigerung der Effizienz der Quelle, so dass im Idealfall $\Delta k_q = qk_{\text{fundamental}} - k_{\text{harmonisch}} = 0$, für die jeweilige Harmo-

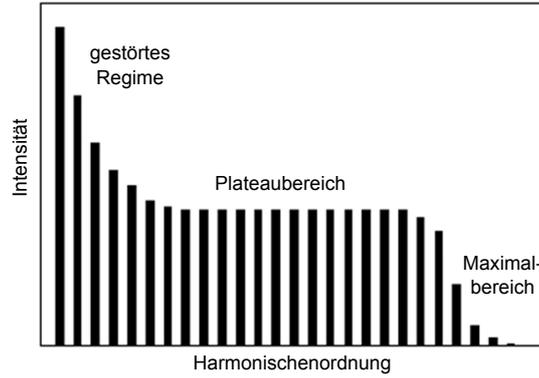


Abbildung 2.2: Darstellung des Verhaltens der Intensitäten höherer Harmonischer. Die Ordnung des Prozesses nimmt nach rechts zu. Im gestörten Regime liegt ein exponentieller Abfall vor, bevor sich ein flacher Plateaubereich mit erneut folgendem exponentiellen Abfall anschließt. Darstellung adaptiert von [Sch11].

nischenordnung q zu konstruktiver Interferenz der Pulse führt. Für den Wellenvektor k einer Lichtwelle beim Durchgang durch ein gasförmiges Medium gilt:

$$k = \frac{2\pi}{\lambda} + \frac{2\pi N_a n \lambda}{\lambda} - N_e r_e \lambda + k_{geo}, \quad (2.26)$$

wobei N_a die Dichte der Atome, $n(\lambda)$ den Brechungsindex, N_e die Dichte der befreiten Elektronen und r_e der Elektronenradius sind und k_{geo} geometrische Effekte berücksichtigt. Die vier Terme lassen sich so als die verschiedenen Beiträge durch das Vakuum, der erste Term, das Gas, der zweite Term und das erzeugte Plasma, der dritte Term, und einem geometrischen Term, welcher von der Quellengeometrie abhängt, interpretieren. Die einzelnen Beiträge lassen sich beliebig erweitern um Einflüsse zum Beispiel des Druckes, der Gasart oder der Intensität darzustellen. Eine exakte Simulation der Phasen Anpassung eines realen Erzeugungsprozesses ist jedoch schwierig, da experimentell jeder einzelne Parameter kontrolliert werden müsste. Dies ist mit einem vertretbaren Kosten und Zeitaufwand nicht möglich.

Bei der Erzeugung von Harmonischenpulsen durch Fokussierung eines treibenden Lasers in ein gasförmiges Medium stellt die Gouyphase $\eta(z)$ den Beitrag k_{geo} dar. Dabei ist:

$$k_{Gouy} = \frac{d\eta(z)}{dz} = \frac{d}{dz} \arctan\left(\frac{z}{z_R}\right) \approx \frac{1}{z_R}, \quad (2.27)$$

wobei z_R die Rayleighlänge angibt. Für kleine Gasdichten stellt dies den größten Beitrag zur Phasen Anpassung mit:

$$\Delta k_{Gouy} = (q - 1) \frac{1}{z_R} \quad (2.28)$$

dar.

Ein weiterer Aspekt der Optimierung einer Quelle höherer Harmonischenstrahlung

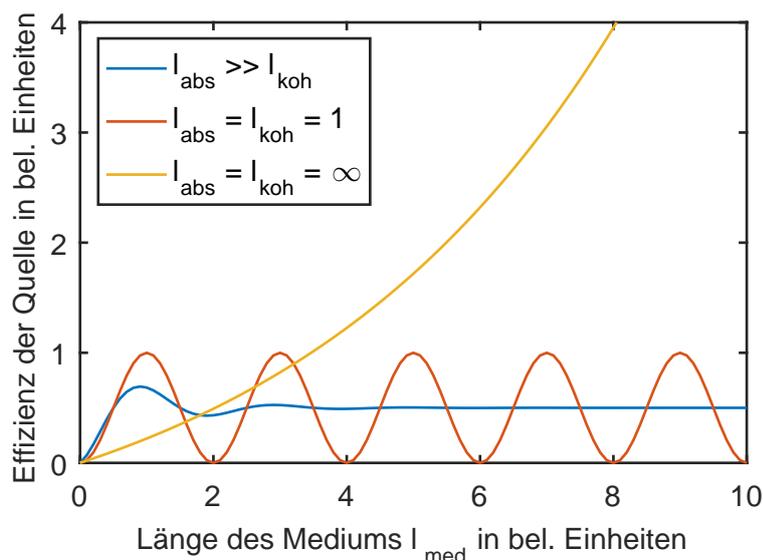


Abbildung 2.3: Darstellung des Zusammenhangs zwischen Kohärenzlänge, Absorptionslänge und Länge des Mediums für eine fiktive Quelle höherer Harmonischenstrahlung.

ist die Anpassung der Länge des Wechselwirkungsmediums l_{med} . Diese ist abhängig von der Kohärenzlänge l_{koh} der vorliegenden Phasenanpassung. Des Weiteren spielt die Absorptionslänge l_{abs} der Harmonischenordnung im Medium eine Rolle. Es lässt sich kein allgemein gültiger Zusammenhang für das Zusammenspiel aller Faktoren finden. Phänomenologisch lassen sich jedoch 3 Fälle unterscheiden, welche in Abbildung 2.3 dargestellt sind. Im ersten Fall, wenn $l_{abs} = l_{coh}$ erfolgt eine periodische Modulation der Effizienz der Quelle in Abhängigkeit von der Länge des Mediums. Im zweiten Fall, wenn $l_{abs} \gg l_{koh}$ ist, ergibt sich eine Modulation mit Sättigungseffekt. Die maximale Effizienz wird in diesem Fall für eine Länge des Mediums, erreicht, bei der $l_{med} = l_{koh} = l_{abs}$ ist. Im dritten Fall, für $l_{med} = l_{abs} = \infty$ ergibt sich ein exponentielles Wachstum über die gesamte Wechselwirkungslänge.

Für die Pulsdauer der Harmonischen kann kein einheitlicher Zusammenhang zur Pulsdauer der erzeugenden Pulse über den gesamten Bereich der Harmonischenordnungen gefunden werden. Im Bereich der niedrigen Harmonischen, in welchem die Behandlung im Rahmen der Störungstheorie möglich ist, kann nach [Jae98] eine minimale Pulsdauer von:

$$\tau_p = \frac{1}{\sqrt{n}} \tau_{Laser}, \quad (2.29)$$

wobei τ_p die Pulsdauer der Harmonischenordnung, τ_{Laser} die Pulsdauer der erzeugenden Laserpulse und n die Ordnung des Prozesses ist, erhalten werden.

Für höhere Harmonischenordnungen, bei denen die störungstheoretische Beschreibung nicht zutreffend ist, gilt dieser Zusammenhang nicht. Die Pulsdauer der im Harmonischenprozess erzeugten Pulse ist abhängig von den spezifischen Elektronentrajek-

torien zur Erzeugung der jeweiligen Harmonischenordnung. Die Pulsdauer des Harmonischenpulses ist eine Kombination aus allen möglichen Einzelpulsen zur Erzeugung einer spezifischen Energie. Die Obergrenze der Pulsdauer wird damit durch die Pulsdauer des Lasers festgelegt, da der Harmonischenprozess nur in Anwesenheit des Laserfeldes stattfindet. Die Untergrenze der Pulsdauer wird durch eine Überlagerung von Harmonischenpulsen zu einem kontinuierlichen Spektralband erreicht, wobei nur ein einzelnes Zeitfenster der Tunnelionisation ausgewählt wird [PTB⁺01]. Es wurden Pulsdauern von 43 as erreicht [GJP⁺17].

2.1.5 Erzeugung von THz-Strahlung

Neben den Möglichkeiten der Frequenzkonversion zu kürzeren Wellenlängen ist auch die Erzeugung größerer Wellenlängen möglich. Für die vorliegende Arbeit ist dabei die Erzeugung von Terahertzstrahlung von Bedeutung. Diese deckt einen Frequenzbereich von $(0,1 \text{ bis } 10)10^{12} \text{ Hz}$ entsprechend einer Wellenlänge von $30 \mu\text{m}$ bis 3 mm ab. Sie wird gelegentlich auch dem Ferninfrarot zugeordnet. Die Erzeugung der THz-Strahlung erfolgt im vorliegenden Fall durch optische Gleichrichtung, weshalb dieser Prozess im Folgenden näher erklärt wird. Diese Kapitel folgt dabei [DR06].

Der Prozess der optischen Gleichrichtung basiert auf der Induktion eines elektrischen Feldes beim Durchgang eines elektromagnetischen Feldes E durch ein polarisierbares Medium ähnlich dem im voran gegangenen Abschnitt beschriebenen Prozess der Frequenzverdopplung. Im Allgemeinen ist ein Medium anisotrop und das induzierte Feld ist nicht parallel zur induzierten Polarisation. Beschrieben wird diese Eigenschaft des Mediums durch die Suszeptibilität χ . Aus der Reihenentwicklung der Polarisierbarkeit ergeben sich in zweiter Ordnung Effekte wie die Summenfrequenz- und Differenzfrequenzmischung. Die optische Gleichrichtung kann als Differenzfrequenzmischung für kleine Differenzen der beteiligten Frequenzen angesehen werden. Für die Polarisierbarkeit P zweiter Ordnung gilt:

$$\begin{aligned} P^{(2)} &= \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) \cos^2 [\omega_1 t + \varphi(t)] \\ &= \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) \{ \cos 2 [\omega_1 t + \varphi(t)] + 1 \}, \end{aligned} \quad (2.30)$$

wobei ϵ_0 wieder die Dielektrizitätskonstante im Vakuum ist und φ die Phase des elektrischen Feldes bezeichnet. Dabei ist der Term der zweiten Harmonischen mit $2\omega_1$ und ein statisches Feld gleicher Amplitude mit einer Frequenz von null enthalten. Für die Frequenzdomäne kann geschrieben werden:

$$P^{(2)}(\omega_d = \omega_1 - \omega_2) = \epsilon_0 \chi^{(2)} E(\omega_1) E(\omega_2), \quad (2.31)$$

dabei stellen ω_1 und ω_2 beliebige Frequenzen aus dem Spektrum des erzeugenden Feldes und ω_d die Differenzfrequenz dar. Für ein gaussförmiges Intensitätsprofil des THz-Feldes

mit $I(t) \propto \exp[-4(\ln 2)(t/t_p)^2]$ mit der Periodendauer t_p kann das erzeugte Feld als Strahlung der Frequenz $\sqrt{\ln 2}(2\tau_p)^{-1}$ mit einer Schwingungsperiode angesehen werden. Dieser Puls entspricht einem Dipolfeld, welches sich mit der Gruppengeschwindigkeit des erzeugenden Pulses bewegt. Wenn der Brechungsindex für THz-Strahlung im verwendeten nichtlinearen Kristall deutlich größer ist als der der erzeugenden Strahlung, ist die Geschwindigkeit des THz-Pulses v_{THz} deutlich kleiner als die des Infrarotpulses v_g . Dies führt zur Ausbildung einer elektromagnetischen Schockwelle, so genannter Cherenkov-Strahlung, welche sich konisch im Kristall ausbreitet. Für den Winkel θ_C zwischen der Symmetrieachse des Kristalls und der Normalen der Kegeloberfläche gilt:

$$\cos\theta_C = \frac{v_{THz}}{v_g}. \quad (2.32)$$

Für die experimentelle Realisierung einer derartigen THz-Quelle ergibt sich, dass sich die benötigte Phasen Anpassung durch ein Kippen der Phasenfront des erzeugenden Pulses realisieren lässt und ist in Abbildung 2.4 dargestellt. Die damit senkrecht zur Phasenfront emittierte THz-Strahlung überlagert sich konstruktiv. Experimentell ist das Kippen der Phasenfront durch die Nutzung eines Gitters mit anschließender Abbildung in den Kristall möglich [KRT⁺13].

Für das Material zur Erzeugung der THz Strahlung ergeben sich mehrere Randbedingungen, die die Auswahl der optisch nichtlinearen und doppelbrechenden Kristalle einschränken. Der Kristall muss im Bereich der erzeugenden Wellenlänge von 800 nm und im THz-Bereich sowohl transparent sein, als auch ähnliche Brechungsindizes aufweisen um die Phasen Anpassung zu ermöglichen. Des Weiteren wird eine hohe Zerstörschwelle benötigt um den benötigten Pumpintensitäten stand zu halten. Außerdem muss die optische Gleichrichtung effizient erfolgen. Ein Material, welcher diesen Anforderungen genügt, ist Lithiumniobat und wird für die hier genutzte THz Quelle als optisch aktiver Kristall genutzt.

2.2 Monochromator für Femtosekundenpulse

Die emittierte Strahlung einer höheren Harmonischenquelle ist für alle erzeugten Wellenlängen kollinear. Dies kann für Experimente, welche eine bestimmte Wellenlänge voraus setzen, zu Problemen führen, da Überlagerungseffekte, entweder im untersuchten Prozess oder aber bei der Detektion, auftreten. Des Weiteren ist es für die selektive Anregung von Übergängen hinderlich. Aus diesem Grund wird die erzeugte Strahlung häufig spektral voneinander getrennt. Im Wesentlichen existieren hierfür zwei Methoden, entweder wellenlängenselektive Spiegel oder Gitter. Der Vorteil selektiver Spiegel ist eine hohe Reflektivität und ein meist zu vernachlässigender Einfluss auf die temporalen Eigenschaften der Strahlung. Allerdings sind diese Spiegel nicht für beliebige Wellenlängen verfügbar. Zu dem sind sie spektral nicht oder nur gering variabel. Die Nutzung von Gittern bietet den Vorteil, dass der gesamte Spektralbereich abgedeckt werden kann. Je

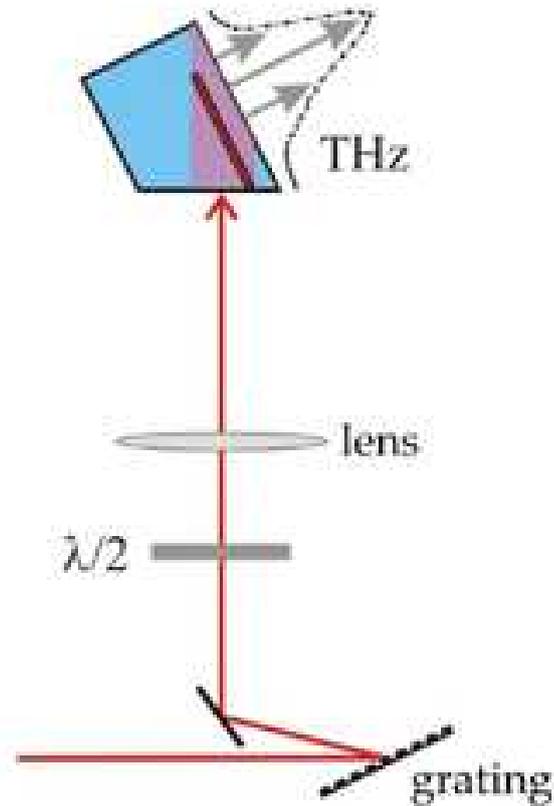


Abbildung 2.4: Darstellung der Kippung der Pulsfront mit Hilfe eines Gitters zur Erzeugung von THz Strahlung. Die Pulsfront des von links einlaufenden Strahls wird am Gitter gekippt. Anschließend wird die Polarisation des Strahls durch eine Wellenplatte angepasst und der Strahl durch eine Linse auf den Kristall fokussiert. Die THz-Strahlung wird aus der langen Kristallseite emittiert. Darstellung adaptiert von [HYH⁺01].

doch ist die Effizienz der Gitter nicht über den gesamten Spektralbereich konstant und insbesondere für kurze Wellenlängen sinkt sie stark ab. Zu dem haben Gitter auf Grund ihrer dispersiven Eigenschaften negative Auswirkungen auf die temporalen Eigenschaften der Strahlung. Einen möglichen Ausweg aus diesem Dilemma bietet die Nutzung von Gittern in konischer Konfiguration.

Für diese Arbeit wurde ein quasi-pulsdauererhaltender Monochromator nach dem Vorbild von [Pol04] aufgebaut. Im Unterschied zu den bereits veröffentlichten Konfigurationen wird hier jedoch eine andere Reihenfolge der Optiken genutzt. Dieses Kapitel stellt die theoretischen Grundlagen eines Gitters in konischer Konfiguration, welches das entscheidende optische Element des Aufbaus ist, dar. Das Kapitel orientiert sich dabei an [PBG⁺06a] und [FCF⁺11].

Entscheidend für die Untersuchung des Einflusses eines Gitters auf die Pulsdauer eines Strahls ist der Unterschied der Länge der einzelnen Photonenpfade. Dieser Pfadlängenunterschied Δl eines Gitters mit N ausgeleuchteten Linien bei einer Wellenlänge der einfallenden Strahlung λ für die m -te Beugungsordnung ist gegeben durch:

$$\Delta l = Nm\lambda. \quad (2.33)$$

Dieser Unterschied ist für Pulse im Pikosekundenbereich vernachlässigbar, für Pulse im Femtosekundenbereich hat er jedoch einen dramatischen Einfluss. Durch die Nutzung eines zweiten Gitters kann der Pfadlängenunterschied kompensiert werden. Für Pulse im Bereich unter 35 nm ist auf Grund der Effizienz der Beschichtungen die Nutzung im streifenden Einfall notwendig. Dies führt zu experimentellen Schwierigkeiten durch schnell auftretende Aberrationen bei kleinen Abweichungen in der Justage. Zu dem ist die Zeitkompensation durch die fixierten Winkel nur in einem schmalen Wellenlängenbereich möglich. Ein weiterer Nachteil der Nutzung von zwei Gittern ist die damit verbundene geringere Gesamteffizienz auf Grund des weiteren optischen Elementes.

Bei der Nutzung eines Blazegitters, welches später im Abschnitt erklärt wird, in konischer Konfiguration, also mit Gitterlinien parallel zur optischen Achse der einfallenden Strahlung, erreicht die Effizienz fast die Werte der Reflektivität der Beschichtung [Wer77]. Dies macht die Nutzung einer derartigen Konfiguration attraktiv.

Im Unterschied zur klassischen Konfiguration eines Gitters ist bei konischer Konfiguration der Wellenvektor der einfallenden und gebeugten Strahlung nicht orthogonal zu den Gitterlinien. Abbildung 2.5 zeigt schematisch die beschriebene Konfiguration und ordnet den Winkeln ihre Bezeichnung zu. Die Strahlausbreitung wird durch zwei Winkel, den Elevationswinkel und den Azimut beschrieben. Der Elevationswinkel φ ist dabei der Winkel zwischen Gitterlinie z in kartesischen Koordinaten und dem Wellenvektor der nullten Beugungsordnung des Lichtstrahls. Der zweite Winkel ist der Azimut θ , hier der Winkel in der x - y -Ebene im durch die Beugungsordnungen beschriebenen Halbkreis zwischen m -ter Beugungsordnung und Gitternormalen.

Für einen Wellenvektor \mathbf{k}_i in Kugelkoordinaten gilt dann:

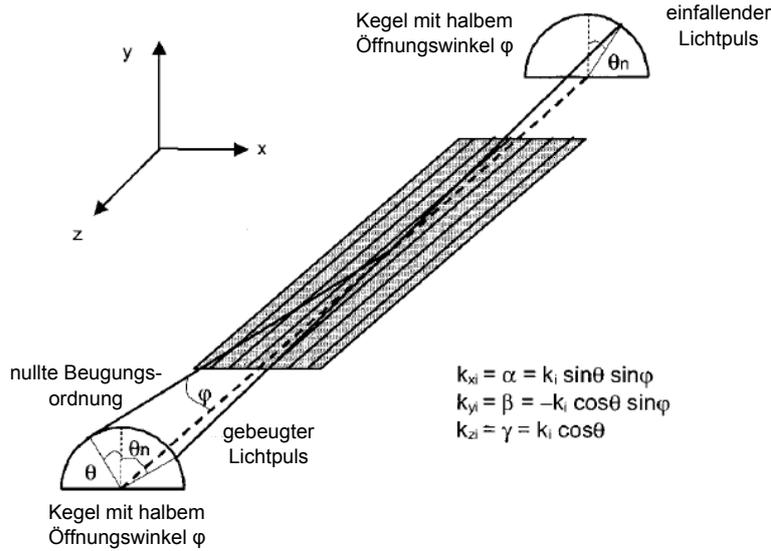


Abbildung 2.5: Darstellung der konischen Gitterkonfiguration mit Bezeichnung der Winkel. Die Beugungsordnungen bilden einen Kegel mit halben Öffnungswinkel φ . Abbildung adaptiert von [PBG⁺06a]

$$\begin{aligned}
 \alpha &= k_i \sin\theta \sin\varphi, \\
 \beta &= k_i \cos\theta \sin\varphi, \\
 \gamma &= k_i \cos\varphi.
 \end{aligned}
 \tag{2.34}$$

Die Periodizität des Gitters K kann mit der Gitterliniendichte ρ als $K = 2\pi\rho$ beschrieben werden. Daraus folgt, dass gebeugte elektromagnetische Wellen entsprechend der Beugungsordnung m räumlich diskrete Wellenvektoren \mathbf{k}_m einnehmen. Diese erfüllen folgende Relationen:

$$\begin{aligned}
 k_{xm} &= \alpha_m = -\alpha + mK, \\
 k_{ym} &= \beta_m = \sqrt{(k_i^2 - k_z^2) - k_{xm}^2}, \\
 k_{zm} &= \gamma_m \equiv \gamma.
 \end{aligned}
 \tag{2.35}$$

Die Gleichungen (2.34) und (2.35) zeigen, dass die gebeugten Ordnungen einen Kegel bilden, dessen Halbwinkel durch φ definiert wird. Alle Strahlen weisen den gleichen Elevationswinkel auf, unter welchem sie auf das Gitter einfallen, da für diesen Winkel eine simple Reflexion vorliegt. Abhängig von der Wellenlänge des Lichtes ändert sich jedoch der Azimut. Der dabei entstehende Halbkreis weist einen Radius von $L \sin\varphi$ auf, wobei L der Abstand der Kreisbogenebene senkrecht zum Gitter ist.

Wenn $\theta = a \sin(\alpha k_i \sin\varphi)$ der Azimut des einfallenden Strahles ist, dann ist der Azi-

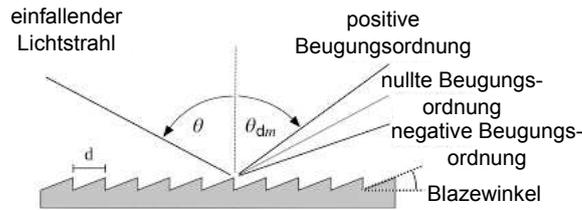


Abbildung 2.6: Darstellung eines Blazegitters mit positiven und negativen Beugungsordnungen. Eingezeichnet ist auch der Blazewinkel, welcher die Effizienz des Gitters bestimmt. Abbildung adaptiert von [Wik]

mit des gebeugten Strahls θ_m analog $\theta_m = a \sin(\alpha_m k_i \sin \varphi)$. Für die Gittergleichung bei gegebener Wellenlänge λ folgt damit:

$$\sin \varphi (\sin \theta + \sin \theta_m) = m \lambda \rho. \quad (2.36)$$

Zur Optimierung der Beugungseffizienz muss die so genannte Blaze-Bedingung erfüllt werden. Dies ist der Fall, wenn das Licht das Gitter in Form einer Reflexion eines Spiegels verlässt. Dabei gilt, dass:

$$\theta + \theta_m = 2\delta, \quad (2.37)$$

wobei δ den Blazewinkel des Gitters angibt. Ein Blazegitter ist in Abbildung 2.6 gezeigt. Damit durch das Gitter keine Schatteneffekte entstehen, welche die Effizienz verringern, muss ebenfalls die Bedingung $\theta = \delta$ erfüllt werden. Daraus folgt, dass die optimale Effizienz eines Blazegitters in konischer Konfiguration durch:

$$\theta = \theta_m = \delta \quad (2.38)$$

gegeben ist. Anschaulich bedeutet dies, dass das Gitter vom Strahl als ebener Spiegel gesehen wird. Für die Gittergleichung folgt dann:

$$2 \sin \varphi \sin \delta = m \lambda \rho. \quad (2.39)$$

Für die Nutzung eines Blazegitters in konischer Konfiguration bedeutet dies, dass der Einfallswinkel abhängig von Gitterparametern und Wellenlänge der einfallenden Strahlung entsprechend gewählt werden muss. Einfallender und gebeugter Strahl befinden sich in einer Ebene, welche parallel der Gitterlinien und senkrecht der Oberfläche ist.

Für die spektrale Auflösung R eines Blazegitters gilt:

$$R = \frac{\lambda}{\Delta \lambda}. \quad (2.40)$$

Bei der Nutzung der ersten Beugungsordnung $m = 1$ ist die minimal benötigte Anzahl ausgeleuchteter Spalte mit $N_{min} = R$ gegeben. Für den Pfadlängenunterschied ergibt sich mit Gleichung (2.33):

$$\Delta l = \frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}. \quad (2.41)$$

Für die Halbwertsbreite eines Pulses $\Delta\tau_{g,min}$ folgt damit:

$$\Delta\tau_{g,min} = \left(\frac{0,5}{c}\right) \left(\frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}\right), \quad (2.42)$$

was nahe dem Fourier-Limit $\Delta\tau_{P,Gauss} = \left(\frac{0,441}{c}\right) \left(\frac{\lambda^2}{\Delta\lambda}\right)$ eines Gausspulses ist. $\Delta\lambda$ entspricht dabei der Halbwertsbreite hinter dem Gitter. Ein Monochromator mit einem derartigen Gitter wird als zeiterhaltender Monochromator bezeichnet. Für einen fourierlimitierten Puls mit der zugehörigen Bandbreite λ_p ist zur spektralen Selektion eine Ausleuchtung von:

$$N = \frac{c\Delta\tau_P}{\lambda} \quad (2.43)$$

Spalten notwendig. Wird die Anzahl unterschritten, wird die resultierende Pulsdauer maßgeblich von der Pulsdauer des Pulses bestimmt, da $\Delta\lambda > \Delta\lambda_p$ und für eine größere Anzahl beleuchteter Spalte vom Gitter durch $\Delta\lambda < \Delta\lambda_p$ bestimmt.

Für die Anzahl beleuchteter Spalte lässt sich mit der Strahldivergenz D und dem Abstand s finden, dass:

$$N = Ds\rho. \quad (2.44)$$

Dies beschreibt im Wesentlichen die Anzahl der ausgeleuchteten Spalte auf Grund der Strahlgröße. Für kleine Strahldivergenzen, was bei Harmonischenquellen mit Strahldivergenzen in der Größenordnung weniger Milliradian der Fall ist, kann mit der Näherung $\tan(D) \sim D$ für die Pulsdauer des Gitters schließlich:

$$\Delta\tau_g = \frac{N\lambda}{c} = \frac{\lambda Ds\rho}{c}, \quad (2.45)$$

gefunden werden. Damit die Pulsdauer des Pulses erhalten bleibt, folgt damit:

$$\lambda Ds\rho \leq c\Delta\tau_P \quad (2.46)$$

Die Pulsdauer hinter dem Gitter τ_{Ges} ergibt sich als Faltung aus der Impulsantwort des Gitters und der Pulsdauer des Harmonischenpulses. Unter der Annahme, dass es sich in beiden Fällen um gaussförmige Pulse handelt, folgt damit:

$$\tau_{Ges} = \sqrt{\tau_G^2 + \tau_P^2} \quad (2.47)$$

Im Normalfall sind Blazegitter eben und erfordern dadurch paralleles Licht bzw. eine ebene Wellenfront. Aus diesem Grund verfolgen bestehende Monochromatoren für XUV-Strahlung mit Blazegittern in konischer Konfiguration den Aufbau: Toroidspiegel - Gitter

- Toroidspiegel. Der erste Toroid erzeugt dabei die ebene Wellenfront in dem der Strahl kollimiert oder fokussiert wird. Das Gitter wird dann entsprechend an der Stelle platziert, an dem die Wellenfront eben ist, was im Falle eines fokussierten Strahls im Fokus der Fall ist. Der zweite Toroidspiegel fokussiert dann die gebeugte Strahlung des Gitters. Für diese Arbeit wird auf Grund experimenteller Randbedingungen folgende Reihenfolge genutzt: Gitter - Toroidspiegel - Toroidspiegel. Dabei erzeugt der erste Toroidspiegel für eine Strahlachse einen Parallelstrahl, während die zweite Achse einen Zwischenfokus erzeugt. Der zweite Toroidspiegel fokussiert dann die Strahlung in die Wechselwirkungszone des Experimentes.

2.3 THz-Streaking

Für die vorliegende Arbeit wurde als zeitaufgelöste Messapparatur eine THz-Streak Kamera (aus dem englischen von Streak-Camera, Schmierbildkamera) genutzt. Die zu Grunde liegende Physik wird im folgenden Abschnitt erläutert und orientiert sich eng an [QMI05] und [Frü09].

Das Prinzip einer Streak-Kamera ist seit einigen Jahrzehnten bekannt und als kommerzielles Produkt beispielsweise von Hamamatsu mit einer zeitlichen Auflösung von bis zu 100 fs [K.K] erhältlich. Ein einfallender Laserpuls wird auf eine Photokathode fokussiert und erzeugt dort eine Photoelektronenverteilung. Diese weist unter der Voraussetzung, dass ein Photon ein Elektron erzeugt, eine identische Zeitstruktur wie das einfallende Lichtwellenpaket auf. Diese Elektronenverteilung wird in Richtung eines Detektors, beispielsweise einem Fluoreszenzschirm mit Kamera, beschleunigt. Transversal wird auf der Flugstrecke ein sich schnell änderndes elektrisches Feld, beispielsweise durch einen Plattenkondensator, angelegt, wodurch die Elektronen abgelenkt werden. Bei einer hinreichend schnellen Änderung des elektrischen Feldes relativ zur Pulsdauer und damit longitudinalen Ausdehnung der Elektronenverteilung, erfahren die Elektronen am Anfang der Verteilung eine andere Änderung als an dessen Ende. Dies resultiert in einem Streifen bzw. Schmierbild auf dem Detektor. Anhand der Länge dieses Streifens kann mit Hilfe der Kenntnis des ablenkenden Feldes die Zeitstruktur der Elektronenverteilung und damit die des Laserpulses rekonstruiert werden.

Bei der vorliegenden Arbeit wird anstelle eines Plattenkondensators das elektrische Feld eines THz-Pulses verwendet, da eine Auflösung im Bereich von einigen 10 fs benötigt wird und dies unterhalb der Auflösung kommerzieller Produkte ist. Der Grund hierfür ist, dass für eine erfolgreiche zeitliche Rekonstruktion des ionisierenden Pulses dessen Pulsdauer deutlich kürzer sein muss, als die Periodendauer des ablenkenden elektrischen Feldes. Die Nutzung von elektronisch erzeugten Feldern scheidet aus, da diese eine zu langsame Änderung aufweisen. Die Nutzung von IR-Strahlung scheidet auf Grund der zu kurzen Oszillationsperiode im Bereich von 2 bis 3 fs und der Beeinflussung des zu untersuchenden Prozesses durch die nicht vernachlässigbare Feldstärke

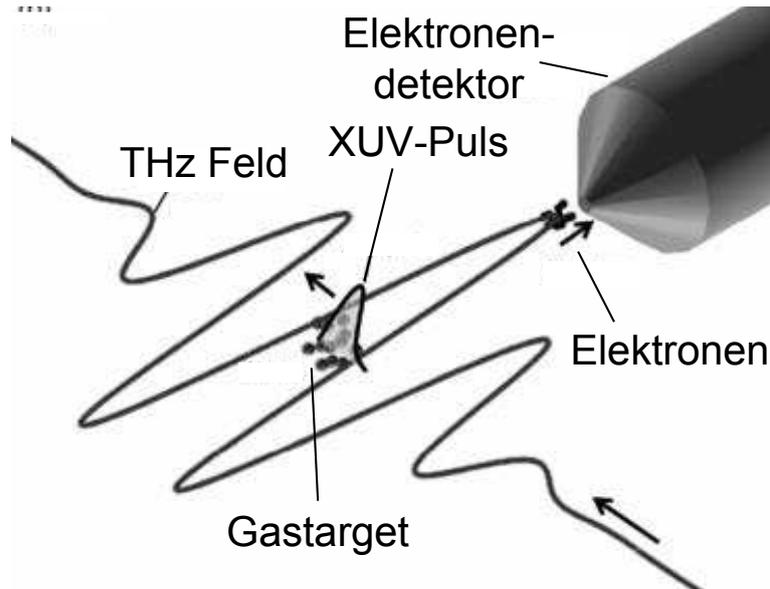


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung einer lichtfeldgetriebenen Streak Kamera. Ein XUV Puls ionisiert ein Gastarget. Die frei werdenden Elektronen werden von einem THz Feld abgelenkt und über ein Elektronenflugzeitspektrometer detektiert. Darstellung adaptiert von [Frü11].

aus. Abbildung 2.7 zeigt den schematischen Aufbau einer lichtfeldgetriebenen Streak Kamera.

Semiklassische Beschreibung des Streak-Prozesses

Für eine klassische Beschreibung des Prozesses wird angenommen, dass ein Elektron durch einen XUV-Puls zum Zeitpunkt t_i am Ort \mathbf{r}_i der Ionisation in Anwesenheit eines kohärenten, linear polarisierten Infrarot-Lichtpulses aus einem Atom durch Photoionisation befreit wird. Auf Grund der großen Frequenzunterschiede zwischen dem ionisierenden XUV-Puls und dem beschleunigenden Ir-Laserfeld kann der Prozess in zwei Schritte, nämlich den Ionisierungsschritt und den Beschleunigungsprozess, unterteilt werden. Die kinetische Energie des Elektrons E_{kin} nach der Ionisierung folgt dabei Gleichung (2.1) und ist gegeben durch $E_{Elektron} = E_{kin} = \frac{m_e}{2} \mathbf{v}_0^2$ mit der Geschwindigkeit \mathbf{v}_0 und der Elektronenmasse m_e . Durch das elektrische Feld des Ir-Strahls, welches sich mit der Frequenz ω_{Ir} und der Phase ϕ durch:

$$\mathbf{E}_{Ir}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t) \cos(\omega_{Ir}t + \phi) \quad (2.48)$$

beschreiben lässt, erfährt das Elektron eine Beschleunigung. Dabei ist zu beachten, dass die Geschwindigkeit des Elektrons gegenüber der Lichtgeschwindigkeit sehr klein ist, so dass es sich nicht aus dem Ir-Feld heraus bewegt, sondern als starr angenommen werden kann und dadurch die vollständige Änderung des elektrischen Feldes von Ionisationszeitpunkt bis zum Ende des IR-Pulses erfährt. Für den zeitabhängigen Impuls $\mathbf{p}(t)$ des

Elektrons folgt:

$$\mathbf{p}(t) = e\mathbf{A}(\mathbf{r}, t) + [m_e\mathbf{v}_0 - e\mathbf{A}(\mathbf{r}_i, t_i)], \quad (2.49)$$

mit $\mathbf{A}(\mathbf{r}, t)$ dem Vektorpotential und e der Ladung des Elektrons. Für die Änderung des Impulses des Elektrons gilt dann:

$$\Delta\mathbf{p}_i(\mathbf{r}_i, t) = e \int_{t_i}^t \mathbf{E}_{Ir}(\mathbf{r}_i, t') dt'. \quad (2.50)$$

Da das Vektorpotential zum Zeitpunkt t , wenn der Ir-Puls bereits vorbei ist, als 0 angenommen werden kann, ergibt sich für die Impulsänderung:

$$\Delta\mathbf{p}(\mathbf{r}, t) = e\mathbf{A}(\mathbf{r}, t). \quad (2.51)$$

Diese Änderung des Impulses ist abhängig vom Winkel θ zwischen dem Anfangsimpuls \mathbf{p}_0 des Elektrons und dem beschleunigenden elektrischen Feld. Die kinetische Energie des Elektrons kann unter der Annahme einer sich nur langsam ändernden Einhüllenden (engl. slowly-varying envelop approximation) durch die Gleichung $m_e\mathbf{v}_0^2 = (m_e\mathbf{v} + e\mathbf{A}(t_i))^2$ bestimmt werden zu:

$$E_{kin} = E_{kin,0} + 2U_P \cos(2\theta) \sin^2(\phi_i) \pm \sqrt{1 - \frac{2U_P}{E_{kin,0}} \sin^2\theta \sin^2\phi_i} \sqrt{8E_{kin,0}U_P \cos\theta \sin\phi_i} \quad (2.52)$$

Dabei ist ϕ_i die Phase des Ir-Feldes zum Zeitpunkt der Ionisation und $U_P = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega_{Ir}^2}$ das ponderomotive Potential. Für die vorliegende Arbeit ist die Änderung der kinetischen Energie parallel zum elektrischen Feld interessant und Gleichung 2.52 vereinfacht sich zu:

$$E_{kin,||} = E_{kin,0} + 2U_P \sin^2\phi_i \pm \sqrt{8E_{kin,0}U_P} \sin\phi_i \quad (2.53)$$

Daraus folgt, dass die kinetische Energie der Elektronen abhängig vom Ionisationszeitpunkt ist. Durch eine Messung des Energieunterschiedes zwischen den kinetischen Energien ohne ablenkendes elektrisches Feld und mit ablenkendem elektrischem Feld kann der Ionisationszeitpunkt des Elektrons relativ zum ablenkenden elektrischen Feld bestimmt werden. Daraus wiederum können Rückschlüsse auf die Zeitstruktur des Elektron erzeugenden Feldes gezogen werden.

Quantenmechanische Beschreibung des Streak-Prozesses

Neben der klassischen Beschreibung des Streaking Prozesses ist auch eine quantenmechanische Beschreibung möglich. Da die Photoionisation eines Atoms durch ein Photon

mit einer Energie im XUV-Bereich direkt erfolgt, ist das entstehende Elektronenwellenpaket durch die Ionisation eines XUV-Pulses eine exakte Replik dieses Wellenpaketes. Abgesehen von einer um die Bindungsenergie des ionisierten Atoms verschobenen Energie werden die Zeitstruktur und die Phase korrekt wieder gegeben. Durch die Wechselwirkung mit dem elektrischen Feld des Ir-Pulses erfolgt eine zeitabhängige Modulation des Elektronenwellenpaketes.

Unter Vernachlässigung der Wechselwirkung mit benachbarten Elektronen kann in der Näherung eines einzelnen, aktiven Elektrons die Übergangsamplitude $a_{\mathbf{p}}$ vom Grundzustand ins Kontinuum gemäß Störungstheorie erster Ordnung mit:

$$a_{\mathbf{p}} = -i * \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{d}_{\mathbf{p}} \mathbf{E}_{XUV}(t) \exp[i * (E_{kin} + I_p)t] dt, \quad (2.54)$$

beschrieben werden, wobei atomare Einheiten mit ($\hbar = m_e = e = 1$) genutzt werden. Dabei ist $\mathbf{d}_{\mathbf{p}}$ das Dipolübergangsmatrixelement und I_p das Ionisationspotential. Das Dipolmatrixübergangselement kann vom Impuls abhängen und muss bei einer Rekonstruktion der Struktur des ionisierenden Pulses aus dem Elektronenwellenpaket einbezogen werden. Ebenso kann eine Phasenbeziehung bestehen, welche beispielsweise in der Nähe von Resonanzen auftritt. Beide Effekte sind meist entweder theoretisch bekannt oder können auf Grund der geringen spektralen Breite des XUV-Pulses vernachlässigt werden. Dadurch ergibt sich das Photoelektronenspektrum $|a_{\mathbf{p}}|^2$ in Phase und Amplitude direkt aus dem erzeugenden XUV-Puls.

In der Gegenwart des Ir-Feldes wird für die Ionisation die Starkfeld-Näherung genutzt. Sie besagt, dass die Wechselwirkung des Elektrons mit dem Laserfeld dominiert und die Wechselwirkung mit dem schwächeren Coulomb-Feld des Atoms vernachlässigt werden kann. Für die Übergangsamplitude $a_{\mathbf{p}_f}(\tau)$ ins Kontinuum folgt nach dem Durchgang der Lichtpulse mit Zeitabstand τ zwischen Ir- und XUV-Puls:

$$a_{\mathbf{p}_f}(\tau) = -i * \int_{-\infty}^{\infty} \mathbf{d}_{\mathbf{p}} \mathbf{E}_{XUV}(t - \tau) \exp[i * (I_p * t - \int_t^{\infty} \mathbf{p}(t')^2 / 2 * dt')] dt, \quad (2.55)$$

wobei der Impuls des Elektrons im Ir-Feld mit $\mathbf{p}(t) = (\mathbf{p}_0 + \mathbf{A}(t_i)) - \mathbf{A}(t)$ über die Coulomb-Eichung $\mathbf{E}_{Ir}(t) = -\frac{\partial \mathbf{A}}{\partial t}$ gegeben ist. Da nach dem Durchgang des Ir-Pulses $\mathbf{A}(t) = 0$ folgt wie im klassischen Fall $\mathbf{p}_f = (\mathbf{p}_0(t) + \mathbf{A}(t_i))$.

Die Gleichung (2.55) kann unter Nutzung der Starkfeldnäherung auch aus der Schrödingergleichung abgeleitet werden. Jedoch ist die Interpretation von $a_{\mathbf{p}_f}(\tau)$ als Summe aller Wahrscheinlichkeitsamplituden aller möglichen Elektronentrajektorien zum Endimpuls $\mathbf{p}_f(\tau)$ intuitiv. Das Betragsquadrat $S = |a_{\mathbf{p}_f}|^2$ ergibt dann das Photoelektronenspektrum. Die Ionisation zu jedem Zeitpunkt t wird durch das Integral in Gleichung (2.55) berücksichtigt und entspricht der Wahrscheinlichkeitsamplitude des XUV-Feldes multipliziert mit dem Dipolmatrixelement. Die Phase des Prozesses wird durch die akkumulierte Phase vom Grundzustand bis zum Zeitpunkt t und der Phase im Kontinuum

festgelegt. Eine Umformung von Gleichung (2.55) mit $\Phi(t) = -\int_{-t}^{\infty} \mathbf{p}_f \mathbf{A}(t') + \frac{A^2(t')}{2} dt'$ liefert:

$$a_{\mathbf{p}_f}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{\infty} \exp(i\Phi(t)) \mathbf{d}_{\mathbf{p}(t)} \mathbf{E}_{XUV}(t - \tau) \exp(i(E_{kin} + I_p)t) dt. \quad (2.56)$$

Dies verdeutlicht, dass das Ir-Feld im Wesentlichen eine zeitabhängige Phasenmodulation des Elektronenwellenpaketes zur Folge hat. Mit Gleichung (2.48) kann $\Phi(t)$ als:

$$\Phi(t) = \Phi_1(t) + \Phi_2(t) + \Phi_3(t) \quad (2.57)$$

$$\Phi_1(t) = -\int_t^{\infty} U_p(t) dt \quad (2.58)$$

$$\Phi_2(t) = \frac{\sqrt{8 * E_{kin} U_p(t)}}{\omega_{Ir}} \cos\Theta \cos\omega_{Ir} t \quad (2.59)$$

$$\Phi_3(t) = -\frac{U_p(t)}{2\omega_{Ir}} \sin(2\omega_{Ir} t) \quad (2.60)$$

geschrieben werden. Da $U_p(t)$ deutlich kleiner als E_{kin} ist, können Φ_1 und Φ_3 vernachlässigt werden.

Eine lineare Phasenmodulation des Elektronenwellenpaketes bewirkt eine Verschiebung des Spektrums mit:

$$\Delta E_{kin} = E_{kin} - E_{kin,0} \equiv -\frac{\partial \Phi}{\partial t} \quad (2.61)$$

Bei einem relativ zur Ir-Periode kurzer XUV-Puls kann Φ als linear angenommen werden. Die Verbreiterung des Spektrums durch die Phasenmodulation hängt dementsprechend von der spektralen Phase des XUV-Pulses und dessen Zeitstruktur ab. Aus einem gemessenen Streak-Spektrum kann ein XUV-Puls rekonstruiert werden. Unter der Annahme eines ungechirpten Pulses kann die Pulsdauer $\tau_{XUV-Puls}$ bestimmt werden durch:

$$\tau_{XUV-Puls} = \frac{\sqrt{\sigma_{Nulldurchgang,KeinTHz}^2 - \sigma_{KeinTHz}^2}}{s}, \quad (2.62)$$

wobei $\sigma_{Nulldurchgang,KeinTHz}$ die Breite der Spektren und s die Änderung der Schwerpunktsenergie in Abhängigkeit des Zeitversatzes zwischen XUV und THz-Strahlung angibt, welches auch als Streakgeschwindigkeit bezeichnet wird. Ein auftretender linearer Chirp führt dazu, dass eine einzelne Messung der energetischen Breite des Elektronenwellenpaketes an der Stelle des Nulldurchganges nicht ausreichend ist. Dies wird an Hand der Simulationen in Kapitel 3.2 deutlich. Eine Bestimmung der Struktur eines linear gechirpten Pulses ist durch die Gleichungen (6.4 und 6.3) möglich. Die Abbildung 2.8 verdeutlicht diesen Zusammenhang.

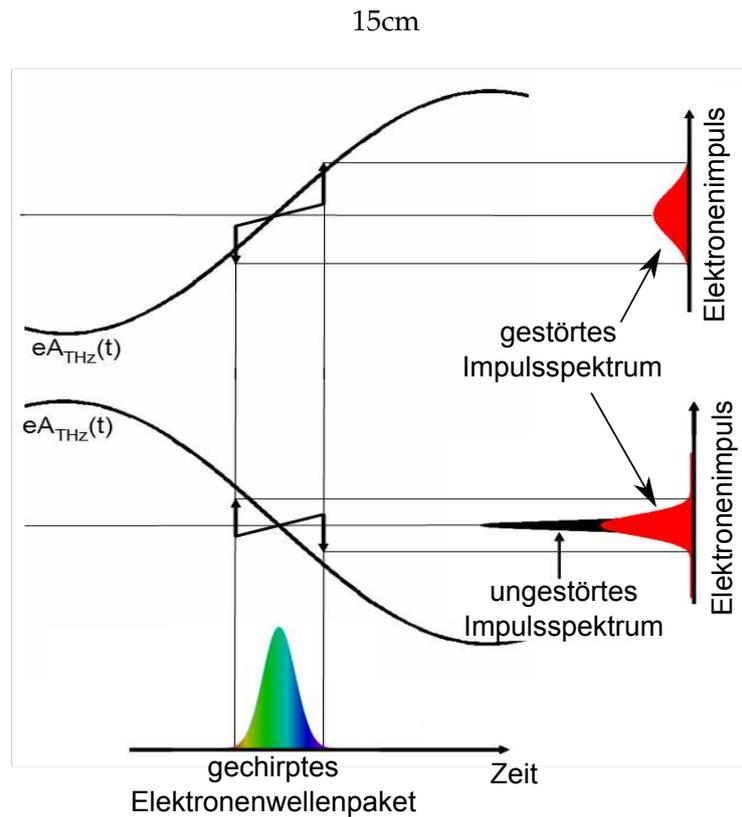


Abbildung 2.8: Darstellung des Streaking-Prozesses mit dem Vektorpotential eines THz-Pulses bei gechirptem Elektronenwellenpaket. Gut erkennbar ist die Abweichung der Breite des Impulsspektrums bei geändertem Vorzeichen des Vektorpotentials des THz-Pulses, entsprechend der Messung mit gegenüberliegenden Detektoren. Abbildung adaptiert aus [FTK⁺15].

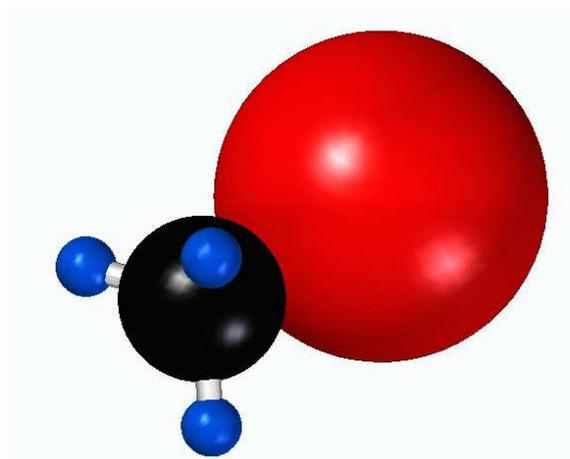


Abbildung 2.9: Darstellung des Iodmethan-Moleküls. Die rote Kugel repräsentiert das Iodatom, die schwarze Kugel Kohlenstoff und die blauen Kugeln die Wasserstoffatome, welche über Einfachbindungen verbunden sind. Abstände und Größen der Atome sind maßstabsgetreu.

2.4 Molekülzerfall nach Photoanregung

Zur Demonstration der Nutzbarkeit für zeitaufgelöste Molekülspektroskopie des experimentellen Aufbaus wurde Iodmethan spektroskopisch untersucht. Dabei wurde ein Elektron aus einem inneren Orbital des Iod-Atoms mit Hilfe eines XUV-Photons angeregt. Die Anregung erfolgte dabei in ein antibindendes Orbital. Anschließend findet ein Auger-Meitner-Prozess statt, welcher mit Hilfe der THz-Streaking Technik untersucht wurde. Dieses Kapitel stellt den Aufbau des Iodmethanmoleküls und den untersuchten Prozess theoretisch dar und folgt dabei [OCB98] und [MN87].

Bei Iodmethan handelt es sich um eine organische Halogenverbindung mit der Summenformel CH_3I und ist in Abbildung 2.9 dargestellt. Iodmethan weist dabei eine C_{3v} Symmetrie auf, eine dreizählige Rotationssymmetrie um die Achse der Kohlenstoff-Iod Verbindung.

Der Grundzustand der molekularen Orbitale lässt sich schreiben als $1I s^2 2s^2 2p^6$ $C 1s^2$ $I 3s^2 2p^6 3d^{10} 4s^2 4p^6 4d^{10}$ für die inneren Orbitale, $(1a_1)^2 (2a_1)^2$ für die inneren Valenzorbitale und $(1e)^4 (3a_1)^2 (2e)^4$ für die äußeren Valenzorbitale. Eine Zuordnung der Valenzorbitale ist in Abbildung 2.10 dargestellt.

Diese Valenzorbitale zeigen sich deutlich sichtbar im Photoelektronenspektrum. Im Anschluss an die Ionisation aus einer dieser Orbitale finden verschiedene Zerfälle des Moleküls statt. Diese Zerfallskanäle sind in Abbildung 2.11 dargestellt.

Die resonante Anregung eines Elektrons aus einem inneren Orbital des Iod-Atoms in ein antibindendes, molekulares Orbital ist ebenso möglich. Für die vorliegende Arbeit wurden dabei Elektronen aus dem $4d$ Orbital in den molekularen σ^* Orbital angeregt. Auf Grund des antibindenden Charakters des Orbitals zerfällt das Iodmethan-Molekül anschließend in Fragmente. Für den vorliegenden Fall ist dabei der Zerfall in ein CH_3 -

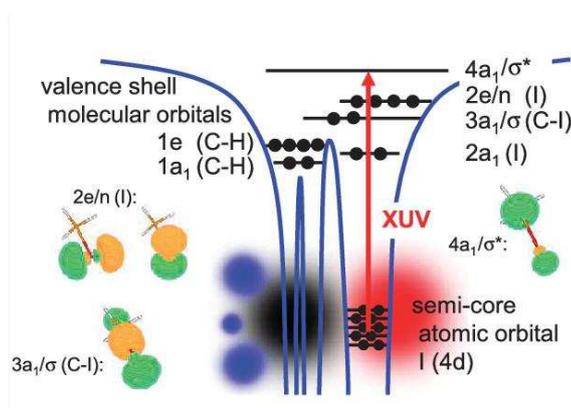


Abbildung 2.10: Darstellung der Iodmethan-Valenzorbitale und der Anregung eines Elektrons durch einen XUV-Puls in ein nicht bindendes Orbital. Der in dieser Arbeit untersuchte Prozess ist der mit VVV Auger bezeichnete Übergang aus dem $I4d$ Orbital. Die 5 dargestellten Orbitale finden sich im Photoelektronenspektrum wieder. Darstellung entnommen aus [DGR⁺16]

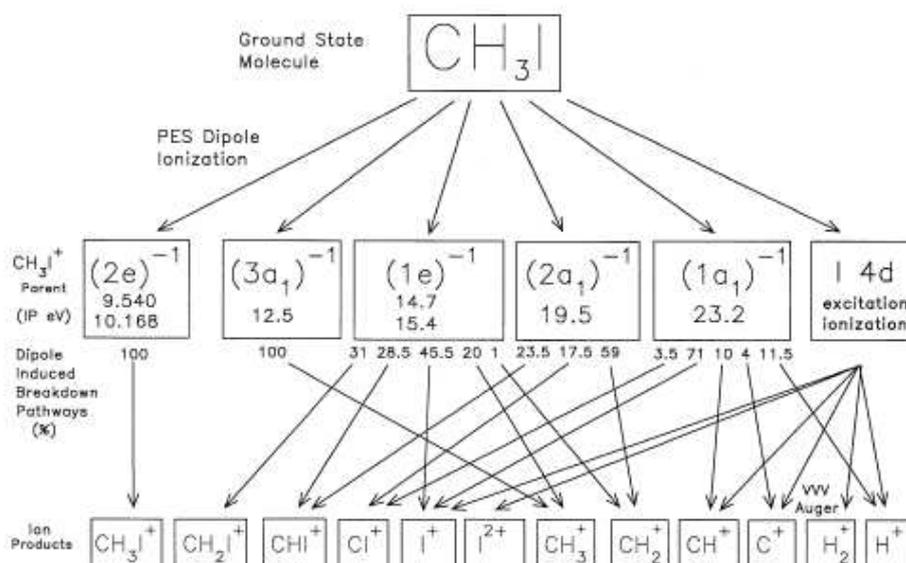


Abbildung 2.11: Darstellung der Ionisations- und Zerfallskanäle von Iodmethan. Darstellung entnommen aus [OCB98]

und ein I -Fragment interessant. Bei einer hinreichend schnellen Dissoziation des Moleküls verbleibt das Iod-Fragment in einem angeregten Zustand. Durch das im Anregungsprozess entstandene Loch im $4d$ Orbital wird ein Auger-Meitner-Prozess angetrieben. Dabei besetzt ein Elektron aus dem $5p$ Orbital das Loch in der $4d$ Schale und gibt seine Energie strahlungslos an ein benachbartes Elektron des $5p$ Orbitals ab. Dieses wird auf Grund der hinzu gewonnenen Energie aus dem Coulombpotential des Atoms befreit. Dieses Elektron wird auch als Auger-Meitner Elektron bezeichnet. Da auf Grund der energetischen Aufspaltungen der $4d$ und $5p$ Orbitale verschiedene Übergänge mit geringfügig unterschiedlichen Energien möglich sind, wird eine Serie von dieser Auger-Meitner Elektronen erzeugt.

In der vorliegenden Arbeit wird die Zeitkonstante dieses Prozesses bestimmt. Dafür wird mit Hilfe der THz-Streak Technik die Zeit zwischen den auf Femtosekundskaala instantanen Photoelektronen und den später emittierten Auger-Meitner Elektronen bestimmt.

3 Simulationsrechnungen

Nach den im voran gegangenen Kapitel erarbeiteten theoretischen Grundlagen des Experimentes stellt dieses Kapitel die angefertigten Simulationen dar. Im ersten Abschnitt werden dabei die Simulationen zum Aufbau des Monochromators vorgestellt. Hierbei handelt es sich um Simulationen, welche die Auswahl und Positionierung der verwendeten Optiken zur Erzeugung eines möglichst kleinen Fokus bei gleichzeitig hinreichender Separation der Harmonischenordnungen darstellen. Anschließend werden Simulationen zur Pulsdauer der Harmonischenstrahlung in der Wechselwirkungszone des Experimentes vorgestellt und mit den analytischen Rechnungen verglichen. Im letzten Teil des Kapitels werden Simulationen vorgestellt, welche das erwartete Verhalten der Photoelektronen in Anwesenheit der THz-Strahlung darstellen, den eigentlichen Streak-Prozess.

3.1 Simulationen zum Monochromator

Das Design des hier vorgestellten Monochromators wurde mit Hilfe von Thomas Gebert entwickelt. Der erzeugte XUV Strahl wird durch ein Gitter in konischer Geometrie spektral getrennt. Anschließend folgt ein Toroid, welches die vertikale Strahlachse kollimiert. Für die horizontale Strahlachse liegt ein Zwischenfokus bei etwa einem Drittel der Propagationsstrecke zum zweiten Toroiden vor. Dieser zweite Toroid fokussiert schließlich die Strahlung in die Wechselwirkungszone des Experimentes. Die zu optimierenden Parameter des Systems sind im Wesentlichen die Winkel der Toroide bezüglich des XUV Strahls und deren Fokallängen. Dabei besteht die Einschränkung, dass aus Kostengründen zwei identische Toroide verwendet werden müssen. Zu dem sind durch die Gegebenheiten des Labors die Positionen der Optiken im Raum vorgegeben.

3.1.1 Simulationen zum geometrischen Aufbau

Mit Hilfe einer Version von 2005 des Programmes Zemax, einem kommerziellen Programm zur Simulation von Linsen und Strahlführungssystemen an Hand von Strahlenoptik, wurden der geometrische Aufbau des Monochromators simuliert und bezüglich der Fokusgröße und Separation der einzelnen Harmonischenordnungen in der Wechselwirkungszone des Experimentes optimiert. Das Programm Zemax nutzt dabei das Prinzip der Strahlenoptik. Dabei simuliert es für verschiedene Anfangsparameter wie Anfangskoordinaten oder Anfangswinkel relativ zu einem Referenzstrahl den Strahlweg einzelner Photonen. Dabei ist anzumerken, dass es in der verwendeten Version von Ze-

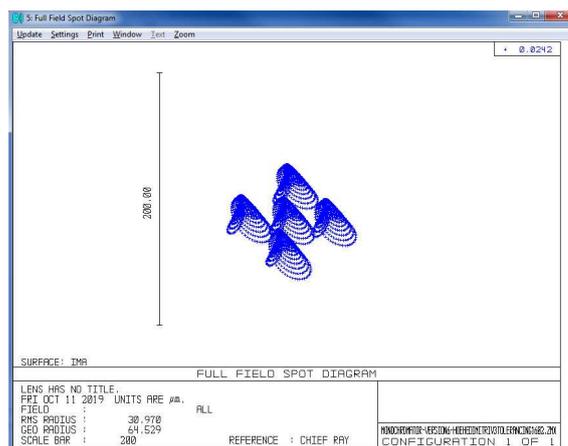


Abbildung 3.1: Darstellung der mit Strahlverfolgung aus dem Programm Zemax erhaltenen Fokusgrößenabschätzung des Monochromators. Die horizontale und vertikale Achse haben eine Größe von $200 \mu\text{m}$.

max keine Möglichkeit zur Implementierung eines Blazegitters gibt. Dies wurde in der Simulation berücksichtigt, indem das Gitter um den Blazewinkel von $1,3^\circ$ gekippt wurde. Eine derartige Abweichung zwischen Realität und Simulation hat Auswirkungen auf die Simulation der Strahlpfade, so dass die mit Hilfe der Strahlverfolgung gewonnenen Ergebnisse Abweichungen aufweisen werden. Dennoch konnte auf diese Art und Weise der geometrische Aufbau des Monochromators optimiert werden.

Mit Hilfe der so gefundenen Parameter und der Strahlverfolgungsoption wurde die Größe des Fokuspunktes abgeschätzt. Dafür wurde ein Quellpunkt bestehend aus 5 Einzelpunkten im Abstand von $50 \mu\text{m}$ angenommen, welcher der erwarteten Quellgröße der Harmonischenstrahlung entspricht. An jedem dieser Punkte startet ein Strahlenbündel mit festgelegten Winkelabständen zwischen den Strahlen. Der Auftreffpunkt in der Ebene der Wechselwirkungszone senkrecht zur Ausbreitungsrichtung wird vom Programm aufgezeichnet. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Es ist deutlich erkennbar, dass es sich beim erhaltenen Fokus nicht um ein rundes Strahlprofil handelt, sondern starke Verzerrungen auftreten. Anhand dieser Simulation wurde der Fokus auf eine Größe von etwa $100 \mu\text{m}$ abgeschätzt. Eine Simulation mit Hilfe der Option „Physical Optics Propagation“, welche im Gegensatz zur Strahlenoptik Beugungen berücksichtigt, und Messung der tatsächlichen Fokusgröße ist im Kapitel 4.4 dargestellt.

Mit Hilfe des „Through Focus Spot Diagram“, welcher die Strahlgröße in aufeinanderfolgenden Ebenen mit festgelegtem Abstand darstellt, wurde überprüft, dass die für den Monochromator bestimmte Geometrie am Ort der späteren Wechselwirkungszone des Experimentes die kleinste Ausdehnung aufweist. Wie in Abbildung 3.2 zu sehen ist, kann dies bestätigt werden.

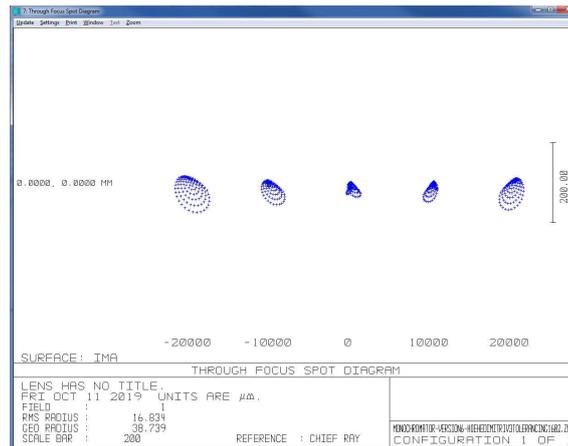


Abbildung 3.2: Darstellung der mit Strahlverfolgung aus dem Programm Zemax erhaltenen Strahlausdehnungen beim Durchgang durch die Wechselwirkungszone. Der Abstand zwischen den einzelnen Abbildungen des Strahlprofils beträgt 10 mm und jede einzelne Strahldarstellung hat eine Ausdehnung von $200\text{ }\mu\text{m}$.

3.1.2 Erwartete Pulsdauer in der Wechselwirkungszone

Durch die vom Vorbildesign in [Pol04] abweichende Geometrie des Monochromators wird einer Simulation der zu erwartenden Pulsdauern in der Wechselwirkungszone des Experimentes angefertigt. Die Annahme ist, dass auf Grund der langen Fokussierung zur Erzeugung der höheren Harmonischen deren Divergenz unter 1 mrad liegt und die Wellenfront am Ort des Gitters als quasi eben angesehen werden kann. Zur Überprüfung des Einflusses des Gitters auf die Pulsdauer wurde mit Hilfe des Programms RAY, einem Programm zur Simulation von Strahlverläufen auf der Basis von Strahlenoptik am Elektronenspeicherring BESSY, und der Hilfe von Dr. Peter Baumgärtel eine Simulation des vorliegenden Experimentes durchgeführt.

In der Simulation wurden die Harmonischenquelle, ein Spalt vor dem Gitter, das Gitter selbst und beide Toroidspiegel berücksichtigt. Für die Harmonischenquelle wurde eine Größe von $50\text{ }\mu\text{m}$ bei einer Photonenenergie von 50 eV entsprechend $24,8\text{ nm}$ angenommen mit $2 * 10^6$ Photonen. Die Anzahl der zur Simulation genutzten Photonen dient dabei der Berechnung eines möglichst genauen Ergebnisses und entspricht nicht der tatsächlich erzeugten Photonenzahl. Ein exemplarisches Ergebnis ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Abbildung 3.4 zeigt den Vergleich zwischen den mit Gleichung (2.45) berechneten Pulsdauern und der Simulation. Beide Wege liefern entsprechend ein lineares Verhalten abhängig von der Öffnung des Spaltes und der damit verbundenen Anzahl ausgeleuchteter Spalte. Eine Überprüfung des Einflusses der Divergenz auf die Pulsdauer mit Hilfe von RAY zeigt, dass im Bereich von $0,5\text{ mrad}$ bis 10 mrad die Abweichung im Rahmen der Genauigkeit der Simulation liegt und damit keine Abhängigkeit bestimmt werden kann.

Anzumerken ist, dass das Programm RAY die Möglichkeit bietet, eine Pulsdauer für

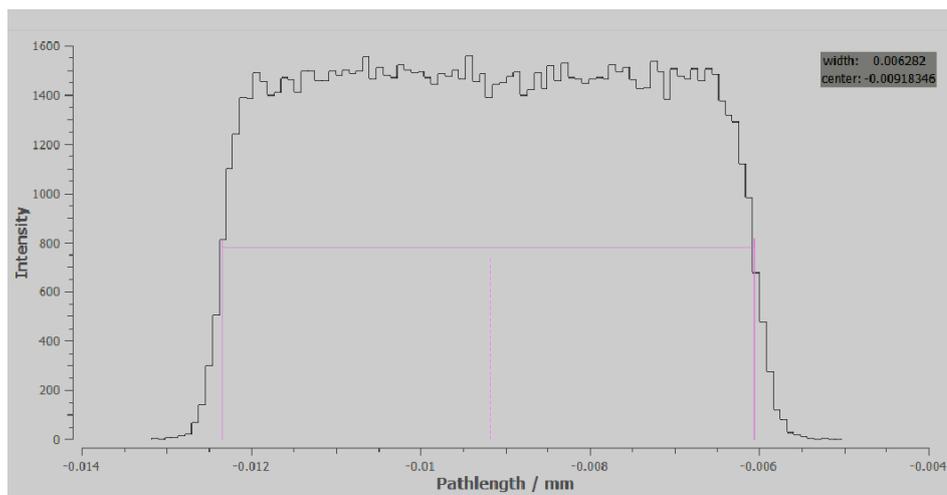


Abbildung 3.3: Ergebnisdarstellung der Simulation der Pfadlängenunterschiede im Fokus des Monochromators mit Hilfe des Programms RAY. Aus der angegebenen Halbwertsbreite der Pfadlängenunterschiede lässt sich die Halbwertsbreite der Pulsdauer zu 21 fs bestimmt. Die Parameter der Simulation sind im Text angegeben.

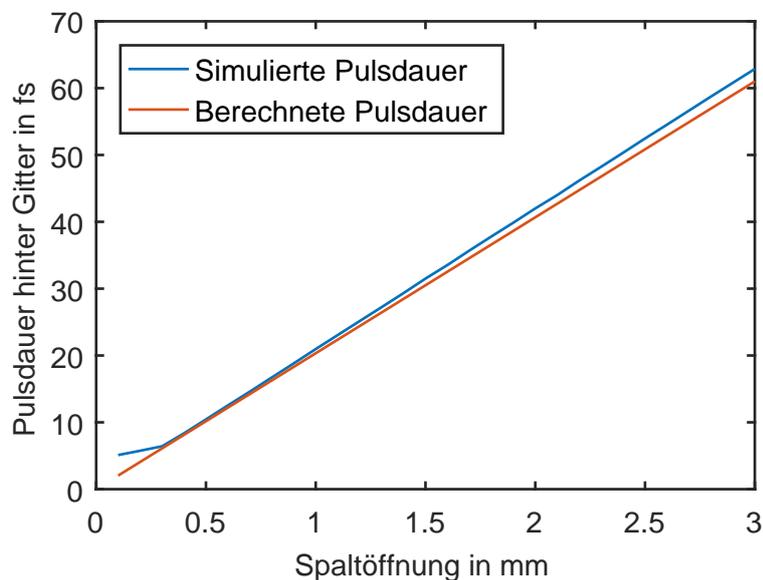


Abbildung 3.4: Darstellung des Vergleichs der berechneten Pulsdauern (rot) mit den mit Hilfe von Ray simulierten (blau) Pulsdauern in Abhängigkeit von der Öffnung des Spaltes für einen Deltapuls. Beide Kurven stimmen sehr gut überein und zeigen das erwartete lineare Verhalten der Gitterantwort eines infinitesimal kurzen Pulses.

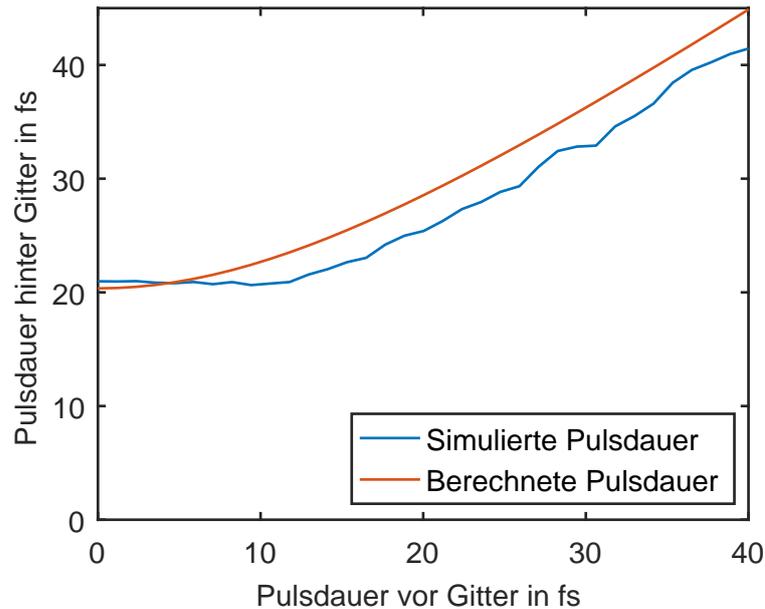


Abbildung 3.5: Darstellung des Vergleichs der berechneten Pulsdauern (rot) mit den mit Hilfe von Ray simulierten (blau). Beider Kurven sind in guter Übereinstimmung. Die Schwankungen in der simulierten Kurve sind in der Statistik begründet und das plateauartige Verhalten für sehr kurze Pulse stellt die Auflösungsgrenze des Programmes dar.

den erzeugten Puls anzugeben. Damit ist eine Überprüfung der Konsistenz von Simulation und Theorie für Gleichung (2.47) möglich. Eine Darstellung des Vergleiches zwischen den mit Gleichung (2.45) und Gleichung (2.47) berechneten Pulsdauern mit einer Pulsdauerantwort des Gitters von $20,3 \text{ fs}$ und den Simulationsergebnissen ist in Abbildung 3.5 dargestellt. Beide Kurven sind in guter Übereinstimmung. Die Simulation weist für sehr kurze Pulsdauern ein plateauartiges Verhalten auf, was an der Auflösungsgrenze der Simulation begründet ist, da RAY für die Simulation von Pikosekundenpulsen und nicht Femtosekundenpulsen konzipiert ist.

Fazit der Simulation mit RAY ist, dass die Gleichungen (2.45) und (2.45) auch auf den vorliegenden Aufbau mit Gitter-Toroid-Toroid anwendbar sind und die Divergenz des Strahls keinen signifikanten Einfluss auf die Pulsdauer erwarten lässt.

3.2 Simulationen zum erwarteten Streakingverhalten

Mit Hilfe des Programms AttoGram [Gag10] wurden für verschiedene XUV-Pulse Spektrogramme für den THz-Streak Vorgang simuliert. Das Programm AttoGram nutzt dabei die im Kapitel 2.3 dargestellten Gleichungen und benötigt die Eingabe des entsprechenden XUV-Pulses, des THz-Pulses, der Zentralenergie und der Auflösung. Das elektrische Feld E_{THz} des THz-Pulses wurde mit Hilfe einer analytischen Funktion der Form:

$$E_{THz} = A * \exp \left[- \left(\frac{t - t_0}{t_B} \right) \right] * \sin(\omega * t - \varphi), \quad (3.1)$$

dabei sind $A = 0,274 \frac{V}{m}$ die Amplitude, t die Zeit in Femtosekunden, $t_0 = 120,6 fs$ die Lage des Nulldurchgangs, $t_B = 657,8 fs$ die rms-Pulsbreite, $\omega = 2,387 THz$ die Kreisfrequenz und $\varphi = 0,2728$ die Phase des THz-Pulses. Die Werte stammen aus einer Anpassung an ein mittels Streaking gemessenes, reales THz-Feld.

Das elektrische Feld des XUV-Pulses E_{XUV} wurde mit:

$$E_{XUV} = E_0 * \exp \left[- \left(\frac{t}{4 * \tau_{XUV}} \right)^2 \right] * \exp [i * (a_1 * t^2 + a_2 * t^3 + \omega_{XUV} * t)] \quad (3.2)$$

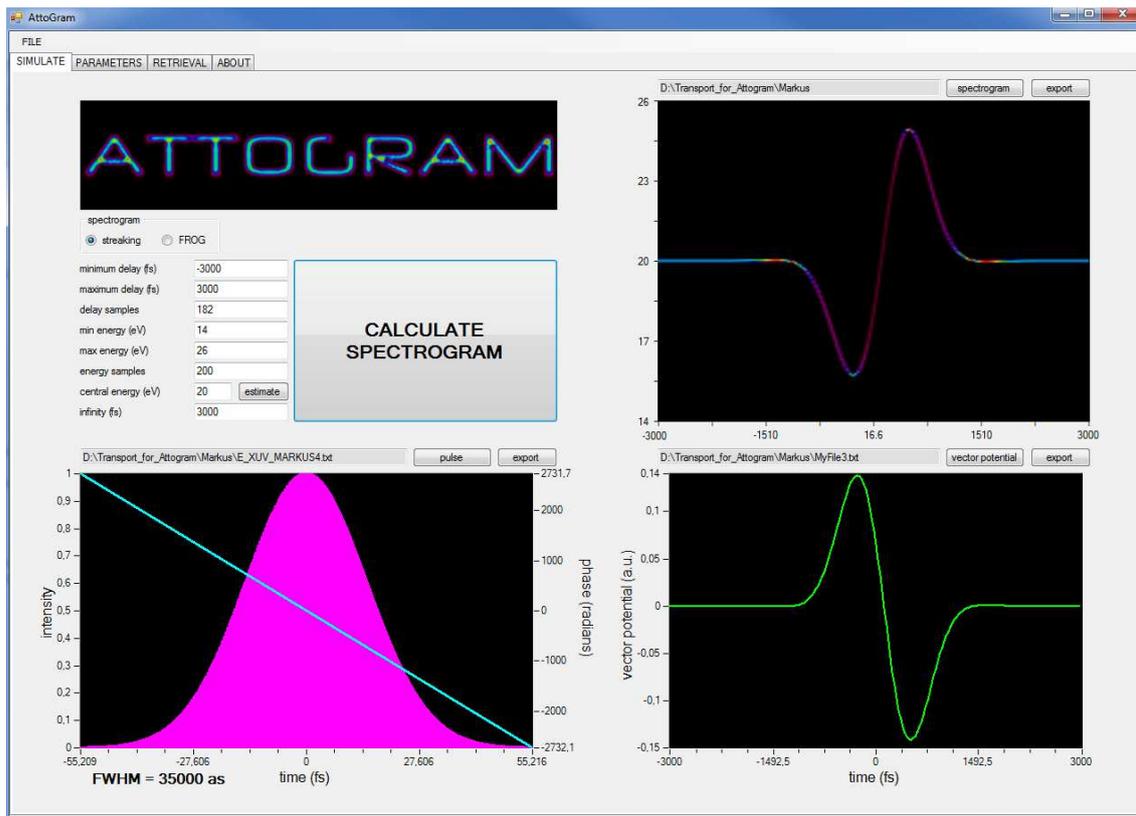
beschrieben, wobei $E_0 = 1 \frac{V}{m}$ die Amplitude, $\tau_{XUV} = 14,86 fs$ die rms-Pulsbreite, $\omega_{XUV} = 49,481 PHz$ die Frequenz der 21. Harmonischenordnung und $a_{1,2}$ ein Phasenparameter bezeichnen, wobei die Werte $a_{1,2} = 0$ für die Simulation ohne Chirp, $a_1 = \pm 0,01$ und $a_2 = 0$ für die Simulation mit linearem Chirp und $a_1 = 0$ und $a_2 = \pm 0,0001$ für die Simulation mit quadratischem Chirp genutzt wurden.

Die Ergebnisse der Simulation sind in den Abbildungen 3.6, 3.7, 3.8, 3.9 und 3.10 dargestellt. Die Verbreiterung des Spektrums ist deutlich erkennbar. Für linear gechirpte Pulse ist in einem Fall eine überproportional große Verbreiterung und im anderen Fall eine Stauchung des Spektrums erkennbar, je nachdem ob sich der Chirp des XUV Pulses und der Gradient des Vektorpotentials des THz Feldes addieren oder aufheben. Im Falle quadratisch gechirpter Pulse ist eine asymmetrische Verbreiterung erkennbar.

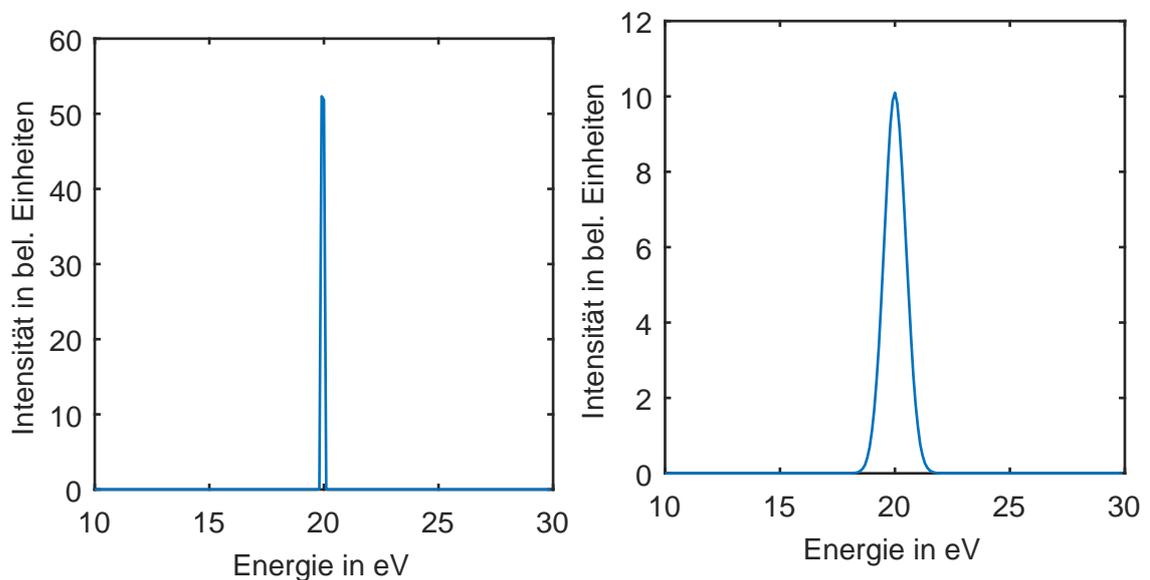
Anzumerken ist, dass das Programm Attogram keine Möglichkeit bietet, die Auflösung des Detektors in die Berechnung einzubeziehen. Für einen Puls im Bereich einer Halbwertsbreite von $35 fs$ ergibt sich ein schmales Spektrum, wie in den Darstellungen zu sehen. Die realen Spektren werden jedoch mit einer endlichen Auflösung im Bereich von wenigen hundert Millielektronenvolt aufgenommen. Das gemessene Spektrum ist entsprechend eine Faltung aus der wahren Breite und der Detektorauflösung und folglich deutlich breiter als die hier dargestellten Spektrogramme.

Eine weitere Folge der in der Simulation fehlenden Detektorauflösung ist, dass eine Rekonstruktion der XUV-Puls mit Hilfe dieses Programmes für die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen nicht möglich ist. Die gemessene Breite würde von AttoGram als deutlich kürzerer Puls als real vorhanden bestimmt werden, da die Breite des Spektrums invers zur Pulsdauer ist. Der Grund für die Nichtberücksichtigung des Auflösungsvermögens liegt im Anwendungsgebiet der Simulation. Es ist für Attosekundenanalyse mit energetisch breiten Spektren konzipiert und nicht für Femtosekundenpulse mit vergleichsweise schmalen Spektren.

Eine Rekonstruktion der Pulsdauer anhand der simulierten Spektren mit Gleichung (2.62) liefert für den Fall des ungechirpten XUV-Pulses einen Wert von $38 fs$. Die Ab-



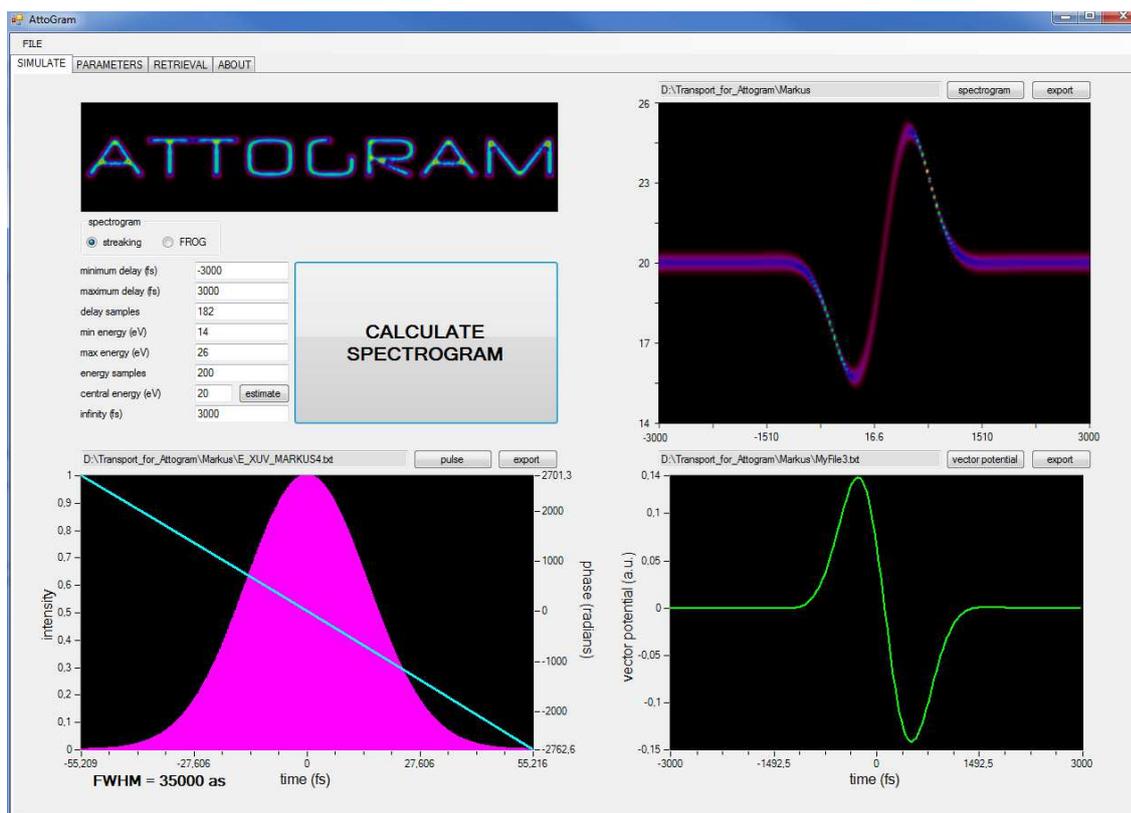
(a) Darstellung der Simulationsparameter (oben links), des XUV-Pulses (unten links) mit Phasenverlauf als blauer Linie, des THz-Vektorpotentials (unten rechts) und des erhaltenen Spektrogramms (oben rechts).



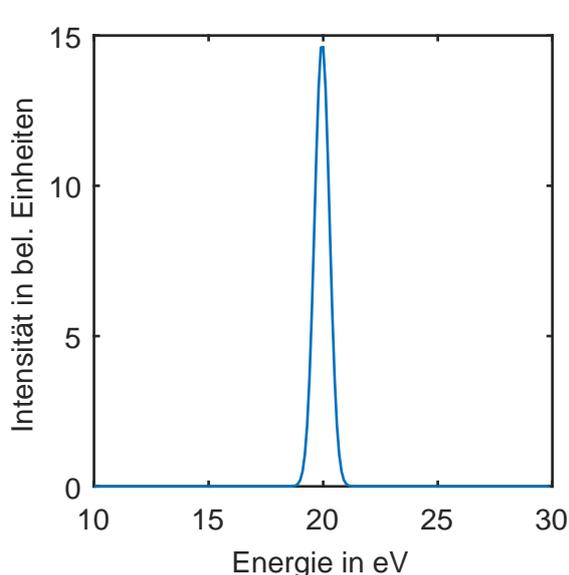
(b) Darstellung des Ausgangsspektrums

(c) Darstellung des Spektrums im Nulldurchgang

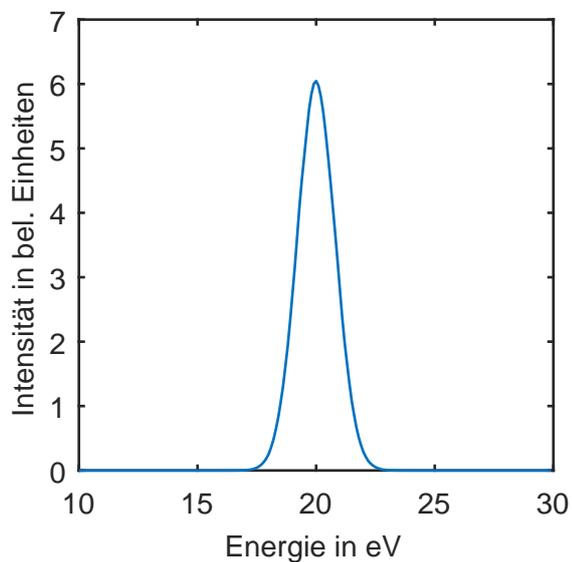
Abbildung 3.6: Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen ungechirpten XUV-Puls. Die Verbreiterung zwischen (b) und (c) ist sehr gut erkennbar. Die Form des Spektrums in (b) ist durch die Auflösungsgrenze der Simulation bestimmt.



(a) Darstellung der Simulationsparameter (oben links), des XUV-Pulses (unten links), des THz-Vektorpotentials (unten rechts) und des erhaltenen Spektrogramms (oben rechts)



(b) Darstellung des Ausgangsspektrums



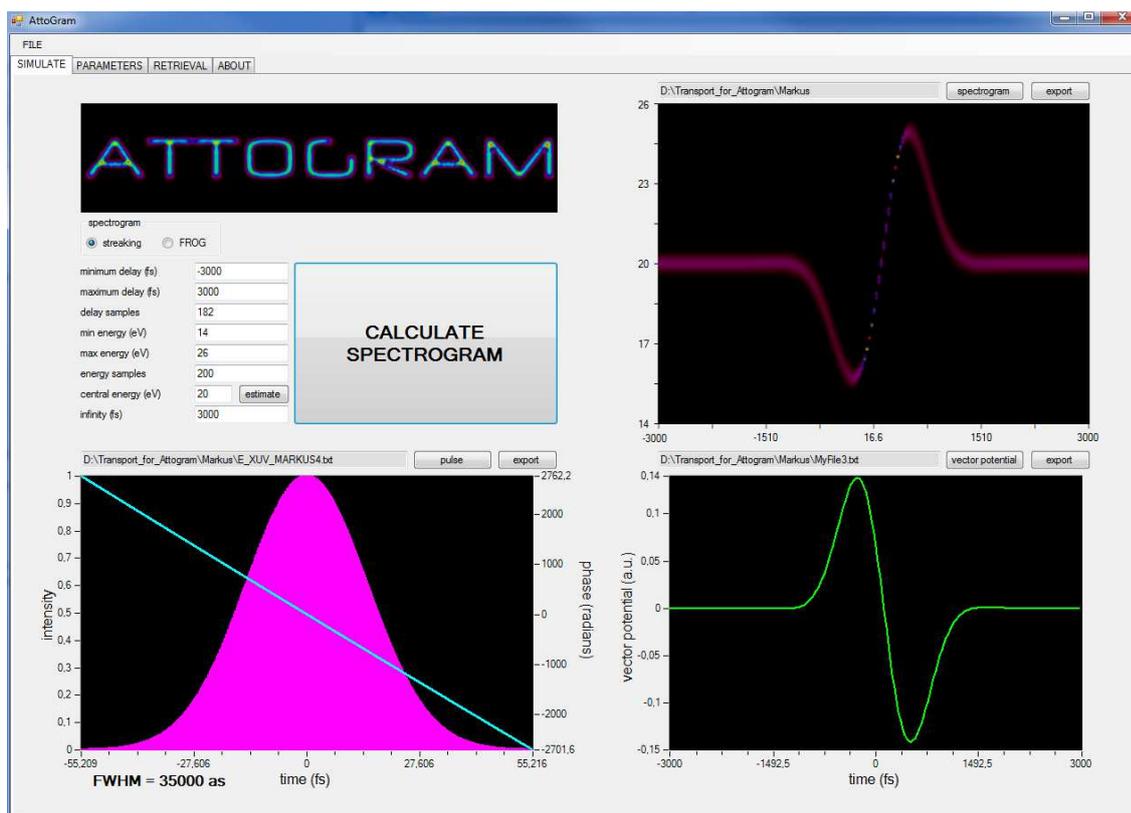
(c) Darstellung des Spektrums im Nulldurchgang

Abbildung 3.7: Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen XUV-Puls mit linear positiven Chirp. Am Farbcodem der Abbildung ist ersichtlich, dass das Spektrum in Anwesenheit des THz-Feldes an der ersten und dritten Flanke gestaucht wird.

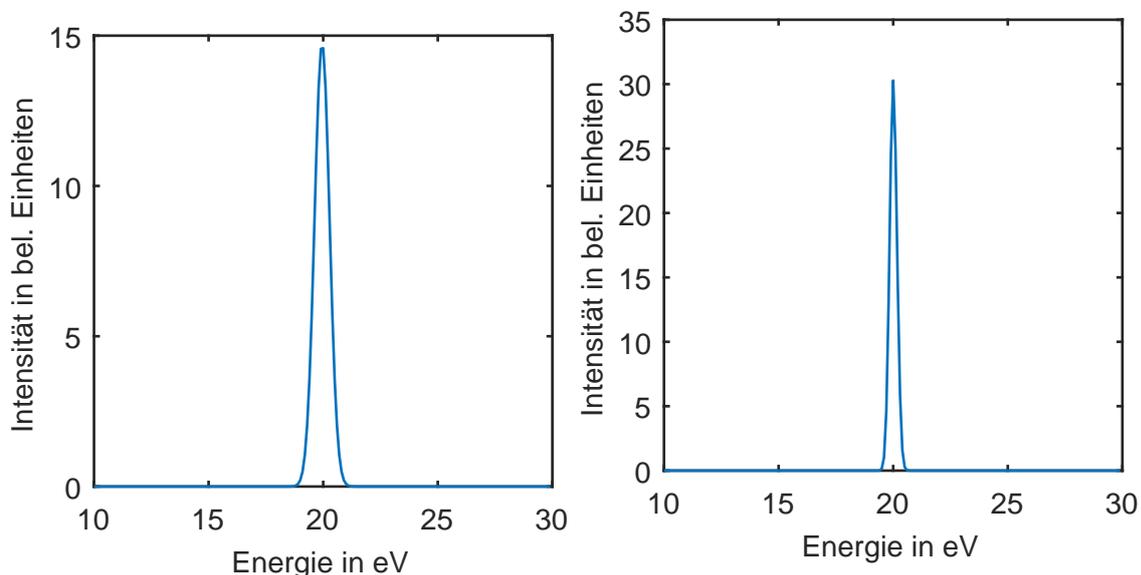
weichung zu den für die Simulation verwendeten Wert von 35 fs ergibt sich auf Grund der Auflösung des Spektrums von $0,1 \text{ eV}$, welches im Fall des ungestreakten Spektrums unzureichend ist.

Die Rekonstruktion im Fall des linear positiv gechirpten XUV-Pulses ergibt einen Wert von 58 fs für die Pulsdauer. Ursache hierfür ist das durch den Chirp verbreiterte Spektrum in der Flanke des Nulldurchgangs des THz-Vektorpotentials. Dies zeigt, dass eine Pulsrekonstruktion aus Messwerten eines Detektors im Nulldurchgang nicht ausreichend ist. Im Kapitel 6.1 wird eine weitere Möglichkeit zur Rekonstruktion der Pulsdauer und des Chirps vorgestellt. Im Fall des linear negativ gechirpten XUV-Puls ergibt die Rekonstruktion nach (2.62) kein Ergebnis, da die Breite des Spektrums im Nulldurchgang schmaler ist als das Ausgangsspektrum und somit eine unphysikalische imaginäre Pulsdauer erhalten wird. Ein derartiges Verhalten ist dadurch ein guter Indikator für das Vorhandensein eines Chirps im XUV-Puls.

Für die Rekonstruktion der Pulsdauer im Falle der quadratischen Chirps werden Werte von 35 fs erhalten. Das Auftreten des quadratischen Chirps ist in den Spektren durch die in eine Richtung verbreiterte Flanke auffällig. Anzumerken ist, dass die wie in allen Fällen verwendeten Gaussanpassungen im Falle quadratischer Chirps das Spektrum dadurch schlechter repräsentieren.



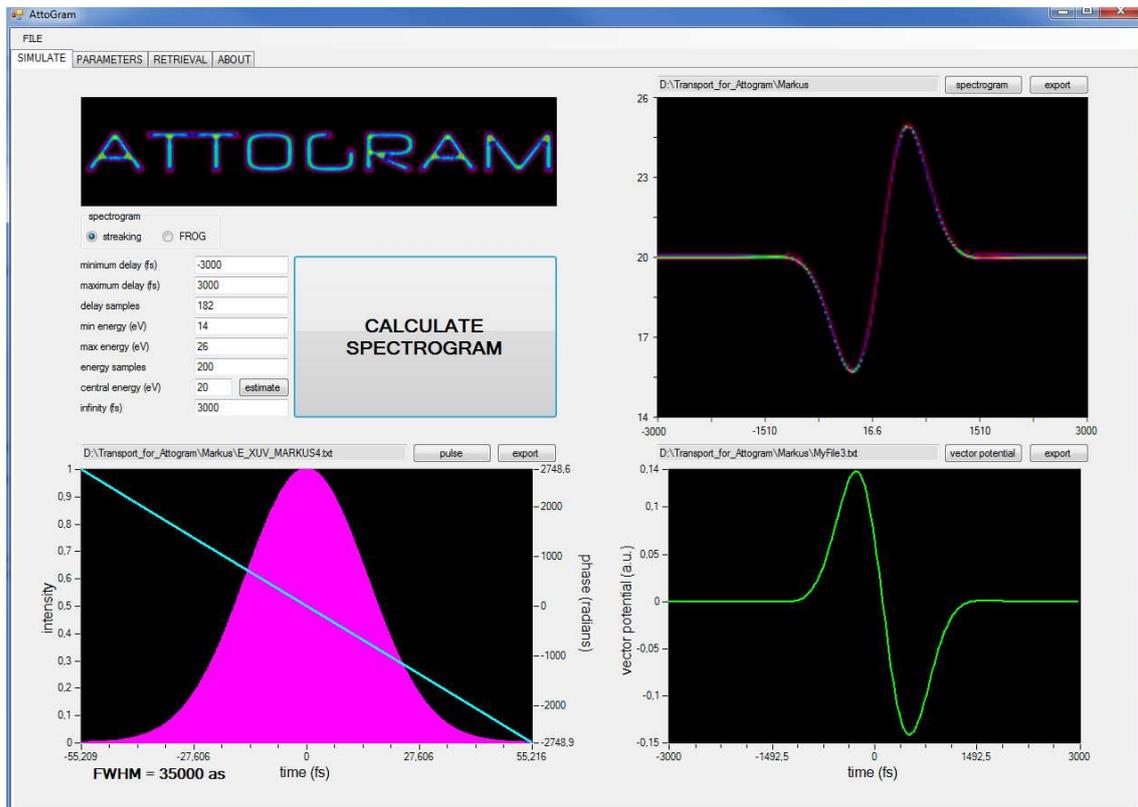
(a) Darstellung der Simulationsparameter (oben links), des XUV-Pulses (unten links), des THz-Vektorpotentials (unten rechts) und des erhaltenen Spektrogramms (oben rechts)



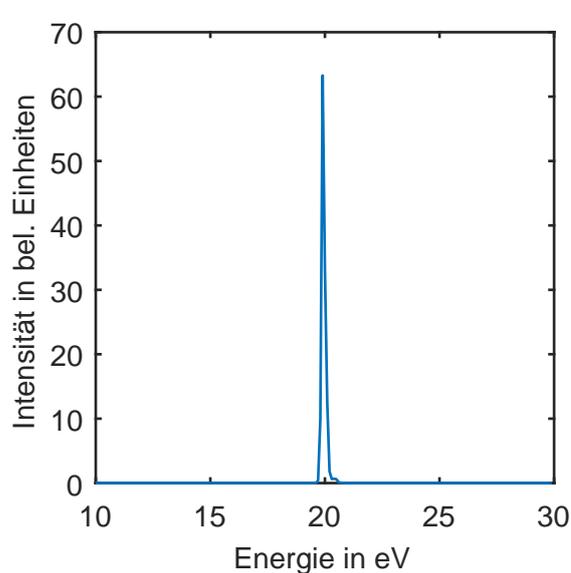
(b) Darstellung des Ausgangsspektrums

(c) Darstellung des Spektrums im Nulldurchgang

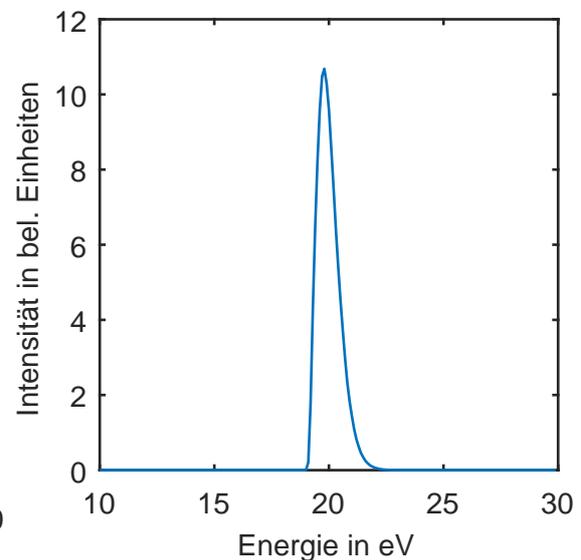
Abbildung 3.8: Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen XUV-Puls mit linear negativen Chirp. Am Farbcodem der Abbildung ist ersichtlich, dass das Spektrum in Anwesenheit des THz-Feldes an der zweiten Flanke gestaucht wird.



(a) Darstellung der Simulationsparameter (oben links), des XUV-Pulses (unten links), des THz-Vektorpotentials (unten rechts) und des erhaltenen Spektrogramms (oben rechts)

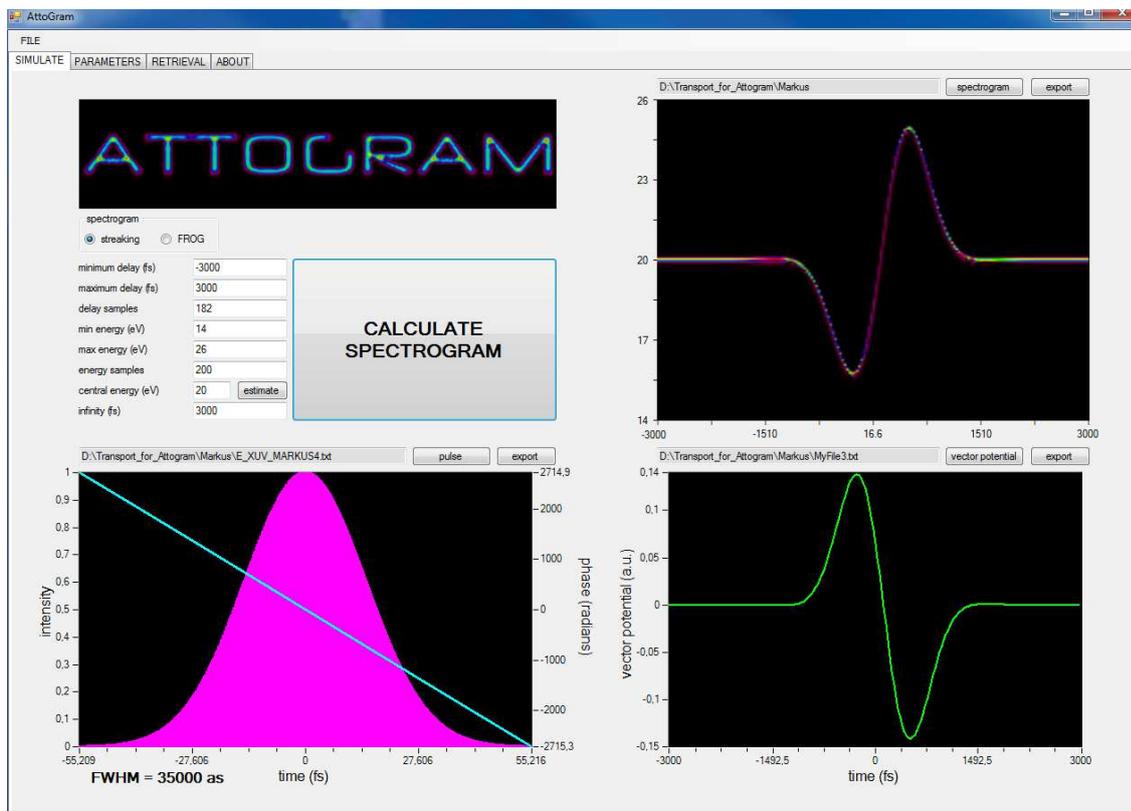


(b) Darstellung des Ausgangsspektrums

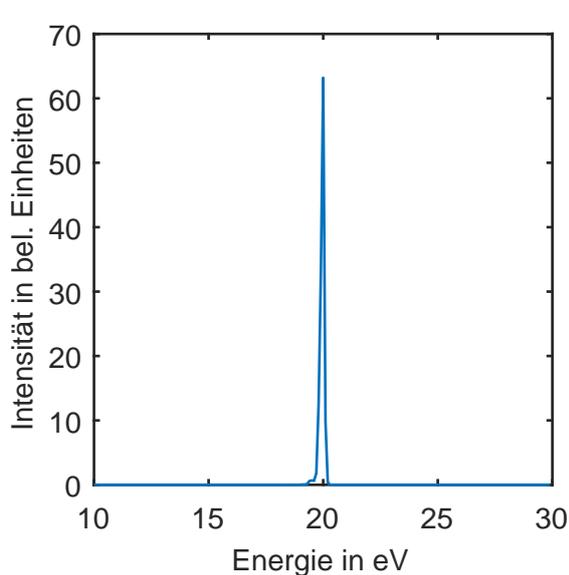


(c) Darstellung des Spektrums im Nulldurchgang

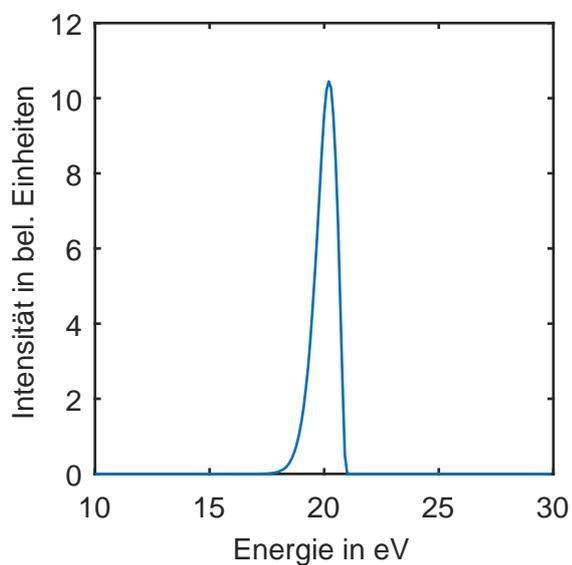
Abbildung 3.9: Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen XUV-Puls mit quadratisch positivem Chirp.



(a) Darstellung der Simulationsparameter (oben links), des XUV-Pulses (unten links), des THz-Vektorpotentials (unten rechts) und des erhaltenen Spektrogramms (oben rechts)



(b) Darstellung des Ausgangsspektrums



(c) Darstellung des Spektrums im Nulldurchgang

Abbildung 3.10: Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen XUV-Puls mit quadratisch negativem Chirp.

4 Experimenteller Aufbau

Nachdem im letzten Kapitel die theoretischen Grundlagen des Experimentes erarbeitet wurden, wird im folgenden Kapitel der experimentelle Aufbau beschrieben. Zur besseren Übersicht lässt sich, wie in Abbildung 4.1 zu sehen, der Gesamtaufbau in eine Reihe von Segmenten gliedern. Abbildung 4.2 zeigt den Gesamtaufbau des Experimentes. Es handelt sich dabei um ein System aus optischen Aufbauten und Vakuumsystemen auf einer Fläche von etwa $15\text{ m} \times 3\text{ m}$. Ausgangspunkt ist das Lasersystem (1-7), welches Strahlung für sowohl die Harmonischenquelle (8-10) als auch die THz-Quelle bereitstellt. Nach der Harmonischenquelle folgt ein quasi-pulsdauererhaltender Monochromator (11,12). Harmonischenstrahl und THz-Strahl werden in der Experimentierkammer (13) überlagert und propagieren gemeinsam durch die Wechselwirkungszone. Die hier erzeugten Elektronen werden vom Detektionssystem aufgenommen und weiter verarbeitet.

Für diese Arbeit wurde der Strahltransport des Zweiges der höheren Harmonischen vom Lasersystem bis zum Experiment entwickelt und aufgebaut. Die benötigten Vakuumkammern wurden in ein bestehendes System integriert. Neben dem Transport wurden die Frequenzkonversionen der Frequenzverdopplung und der Erzeugung der höheren Harmonischen entwickelt und aufgebaut. Ebenfalls wurde der Monochromator zur spektralen Trennung der Harmonischen entwickelt und aufgebaut und Systeme zur Überwachung und Strahldiagnostik integriert. Im Folgenden werden die einzelnen Segmente genauer erläutert.

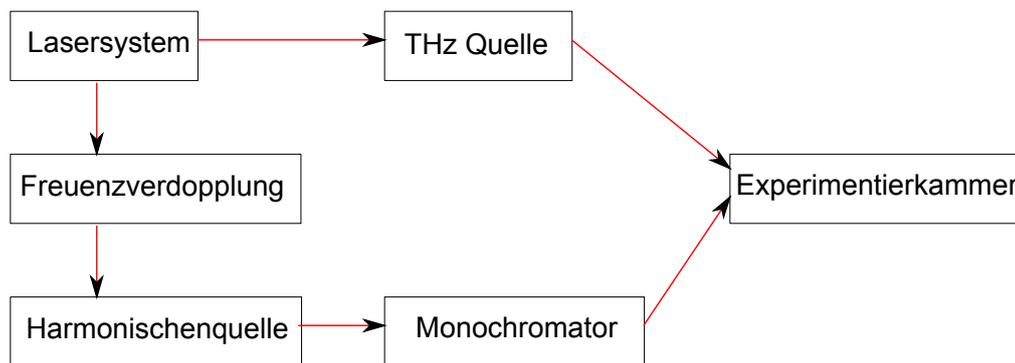


Abbildung 4.1: Gliederung des Gesamtaufbaus in Segmente. Die vorliegende Arbeit befasst sich hauptsächlich mit den Abschnitten der Harmonischenquelle und dem Monochromator, welche für diese Arbeit aufgebaut wurden.

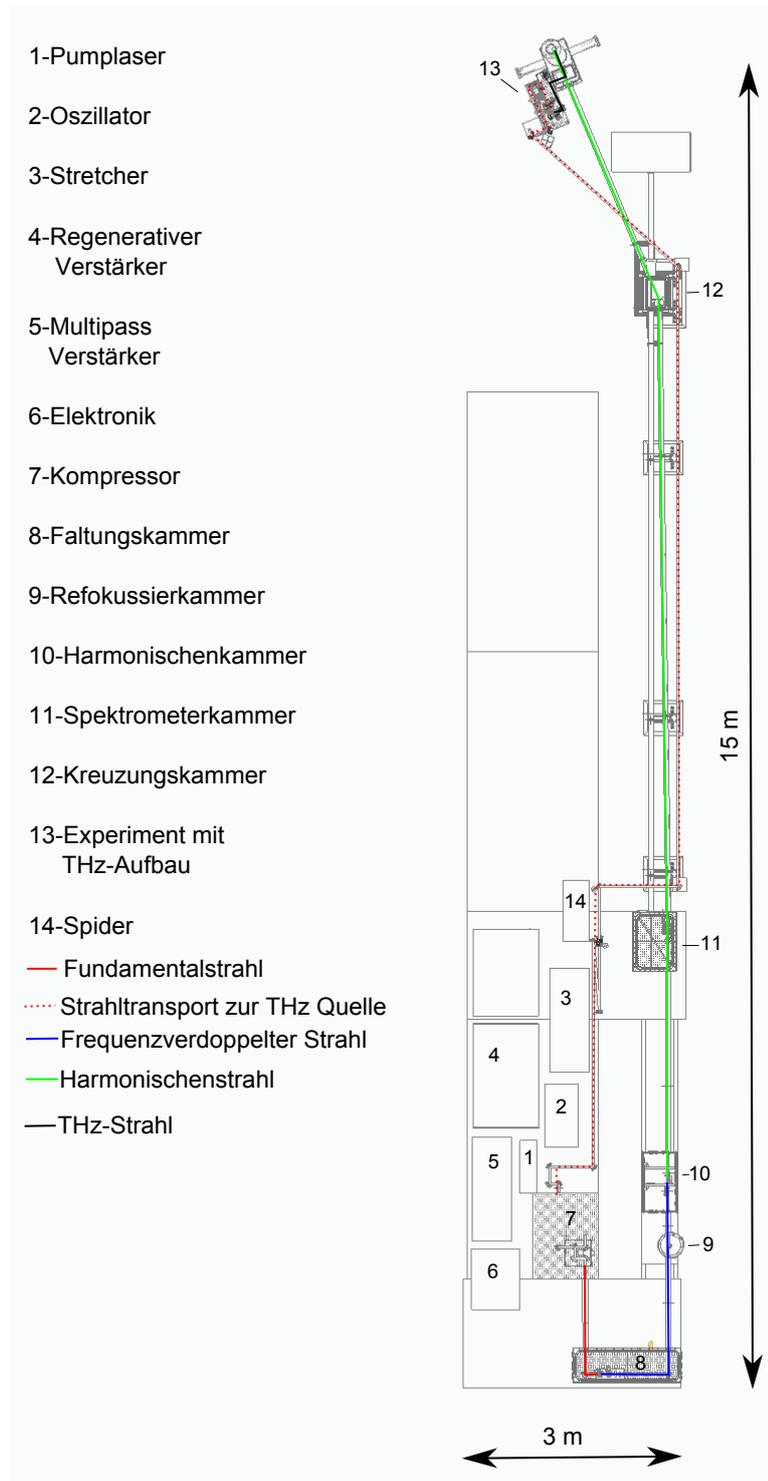


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des experimentellen Gesamtaufbaus. Ausgangspunkt ist das Lasersystem (1-7), welches die Strahlung für die Zweige der THz-Quelle und Harmonischenquelle (8-10) bereitstellt. Im Strahlzweig der Harmonischenquelle befindet sich ein Monochromator (11+12) zur Selektion der erzeugten höheren Harmonischen. In der Experimentierkammer (13) werden beide Strahlzweige kollinear überlagert und propagieren gemeinsam durch die Wechselwirkungszone. Die hier erzeugten Elektronen werden vom Detektionssystem erfasst.

4.1 Lasersystem

Im Folgenden werden die Komponenten des Lasersystems vorgestellt. Die Zahlen in Klammern geben die Referenznummer in Abbildung 4.2 an. Beim genutzten Lasersystem handelt es sich um ein kommerzielles System der Marke Pulsar der Firma Amplitude, welches die Verstärkung von geschirpten Pulsen (engl. Chirped Pulse Amplification, CPA) nutzt. Es ist schematisch in Abbildung 4.3 dargestellt. Es besteht aus einem Ti:Sa Masteroszillator (2) der Marke FEMTOSOURCE Synergy der Firma FEMTOLASER, gefolgt von einem Modul zur zeitlichen Pulsaufweitung (engl. stretcher) (3), zwei Verstärkerstufen (4, 5) und einem Gitterkompressor (7). Das Lasersystem verfügt über 2 separate Ausgänge, wobei ein Ausgang eine Repetitionsrate von 1 kHz und ein Ausgang über 25 Hz verfügt. Letzterer wurde für die Experimente der vorliegenden Arbeit genutzt. Der zur Verfügung stehende Ausgangspuls hat eine Zentralwellenlänge von 800 nm, eine Pulsdauer von 35 fs bei einer Pulsenergie von 15 mJ. Die Zentralwellenlänge kann durch Einstellungen am Mazzler, einem programmierbaren akustooptischen Modulator der Firma Fastlite zur spektralen Filterung im regenerativen Verstärker, in einem Bereich von circa 10 nm variiert werden. Durch den Dazzler, einem weiteren akustooptischen Modulator der Firma Fastlite zur Einstellung der spektralen Phase und Amplitude, in Kombination mit dem Kompressorgitter kann die Pulsdauer und der Chirp der Ausgangspulse variiert werden. Im Gitterkompressormodul befindet sich ein antireflektierend beschichteter Strahlteilerspiegel der Firma TOPAG Lasertechnik, welcher den Ausgangspuls in einem Verhältnis von 80 zu 20 für die Harmonischenerzeugung und die THz-Erzeugung aufteilt. Dabei wird der reflektierte Strahlteil für die Harmonischenerzeugung genutzt, da der transmittierte Anteil auf Grund des Durchgangs durch Material zeitlich verlängert ist und für die THz Erzeugung genutzt wird. Die Pulsdauer nach dem Strahlteiler für den transmittierten Strahlteil beträgt gemäß dem Programm vChirp, einem Programm zur Berechnung der Dispersionseigenschaften von Materialien beim Durchgang von Femtosekundenstrahlung, 43,7 fs. Zudem ist zur Pulsdiagnostik ein so genannter Spider (14) (engl. Spectral Phase Interferometry for Direct Electric Field Reconstruction) der Firma APE installiert, welcher die Phaseninformation des Ausgangspulses bestimmt, in dem der Ausgangspuls in zwei Teilstrahlen aufgeteilt wird, einem der Teilstrahlen gezielt ein Chirp aufgeprägt wird, während der zweite Strahl verzögert wird und beide anschließend wieder überlagert einen nichtlinearen Prozesses auslösen, welcher vermessen wird. Dieser Spider wird durch das Einsetzen eines Spiegelkeils in den Strahlengang im Kompressormodul vor dem Strahlteiler für die Pulsdiagnostik zugänglich und steht nicht für parasitäre Strahlüberwachung bereit.

4.2 Vakuumsystem

Der folgende Abschnitt stellt die genutzten Komponenten des Vakuumsystems vor. Die Angaben in den Klammern beziehen sich auf die Referenznummer in Abbildung 4.2.

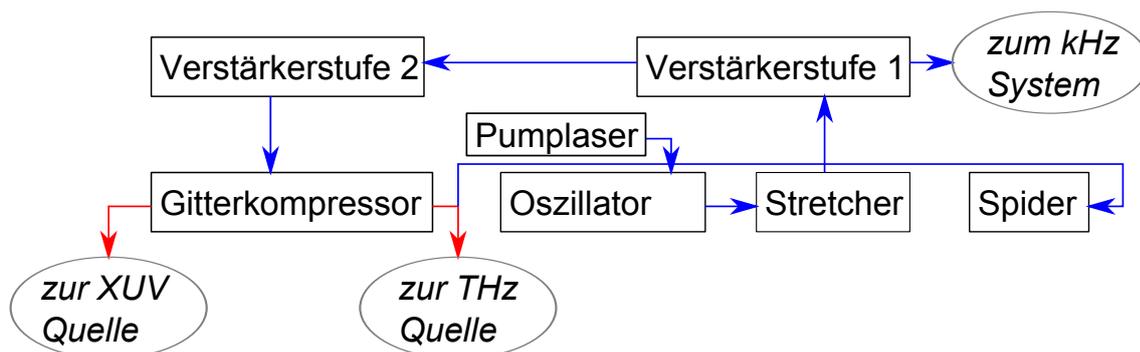


Abbildung 4.3: Schematische Darstellung des Lasersystems. Ausgangspunkt ist der Oszillator, dessen Pulse durch einen Pumplaser verstärkt werden. Anschließend propagiert der Strahl zum Stretcher, wo er durch Gitter zeitlich gedehnt wird. Dieser verlängerte Puls propagiert in die erste Verstärkerstufe und wird hier durch einen akustoptischen Modulator, welcher die Pulse für das 25 Hz und 1 kHz-System selektiert werden. Im Strahlpfad des genutzten 25 Hz-Zweiges befindet sich eine zweite Verstärkerstufe, welche den Puls blitzlampengepumpt verstärkt. Es folgt der Gitterkompressor, welcher den verlängerten und verstärkten Puls wieder zeitlich komprimiert. Im Gitterkompressormodul befindet sich ein Strahlteiler, welcher den Ausgangsstrahl für die Strahlzweige der Harmonischenquelle und THz-Quelle aufteilt. Eingezeichnet ist ebenso der Spider, welcher zur Pulsdagnostik des Ausgangsstrahls des Lasers genutzt wurde.

Der optische Aufbau von Harmonischenquelle, Monochromator und Experimentierkammer befindet sich im Vakuum. Grund hierfür ist zum einen die Dispersion der kurzen Pulse bei der Propagation durch Luft. Zum anderen würden die Harmonischenpulse auf Grund ihrer Photonenenergie im XUV-Bereich an Luft sehr schnell absorbiert werden. Auch die THz-Strahlung wird durch Wassermoleküle in der Luft absorbiert, weshalb diese ebenfalls schnell ins Vakuumsystem eingekoppelt werden sollte. Ein dritter Grund ist das Fernhalten von Staub von den Optiken, da dieser durch die hohen Intensitäten des Kurzpulslasers in die Optiken eingebrannt wird.

Die Einkopplung des Fundamentalstrahls im Zweig der höheren Harmonischenerzeugung erfolgt hinter dem Ausgang des Kompressors. Alle folgenden optischen Aufbauten befinden sich in Vakuumkammern. Diese sind durch Strahlrohre verbunden und können mit Absperrhähnen abgeriegelt werden, um ein separates Belüften und Evakuieren zu ermöglichen. Jede Vakuumkammer verfügt über eigene Turbomolekularpumpen mit teilweise gekoppelten Vorpumpen. Die Drücke in den Kammer sind geschuldet durch ihre Aufgaben im Bereich von 10^{-2} mbar bis 10^{-7} mbar.

Etwa 20 cm hinter dem Kompressor erfolgt die Einkopplung ins Vakuum durch ein 1,4 mm dickes CaF_2 -Fenster in die so genannte Faltungskammer (8). Die Pulsdauer verbreitert sich unwesentlich von 35 fs auf 35,2 fs, was mit Hilfe der im THEORIEKAPITEL beschriebenen Formeln berechnet wurde. Diese Kammer befand sich bereits vor Beginn der Arbeit im Strahlengang. In dieser Kammer befindet sich der Aufbau für die

Frequenzverdopplung. Der Druck innerhalb der Kammer liegt im 10^{-4} mbar Bereich. Die folgende Refokussierkammer (9) wird vom Strahl passiert, bevor der rückreflektierte Strahl in dieser Kammer durch einen Fokussierspiegel in die Harmonischenkammer fokussiert wird. Diese bestehende Kammer wurde für diese Arbeit in das Vakuumsystem integriert und verfügt über keine eigene Vakuumpumpe, sondern wird über die Faltungskammer evakuiert. Es folgt die Harmonischenkammer (10), in welcher die Frequenzkonversion durch die Erzeugung höherer Harmonischer stattfindet. Diese Kammer befand sich zum Beginn der Arbeit ebenfalls im Strahlengang. Die Gliederung der Kammer in Segmente ermöglicht differentielles Pumpen. Dadurch wird im Segment der Gasdüse ein Druckbereich von 10^{-2} mbar beim Anfallen großer Gaslasten erreicht, während in den benachbarten Segmenten der Druck im Bereich von 10^{-4} mbar gehalten werden kann. Auch die folgende Kammer, die Spektrometerkammer (11), befand sich zum Beginn der Arbeit im Strahlengang. Diese Kammer verfügt über ein Spektrometer zur Diagnostik der höheren Harmonischen und beinhaltet den ersten Teil des Aufbaus für den Monochromator, das Gitter und den ersten Toroidspiegel. Da in dieser Kammer ein MCP-Phosphor-Detektor betrieben wird, werden höhere Ansprüche an das Vakuum gestellt als in den Kammern zuvor. Der erreichbare Druck liegt hier im 10^{-6} mbar-Bereich. Anschließend an diese Kammer folgt das für diese Arbeit angefertigte Vakuumsystem. Es besteht aus einem etwa 7 m langem Strahlführungsrohr gefolgt von der für diese Arbeit konstruierten und angefertigten Kreuzungskammer (12), deren Halterungen von Herrn Becker entwickelt wurden. Der erreichbare Druck liegt im 10^{-7} mbar-Bereich. Diese Kammer beherbergt den 2. Toroidspiegel und gewährleistet die Kreuzung der Strahlengänge mit einem anderen, ebenfalls am 25 Hz Zweig befindlichen Experimentaufbau. Es folgt wiederum ein für diese Arbeit angefertigtes Strahlführungsrohr zur Experimentierkammer (13), welche von Herrn Karimi für [Kar19] angefertigt wurde. Der Druck in dieser Kammer wird trotz des Einbringens einer Gaslast durch insgesamt 4 Vakuumpumpen auf $3 * 10^{-4}$ mbar beschränkt, da auch in dieser Kammer MCP Detektoren betrieben werden.

Die Einkopplung des THz-Strahles ins Vakuum erfolgt direkt in die Experimentierkammer. Hierfür existiert ein Strahltransport des Fundamentalstrahls an Luft bis zur Experimentierkammer. Die THz-Erzeugung findet auf einem Modul, welches direkt an die Experimentierkammer angebaut ist, statt.

4.3 Harmonischenquelle

Die Erzeugung höherer Harmonischer erfolgt im Allgemeinen über die Fokussierung eines Kurzpulslasers in ein Wechselwirkungsvolumen, in dem als Wechselwirkungspartner Atome [CGB⁺99], Moleküle [VHM⁺01], Plasmen [GBSK05] oder Festkörper [GDS⁺11] bereitgestellt werden. Es gibt verschiedene Ansätze das Wechselwirkungsvolumen und damit die aktive Länge des Mediums zu beschränken, wobei insbesondere Gaszellen

[TIN⁺99], gepulste Düsen [WTY⁺11] und Hohlfasern [HBK⁺09] Anwendung finden. Ein weiteres Unterscheidungsmerkmal von Harmonischenquellen ist die Art der Fokussierung, wobei zwischen langer [KDW⁺03] und kurzer [RKH⁺14] Fokussierung unterschieden wird. Je nach Anwendung und zur Verfügung stehender Laserquelle kann auf eine große Varietät von Harmonischenquellen zurückgegriffen werden. Zur Bereitstellung des Mediums wurde sich in diesem Experiment für die Nutzung einer gepulsten Düse mit verschiedenen Kapillaren zur Einstellung der Länge des Mediums entschieden.

Für das vorliegende Experiment wurde der Ansatz eines Zwei-Farben-Erzeugungsschemas [KLP⁺08] [KKK⁺05] gewählt. Dabei wird im ersten Schritt die zweite Harmonische (im Folgenden als SH für engl. second harmonic bzw. SHG für engl. second harmonic generation bezeichnet) des Fundamentalstrahls erzeugt und anschließend werden sowohl Fundamental- als auch SH-Strahl in die Wechselwirkungszone der höheren Harmonischenerzeugung fokussiert. Der Vorteil dieses Schemas gegenüber einer Erzeugung der höheren Harmonischen mit ausschließlich dem Fundamentalstrahl ist das Auftreten der geraden Harmonischenordnungen und einer potentiell höheren Erzeugungseffizienz [LKSW06]. Das Auftreten der geraden Harmonischen verdoppelt die Anzahl potentiell erreichbarer Atom- und Molekülübergänge. Der Nachteil dieses Erzeugungsschemas ist ein vergrößerter Parameterraum zur Erfüllung der Phasenanpassung und damit gestiegene Anforderungen zur Gewährleistung eines stabilen Experimentbetriebes.

Im Folgenden wird zuerst der Aufbau zur Frequenzverdopplung erläutert bevor im zweiten Abschnitt der Aufbau zur Erzeugung der höheren Harmonischen vorgestellt wird.

Frequenzverdopplung

Für die Erzeugung der zweiten Harmonischen wird die Frequenzverdopplung in einem Beta-Bariumborat Kristall Typ II ($Ba(BO_2)_2$, im Folgenden mit BBO abgekürzt) genutzt. Dieser ist um die Strahlachse rotierbar gelagert, um die Phasenanpassung zwischen Fundamental- und zweiter Harmonischer zu variieren. Dadurch wird das Verhältnis der Intensitäten zwischen 800 nm und 400 nm variiert, welches einen wichtigen Aspekt der Phasenanpassung für die Erzeugung der höheren Harmonischen darstellt. Da die zweite Harmonische orthogonal zur Fundamentalen polarisiert ist, wird eine Wellenplatte genutzt, welche die Polarisation beider Strahlen wieder parallelisiert. Auf Grund der Brechzahlunterschiede für Fundamental- und Harmonischenstrahl beim Durchlaufen der transmittiven Optiken entsteht ein zeitlicher Versatz zwischen den beiden Pulsen, wobei der 800 nm -Puls dem 400 nm -Puls voraus eilt, da die Dispersion im Kristall für beide Wellenlängen leicht verschieden ist. Dieser wird durch eine Kalzitplatte, welche sich um eine horizontale Achse senkrecht zur Laserausbreitungsrichtung kippen lässt, korrigiert. Für die zeitliche Phasenanpassung zwischen beiden Strahlen wird zu dem ein rotierbar gelagertes Glasplättchen genutzt. Abbildung 4.4 zeigt schematisch den Aufbau zur Erzeugung der zweiten Harmonischen und Tabelle 4.1 fasst die Werte des Zeitver-

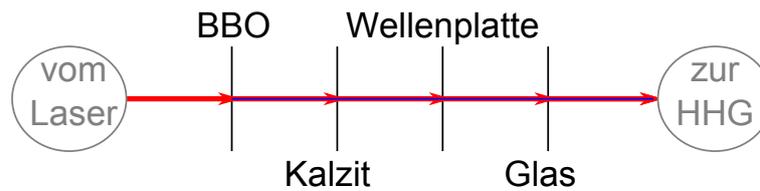


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Frequenzverdopplung. Der Fundamentalpuls wird mit Hilfe eines BBO-Kristalls frequenzverdoppelt, dieser Kristall ist um die Strahlachse rotierend gelagert, um das Verhältnis der Intensitäten zwischen beiden Pulsen einstellen zu können. Der frequenzverdoppelte Puls ist orthogonal polarisiert und zeitlich verschoben zum Fundamentalpuls. Der zeitliche Versatz wird durch einen Kalzitkristall kompensiert, welcher um die Polarisationsachse rotierbar gelagert ist. Die Polarisation wird durch eine Wellenplatte, welche die Polarisation des Fundamentalpulses um $\lambda/2$ und die des frequenzverdoppelten Pulses um λ dreht, kompensiert. Zur Phasenfeinabstimmung befindet sich ein Glasplättchen im Strahl, welches um eine Achse senkrecht zur Polarisation und Ausbreitungsrichtung gedreht werden kann.

satzes und die Auswirkung auf die Pulsdauern zusammen. Dieser Aufbau wurde für die vorliegende Arbeit entwickelt, aufgebaut und optimiert.

BBO

Der verwendete BBO-Kristall der Firma Eksma Optics weist einen Schnittwinkel von $29,2^\circ$ bezüglich der optischen Achse, eine Dicke von $0,1 \text{ mm}$ und eine beidseitige Beschichtung mit einer Reflektivität von etwa 3% für 800 nm und 400 nm auf. Mit Hilfe des Programms SNLO, einem Programm zur Berechnung der linearen und nichtlinearen optischen Eigenschaften eines Kristalls und der Funktion "Plane-wave short-pulse mixing" wurde der Zeitversatz zwischen dem einfallenden 800 nm Puls und dem im BBO generierten zweiten Harmonischenpuls zu $13,7 \text{ fs}$ bestimmt und in Abbildung 4.5 dargestellt. Aus der Simulation können ebenso die Pulsdauern mit 35 fs für den Fundamentalstrahl und 25 fs für die zweite Harmonische bestimmt werden. Dies weist darauf hin, dass die Erzeugung der Frequenzverdopplung nicht in Sättigung erfolgt, da in Sättigung die Pulsdauern des Fundamental- und Harmonischenpulses übereinstimmen.

Zur Optimierung der Erzeugungseffizienz der zweiten Harmonischen muss die Intensität des Fundamentalstrahls im BBO nahe an dessen Zerstörschwelle, welche vom Hersteller mit 200 GW/cm^2 für 50 fs Pulse angegeben wird, eingestellt werden. Erfahrungswerte innerhalb der Arbeitsgruppe zeigen, dass dieser Wert konservativ abgeschätzt ist. Beim vorliegenden Experiment wird mit einer Größe von $6,7 \text{ mm} \frac{1}{2}$ Strahlradius, 35 fs Pulsdauer und einer Pulsenergie von bis zu 12 mJ eine Intensität von 454 GW/cm^2 erreicht. Der BBO wurde dadurch nicht zerstört, jedoch sind nach 3 Jahren Nutzung Schäden an der Beschichtung zu erkennen.

Bei einer Pulsenergie von $8,8 \text{ mJ}$ (entsprechend einer Intensität von 333 GW/cm^2) wurde eine Kalibration der Erzeugungseffizienz gegenüber dem Drehwinkel des BBOs

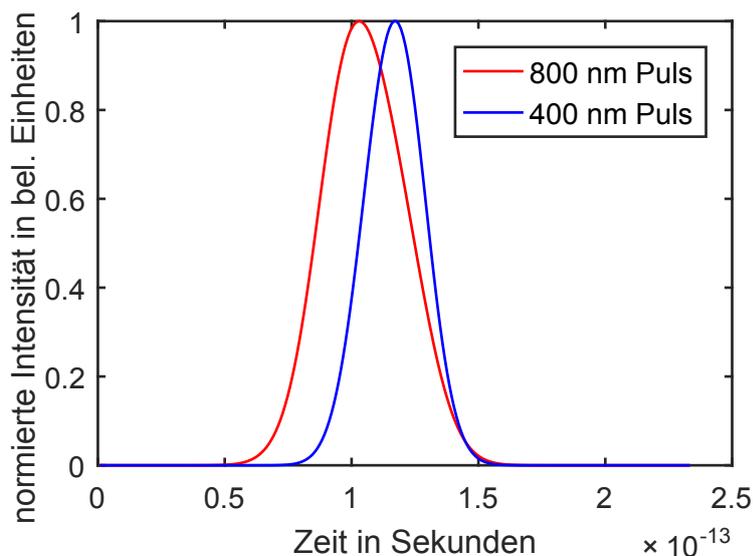


Abbildung 4.5: Darstellung des mit SNLO berechneten Zeitversatzes und der Pulsdauer von Fundamental- und zweitem Harmonischenpuls. Der Fundamentalstrahl eilt dem frequenzverdoppelten Strahl voraus. Die Intensitäten der beiden Strahlen sind zur besseren Darstellung des Zeitversatzes auf 1 normiert.

durchgeführt, siehe Abbildung 4.6. Dabei wurden Fundamental- und SH-Strahl mit Hilfe zweier Mehrlagenspiegel der Firma Eksma Optics, welche eine Transmission von über 99% für den Wellenlängenbereich um 800 nm und eine Reflexion von über 99% für den Wellenlängenbereich um 400 nm aufweisen, genutzt. Der transmittierte Strahlanteil wurde mit einem Field Max II-Top Leistungsmessgerät von Coherent und der reflektierte Anteil mit einem PM100A Leistungsmessgerät und dem Messkopf S350C von Thorlabs detektiert. Es handelt sich in beiden Fällen um thermische Messungen. Die maximal gemessene Erzeugungseffizienz beträgt 14,4% bezogen auf die Gesamtpulsenergie vor dem BBO.

Kalzit

Bei der Kalzitplatte handelt es sich um einen uniaxialen CaCO_3 -Kristall der Firma Eksma Optics. Sie wird für einen Zeitunterschied von 676 fs spezifiziert. Es handelt sich um einen Kristall mit 21 mm x 19 mm x 3 mm und einem Schnittwinkel von 55° bezüglich der optischen Achse. Der Kristall ist mit einer Beschichtung versehen, welche für 800 nm und 400 nm eine Reflektivität von etwa 3% aufweist. Der Zeitversatz zwischen 800 nm und 400 nm Pulsen wird bestimmt durch die ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindizes in Abhängigkeit vom Drehwinkel des Kristalls. Dies ist möglich, da der Fundamental- und zweite Harmonischenstrahl orthogonal zueinander polarisiert sind. Im Bereich der Überlagerung beider Pulse kann die Abhängigkeit des Zeitversatzes vom Drehwinkel als linear angesehen werden und entspricht 26,7 fs/°. Die Berechnung er-

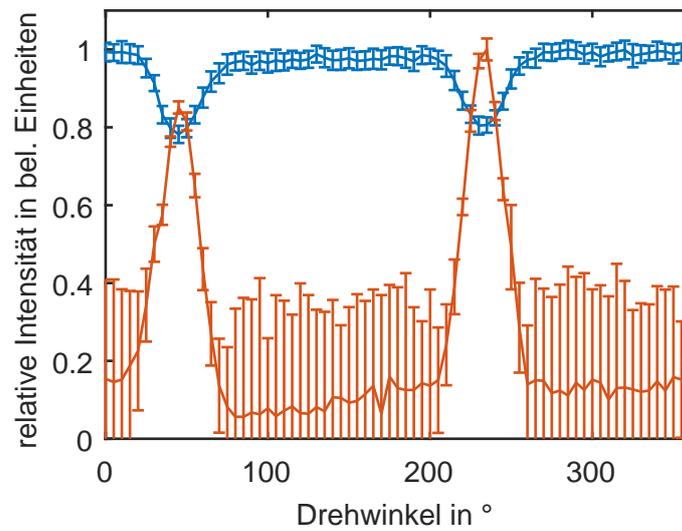


Abbildung 4.6: Darstellung der relativen Intensitäten von Fundamental (blau)- und zweitem Harmonischenpuls (rot). Es ergeben sich 2 Regionen, an welcher die Frequenzverdopplung auftritt. Die Intensitäten sind zur besseren Darstellung auf sich selbst normiert. Die Fehler der Intensität des Fundamentalstrahls ergeben sich aus der Mittelung der Messung über 200 Einzelschüsse. Die Fehler für den SH-Strahl ergeben sich aus Mittelung der gemessenen Minimal- und Maximalwerte, da vom Messgerät keine zeitliche Mittelung angeboten wird. Für kleine Messwerte nahe Null wird die Schwankung des Messwertes des Thermomesskopfes überrepräsentiert.

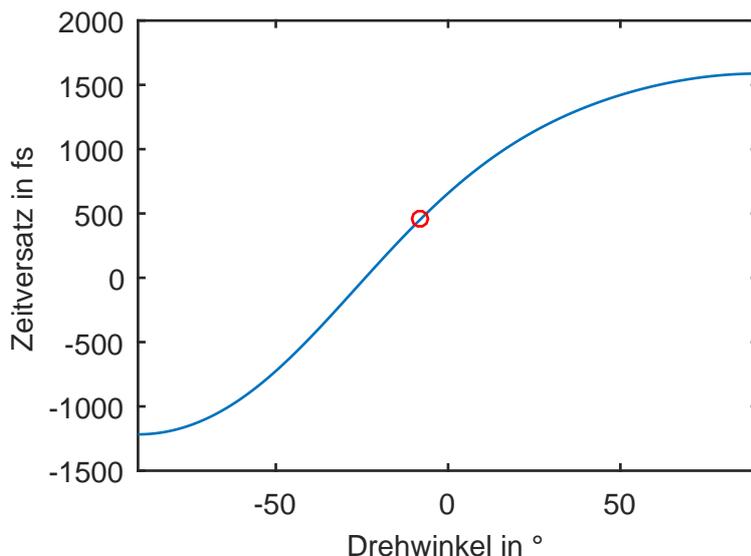


Abbildung 4.7: Darstellung des Zeitversatzes von Fundamental- und zweitem Harmonischenpuls. Die hervorgehobene Stelle markiert den Drehwinkel -8° der Kalzitplatte bezüglich der Polarisationsachse des Fundamentalstrahls, für welchen beide Pulse keinen Versatz aufweisen. In diesem Bereich kann die Änderung des Zeitversatzes mit dem Drehwinkel als linear angesehen werden.

folgt in Anlehnung an [Enq04].

Die Pulsdauern beim Durchgang durch die Kalzitplatte bleiben nahezu konstant. Für den 800 nm -Puls ergibt sich eine Verlängerung um $0,04\text{ fs}$ und für den 400 nm -Puls um $0,37\text{ fs}$ und kann im Rahmen dieser Arbeit vernachlässigt werden.

Wellenplatte

Die Wellenplatte ist ein Produkt der Firma Eksma Optics und besteht aus 2 Quarzplatten, welche 90° bezüglich der optischen Achse zueinander verdreht sind. Die Dicke einer einzelnen Quarzplatte beträgt $0,94\text{ mm}$. Es ergibt sich ein Zeitversatz von 351 fs zwischen 800 nm und 400 nm Puls. Beim Durchgang durch die Wellenplatte wird die Pulsdauer des 800 nm -Pulses unwesentlich verändert und der 400 nm -Puls wird auf $28,5\text{ fs}$ verlängert. Die Quarzplatte dreht die Polarisation des 800 nm Strahls um $\lambda/2$ und die des 400 nm Strahls um λ , so dass hinter der Wellenplatte beide Strahlen die gleiche Polarisation aufweisen.

Glasplättchen

Beim Glasplättchen handelt es sich um ein $N - BK7$ Fenster mit 30 mm Durchmesser, $0,2\text{ mm}$ Dicke und MgF_2 Beschichtung der Firma Edmund Optics. Das Glasplättchen trägt mit $90,8\text{ fs}$ zum Zeitversatz zwischen Fundamental- und zweitem Harmonischenpuls bei. Die Pulsdauer beider Pulse bleibt quasi unverändert. Während mit der Kalzitplatte

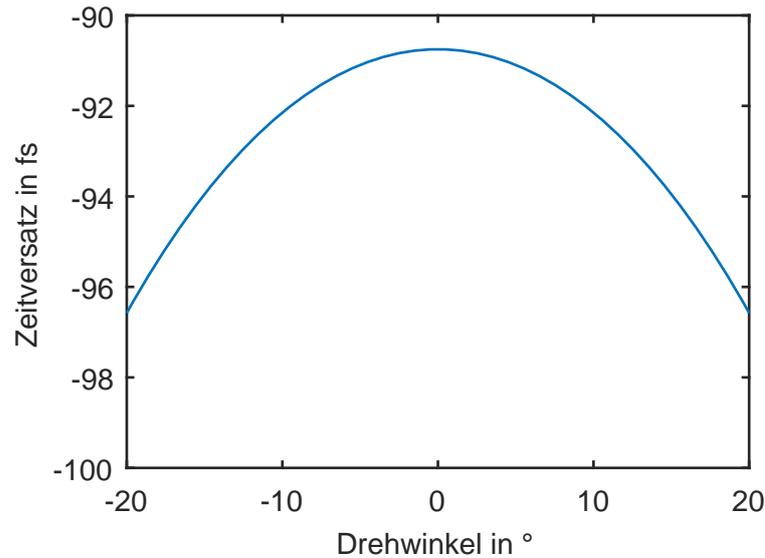


Abbildung 4.8: Darstellung des Zeitversatzes von Fundamental- und zweitem Harmonischenpuls durch das Glasplättchen. Der Zeitversatz ist unabhängig vom Vorzeichen des Drehwinkels, da die Brechungsindizes beider Pulse nicht winkelabhängig sind. Die Verzögerung ergibt sich lediglich auf Grund der geänderten Dicke des transmittierenden Materials.

optisches Element	Zeitversatz in fs	Pulsdauer 800 nm in fs	Pulsdauer 400 nm in fs
BBO	14	35	25
Kalzit	-1500 bis 1000	35	25
Wellenplatte	351	35	28
Glassplatte	91	35	29

Tabelle 4.1: Zusammenfassung der Werte des Zeitversatzes und die Auswirkung auf die Pulsdauern des Aufbaus zur Frequenzverdopplung. Die Werte wurden anhand der Gleichungen in Kapitel 2.1.2 berechnet.

der grobe zeitliche Überlapp eingestellt wird, eignet sich das Glasplättchen zur Feinabstimmung des Zeitversatzes, da hier eine Änderung von 1° einer zeitlichen Änderung von unter $1 fs$ entspricht. Die Abhängigkeit des Zeitversatzes vom Drehwinkel ist in Abbildung 4.8 dargestellt.

Erzeugung höherer Harmonischer

Als Quelle für die ionisierende Strahlung wird in dieser Arbeit die Erzeugung höherer Harmonischer genutzt. Eine schematische Darstellung ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Dabei ist das Ziel Harmonischenordnungen im Bereich der 32. bis 34. Ordnung zu erzeugen, da diese für die Untersuchung von Iodmethan benötigt werden. Jedoch wird auch Wert auf die Möglichkeit gelegt, die Quelle mit einfachen Anpassungen für einen breiten Spektralbereich nutzbar zu machen, um den Monochromator als Instrument für breitbandige Anwendungen nutzbar zu machen. Für die Erzeugung der höheren Har-

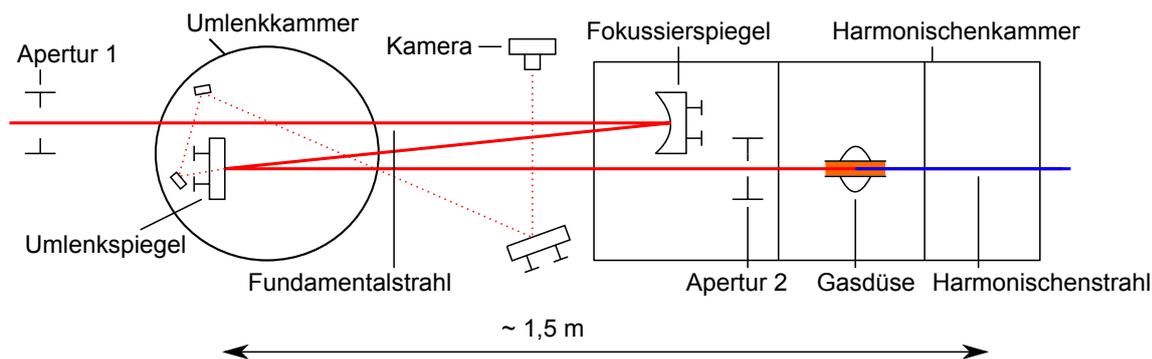


Abbildung 4.9: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Erzeugung höherer Harmonischer. Der einlaufende Strahl (von links) passiert die runde Umlenkammer und wird mit Hilfe eines Spiegels in der Kammer zur Harmonischenerzeugung in Richtung Umlenkammer fokussiert. Ein Umlenkspiegel, dessen transmittierter Strahl als Strahlmonitor genutzt wird, reflektiert den Strahl zurück in die Wechselwirkungszone (2. Segment der Harmonischenkammer). Der hier erzeugte Harmonischenstrahl propagiert weiter in Richtung Monochromator.

monischen wird der Fundamental- und SH-Strahl mit Hilfe eines Spiegels in ein Gasvolumen, welches durch eine gepulste Düse der Firma Parker, fokussiert. Für die Phasenanpassung zwischen Erzeugenden- und höheren Harmonischenpulsen sind neben den Parametern der SHG experimentell die Parameter Fokussierung, Gasart, Druck und Wechselwirkungslänge zugänglich. Es wurden höhere Harmonische mit verschiedenen Kombinationen von Fokussierung (3 m, 2 m und 1,5 m), Gasart (Helium, Neon, Argon, Krypton, Xenon), Druck (bis 5 bar) und Wechselwirkungslänge (wenige Millimeter bis 8 cm) erzeugt. Alle Komponenten der Harmonischenquelle wurden für diese Arbeit mit Hilfe von Thomas Gebert entwickelt, aufgebaut und optimiert.

Nach mehreren Optimierungsschritten wurde eine Fokallänge von 1,5 m, eine Wechselwirkungslänge von 5 cm mit Neon als Wechselwirkungsgas gewählt. Die Fokussierung liefert rechnerisch eine Strahlgröße von $57 \mu\text{m}$ für den $1/e^2$ -Strahlradius. Mit einer angenommenen Pulsenergie von 9 mJ ergibt sich eine Spitzenintensität von bis zu $4,7 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Dies ist etwa um einen Faktor 2 größer als [FFLH⁺10] angeben. Anzumerken ist jedoch, dass es sich bei den so berechneten Werten um eine idealisierte Modellrechnung handelt und die realen Werte unterhalb dieser Obergrenze sind, da beispielsweise die Strahlqualität außer Acht gelassen wird. Zu dem kann durch ein Schließen der Blende vor der Fokussierung die Intensität im Fokus beliebig verringert werden. Eine exemplarische Messung der Fokusgröße mit Hilfe des Strahlmonitors, welcher den transmittierten, fokussierten Strahlteil des Umlenkspiegels der Refokussierkammer nutzt, lieferte eine Halbwertsbreite der Strahlgröße von $(159 \pm 2) \mu\text{m}$ in horizontaler und $(180 \pm 3) \mu\text{m}$ in vertikaler Richtung, was einer resultierenden Intensität von $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ entspricht und damit im Intensitätsbereich den [RKH⁺14] angeben liegt.

Die gewählte Kombination lieferte eine gute Konversionseffizienz für ein breites Har-

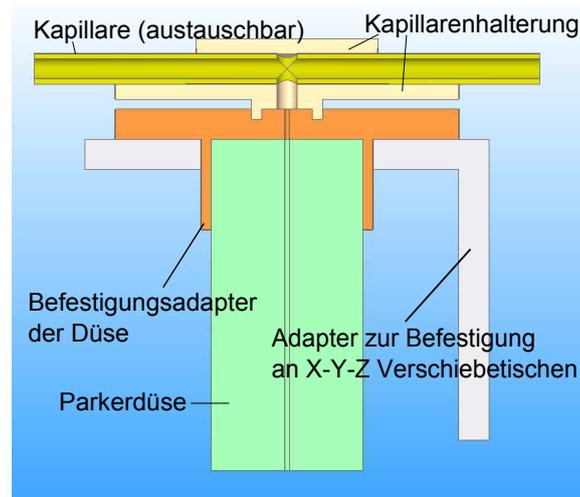


Abbildung 4.10: Schematische Darstellung des Aufbaus der Düse zur Bereitstellung der Gase für die Harmonischenerzeugung. Das Gas wird über eine Düse (grün) in eine Metallkapillare geleitet (gelb). Diese kann das Gas nur durch die Öffnungen in Strahlrichtung verlassen, so dass sich im Inneren der Kapillare ein hoher Druck über ein langes Volumen ausbreitet. Der Fundamentalstrahl propagiert durch diese Kapillare und erzeugt dabei die höheren Harmonischen

monischenspektrum zwischen 20. und 40. Ordnung. Mit Hilfe einer Blende vor dem Fokussierspiegel kann die Phasenanpassung der höheren Harmonischen zusätzlich optimiert werden. Die Blende beeinflusst zum einen die zur Verfügung stehende Pulsenergie, da Teile vom Strahl abgeschnitten werden. Zum anderen ändert eine zugezogene Blende die Fokusgröße und damit das Wechselwirkungsvolumen und die Intensität. Ein weiterer Effekt ist das Unterdrücken von Inhomogenitäten am Rand des Strahlprofils. Indirekt wird zu dem die Gouyphase beeinflusst. Das Gasvolumen befindet sich in einem Röhrchen, durch dessen lange Achse der Laserstrahl propagiert, siehe Abbildung 4.10. Diese Konfiguration bietet den Vorteil, dass eine hohe Gasdichte und lange Wechselwirkungszone realisiert werden können. Der Nachteil ist, dass innerhalb des Röhrchens unkontrollierbare Dichtefluktuationen auftreten können, welche die Phasenanpassung beeinflussen.

4.4 Monochromator

Zur spektralen Trennung der höheren Harmonischen wurde für diese Arbeit ein Einzelgittermonochromator entwickelt und aufgebaut. Der schematische Aufbau des Monochromators ist in Abbildung 4.11 dargestellt. Der Monochromator besteht aus einem Gitter und zwei Toroidspiegeln zur Fokussierung des XUV-Strahls in die Wechselwirkungszone des Experimentes. Vor dem Gitter befinden sich eine Blende und ein variabler Spalt. Die Blende verhindert ein Ausleuchten der Randbereiche des Gitters für den Fundamentalstrahl, da dies zu einer Beeinträchtigung des Fokus des Fundamentalstrahls

führt. Der Spalt definiert die vertikale Ausleuchtung des Gitters und dadurch die Anzahl der beleuchteten Spalte und darüber den Einfluss des Gitters auf die Pulsdauer. In einem Abstand von 20cm vor dem Fokus der höheren Harmonischen befindet sich eine Kombination aus Rasierklingen, mit Hilfe derer benachbarte Harmonische abgedeckt werden.

Beim Gitter handelt es sich um ein so genanntes Blazegitter mit einem Blaze-Winkel von $1,6^\circ$ zur Steigerung der Beugungseffizienz und einer Liniendichte von $246,16$ Linien/mm mit Aluminiumbeschichtung. Das Gitter wird nicht in der klassischen Orientierung, bei der die Gitterlinien senkrecht zur Strahlachse stehen, sondern konisch (im Englischen als „conical mount“ oder „off-plane-mount“ bezeichnet), also mit Gitterlinien parallel zur Strahlachse, verwendet. Ein Strahl mit einem Durchmesser von 1 mm leuchtet bei der gegebenen Gitterkonstanten 246 Spalte aus. Bei einem streifenden Lichteinfall mit $7,2^\circ$ zur Oberfläche wird eine Fläche von etwa 8 mm ausgeleuchtet. Stehen die Gitterlinien wie im klassischen Einbau senkrecht zur Ausbreitungsrichtung, folgt damit eine Anzahl ausgeleuchteter Spalte von 1964 . Sind die Gitterlinien parallel zur Ausbreitungsrichtung, ändert sich die Anzahl der ausgeleuchteten Spalte nicht. Die Nutzung eines Gitters in klassischer Geometrie mit weniger Spalten ist nicht möglich, da eine derart gering benötigte Anzahl von Spalten auf großer Fläche für ein Blazegitter technisch nicht verfügbar ist und eine Sonderanfertigung den finanziellen Rahmen bei weitem übersteigt.

Das Gitter befindet sich in einer Halterung auf einem GON40-L Goniometer der Firma Newport. Das Goniometer ermöglicht es, die Harmonischenordnungen in der Wechselwirkungszone auszuwählen, in dem das Gitter um die Ausbreitungsrichtung des Harmonischenstrahls gekippt wird. Das Goniometer wiederum befindet sich auf einem M-481-A-S Rotationstisch, ebenfalls vom Hersteller Newport. Der Rotationstisch ermöglicht die Einstellung des Einfallswinkels auf das Gitter.

Die verwendeten Toroide der Firma Pilz-Optics sind identisch und haben Radien von 20000 mm transversal und 1000 mm longitudinal. Sie sind mit einer Borcarbid (B_4C)-Beschichtung versehen. Als Justierhilfe werden die 9081-M 5-Achsen-Justierer von Newport genutzt, da diese eine kompakte Lösung zur Justage aller benötigten Freiheitsgrade darstellen.

Die Simulation des Strahlengangs wurde mit dem Programm Zemax durchgeführt. Hierfür wurde die Funktion „Physical Optics Propagation“, welche im Gegensatz zur Strahloptik, Wellenoptik und Beugungseffekte berücksichtigt, genutzt. Es ergibt sich für eine Größe der Harmonischenquelle von $67\text{ }\mu\text{m}$ FWHM bei einer Wellenlänge von $24,24\text{ nm}$ (entsprechend der 33. Harmonischen) eine Fokusgröße von $218\text{ }\mu\text{m}$ in horizontaler und $172\text{ }\mu\text{m}$ in vertikaler Richtung in der Wechselwirkungszone des Experimentes. Der Fokus ist in Abbildung 4.13 auf der linken Seite dargestellt. Der Fokus der 27. Harmonischen wurde zu $(322 \pm 4)\text{ }\mu\text{m}$ in horizontaler und $(192 \pm 2)\text{ }\mu\text{m}$ Halbwertsbreite in vertikaler Richtung vermessen. Hierfür wurde mit Hilfe des MCP-Phosphor-Detektors am Ende der Kammer der Fokus vermessen und die Pixelgröße über die sichtbare Größe des Phosphorschirmes kalibriert und anschließend ein Gaussfunktion an die Profil der

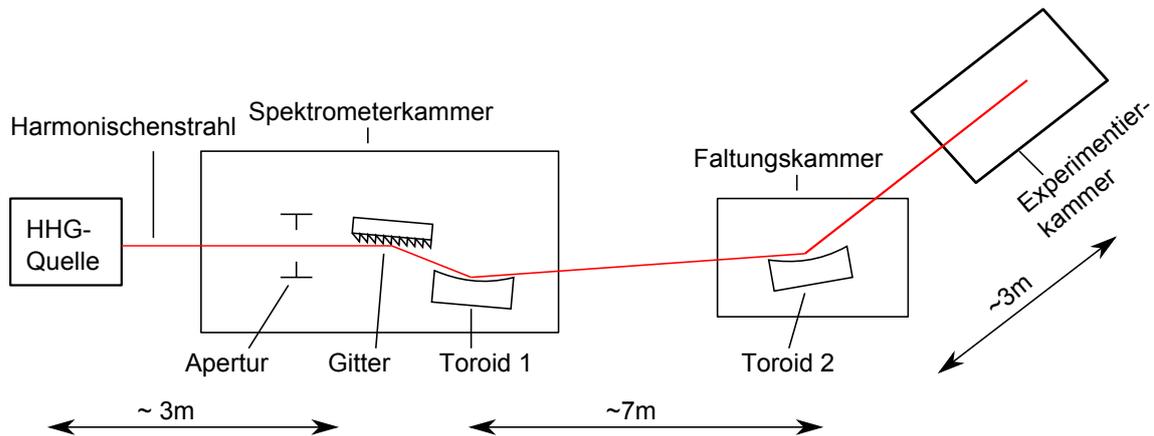


Abbildung 4.11: Schematische Darstellung des Monochromator-Aufbaus. Der Harmonischenstrahl wird vom Gitter, welches sich in konischer Konfiguration im streifenden Einfall befindet, spektral aufgetrennt. Toroid 1 erzeugt in der horizontalen Achse einen Zwischenfokus, während die vertikale Achse kollimiert wird. Toroid 2 erzeugt dann den Fokus in der Experimentierkammer. Der Strahlweg von Harmonischenquelle bis Experimentierkammer befindet sich vollständig im Vakuum und hat eine Länge von etwa 13 m.

beiden Achsen angepasst. Das Bild ist in Abbildung 4.13 auf der rechten Seite dargestellt. Die gemessenen und simulierten Werte in vertikaler Richtung sind in guter Übereinstimmung. Die Abweichung in horizontaler Richtung hat die Ursache im asymmetrischen Strahlprofil. Als eine Ursache konnte eine Abhängigkeit von den Erzeugungsbedingungen der Harmonischen identifiziert werden. Eine weitere Ursache kann in Abbildungsfehlern durch die Justage der Toroide gesucht werden, wobei die Art der Abweichung gegenüber einer perfekten Abbildung auf Koma hindeutet.

Um die Harmonischenordnungen zuzuordnen zu können, wurden mit Hilfe von Zemax die Abstände der benachbarten Harmonischen bestimmt und in Tabelle 4.2 dargestellt. Niedrige Harmonische haben einen großen Abstand, während mit abnehmender Wellenlänge auch die Abstände zu den Nachbarn kleiner werden. Über eine Messung des Abstandes zu den benachbarten Harmonischen lassen sich damit die Harmonischenordnungen identifizieren. Einschränkend ist anzumerken, dass die Abstände auch abhängig vom Kippwinkel des Gitters sind. Für niedrige Harmonische stellt dies auf Grund der großen Abstände und verhältnismäßig kleinen Änderung durch den Kippwinkel kein Problem dar, für die Identifizierung höherer Harmonischer stellt dies jedoch ein zunehmendes Problem dar.

Eine weitere Möglichkeit zur Identifizierung der Harmonischen erfolgt über eine Energiezuordnung erzeugter Photoelektronen. Die Energie der Photoelektronen ergibt sich analog zu 2.3, wobei die Energie nicht von n -Photonen sondern von einem Photon mit der n -fachen Energie bereitgestellt wird. ν_{photon} entspricht in diesem Fall der Zentralfrequenz des Fundamentalpulses. Die Nutzung von Filtern zur Identifizierung der Harmonischen ist nicht möglich, da im vom Monochromator abgedeckten Spektralbereich kein

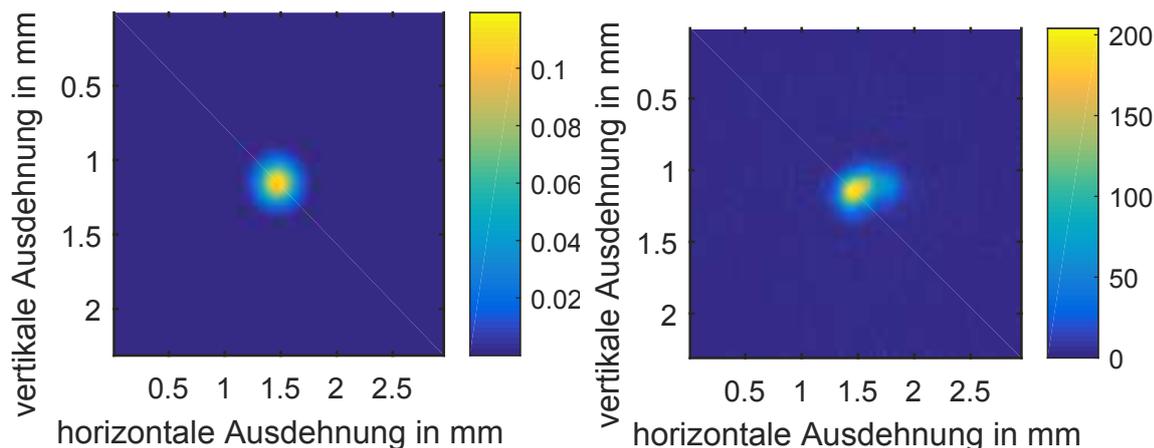


Abbildung 4.13: links: Darstellung der mit Zemax und „Physical Optics Propagation“ simulierten Fokusgröße des Monochromators in der Wechselwirkungszone.

rechts: Darstellung eines gemessenen Strahlprofils der 27. Harmonischen mit Hilfe eines MCP-Phosphor-Detektors wenige Zentimeter hinter der Wechselwirkung. Auffallend ist das asymmetrische Strahlprofil in horizontaler Richtung, welches zu einer Abweichung zwischen Simulation und Messung führt. Ursache hierfür können Koma-Abbildungsfehler durch die Toroidspiegel des Monochromators sein. In vertikaler Richtung stimmt die Größe des Fokus gut mit der Simulation überein.

verfügbarer Filter eine scharfe Kante aufweist.

Um die Transmissionseffizienz des Monochromators zu bestimmen, wurden die Beugungseffizienzen des Gitters und die Reflektivitäten der Toroid-Spiegel berechnet. Für die Gittereffizienz wurde das Programm GSolverV51DEMO genutzt, ein Programm zur Berechnung von Beugungen an Gittern durch Lösung der Maxwellgleichungen. Für die Berechnung der Reflektivitäten wurde das Programm XOP mit der Erweiterung IMD genutzt, einem Programm zur Charakterisierung von optischen Elementen durch rekursive Anwendung der Fresnel Gleichungen. Die erhaltenen Kurven sind in Abbildung 4.14 dargestellt. Die Gesamteffizienz des Monochromators wird dominiert von der Effizienz des Gitters. Diese ist verglichen mit anderen gleichartigen Systemen gut und vergleichbar [PBG⁺06b]. Deutlich wird der Effizienzvorteil gegenüber Gittern in klassischer Halterung, welcher sich in einer Größenordnung von Faktor 3 befindet [KGJN97]. Anzumerken ist, dass es sich bei den hier präsentierten Zahlen um simulierte Werte handelt, welche experimentell nicht überprüft werden konnten.

4.5 THz-Quelle

Die Zeitauflösung des Experimentes wird durch die Überlagerung der ionisierenden Strahlung mit dem elektrischen Feld eines THz-Strahls erhalten. Der optische Aufbau zur Erzeugung der THz-Strahlung befindet sich auf einem Modul, welches direkt an der

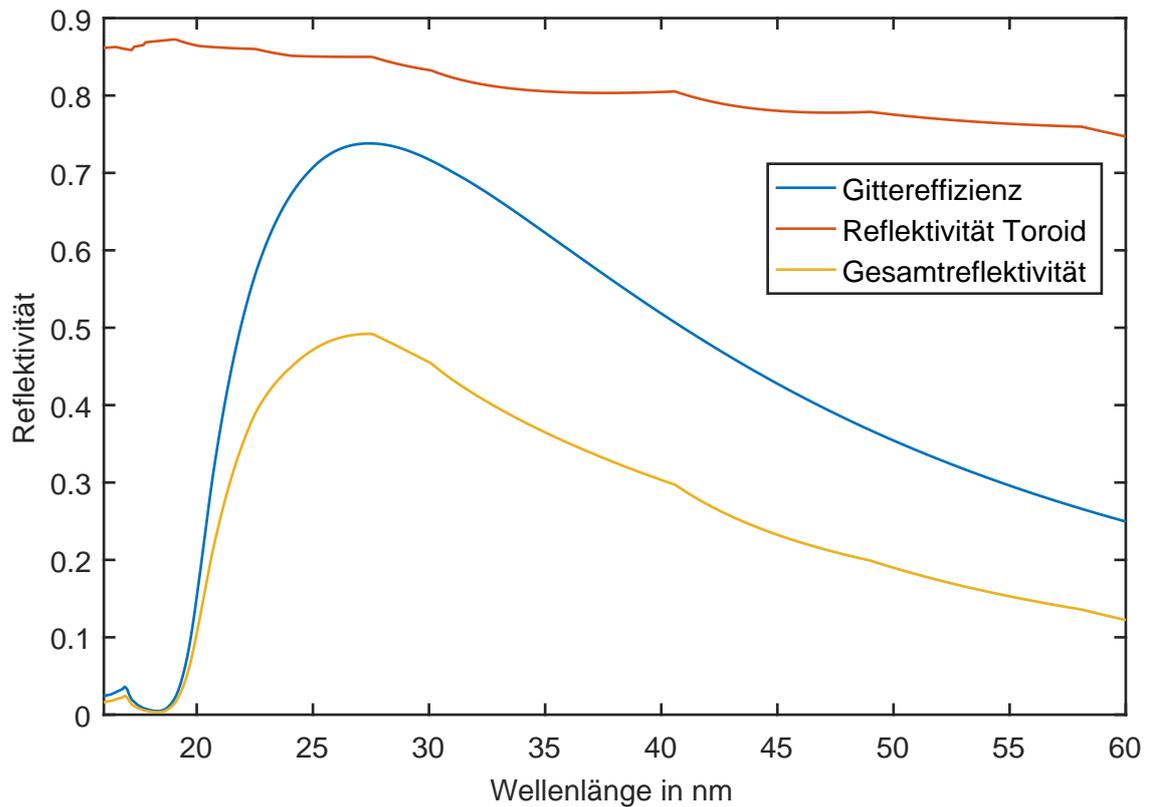


Abbildung 4.14: Darstellung der berechneten Effizienzen des Monochromators. Die rote Kurve stellt die Reflektivität der mit Borcarbid beschichteten Toroiden dar und wurde mit Hilfe von XOP berechnet. Die blaue Kurve stellt die Effizienz des Gitters dar und wurde mit GSolver bestimmt. Die Gesamteffizienz wird maßgeblich von der Gittereffizienz bestimmt. Mit Werten nahe 50% für den Wellenlängenbereich um 27 nm und 30% für den breiten Bereich von 22 nm bis 40 nm stellt der Aufbau somit ein außergewöhnlich effizientes System zur spektralen Trennung von XUV-Strahlung dar.

Goniometerwinkel in $^{\circ}$	Harmonischenordnung	Abstand zur nächsten Harmonischen in mm
6	7	10,18
5	7	10,26
	9	6,41
	11	4,52
4	9	6,44
	11	4,44
	13	3,26
	15	2,47
	17	2,11
3	11	4,45
	13	3,27
	15	2,49
	17	1,97
	19	1,59
	21	1,32
	23	1,10
	25	0,93
	27	0,86
	29	0,80
	31	0,66

Tabelle 4.2: Abstände der Harmonischenordnungen in Abhängigkeit vom Goniometerwinkel. Diese Abstände sind eine Möglichkeit zur Identifizierung der Harmonischen.

Halterung der Experimentierkammer befestigt ist. Der Strahlweg an Luft beträgt etwa 16 m , wodurch sich die Pulsdauer auf 62,9 fs verbreitert. Für die THz-Erzeugung ist die Verlängerung der Pulsdauer jedoch von untergeordneter Bedeutung. Dieser Aufbau wurde von Herrn Karimi und Herrn Dimitriou für [Kar19] angefertigt. Für die vorliegende Arbeit wurde das Teleskop geändert und der Strahlengang optimiert um eine größere Intensität in der Wechselwirkungszone des Experimentes zu erreichen. Der Vorteil dieses Aufbaus ist darin begründet, dass die Distanz zwischen THz-Erzeugung und Wechselwirkungszone des Experimentes minimal gehalten wird. Die Erzeugung der THz-Strahlung findet in einem Lithiumniobat-Kristall statt. Dafür wird der Fundamentalstrahl mit Hilfe von zwei Zylinderlinsen mit 400 mm und 300 mm Brennweite in horizontaler und vertikaler Richtung und einer sphärischen Zerstreulinse mit -150 mm Brennweite zu einem elliptischen Strahl kollimiert. Ein Gitter mit 1800 *Linien/mm* verkippt die Wellenfront. Anschließend bildet ein Achromat die nullte Beugungsordnung des Gitters verkleinert auf den Kristall ab. Durch Differenzfrequenzmischung wird hier die THz-Strahlung erzeugt. Diese wird anschließend über eine Zeonexlinse durch Erzeugung eines Zwischenfokus zur Experimentierkammer geführt. Der Strahltransport erfolgt durch Kupferspiegel. Vor der Einkopplung ins Vakuum befindet sich ein Teleskop welches die Polarisation des THz-Strahls um 90° dreht. Grund hierfür ist, dass die Elektronenflugzeitspektrometer horizontal orientiert sind und sich die Polarisationsrichtung des THz-Strahls mit diesen

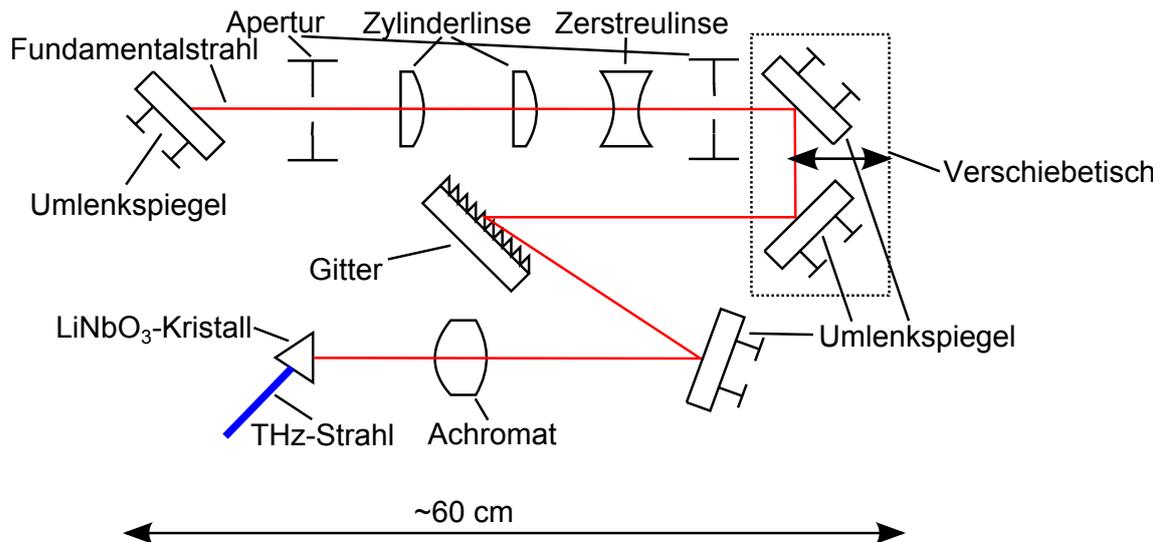


Abbildung 4.15: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Erzeugung von THz-Strahlung. Der einfallende Fundamentallaserstrahl wird durch zwei Zylinderlinsen elliptisch kollimiert und über ein Gitter und ein Achromat in den Lithiumniobat-Kristall abgebildet. Zwischen dem Zylinderlinsenteleskop und dem Gitter befindet sich ein Verschiebetisch, welcher die Anpassung der Strahlweglänge ermöglicht. Dies ermöglicht im späteren Experiment die Einstellung des zeitlichen Überlapps zwischen THz- und XUV-Strahl.

in einer Ebene befinden muss um messbaren Einfluss auf die Elektronentrajektorien zu haben. Die Einkopplung ins Vakuum erfolgt durch ein 3 mm dickes TPX-Fenster.

4.6 Experimentierkammer

Die Experimente wurden in einer Experimentierkammer durchgeführt, welche von Herrn Karimi entwickelt wurde und schematisch in Abbildung 4.16 dargestellt ist. Der optische Aufbau wurde für die vorliegende Arbeit entwickelt und bestehende Komponenten optimiert. Dabei definiert der XUV-Strahl die optische Achse. Hinter dem Kammereingang befindet sich ein System aus Rasierklängen, um benachbarte Harmonische zu blocken und die für das jeweilige Experiment benötigte zu selektieren. Es folgen je ein Kupferspiegel und eine Linse mit Loch, welche den Harmonischenstrahl passieren lassen. Die Experimentierkammer ist so positioniert, dass der XUV-Fokus zwischen beiden Elektronenflugzeitspektrometern liegt und somit die Wechselwirkungszone definiert. Am inneren Ende der Kammer befindet sich ein MCP-Phosphor-Detektor mit einer Kamera außerhalb des Vakuums. Dieses System ermöglicht, den Harmonischenstrahl sichtbar zu machen und eine Detektion der Strahlgröße, Strahlage und Intensität zu gewährleisten. Zudem können benachbarte Harmonische erkannt werden.

Der THz-Strahl wird durch eine Seitenwand in die Vakuumkammer eingekoppelt. Er wird von dem Kupferspiegel reflektiert und durch eine TPX-Linse mit 75 mm Brennweite

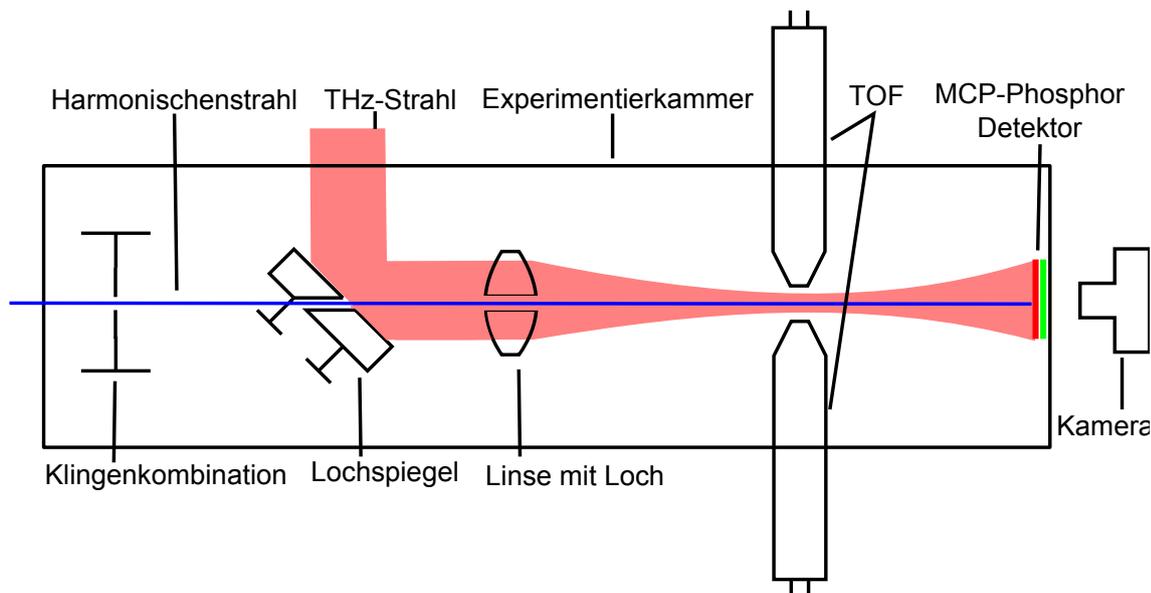


Abbildung 4.16: Schematische Darstellung der Experimentierkammer. Der XUV-Strahl gelangt von links in die Kammer und passiert eine Klingenkombination. Diese ermöglicht es, benachbarte Harmonischenordnungen der fürs Experiment benötigten Ordnung zu blocken. Anschließend propagiert er durch die Löcher eines Kupferlochspiegels und eine TPX-Linse. Der Fokus befindet sich in der Wechselwirkungszone zwischen beiden Elektronenflugzeitspektrometern. Am Ende der Kammer trifft er auf einen MCP-Phosphor-Detektor, welcher durch eine Kamera abgefilmt wird und dadurch eine Messung der Strahllage und Größe ermöglicht. Die THz-Strahlung wird durch ein TPX-Fenster in der Seite der Vakuumkammer eingekoppelt und durch den Kupferspiegel mit dem Harmonischenstrahl kollinear überlagert. Der THz-Strahl wird durch die TPX-Linse in die Wechselwirkungszone fokussiert. In die Wechselwirkungszone wird das zu untersuchende Gas durch eine Düse senkrecht zur Ebene der Flugzeitspektrometer und Strahlausbreitungsrichtung eingebracht. Die in der Wechselwirkungszone entstehenden Elektronen werden durch die Elektronenflugzeitspektrometer detektiert.

in die Wechselwirkungszone fokussiert. Eine Detektion des Strahls ist im Experimentierbetrieb nicht möglich.

Kalibrierte XUV-Diode

Vor dem Beginn der zeitaufgelösten Experimente wurde ein Aufbau zur Messung der Pulsenergie in die Experimentierkammer integriert um die zur Verfügung stehende Photonrate zu bestimmen und die Effizienz der Harmonischenquelle abschätzen zu können. Abbildung 4.17 zeigt den schematischen Aufbau der Messapparatur, welche für die vorliegende Arbeit entwickelt und aufgebaut wurde. Als Detektor wird die kalibrierte XUV-Diode AXUV100 verwendet. Nachteil dieser Dioden ist eine hohe Empfindlichkeit gegenüber infrarotem Licht. Der Messaufbau muss dementsprechend sicherstellen, dass

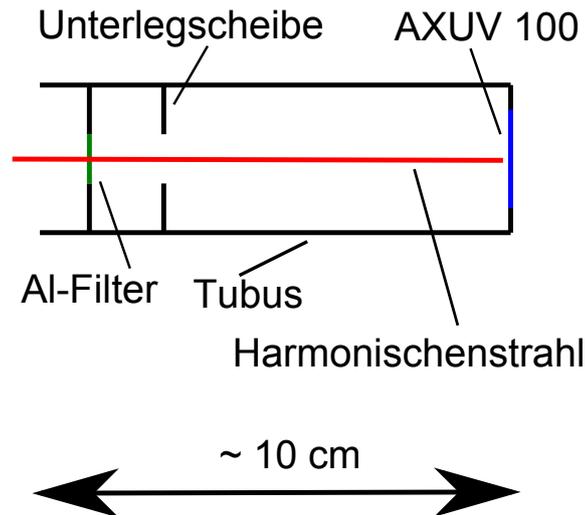


Abbildung 4.17: Schematische Darstellung des Aufbaus zur Pulsenergiemessung. Der Harmonischenstrahl tritt von rechts durch einen Aluminiumfilter in den Tubus ein. Der Tubus ist bis auf 3 Öffnungen in der Halterung des Aluminiumfilters geschlossen, um das Eindringen von Streulicht zu verhindern. Eine Unterlegscheibe blockiert die durch die Öffnungen einfallende Streustrahlung. Der Bereich um die Photodiode ist damit hintergrundfrei.

kein infrarotes Streulicht die Photodiode erreichen kann. Dies wird zum einen durch die Verwendung eines Aluminiumfilters im Strahlengang gewährleistet, da dieser das einfallende Infrarotlicht auf Strahlachse reflektiert. Zum anderen muss das Volumen, in welchem sich die Photodiode befindet, vor Streulicht von außen geschützt werden. Ein abgedichtetes Volumen führt beim Abpumpen oder Belüften des Experimentes jedoch zur Zerstörung des Filters. Aus diesem Grund wurden in den Halter des Filters Kerben integriert, um Luftzirkulation zu ermöglichen. Einfallendes Streulicht wird von einer Unterlegscheibe hinter der Filterhalterung blockiert. Da Aluminiumfilter häufig kleinste Löcher (engl. pinholes) aufweisen, kann das Integrieren eines weiteren Aluminiumfilters sinnvoll sein, um mögliches Streulicht durch diese Löcher zu blockieren. Diese Probleme sind während der Messung jedoch nicht aufgetreten. Um ein Rekombinieren der erzeugten Elektronen in der Diode zu verhindern, wurde die in [Geb15] beschriebene Schaltung verwendet. Die Signale der Photodiode werden anschließend von einem Oszilloskop ausgelesen.

Elektronenflugzeitspektrometer

Die Detektion der erzeugten Elektronen erfolgt durch zwei Elektronenflugzeitspektrometer (engl. electron time-of-flight, kurz e-TOF). Sie sind gegenüberliegend im Abstand von 5 mm um die Wechselwirkungszone gehalten und befinden sich in der Polarisations Ebene des THz-Feldes. Die Elektronenflugzeitspektrometer bestehen aus drei Komponenten. Im ersten Teil werden ankommende Elektronen durch ein System aus 6 elektri-

schen Linsen, Metallringe an die eine Spannung angelegt wird, eingesammelt und bestmöglich kollimiert. Der zweite Teil ist eine längere Flugröhre von etwa 40 cm, durch welche die eingesammelten Elektronen abgeschirmt durch Mu-Metall feldfrei propagieren. Am Ende der Flugröhre befindet sich ein MCP Detektor, welcher Elektronenlawinen erzeugt und auf eine Metalloberfläche beschleunigt. Dieses Signal wird über eine Verstärkerschaltung von einem Oszilloskop abgegriffen.

Mikrokanalplatte

Eine Mikrokanalplatte (engl. micro channel plate, kurz MCP) ist ein flächiger Sekundärelektronenvervielfacher. Er besteht aus einer Glasplatte mit weniger als 1 mm Dicke und einem sehr engen Lochraster von etwa 10 μm und Lochgrößen von ebenfalls etwa 10 μm . Die Löcher sind gegenüber der Flächennormalen um etwa 10° gekippt. Zwischen Vorder- und Rückseite wird eine Spannung von mehreren Hundert bis zu 1 kV angelegt. Einfallende Strahlung, egal ob Photonen mit hinreichender Energie oder Elektronen/Ionen, in einem Kanal löst Elektronen aus der Oberfläche heraus. Diese werden durch die angelegte Spannung beschleunigt und schlagen ihrerseits weitere Elektronen aus den Kanalwänden. Auf diese Weise entsteht eine kaskadenartige Verstärkung. Die so erzeugte Elektronenlawine kann direkt gemessen werden.

Phosphorschirm

Bei einem Phosphorschirm handelt es sich um ein mit Phosphor (im vorliegenden Fall P43) beschichtetes Substrat. Bei den hier genutzten Substraten handelt es sich um einseitig leitende Glasplättchen, was durch eine Beschichtung mit Indium-Zinn-Oxid (ITO) gewährleistet wird. Die ITO-beschichtete Seite wird wiederum mit Phosphor beschichtet und erfüllt zwei Anforderungen: zum einen werden elektrostatische Aufladungen im aufgetragenen Phosphor verhindert, zum anderen können die von der MCP generierten Elektronenlawinen durch Anlegen einer Spannung beschleunigt werden. Ein auf die Phosphor-Schicht treffendes Elektron regt diesen an, wobei er unter Aussendung von Photonen wieder abklingt. Pro Elektron werden typischerweise 20 – 200 Photonen erzeugt. Dies ist abhängig von der Elektronenenergie und der verwendeten Beschichtung. Aus der Elektronenlawine wird so ein Lichtblitz erzeugt, welcher von einer Kamera detektiert werden kann.

Probenbereitstellung

Die Bereitstellung der gasförmigen Proben erfolgt durch eine modifizierte, gepulste Parker-Düse, deren Aufbau für diese Arbeit entwickelt und in den Messaufbau integriert wurde. Sie ist in Abbildung 4.18 dargestellt. Die Düse wird über eine Halterung aus Polyetheretherketon (Peek) an einem Adapterrohr befestigt, welches durch einen X-Y-Z Manipulator justierbar ist. Das Öffnen und Schließen der Düse wird über eine Magnetspule

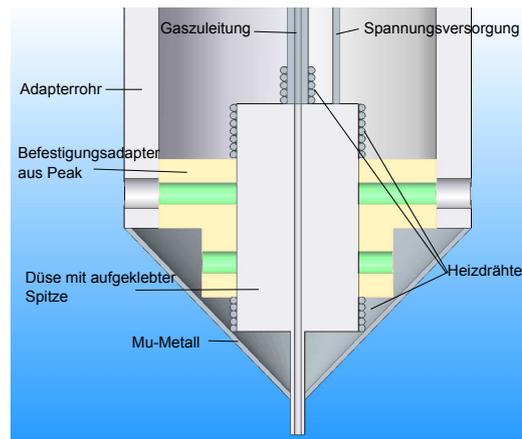


Abbildung 4.18: Schematische Darstellung der Düse zur Bereitstellung der Proben. Die Düse befindet sich an einem Adapterrohr, welches an einem XYZ-Manipulator oberhalb der Wechselwirkungszone befestigt ist. Die Düse ist über Kupferlitze am Adapterrohr geerdet. Die Düse ist durch Heizdrähte beheizbar, um Proben mit niedrigen Dampfdrücken untersuchen zu können. Um die Düse befindet sich ein Kegel aus Mu-Metall, welcher mögliche von der Düse abgestrahlte elektromagnetische Felder abschirmt.

geregelt. Die Öffnungszeit der Düse wird an der zugehörigen Elektronik auf etwa $200 \mu\text{s}$ eingestellt, wobei angemerkt werden muss, dass die Düse nicht für eine derart kurze Öffnungszeit ausgelegt ist und sich dadurch nicht komplett öffnet. Ein Kegel aus Mu-Metall schirmt die Wechselwirkungszone vor magnetischen Störfeldern der Magnetspule im Inneren der Düse ab. Die Düse wird über Kupferlitze am Adapterrohr geerdet, da sich im Experiment gezeigt hat, dass ohne diese Erdung keine Elektronen auf Grund von Störfeldern durch elektrostatische Aufladung der Düsenspitze detektiert werden konnten. Heizdrähte sorgen dafür, dass neben Edelgasen auch andere Gase mit geringem Dampfdruck mit hohem Druck in der Wechselwirkungszone bereitgestellt werden können.

5 Charakterisierung des Messaufbaus

Nachdem im vorangegangenen Kapitel der Messaufbau beschrieben wurde, stellt dieses Kapitel die Ergebnisse der Charakterisierungsmessungen dar. Das Kapitel beginnt mit der Charakterisierung des Aufbaus zur Erzeugung der höheren Harmonischen um zu zeigen, in welchem Spektralbereich unter welchen Bedingungen die Quelle zur Erzeugung der höheren Harmonischen arbeitet. Der zweite Teil befasst sich mit einer Charakterisierung des THz-Strahles, da dies für das Verständnis der zeitaufgelösten Messungen von Bedeutung ist.

5.1 Charakterisierung der Harmonischenquelle

Zur Charakterisierung der HHG Quelle wurden die Einflüsse der zugänglichen Parameter der Phasenanpassung untersucht. Der Abschnitt beginnt mit der Zuordnung der jeweiligen Harmonischenordnung zur Position im Spektrum und einer Untersuchung des Einflusses des genutzten Mediums zur Erzeugung der höheren Harmonischen. Es folgt die Bestimmung der Konversionseffizienz gefolgt von den Einflüssen der SHG auf das Spektrum der höheren Harmonischen. Die Spektren wurden mit Hilfe des in [Kar13] beschriebenen Spektrometers aufgenommen.

Gasabhängigkeit

Um die aufgenommenen Spektren interpretieren zu können, müssen im ersten Schritt die höheren Harmonischen ihrer jeweiligen Ordnung zugeordnet werden. Dafür wurde ein Harmonischenspektrum mit und ohne Aluminium-Filter vermessen. Die Transmission ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Das Verhalten dieses Filters ist derart, dass die 9. Harmonische geblockt wird, während die 11. Harmonische transmittiert wird. Eine exemplarische Zuordnung ist in Abbildung 5.2 dargestellt. Die Abstände zwischen den Harmonischen bzw. die Abstände zur nullten Beugungsordnung können genutzt werden, um die Zuordnung auch für andere Spektren ohne Vergleichsspektrum mit Aluminiumfilter anzuwenden.

Das Harmonischensignal ist Druck- und Gasabhängig. Neben dem ponderomotiven Potential haben die Edelgase charakteristische Bereiche der Ordnung der höheren Harmonischen, für welche sie ihr Effizienzmaximum besitzen. Grundlegend gilt, dass je größer das Edelgas, desto niedriger ist die erreichbare Harmonischenordnung. Abbildung 5.3 zeigt einen Vergleich für die typischen Edelgase Helium, Neon, Argon, Krypton und

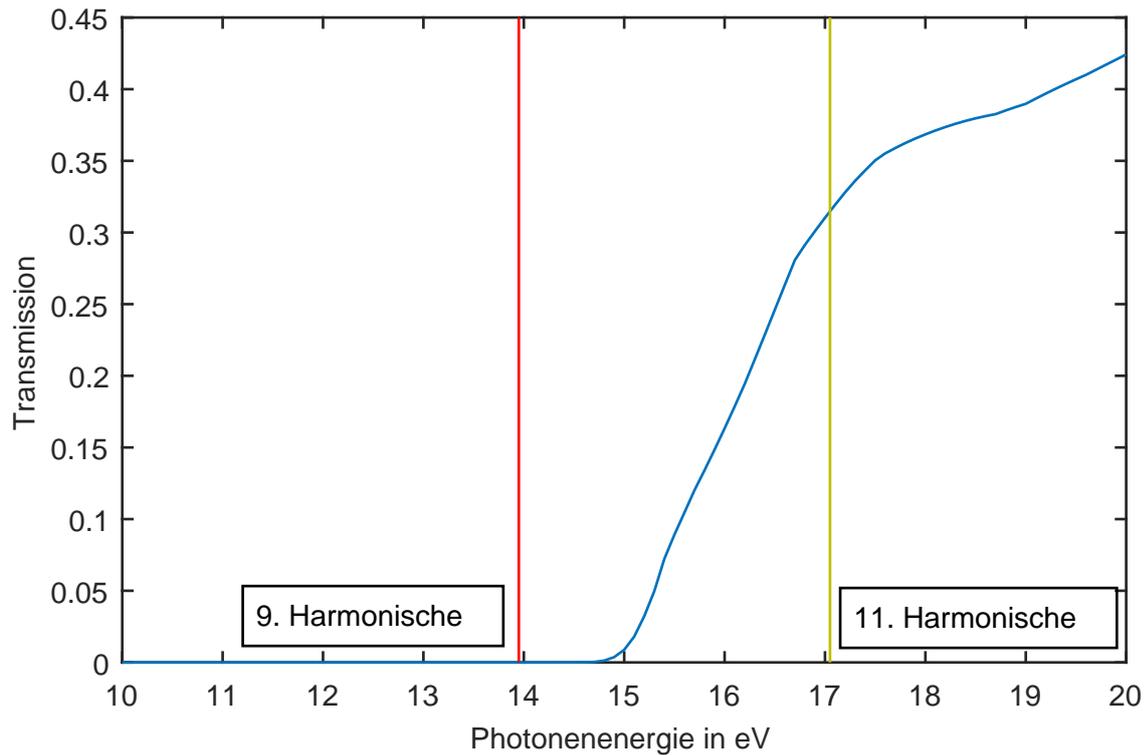


Abbildung 5.1: Darstellung der Transmission (blaue Linie) durch einen 200 nm dicken Aluminium-Filter mit je 2 nm Aluminiumoxidschicht pro Seite für die Identifizierung der erzeugten Harmonischenordnungen. Die rote Linie kennzeichnet die Lage der 9. Harmonischen, die gelbe Linie die Lage der 11. Harmonischen. Hinter dem Aluminiumfilter sind entsprechend nur Harmonischenordnungen ab 11. Ordnung erhalten. Die Dicke der Oxidschicht wurde nach [Mal12] abgeschätzt und die Daten aus [Cal] gewonnen.

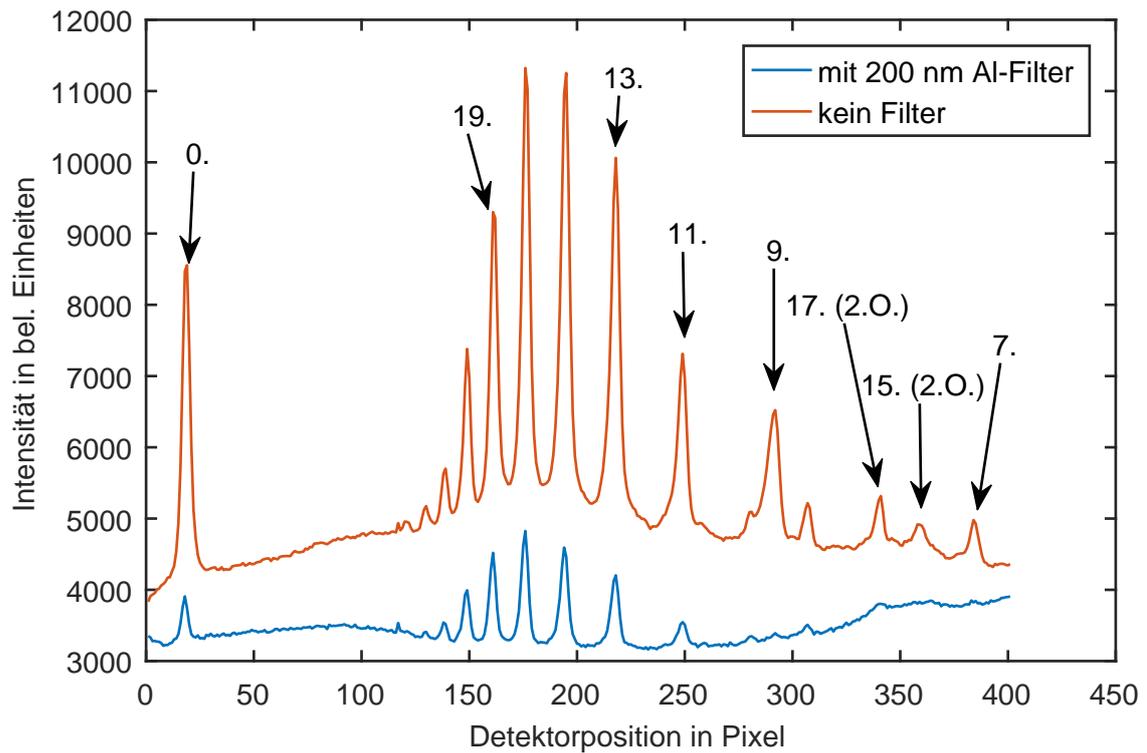


Abbildung 5.2: Zuordnung der Harmonischenordnung mit Hilfe eines Aluminiumfilters. Die Zahlen an den schwarzen Pfeilen geben die Harmonischenordnung an. Die Signalspitze auf der linken Seite zeigt die 0. Beugungsordnung. Im Spektrum sind auch die zweiten Beugungsordnungen der 15. und 17. Harmonischen erkennbar. Die Harmonischen wurden mit dem Fundamentalstrahl und einer Fokussierung von 3 m bei 12,5 mJ Pulsenergie und 4,2 bar Vordruck in Argon erzeugt.

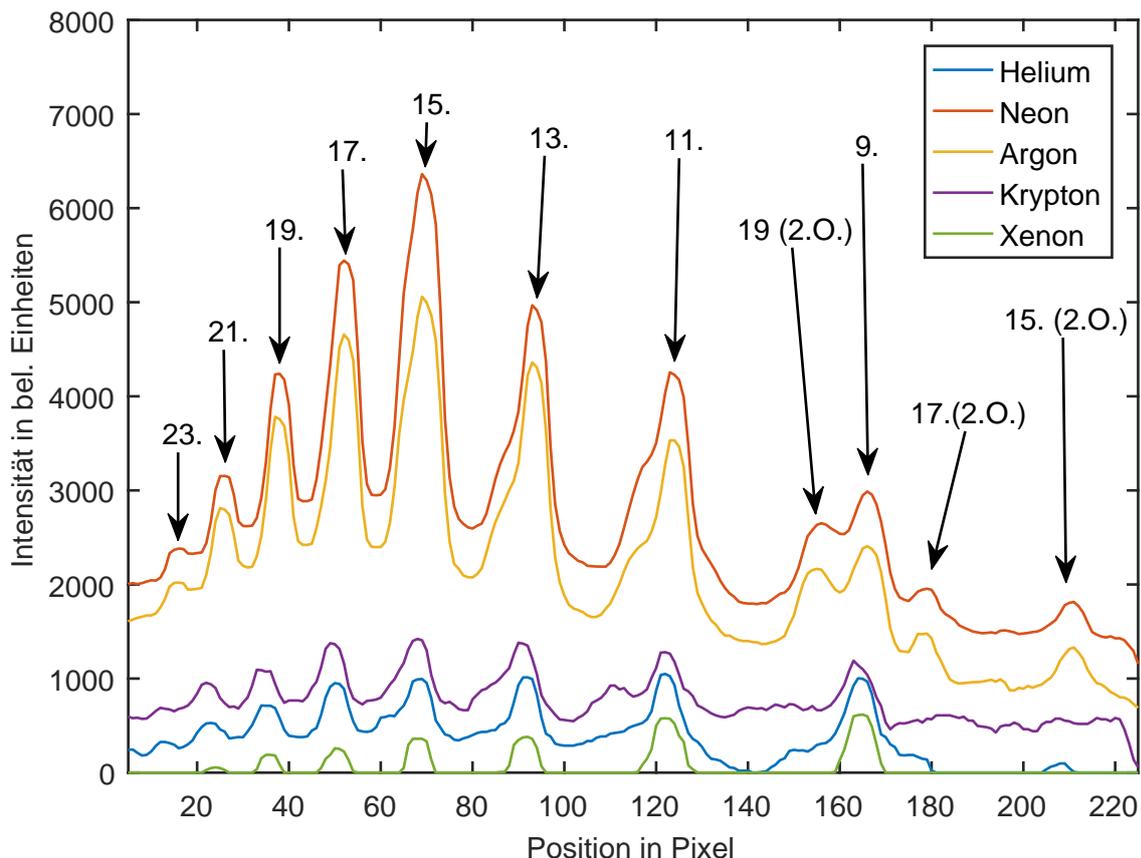


Abbildung 5.3: Darstellung gemessener Harmonischenspektren der verfügbaren Edelgase. Die Harmonischenordnung sinkt nach rechts ab. Die Harmonischen wurden mit dem Fundamentalstrahl und einer 2 m -Fokussierlinse erzeugt. Die Quelle ist für Neon und Argon bei dem genutzten Parametersatz am effizientesten.

Xenon. Anzumerken ist, dass die jeweiligen Quellen nicht abschließend optimiert wurden, da zum Teil nicht genügend Druck zur Verfügung stand. Erkennbar ist jedoch, dass beispielsweise Xenon für niedrige Harmonische eine relativ zu den in Xenon erzeugten Ordnungen gute Effizienz aufweist, welche zu höheren Ordnungen hingegen abfällt. Im Vergleich dazu weist Helium eine relativ konstante Effizienz über den betrachteten Bereich auf. Die besten Effizienzen wurden für Argon und Neon erreicht. Da im späteren Verlauf die 33. Harmonischenordnung optimiert werden soll, wurde Neon als Erzeugungsgas gewählt. Die Effizienz von Argon fällt in diesem Bereich bereits stark ab, während die Effizienzen für Neon hoch bleiben [FFLH⁺10]. Durch die Nutzung des Zweifarben-Erzeugungsschemas wird der Bereich der besten Effizienz zu niedrigeren Harmonischenordnungen verschoben [LKS06].

Neben der Abhängigkeit von der Gasart ist die Harmonischenerzeugung auch abhängig vom Druck. Ein exemplarischer Druckscan ist in Abbildung 5.4 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass die Effizienz mit steigendem Druck zunimmt, bevor sie nach dem Überschreiten eines Maximums wieder abnimmt. Anzumerken ist, dass der optimale Druck

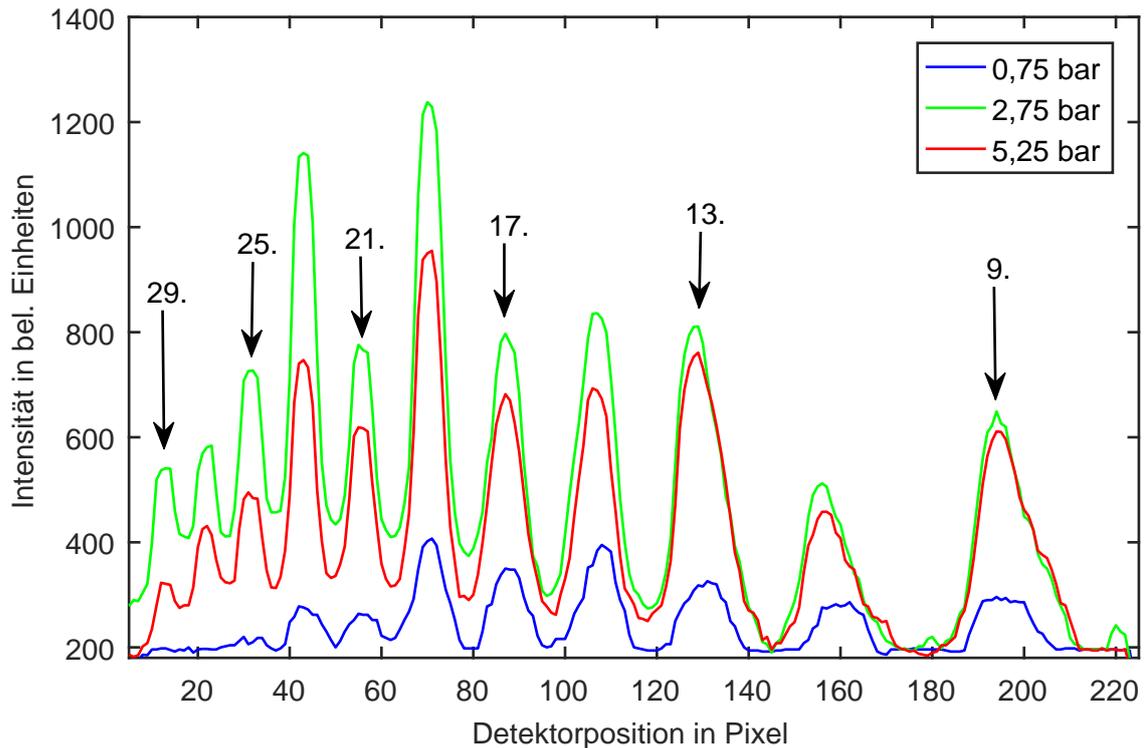


Abbildung 5.4: Darstellung gemessener Harmonischenspektren für verschiedene Drücke in Argon. Die beste Effizienz wurde bei diesem Parametersatz für einen Vordruck von 2,75 bar erreicht. Die Harmonischen wurden mit dem Fundamentalstrahl und einer Fokussierung von 1,5 m erzeugt.

vom Zusammenspiel aller Parameter der Phasen Anpassung abhängig ist. Für ein verändertes Setup wird ein anderer optimaler Druck erwartet. Für Neon konnte dieses Verhalten nicht beobachtet werden. Das bedeutet, dass die optimale Phasen Anpassung für Neon nicht erreicht wurde, da nicht genug Vordruck für die gewählten Parameter der Phasen Anpassung zur Verfügung stand.

Pulsenergiemessung

Die Qualität einer Quelle wird durch ihre Effizienz beschrieben. Um die Effizienz der Harmonischenerzeugung zu bestimmen, wurde die Pulsenergie gemessen.

Der Aluminiumfilter mit einer Dicke von 200 nm besitzt auf seiner Oberfläche eine Schicht aus Aluminiumoxid. Dieses Aluminiumoxid absorbiert den XUV-Anteil des Strahls stärker als die Aluminiumschicht selbst. Sie wurde im Zuge dieser Arbeit nicht vermessen, so dass auf Literatur und Erfahrungswerte zurückgegriffen werden muss. Leider weichen diese Werte teils stark voneinander ab. Die hier vorgestellten Werte stellen also lediglich einen Hinweis auf die erreichte Effizienz dar. Da die exakte Photonenzahl für das Experiment nicht relevant ist, sondern nur ob eine ausreichende Signalqualität erreicht werden kann, wurden keine weiteren Anstrengungen unternommen, diese Messung zu präzisieren. Die hier vorgestellte Messung wurde in der Wechselwirkungs-

Ordnung	Messwert in pVs	Transmission Filter	Pulsenergie in nJ	Effizienz
29	1274 ± 170	0,54	$0,53 \pm 0,06$	$9,2 * 10^{-8}$
31	1125 ± 127	0,56	$0,48 \pm 0,05$	$8,6 * 10^{-8}$
33	869 ± 115	0,60	$0,36 \pm 0,04$	$6,9 * 10^{-8}$
35	421 ± 100	0,63	$0,17 \pm 0,03$	$3,5 * 10^{-8}$
37	165 ± 99	0,66	$0,05 \pm 0,03$	$1,4 * 10^{-8}$

Tabelle 5.1: Gemessene Pulsenergien der Harmonischenquelle für die 29. bis 37. Ordnung. In der Berechnung der Pulsenergie ist die Transmission des Filters berücksichtigt. Für die Effizienz der Quelle wird zusätzlich die Effizienz des Monochromators berücksichtigt. Die Werte sind exemplarisch für eine durchschnittliche Harmonischenquelle.

zone durchgeführt. Als Quellgas der Harmonischen wurde Argon bei einem Druck von $0,6 \text{ bar}$ verwendet, welches über eine 70 mm lange Kapillare bereitgestellt wurde. Der Fundamentalstrahl wurde durch einen 3 m Fokussierspiegel in dieses Gasvolumen fokussiert. Es wurde bei einer Pulsenergie von $11,6 \text{ mJ}$ gemessen. Die Ordnung gibt die Ordnung der Harmonischen an. Die Transmission des Filters wurde mit Hilfe von [Cal] für eine Oxidschichtdicke von 2 nm bestimmt. Für den Wert der Pulsenergie wurde der Filter heraus gerechnet und gibt damit die im Experiment zur Verfügung stehende Pulsenergie an. Zur Berechnung der Effizienz wurde die Transmission des Monochromators berücksichtigt. Die Berechnung der Pulsenergie E aus den gemessenen Wert erfolgt über $E = \frac{A}{\Omega} \frac{A}{W} E_{phot}$. Dabei wurde $\frac{A}{W}$ aus Datenblatt der AXUV 100 abgelesen, A stellt den Messwert der Energie (die Fläche A unter der Kurve des Spannungsabfalls), Ω den Abschlusswiderstand und E_{phot} die Photonenenergie dar. Die erreichte Effizienz der Quelle ist mit anderen Quellen vergleichbar. Das Verhalten ist typisch für eine Argonquelle [FFLH⁺10].

Die Ergebnisse sind in Tabelle 5.1 dargestellt.

Einfluss des BBO

Die Erzeugung von Harmonischen mit 2 Farben zeigt sich im Harmonischenspektrum durch das Auftreten von geraden Harmonischen, welche sonst aus Symmetriegründen unterdrückt werden. In Abbildung 5.5 ist das Verhalten an Hand von Messdaten exemplarisch dargestellt. Bei geringer Beimischung der zweiten Harmonischen von 2% im Bezug auf die Pulsenergie des Fundamentalpulses wird ein Spektrum erzeugt, welches dem Spektrum der Erzeugung mit einer Farbe stark ähnelt. Das Auftreten der charakteristischen geraden Harmonischen ist nur im Ansatz zu erahnen. Eine Erhöhung der Beimischung auf 7% führt dazu, dass die geraden Harmonischen deutlich sichtbar werden und ähnliche Intensitäten wie die ungeraden Harmonischen Erreichen. Bei einer weiteren Erhöhung der Beimischung ist im Falle der maximalen Beimischung von 12% gut zu erkennen, dass sich die Effizienz der Harmonischenerzeugung zu niedrigeren Ordnungen verschiebt.

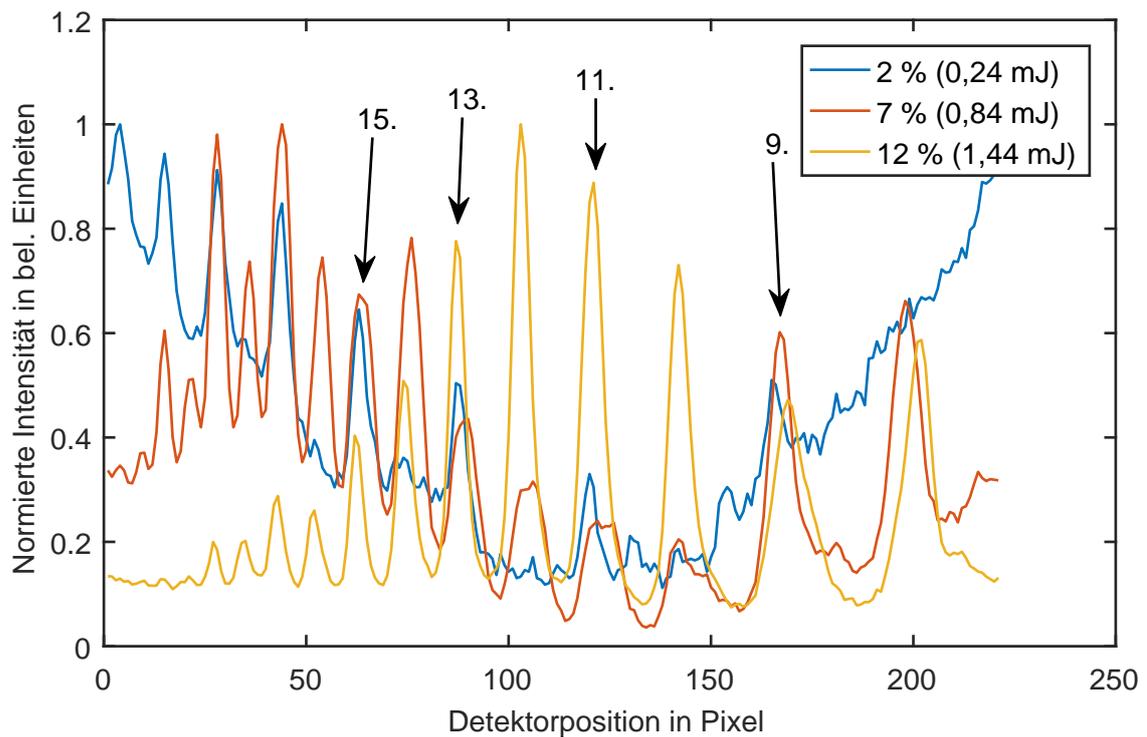


Abbildung 5.5: Darstellung des Einflusses des Verhältnisses zwischen Fundamental- und zweitem Harmonischenstrahl auf das Spektrum der höheren Harmonischen. Die Spektren sind jeweils auf 1 normiert. Die Prozentangaben beziehen sich auf den Anteil bezüglich der insgesamt zur Verfügung stehenden Pulsenergie. Höhere Harmonischenordnungen werden für eine moderate Beimischung der Frequenzverdopplung erreicht.

Einfluss der Kalzitplatte

Durch die Kalzitplatte wird der Zeitversatz zwischen Fundamentalem und zweitem Harmonischenstrahl geändert. Die Einflüsse auf das Spektrum der hohen Harmonischen sind auch für kleine Winkeländerungen dramatisch. Dennoch lässt sich ein generelles Verhalten ableiten, welches durch Messdaten in Abbildung 5.6 dargestellt ist. Wenn beide Pulse zeitlich weit voneinander getrennt sind (194 fs), erzeugt sowohl der Fundamentalstrahl als auch der zweite Harmonischenstrahl einen eigenen Kamm höherer Harmonischer. Die charakteristischen geraden Harmonischen treten nicht auf. Der Harmonischenkamm des zweiten Harmonischenstrahls ergibt jedoch, bezogen auf den Fundamentalstrahl gesehen, gerade Harmonische. Diese haben jedoch den doppelten Abstand. Besonders auffällig ist die 10. Harmonische des Fundamentalstrahls. Sie wird als 5. Harmonische der zweiten Harmonischen besonders Effizient erzeugt. Bemerkenswert ist, dass auch bei einem geringen zeitlichen Überlapp bereits gerade Harmonische sehr effizient erzeugt werden. Beim vollständigen Überlapp wird das intensivste Spektrum erzeugt, was durch die Normierung jedoch nicht sichtbar ist. Anzumerken ist das für die vorliegende Messreihe eine prozentual hohe Beimischung der zweiten Harmonischen genutzt wird.

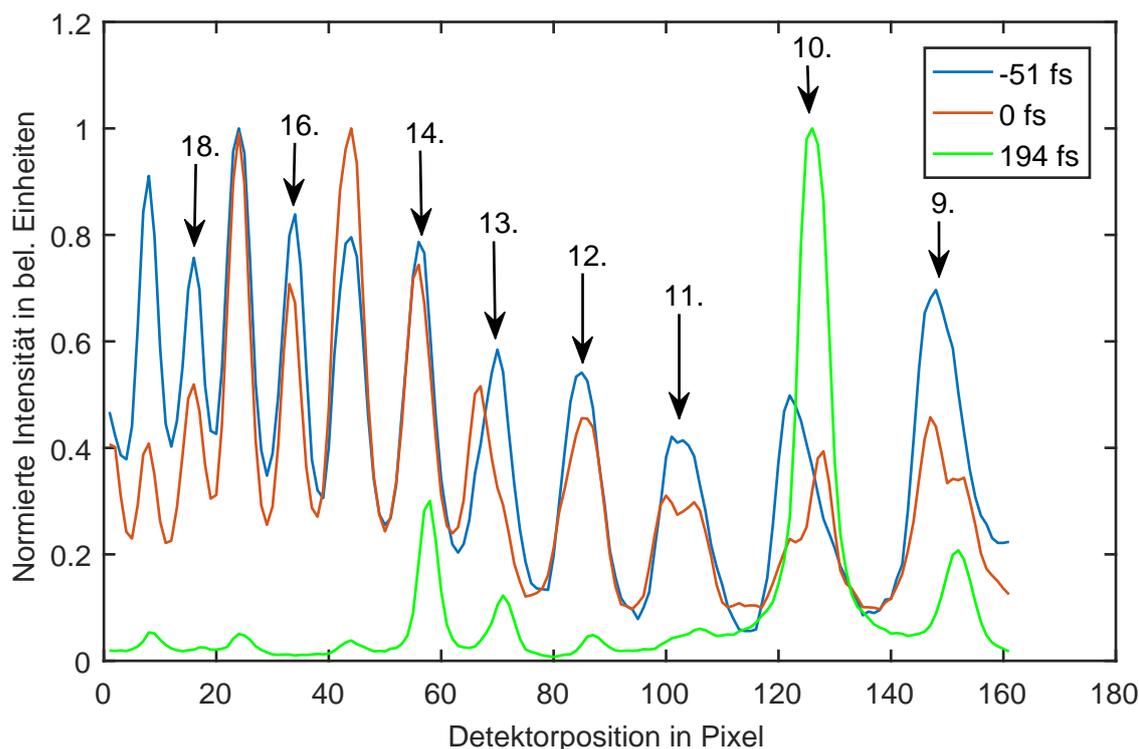


Abbildung 5.6: Darstellung des Einflusses des zeitlichen Überlapps zwischen Fundamental- und zweitem Harmonischenstrahl auf das Spektrum der höheren Harmonischen. Die höheren Harmonischen können sowohl für eine Überlagerung beider Pulse (blaue und grüne Kurve), als auch bei zeitlich getrennten Pulsen erzeugt werden (grüne Kurve). Dabei werden abhängig von den Bedingungen unterschiedliche Harmonischenordnungen bevorzugt erzeugt.

5.2 Charakterisierung der THz-Quelle

Charakterisierung des THz Fokus

Zur Charakterisierung des THz-Strahls wurde dessen Fokusgröße und Rayleighlänge experimentell vermessen. Als Messinstrument wurde hierbei der in [Sum15] vorgestellte THz-Roboter mit einem Pyrodetektor einer Kantenlänge von 3 mm genutzt. Dabei wird der Strahl mit Hilfe von motorisierten Verschiebetischen in festgelegter Schrittweite abgetastet und das Signal des Pyrodetektors aufgezeichnet. Abbildung 5.7 zeigt das aus Messdaten rekonstruierte Strahlprofil nahe dem THz Fokus.

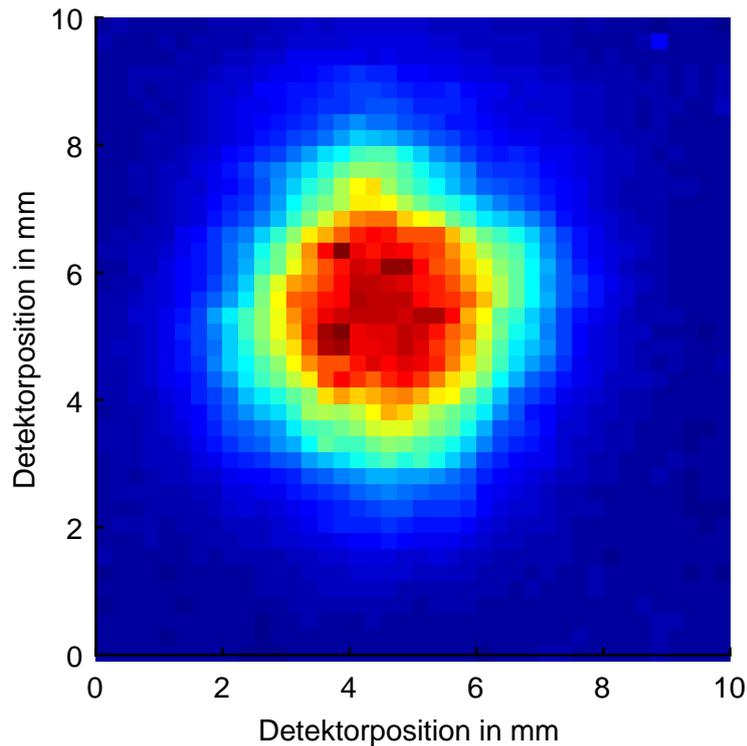


Abbildung 5.7: Darstellung des mit Hilfe des THz-Roboters gemessenen und rekonstruierten THz Strahlprofils.

Mit Hilfe einer Anpassung der Funktion

$$y = A \exp\left(-\left(\frac{(x - B)^2}{2S_1^2} + \frac{(y - C)^2}{2S_2^2}\right)\right) \quad (5.1)$$

an die Messdaten wurde die Größe des Strahles bestimmt. Dabei geben A die Intensität, B und C die Lage der Maxima und S_1 und S_2 die Breite des Profils an.

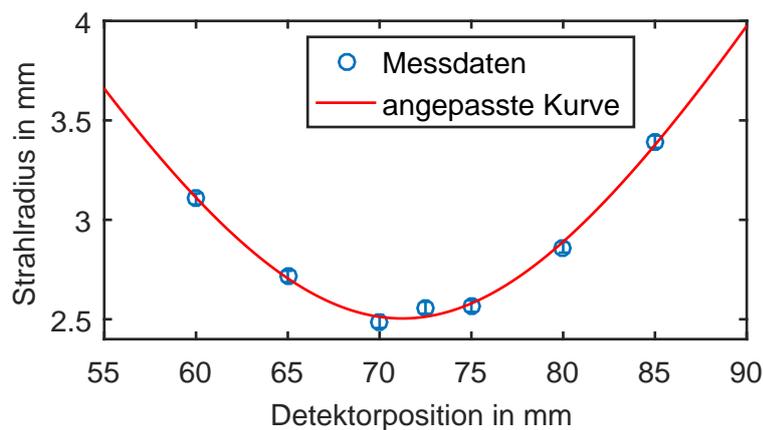


Abbildung 5.8: Darstellung der Strahltaillie des THz-Strahles in der Wechselwirkungszone in horizontaler Richtung. Die Daten wurden aus mehreren Messungen unter Verwendung des THz-Roboters erhalten.

	Radius w_0 in mm	Abstand des Fokus zur Linse in mm	Rayleighlänge z_R in mm
horizontal	$2,50 \pm 0,05$	$70,2 \pm 0,5$	$15,2 \pm 1,1$
vertikal	$2,83 \pm 0,04$	$72,5 \pm 0,4$	$15,1 \pm 0,9$

Tabelle 5.2: Mit Hilfe des THz-Roboters bestimmte Strahlparameter des THz-Strahls in der Wechselwirkungszone des Experimentes.

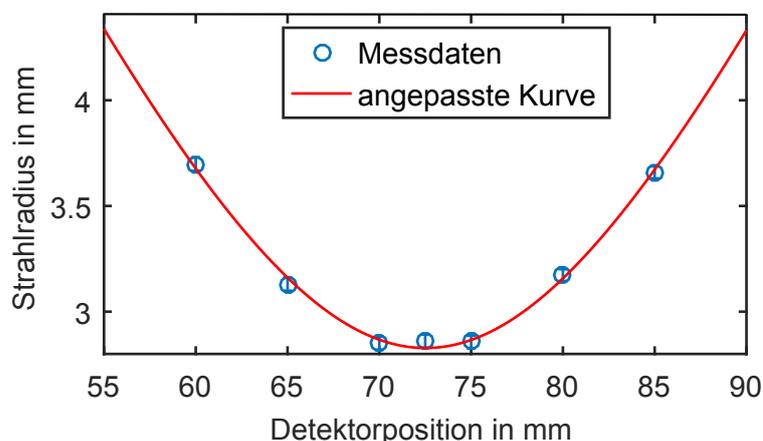


Abbildung 5.9: Darstellung der Strahltaillie des THz-Strahls in der Wechselwirkungszone in vertikaler Richtung. Die Daten wurden aus mehreren Messungen unter Verwendung des THz-Roboters erhalten.

Mit Hilfe einer Anpassung der Funktion $A\sqrt{1 + ((x - B)/C)^2}$, wobei A der $\frac{1}{2}$ Radius w_0 , B die Position und C die Rayleighlänge z_R des Strahles angeben, wurden die Strahlparameter in Tabelle 5.2 bestimmt. Die angegebenen Fehler geben den Fehler der Anpassung der Funktion an die Messdaten an.

Auf Grund des stagnierenden Verhaltens nahe dem Fokus wurde eine Knife-Edge Messung der Größe des THz Fokusses in der Wechselwirkungszone durchgeführt, um die mit Hilfe des THz-Roboters erhaltenen Werte zu bestätigen. Diese Messung liefert Werte von $(1,04 \pm 0,05) mm$ in horizontaler und $(2,15 \pm 0,11) mm$ in vertikaler Richtung. Dies ist insbesondere im horizontalen Fall eine signifikante Abweichung von der Fokusgrößenbestimmung durch Anpassung einer Kurve an die Messdaten. Eine Abschätzung der Rayleighlänge über $z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda_{THz}}$ mit einem gemittelten Strahldurchmesser w_0 von $1,6 mm$ und der im nächsten Abschnitt berechneten Wellenlänge von $434,5 \mu m$ liefert einen Wert von $z_R = 16,3 mm$. Dies ist in guter Übereinstimmung mit der durch Anpassung einer Kurve an die Messdaten bestimmte Rayleighlänge, da für diese Anpassung die Abweichung der Strahltaillie am Ort des Fokus weniger stark ins Gewicht fällt.

Ursache der Abweichung der Bestimmung der Fokusgröße ist die Größe des verwendeten Pyro-Detektors im THz-Roboter. Dieser ist mit einem Durchmesser von $3 mm$ nicht zu vernachlässigen, wodurch die Auflösungsgrenze des THz-Roboters größer als die Strahlgröße des THz-Strahles ist. Dies wird ebenfalls durch die Messdaten sichtbar, welche in fokussnähe nicht kleiner werden, sondern stagnieren. Zudem wurde in der Arbeitsgruppe ein ähnliches Verhalten beim Vergleich der Messmethoden zur Bestimmung der

THz-Strahlgröße mit Roboter, Knife-Edge Methode und THz-Kamera beobachtet.

THz Feldparameter aus Streaking

Einige Parameter des THz Feldes können aus der so genannten Streakingkurve bestimmt werden. Bei der Streakingkurve handelt es sich um ein Spektrogramm, welches durch das Durchfahren des Zeitversatzes zwischen XUV und THz Puls über den zeitlichen Überlapp hinweg erzeugt wird. Dabei wird für jeden Zeitversatzschritt ein Spektrum der kinetischen Energie der Elektronen aufgezeichnet. Die Aneinanderreihung der Einzelspektren ergibt das Spektrogramm der Streakingkurve. In Abbildung 5.10 ist ein exemplarisches Beispiel eines solchen Spektrogrammes dargestellt.

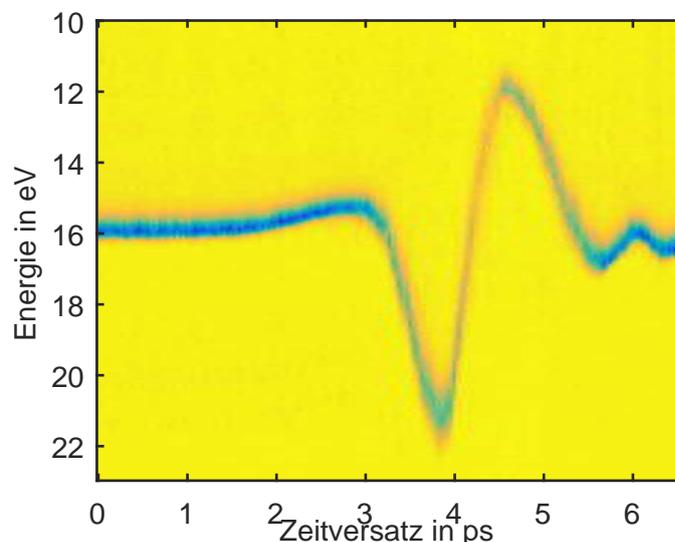


Abbildung 5.10: Darstellung des Spektrogramms, welches durch die 24. Harmonische im Targetgas Neon durch die Überlagerung mit dem THz Feld erzeugt wurde.

Durch eine Bestimmung des Schwerpunktes der Einzelspektren kann die Veränderung der kinetischen Energien der Elektronen dargestellt werden. Die Auslenkung der so erhaltenen Kurve ist Abhängig von der elektrischen Feldstärke des ablenkenden THz Feldes. Des Weiteren kann die so erhaltene Kurve durch Subtraktion der Schwerpunktsenergie in Abwesenheit des THz Feldes in eine Darstellung der relativen Energieänderung bezüglich der Ausgangsenergie verschoben werden. Das Vektorpotential kann mit Hilfe der Formel $A = \frac{dW}{e} \sqrt{\frac{m_e}{2W}}$, wobei A die Amplitude des Vektorpotentials, e die Elementarladung, m_e die Elektronenmasse, dW die Änderung der kinetischen Energie und W die Energie in Abwesenheit des THz Feldes angibt, bestimmt werden. Durch Ableitung der so erhaltenen Kurve kann die Feldstärke des elektrischen Feldes des THz Feldes bestimmt werden. Abbildung 5.11 stellt die so rekonstruierte THz Feldstärke für die einzelnen Zeitversatzschritte dar.

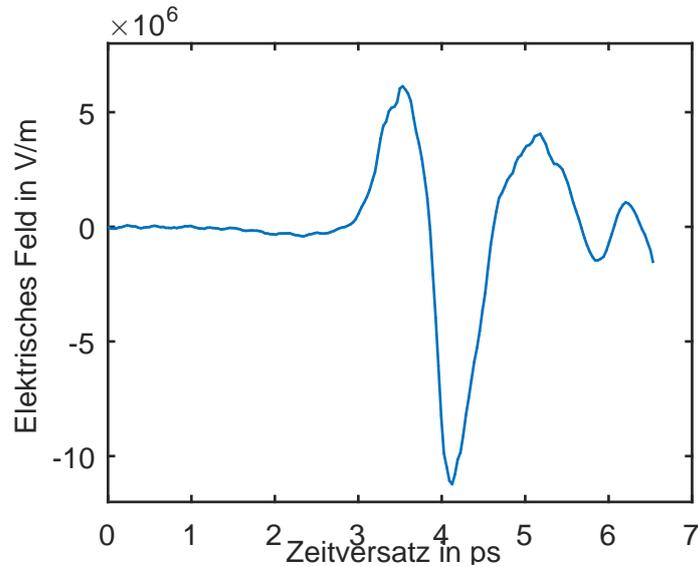


Abbildung 5.11: Darstellung der ermittelten THz Feldstärke für das Spektrogramm in Abbildung 5.10.

Zu dem kann mit Hilfe einer diskreten Fourier-Transformation aus dem Spektrogramm das Spektrum des THz Feldes bestimmt werden. Für die Fouriertransformierte $Y(k)$ gilt dabei, das $Y(k) = \sum_{j=1}^n X(j)W_n^{(j-1)(k-1)}$ mit $W_n = e^{-\frac{2\pi i}{n}}$. Durch eine Multiplikation von $Y(k)$ mit dem komplex Konjugierten erhält man das Spektrum des THz Feldes. Abbildung 5.12 stellt das so erhaltene Spektrum des Spektrogrammes aus Abbildung 5.10 dar.

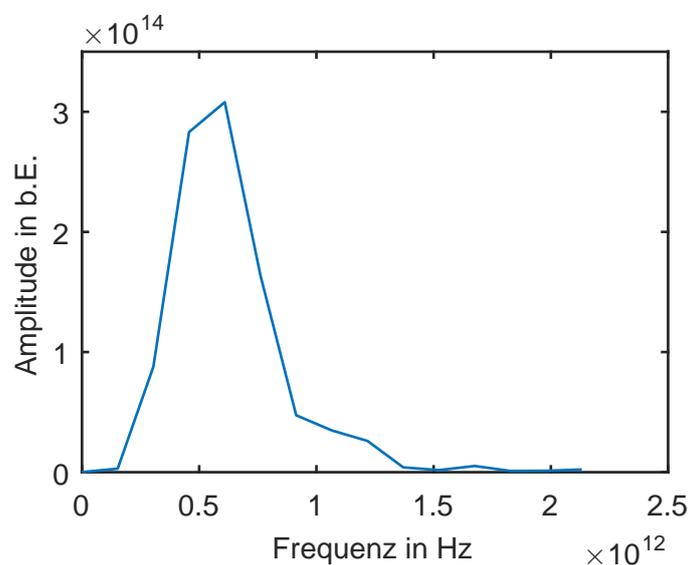


Abbildung 5.12: Darstellung des ermittelten THz Spektrums für das Spektrogramm in Abbildung 5.10.

Charakterisierung der Gouy Phase

Ein wichtiger Parameter zur Bestimmung von Zeitkonstanten mit Hilfe der Streak-Technik ist die Gouy-Phase des ablenkenden elektrischen Feldes. Der Verlauf der Gouyphase beschreibt die Phasenänderung des elektrischen Feldes beim Durchgang durch den Fokus. Diese Phasenverschiebung Φ_{Gouy} bezüglich einer ebenen Welle kann beschrieben werden durch:

$$\Phi_{Gouy}(z) = -\arctan \frac{z}{z_R}, \quad (5.2)$$

wobei z die Entfernung vom Fokus in Strahlrichtung und z_R die Rayleighlänge angibt.

Anschaulich bedeutet dies das strahlenoptische Umklappen der Wellenfronten beim Durchgang durch den Fokus. Für eine Messung mit Hilfe der Streak-Technik bedeutet dies, dass unterschiedliche Gebiete der Wechselwirkungszone durch unterschiedliche Phasen des elektrischen Feldes beeinflusst werden und die dort entstehenden Elektronen entsprechend unterschiedlich abgelenkt werden. Eine Quantifizierung dieses Prozesses ist nach [Sch11] möglich durch:

$$\tau_{Gouy} = \frac{d_{Gaspuls} \Delta\Phi}{2\pi\omega_{THz}}, \quad (5.3)$$

wobei τ_{Gouy} den Einfluss auf die Zeitauflösung, $d_{Gaspuls}$ die Breite des Gaspulses, $\Delta\Phi$ die Phasenänderung pro Längenintervall und ω_{THz} die Zentralfrequenz des THz-Pulses darstellt. Die im späteren Verlauf gemessenen Pulsdauern sind eine Faltung aus dem gemessenen Wert mit dem Wert von τ_{Gouy} . Zur Quantifizierung dieses Effektes wurden verschiedene Messungen durchgeführt um die einzelnen Parameter von Gleichung 5.3 zu bestimmen. Zur Bestimmung der Breite des Gaspulses wurde die Gasdüse orthogonal zur Strahlrichtung durch den Fokus des XUV-Strahls bewegt. Dabei wurde die Spannungshöhe des Signals an beiden TOFs gemessen. Durch Auftragen der gemessenen Signale gegenüber der Position kann mit Hilfe der Anpassung einer Gaußkurve an die Messdaten die Breite des Gaspulses zu $d_{Gaspuls} = (1,2 \pm 0,1) \text{ mm}$ bestimmt werden. Diese Messung ist in Abbildung 5.13 dargestellt.

Mit Hilfe der Streak-Technik wurde an verschiedenen Punkten in Strahlrichtung ein Spektrogramm aufgezeichnet. Ein exemplarisches Beispiel ist in Abbildung 5.14 dargestellt. Mit Hilfe dieser Spektrogramme können verschiedene Informationen über das THz-Feld bestimmt werden.

Durch eine Bestimmung des Schwerpunktes der Einzelspektren und einer Verschiebung des ungestreakten Spektrums auf 0 kann das Vektorpotential des THz-Feldes bestimmt werden. Durch die Ableitung des Vektorpotentials kann das elektrische Feld des THz-Pulses bestimmt werden. Abbildung 5.15 zeigt die so bestimmten elektrischen Felder für die zur Bestimmung der Gouy-Phase genutzten Spektrogramme. Die dargestellten Kurven stellen eine Anpassung der Funktion $y = a * \exp \left[-\left(\frac{t-b}{c} \right)^2 \right] * \sin(d * t + e)$

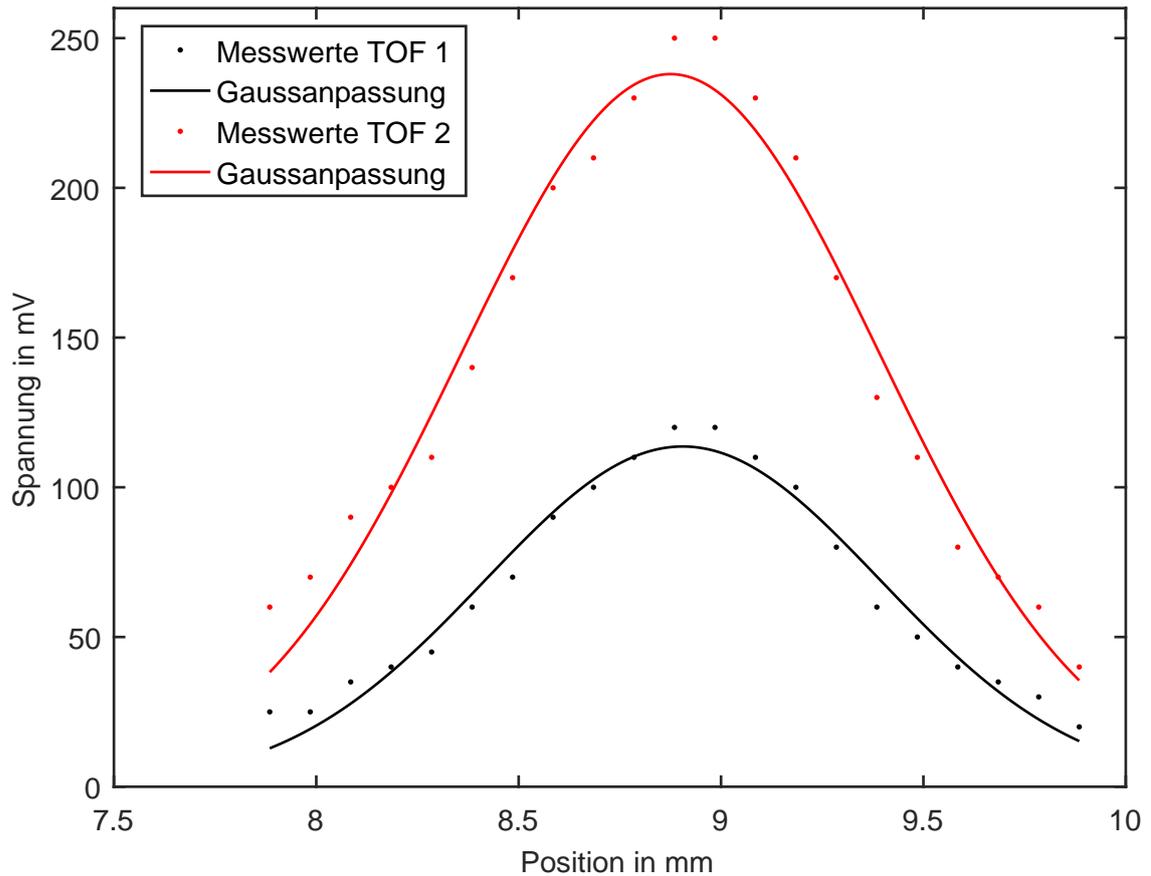


Abbildung 5.13: Darstellung der Messung zur Bestimmung der Strahlbreite. Die Düse wurde durch einen Verschiebetisch orthogonal zur Strahlrichtung durch den Strahl gefahren und das Elektronensignal auf beiden TOFs detektiert. Durch die Anpassung einer Gausskurve an die Messdaten wird eine Gaspulshalbwertsbreite von $1,2 \pm 0,1 \text{ mm}$ erhalten.

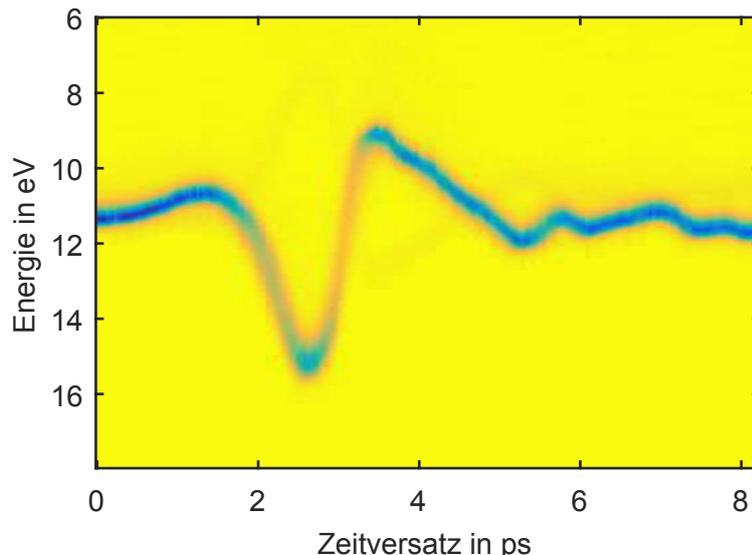


Abbildung 5.14: Darstellung eines mit der THz-Streak Technik gemessenen Spektrogramms. Die Spektren wurden durch die 21. Harmonischenordnung in Neon erzeugt, wobei eine Mittelung über 100 Spektren durchgeführt wurde. Das Delay wurde mit einer Auflösung von 33 fs abgetastet, erzeugt durch einen Verschiebetisch im THz-Strahlzweig. Das Spektrogramm ist eine direkte Repräsentation des Vektorpotentials des elektrischen Feldes des THz-Pulses.

an die Messwerte dar, wobei a die Amplitude, t die Zeit, b den Zeitpunkt des Nulldurchgangs, c ein Maß für die Breite, d die Frequenz des THz-Pulses und e die Phase bezeichnet.

Aus den so bestimmten elektrischen Feldern kann durch eine Fouriertransformation das Spektrum des THz-Feldes bestimmt werden. Abbildung 5.16 stellt ein auf diese Weise bestimmtes Spektrum eines THz-Feldes dar. Der Mittelwert aus der Messung mit den gegenüberliegenden TOFs ergibt einen Schwerpunkt des so bestimmten Spektrums von $\omega_{\text{THz}} = (0,69 \pm 0,01) \text{ THz}$.

Die mit Hilfe der an die so bestimmten elektrischen Felder bestimmte Phasenverlauf ist in Abbildung 5.17 dargestellt. Der Verlauf entspricht einer Funktion der Form $y = \arctan(z/z_R)$, wobei z die Strahlrichtung und z_R die Rayleighlänge bezeichnet. In der Nähe des Nullpunktes kann der Verlauf als linear angesehen werden. Eine Anpassung einer Geraden an diese Umgebung liefert einen Wert von $\Delta\Phi = (0,14 \pm 0,06) \frac{\text{rad}}{\text{mm}}$.

Ein Einsetzen der Werte in Gleichung 5.3 liefert einen Wert von $\tau_{\text{Gouy}} = 39 \pm 20 \text{ fs}$. Dies stellt einen signifikanten Einfluss auf die erreichbare zeitliche Auflösung der Messung dar. Auf Grund des Fehlers in Höhe von 50% ist eine weitere Abschätzung der Gouyphase nötig. Mit Hilfe der in Tabelle 5.2 bestimmten Rayleighlänge z_R lässt sich die Gouyphase durch Einsetzen in $\Phi = \arctan(z/z_R)$ ermitteln und es folgt $\tau_{\text{Gouy}} = 19 \pm 5 \text{ fs}$. Damit liefert diese Berechnung einen Wert für den Einfluss der Gouyphase, welcher sich an der unteren Grenze des Fehlerbereichs befindet. Vergleicht man die von [Sch11] und

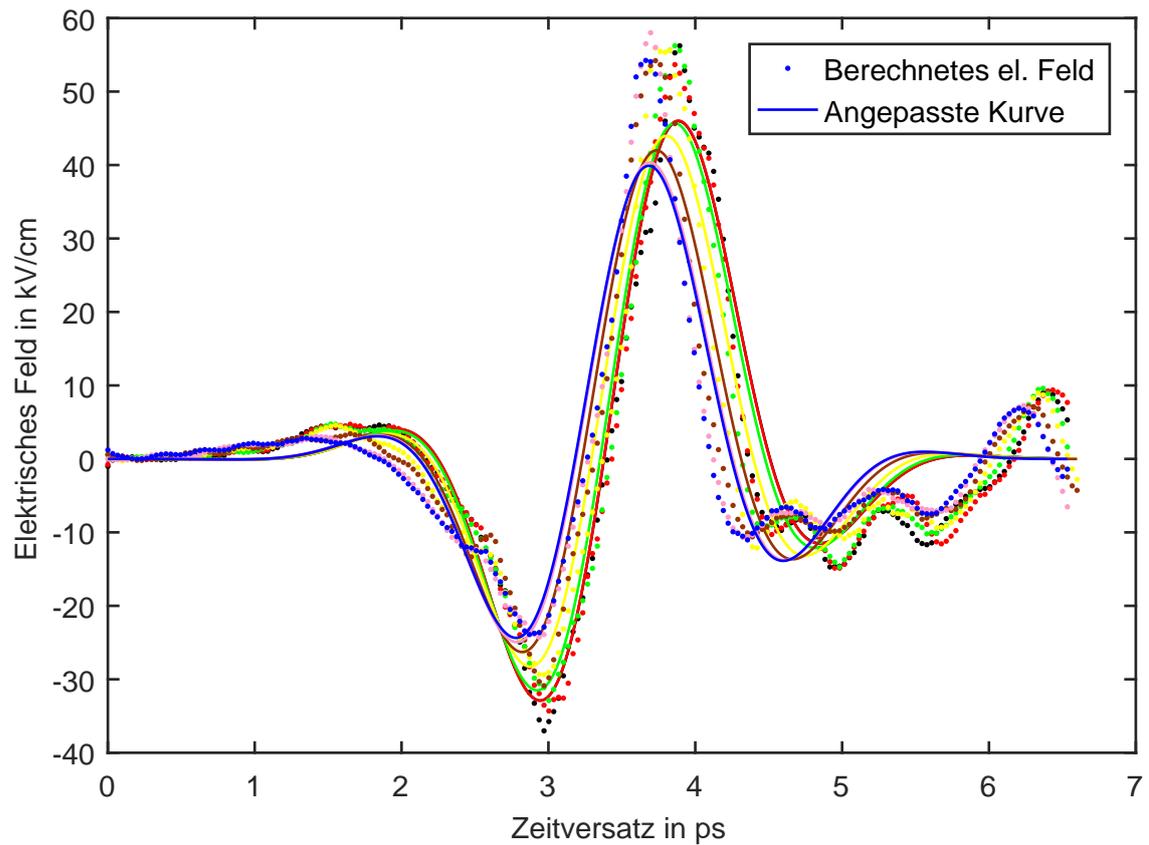


Abbildung 5.15: Darstellung der rekonstruierten elektrischen Felder des THz-Pulses aus den an verschiedenen Positionen gemessenen Spektrogrammen. Es sind deutliche Abweichungen in der Amplitude zwischen den angepassten Kurven und den Messdaten erkennbar. Das Wellenverhalten wird jedoch gut reproduziert.

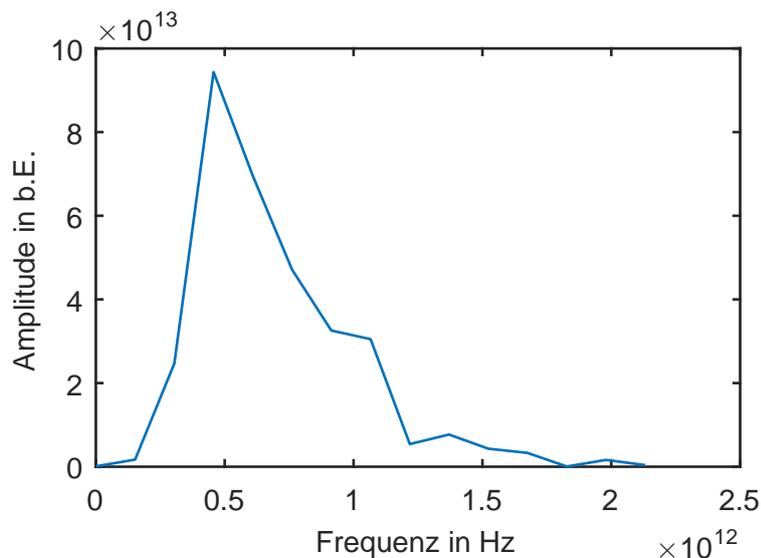


Abbildung 5.16: Darstellung des rekonstruierten Spektrums der aus dem Spektrogramm bestimmten elektrischen Felder des THz-Pulses. Der Schwerpunkt befindet sich bei etwa $0,7 \text{ THz}$. Das Spektrum ist typisch für THz-Strahlung, welche durch optische Gleichrichtung in LiNbO_3 erzeugt wurde.

[Bra16] bestimmten Werte für den Einfluss der Gouyphase von $15,7 \text{ fs}$ und 9 fs , jedoch für THz-Fokusse erzeugt mit Brennweiten von 100 mm und damit verbundener längerer Rayleighlänge, mit den für diese Arbeit bestimmten Werten, so erscheint der Wert von 39 fs als deutlich zu hoch und der Wert von 19 fs als realistischer. Jedoch zeigt [Frü09], das eine Reduktion der Brennweite um etwa 25% durchaus eine Änderung um den Faktor 2 für τ_{Gouy} bewirken kann. Dies ist wiederum ein Argument für den Wahrheitsgehalt der Messung von 39 fs in dieser Arbeit. Da es sich dabei um den bestmöglich gemessenen und nicht theoretisch bestimmten Wert handelt, wird in den folgenden Kapiteln mit diesem Wert für τ_{Gouy} gearbeitet.

Stabilität des zeitlichen Überlapps

Ein kritischer Punkt bei der Durchführung zeitaufgelöster Messungen im Femtosekundenbereich ist die Stabilität des Systems. Mögliche Einflüsse auf die Stabilität des Systems sind vielfältiger Natur. Neben elektronischen und mechanischen Einflüssen im aufgebauten System sind auch Schwankungen des Lasersystems möglich. Die Hauptbeiträge der elektronischen Einflüsse erfolgen durch Sprünge im Trigger des Oszilloskops und Schwankungen in den an den Elektronenflugzeitspektrometern anliegenden Spannungen. Bei den mechanischen Einflüssen sind insbesondere Vibrationen der Spiegelhalterungen auf dem Transportweg des Infrarotstrahls zur THz Quelle zu nennen. Die Hauptbeiträge der Schwankungen von Lasersystem sind Pointingfluktuationen, Fluktuationen der Ausgangsleistung und der Zentralwellenlänge.

Zur Quantifizierung der Stabilität dieses Systems wurden verschiedene Messungen

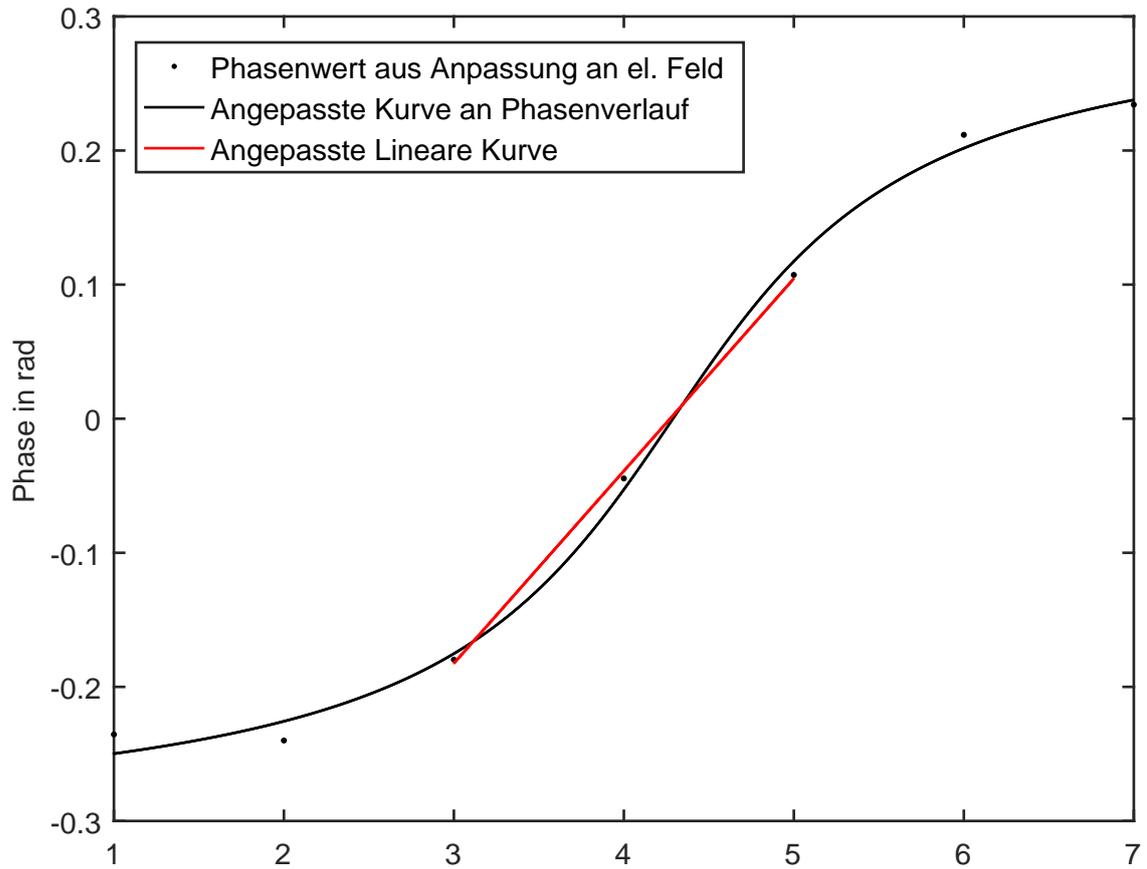


Abbildung 5.17: Darstellung des aus den Messungen bestimmten Phasenverlaufs des elektrischen Feldes der THz Strahlung beim Durchgang durch den Fokus. Die bestimmten Phasenwerte reproduzieren den Verlauf der Gouyphase (schwarze Kurve) gut. Der Anstieg der linearen Kurve (rot) ist der entscheidende Wert für den Einfluss der Gouyphase auf die Zeitauflösung des Experimentes.

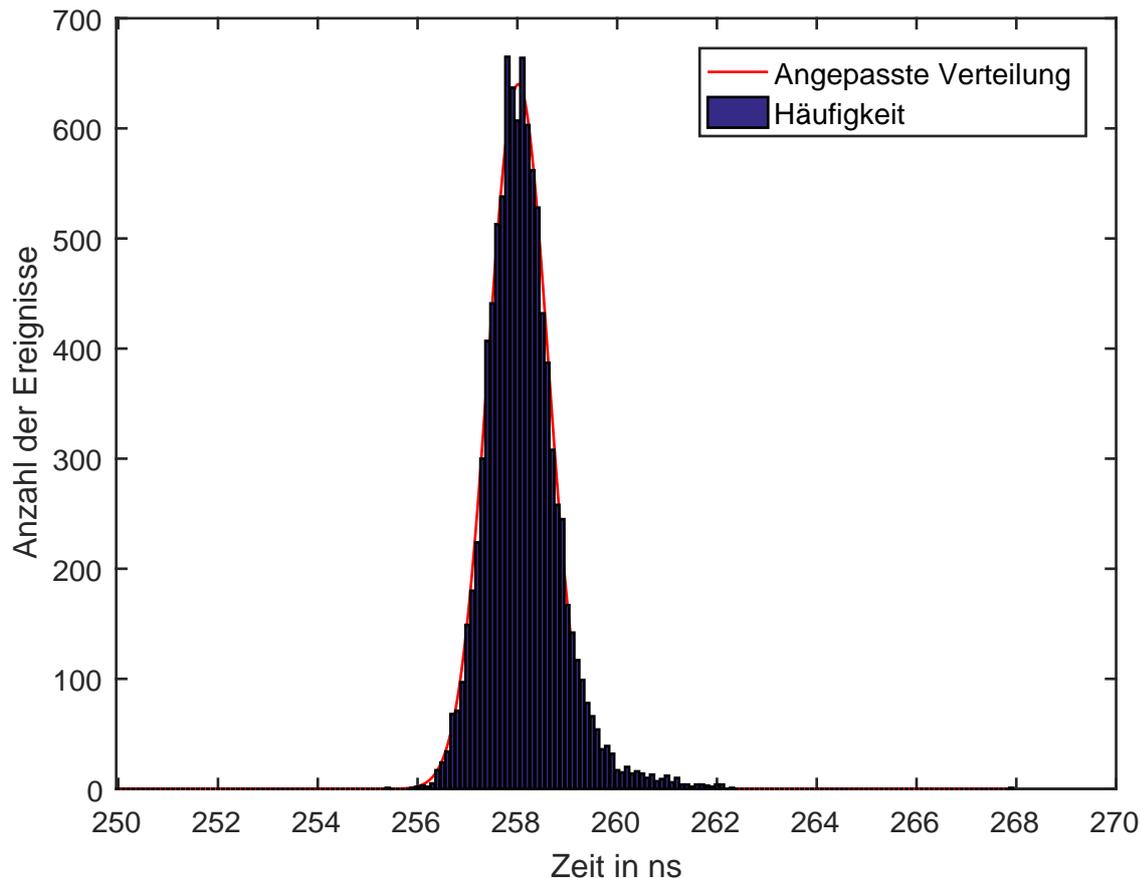


Abbildung 5.18: Histogramm der Einzelschussmessungen zur Stabilität des Photoelektronenspektrums in Abwesenheit des THz Feldes. Es wurden 10000 Einzelschüsse detektiert und eine Abweichung von $(1,20 \pm 0,02)$ ns bestimmt.

durchgeführt, um den Einfluss auf die Zeitauflösung zu bestimmen. In Abbildung 5.18 ist das Ergebnis einer Messung über 10000 Einzelschüsse eines Photoelektronenspektrums, erzeugt mit der 27. Harmonischenordnung in Neon in Abwesenheit des THz Feldes, dargestellt. Es zeigt, dass die Ankunftszeit der Elektronen auf dem Detektor um $(1,20 \pm 0,02)$ ns schwanken. Dies stellt eine sehr gute Stabilität dar und wird im Wesentlichen durch elektronische Schwankungen und Fluktuationen in der Zentralwellenlänge des Lasers bestimmt.

Diese Messung wurde in Anwesenheit des THz Feldes wiederholt. Hierfür wurde der Zeitversatz zwischen XUV- und THz Puls derart eingestellt, dass der XUV Puls im Nulldurchgang des Vektorpotentials des THz Feldes die Photoionisation auslöst. Dies hat den Vorteil, dass die Zentralenergie des Photoelektronenspektrums nicht verändert wird und lediglich eine Verbreiterung des Spektrums auftreten sollte. Eine Verschiebung des Zeitversatzes zwischen beiden Pulsen hätte eine energetische Verschiebung des Schwerpunktes zur Folge. Die Ergebnisse der Messung sind in Abbildung 5.19 dargestellt. Eine Auswertung der 10000 Einzelschussmessungen liefert eine Fluktuation in der Ankunftszeit von $(4,9 \pm 0,1)$ ns. Dies stellt eine erhebliche Änderung im Vergleich zur Messung

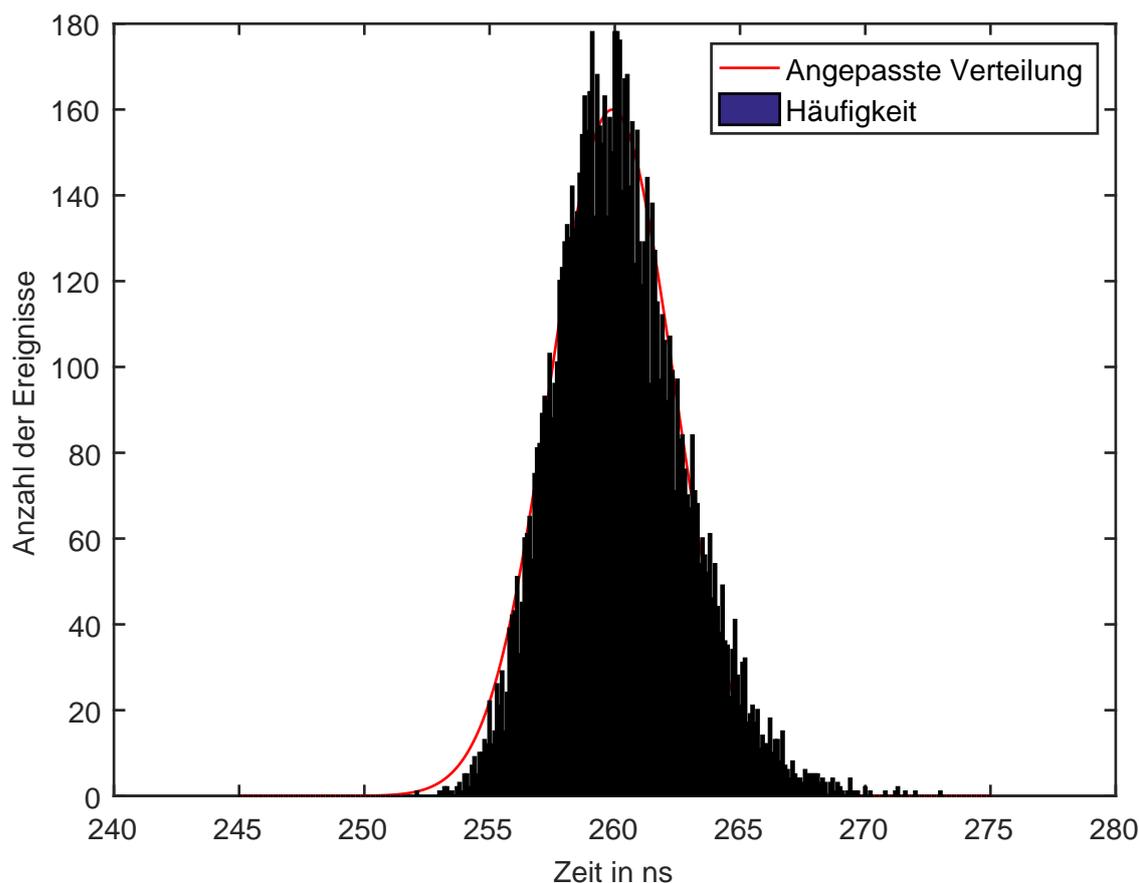


Abbildung 5.19: Histogramm der Einzelschussmessungen zur Stabilität des Photoelektronenspektrums in Anwesenheit des THz Feldes. Die Messung wurde im Nulldurchgang des Vektorpotentials des THz Feldes durchgeführt um eine Verschiebung der Zentralenergie zu vermeiden. Es wurden 10000 Einzelschüsse detektiert und eine Abweichung von $(4,9 \pm 0,1)$ ns bestimmt.

in Abwesenheit des THz Feldes dar.

Des Weiteren wurde ein Spektrogramm aufgenommen, um die Änderung der Ankunftszeit in Abhängigkeit des Zeitversatzes zwischen XUV und THz Feld zu bestimmen, welches ein Maß für die Streakgeschwindigkeit s ist. Die Anpassung einer linearen Kurve in unmittelbarer Umgebung des Nulldurchgangs des Vektorpotentials des THz Feldes liefert einen Wert von $s = (0,080 \pm 0,007) \frac{ns}{fs}$.

Entfaltet man die Fluktuation ohne THz Feld von der Fluktuation mit THz Feld ergibt sich ein Wert von $4,75 \pm 0,11$ ns. Kombiniert man diese Schwankung σ mit der Streakgeschwindigkeit durch $\tau = \frac{\sigma}{s}$ erhält man einen Wert von (59 ± 7) fs. Dieser Wert kann als Schwankung des Zeitversatzes zwischen XUV und THz Strahl betrachtet werden. Berechnet man die zugehörige Weglängendifferenz auf Basis von τ , ergibt sich ein Wert von $17,8 \mu m$. Betrachtet man die Gesamtweglänge beider Strahlzweige von etwa 32 m, ist eine Fluktuation der Strahlwege im Bereich von $20 \mu m$ leicht vorstellbar. Den Hauptbeitrag zu dieser Abweichung stellen Pointingfluktuationen und Vibrationen der Optiken dar. Eine

Ursache der Vibrationen ist die Länge des Gesamtaufbaus, welcher sich über mehrere Tische und Plattformen unterschiedlicher Stabilität erstreckt.

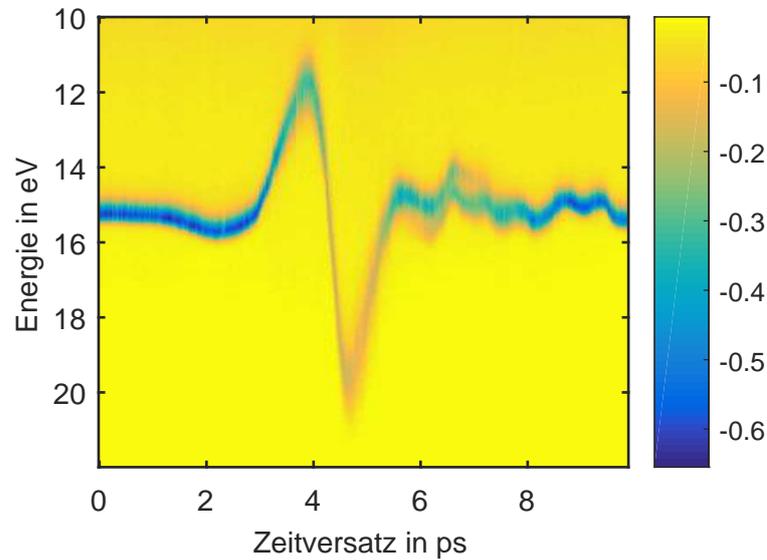
Als Konsequenz dieser Fluktuationen müssen zuverlässige Messungen zur Bestimmung von Zeitkonstanten oder Pulsdauern im Zeitbereich von unter 60 fs im Einzelschussbetrieb durchgeführt werden, da eine Mittelung der aufgenommenen Elektronenspektren zu Zeitkonstanten führt, welche maßgeblich von den Fluktuationen bestimmt werden. Dies erhöht enorm die Anforderungen an die zeitaufgelösten Messungen, um in jeder Einzelschussmessung ausreichend Elektronen für ein aussagekräftiges Spektrum zu erhalten. Zu dem schränkt es die Nutzbarkeit des Systems ein, da bei unzureichender Elektronenanzahl pro Schuss und damit notwendiger Mittelung über viele Schüsse große Unsicherheiten im Ergebnis die Folge sind.

5.3 Störungen des erwarteten Streakverhaltens

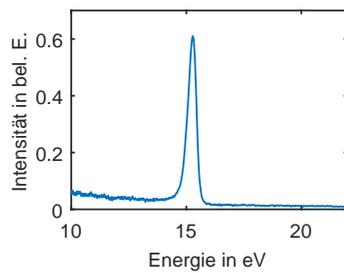
Im Zuge der Aufnahme der Daten der Spektrogramme traten verschiedene, unerwartete Phänomene auf. Diese Phänomene sorgen für eine Verbreiterung der gemessenen Spektren, insbesondere im Fall der Überlagerung von THz- und XUV-Strahl, so dass sie einen negativen Einfluss auf die Bestimmung der Pulsdauern haben. Ebenso erschweren sie die Bestimmung des Schwerpunktes gemessener Elektronenübergangsenergien, da das Signal- zu Rauschverhältnis eines verbreiterten Spektrums schlechter ist als das eines schmalen Spektrums, insbesondere unter Berücksichtigung der Schwankungen im Ankunftszeitpunkt zwischen THz und XUV Strahlung. Diese Effekte traten für beide Detektoren auf, so dass ein Detektorfehler unwahrscheinlich ist. Da die Ursache dieser Phänomene nicht abschließend geklärt werden konnte, sollen sie an dieser Stelle diskutiert und ausgewählte Messungen zu ihrer Untersuchung vorgestellt werden.

Ein Effekt, welcher in den Spektrogrammen ersichtlich ist, ist das Ausschmieren der Spektren an den Extrempunkten, sowohl für schnelle, als auch für langsame Elektronen. Dieses Verhalten ist sowohl in gemittelten, als auch in Einzelschusspektren erkennbar und exemplarisch in Abbildung 5.20 dargestellt. Es steht damit im Kontrast zu den Erwartungen auf Grund der Simulationen in Kapitel 3.2. Die Ursachen für dieses Verhalten können vielfältig sein. Zum einen lässt sich das Ausschmieren in den gemittelten Spektren durch eine Fluktuation der THz-Feldstärke erklären. Für starke Felder werden an den Extrempunkten die Elektronen stark ausgelenkt, für schwache Felder deutlich schwächer. Eine Mittelung über eine Vielzahl von Spektren führt zu einem Ausschmieren des gemittelten Spektrums. Da dieser Effekt im Nulldurchgang des Vektorpotentials nicht erkennbar ist, da hier keine Auslenkung der Elektronen relativ zu ihrer Ausgangsenergie erfolgt, ergibt sich optisch ein Einschnüren des Spektrums. Da der Effekt jedoch auch in Einzelschusspektren auftritt, muss es weitere Ursachen geben.

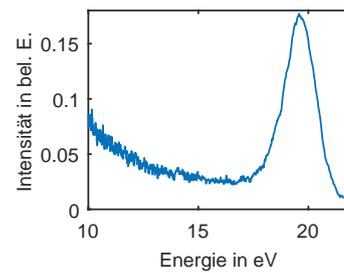
Eine dieser Ursachen ist die Funktionsweise der Elektronenflugzeitspektrometer, welcher durch die Energie-Flugzeit Kalibration weitgehend ausgeschlossen wird. Für kleine



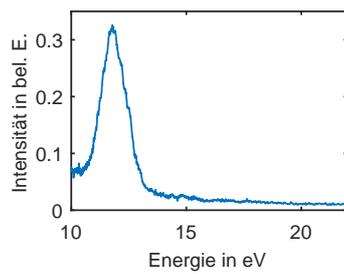
(a) Spektrogramm



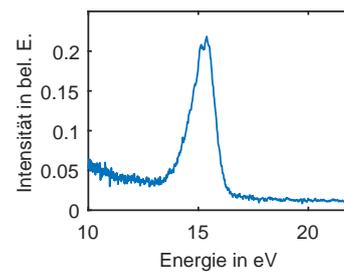
(b) ohne THz



(c) Maximum



(d) Minimum



(e) Nulldurchgang

Abbildung 5.20: Darstellung eines Spektrogramms (a) und der zugehörigen Einzelspektren im ungestreakten Fall (b) und im Fall der maximalen (b) und minimalen (c) kinetischen Energie der Elektronen. Abbildung (d) zeigt das Spektrum im Nulldurchgang, welches für die Berechnungen der Pulsdauer verwendet wurde.

kinetische Energien und damit langsame Elektronen ist die Energieauflösung der TOFs besser als für schnelle Elektronen. Ursache hierfür ist, dass eine Änderung der kinetischen Energien der langsamen Elektronen eine größere Änderung der Flugzeit zur Folge hat, als dies bei schnellen Elektronen der Fall ist. Der Effekt wird umso größer, je größer der Energiebereich ist, welcher untersucht wird. Zur Erlangung einer guten Zeitauflösung wird jedoch ein großer Gradient des elektrischen Feldes und damit ein großer Energiebereich benötigt, was diesen Effekt verstärkt. Im Gegensatz zum Effekt der Schwankung der THz-Feldstärke ist dieser Effekt auch im Einzelschuss vertreten. Einschränkend ist anzumerken, dass sich dieser Effekt zwar auf das Aussehen des Spektrogrammes auswirkt, nicht jedoch auf die Genauigkeit der Messung. Voraussetzung ist, dass diese im Nulldurchgang durchgeführt wird, da hier nur ein verhältnismäßig kleiner Energiebereich im Bereich von einem Elektronenvolt betrachtet wird, für welchen die Kalibration des Detektors durchaus als linear anzunehmen ist, im Gegensatz zum Energiebereich des Spektrogramms von 10 bis 20 Elektronenvolt.

Neben diesen Effekten treten jedoch weitere Effekte auf, für die keine abschließende Erklärung gefunden werden konnte. Die Abbildungen 5.21 und 5.22 zeigen den häufig beobachteten und als gegenläufiges Streaking bezeichneten Effekt. In 5.21 ist sehr gut der Verlauf des Vektorpotentials des THz-Feldes im Spektrogramm zu erkennen. Neben der deutlich ausgeprägten Kurve gibt es jedoch eine schwache Kurve, welche das Verhalten dieser Kurve an der Nullpunktenergie gespiegelt zeigt. Dieses Verhalten deutet darauf hin, dass Beiträge des THz-Feldes existieren, welche eine entgegengesetzte Polarisierung aufweisen. Über die Ursache kann jedoch nur spekuliert werden. Eine Vermutung ist, dass es sich um einen Effekt der auf den Lithiumniobat-Kristall geklebten Kaptonfolie handelt. Sollte an dieser Folie ein Teil der Strahlung reflektiert werden und dieser Anteil anschließend wieder vom Lithiumniobat-Kristall reflektiert werden, so würde eine Reflexion mit und eine Reflexion ohne Phasensprung vorliegen. Als Resultat würde ein Strahlanteil mit gedrehter Polarisierung entstehen. Jedoch müsste bei diesem Vorgang eine zusätzliche Wegstrecke entstehen, welche sich als Phasenverschiebung zwischen dem direkt Transmittierten und dem reflektierten Anteil bemerkbar macht. Dies konnte nicht eindeutig bestätigt oder widerlegt werden. Gegen diese These spricht zudem, dass die Auslenkung der Elektronen für die gestreakten und gegenläufig gestreakten Elektronen gleich ist. Dies würde bedeuten, dass der reflektierte Anteil die gleiche Intensität besitzt wieder direkt transmittierte Anteil. Eine zweite Hypothese ist eine Reflexion des elektrischen Feldes des THz-Strahles. Jedoch ist keine Oberfläche ersichtlich, an welcher diese Reflexion stattfinden sollte. Eine dritte Hypothese ist ein Zusammenhang mit der Gouy-Phase. Das Phänomen der Gouy-Phase beschreibt eben den Vorgang des Umklappens der Polarisierung im Fokus. Dies würde bedeuten, dass das Flugzeitspektrometer Elektronen aus Raumbereichen detektiert, an denen unterschiedliche Phasen vorliegen. Jedoch zeigt 5.21 keine Interferenzeffekte, wie sie bei einem ausgedehnten Raumbereich zu erwarten wären. Diese sind jedoch in 5.22 deutlich erkennbar. Zudem wurde der Einfluss

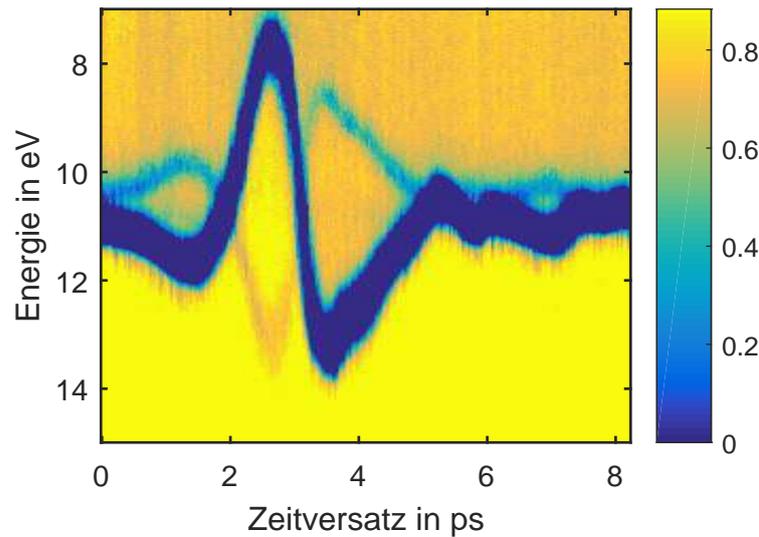


Abbildung 5.21: Spektrogramm, welches gegenläufiges Streaking zeigt.

der Gouy-Phase in Kapitel 5.2 untersucht.

Untersuchung der THz Polarisation

Um zu untersuchen, ob der Effekt des gegenläufigen Streakings durch eine Überlagerung verschiedener Polarisationen des THz-Feldes, ausgehend von der Erzeugung im Lithiumniobat-Kristall abhängig ist, wurde eine Messreihe mit Hilfe eines THz-Polarisators durchgeführt. Dieser Polarisator wurde in den Strahlengang der THz-Strahlung eingebracht. Durch diesen Polarisator transmittiert lediglich ein linear polarisierter Anteil. Zueinander gedrehte Polarisationen werden nicht transmittiert. Für verschiedene Drehungen des Polarisators wurden Spektrogramme aufgenommen. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.23 dargestellt.

Die Messung wurde für Drehwinkel von 0° bis 180° in Schritten von 10° durchgeführt. Es konnte eine vollständige Modulation der Intensität des THz-Feldes nachgewiesen werden. Anzeichen von überlagerten Polarisationen wurden nicht gefunden. Der Effekt des Anti-Streakings ist unabhängig von der Drehung des Polarisators. Eine Untersuchung von 180° zueinander verdrehten Polarisationen ist mit dieser Methode nicht möglich. Die Auslenkung des Vektorpotentials ist verglichen mit anderen Messungen sehr gering, da der verwendete Polarisator einen deutlich kleineren Querschnitt als die THz-Strahlung am Ort des Einbaus aufweist, so dass nur ein Bruchteil der insgesamt zur Verfügung stehenden Strahlung transmittiert wurde.

Einfluss der Düsenpitze

In einer weiteren Messreihe wurde der Einfluss des Abstandes der Düsenpitze zum XUV-Strahl untersucht. Die normale Prozedur zur Messung eines Photoelektronenspektrums besteht darin, die Gasquelle, im vorliegenden Fall eine Düsenpitze aus Metall,

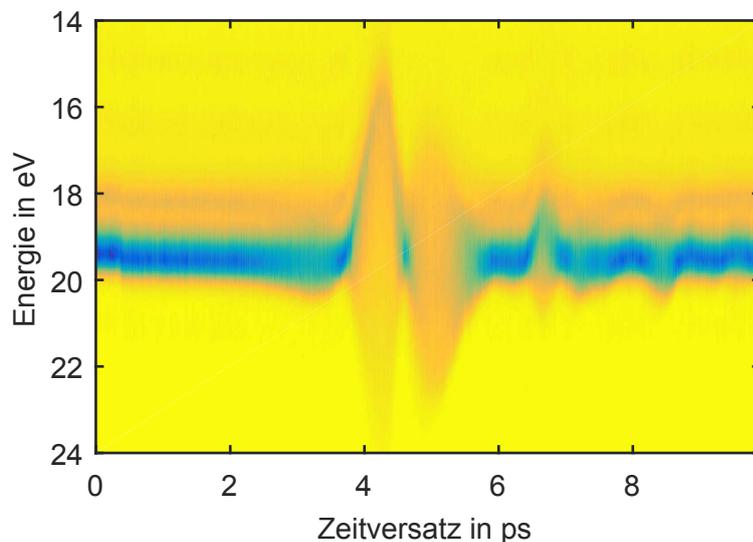


Abbildung 5.22: Darstellung des Spektrogramms der Photoelektronen von Argon, aufgenommen mit der 15. Harmonischenordnung. Die Messung wurde am Tag der Iodmethanmessungen durchgeführt, um ein Referenzspektrogramm für das THz-Feld zu erhalten.

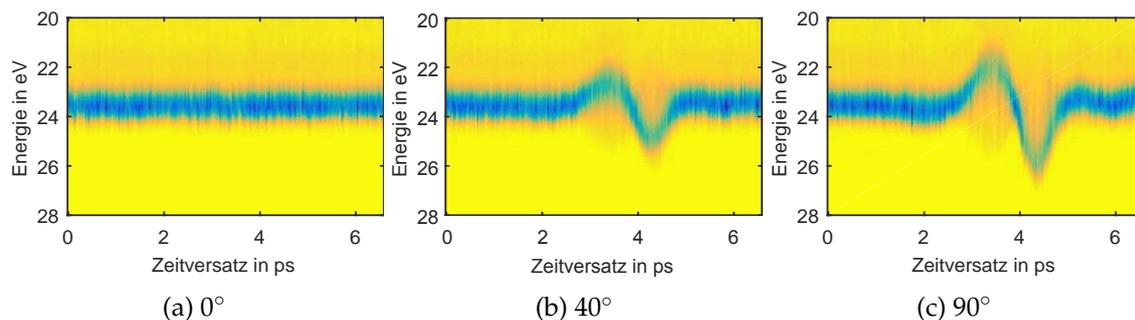


Abbildung 5.23: Darstellung der gemessenen Spektrogramme in Abhängigkeit vom Rotationswinkel des Polarisators. Es ist deutlich zu erkennen, dass das THz-Feld eine sehr gute lineare Polarisation aufweist und der Effekt des gegenläufigen Streakings unabhängig vom Drehwinkel ist. Mit Hilfe des Polarisators konnte eine vollständige Modulation der Intensität des THz-Feldes in der Wechselwirkungszone eingestellt werden.

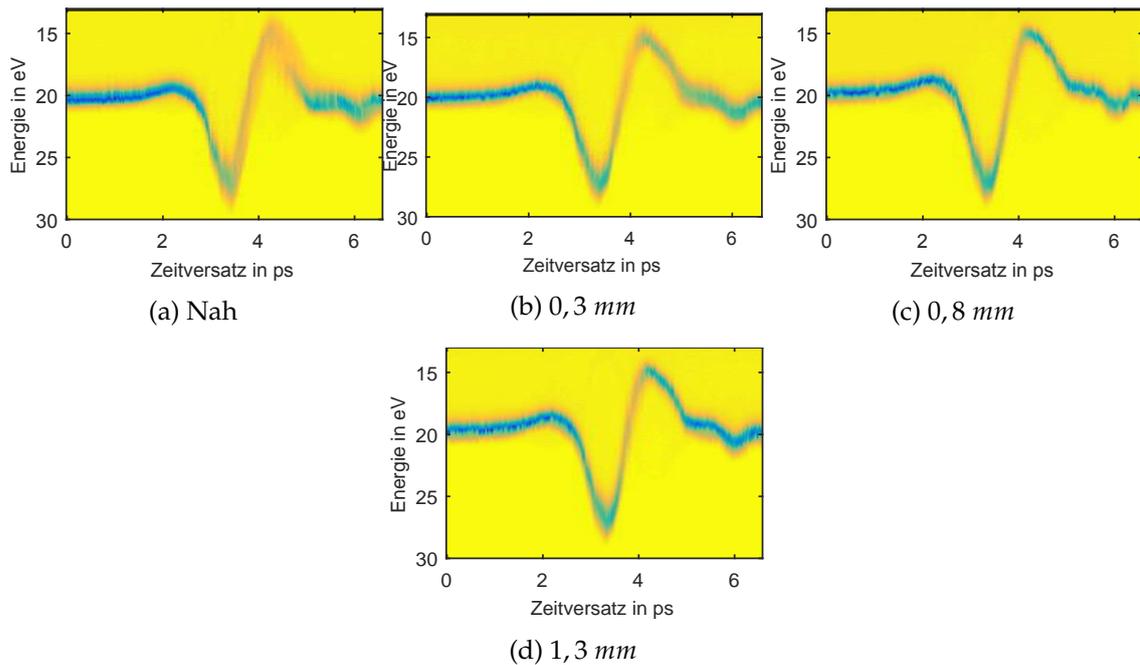


Abbildung 5.24: Darstellung der gemessenen Spektrogramme in Abhängigkeit vom Abstand der Düse zum XUV Strahl. Deutlich erkennbar ist das Ausschmieren der Kurve für (a) und (b), wobei dieses Verhalten zeitverzögert, etwa im Bereich des Maximums bei $3,5 \text{ ps}$, einsetzt. Zwischen den Spektrogrammen bei $0,8 \text{ mm}$ und $1,3 \text{ mm}$ besteht kein großer Unterschied.

so nah an den ionisierenden Strahl zu bringen, das gerade keine Oberflächenelektronen oder Reflexionen der Strahlung an der Düsen Spitze detektierbar sind. Dies führt dazu, dass die ionisierende Strahlung durch ein verhältnismäßig dichtes Gas propagiert und durch die große Anzahl an Ionisationspartnern ein gutes Signal- zu Rauschverhältnis entsteht. Im vorliegenden Fall befindet sich neben dem XUV-Strahl jedoch das elektrische Feld des THz-Strahls in der Wechselwirkungszone. Es ist zu erwarten, dass dieses elektrische Feld von der Anwesenheit einer metallischen Spitze beeinflusst wird. Aus diesem Grund wurden in einer Messreihe Spektrogramme für verschiedene Abstände zwischen Düsen Spitze und XUV-Strahl aufgenommen und in Abbildung 5.24 dargestellt.

Es ist deutlich zu erkennen, dass die Düsen Spitze das elektrische Feld beeinflusst. Insbesondere für Abstände unter $0,3 \text{ mm}$ findet eine deutliche Verbreiterung des Spektrums statt. Diese Verbreiterung setzt im Graphen im Bereich des Maximums bei etwa $3,5 \text{ ps}$ ein. Dieser Zeitversatz stellt die Zeitdauer für die Reflexion des elektrischen Feldes an der Düsen Spitze dar. Für Abstände über $0,8 \text{ mm}$ ist kein signifikanter Unterschied zwischen den Spektrogrammen mehr erkennbar. Lediglich die Farbskalierung deutet an, dass das Spektrum im Bereich ab 5 ps für einen Abstand von $0,8 \text{ mm}$ gegenüber dem Spektrum bei $1,3 \text{ mm}$ noch verbreitert ist.

Als Konsequenz dieser Feststellung muss der Abstand der Düse zum XUV-Strahl auf etwa 1 mm eingestellt werden. Dies sorgt jedoch dafür, dass zum einen das Signal- zu Rauschverhältnis schlechter wird, da die ionisierende Strahlung durch eine deutlich ver-

dünnte Gaswolke propagiert. Zum anderen ist die Ausdehnung der Gaswolke größer, so dass der Einfluss der Gouy-Phase auf das gemessene Spektrum größer ist.

6 Zeitaufgelöste Messungen mit THz-Streaking

Nachdem im vorangegangenen Kapitel der Messaufbau charakterisiert wurde, stellt dieses Kapitel die durchgeführten zeitaufgelösten Messungen vor. Im ersten Abschnitt des Kapitels werden dafür Messungen zur zeitlichen Charakterisierung der Harmonischenstrahlung präsentiert. Dabei wird auch eine Möglichkeit zur Berechnung der Pulsdauer und des Chirps mit Hilfe von gegenüberliegenden Elektronenflugzeitspektrometern erläutert. Im zweiten Abschnitt des Kapitels werden dann Messungen zur Bestimmung der Zeitkonstante eines Auger-Meitner Prozesses in Iodmethan dargestellt. Dabei wird eine weitere Möglichkeit zur Berechnung von Zeitkonstanten mit Hilfe der lichtfeldgetriebenen Streak Kamera aufgezeigt.

6.1 Zeitliche Charakterisierung der Harmonischenstrahlung

In diesem Abschnitt des Kapitels werden die durchgeführten zeitaufgelösten Messungen zur Charakterisierung und der Harmonischenstrahlung und zur Bestimmung der Zeitauflösung des Experimentes vorgestellt. Im ersten Teil wird dabei der Einfluss des Spaltes vor dem Gitter auf die Pulsdauer experimentell untersucht, um eine Übereinstimmung mit den Simulationen in 3.1.2 zu zeigen. Anschließend wird eine Messreihe zur Bestimmung der Pulsdauern der erzeugten Harmonischen vorgestellt. Im dritten Abschnitt des Kapitels wird eine Methode zur Erzeugung von Harmonischenpulsen vorgestellt, welche deutlich kürzer als die Pulsdauern der treibenden Laserpulse sind.

Einfluss des Spaltes

Zur Bestimmung der zeitlichen Auflösung des Systems wurde eine Bestimmung der Pulsdauern und des Frequenzchirps bei gleichen XUV und THz Quellparametern für verschiedene Öffnungen des Spaltes durchgeführt. Entsprechend der Gleichungen (2.45) und (2.47) besteht zwischen den Pulsdauern und der Spaltöffnung ein Zusammenhang, welcher experimentell überprüft wird. Die Tabelle 6.1 und die Abbildung 6.1 stellen die Ergebnisse der Messung dar.

Die Berechnung der Pulsparameter orientiert sich an dem in [ABB⁺18] vorgestellten Schema. Im Unterschied zu dem darin vorgestellten Schema werden in dieser Arbeit jedoch 2 gegenüberliegende Elektronenflugzeitspektrometer zur Messung der Photoelek-

Spaltöffnung in mm	τ_{Mittel} in fs	c_{Mittel} in $\frac{meV}{fs}$
0,5	41 ± 18	9.6 ± 7
1	85 ± 37	-53 ± 39
1,5	87 ± 38	-128 ± 95
2	154 ± 68	441 ± 326
2,5	176 ± 77	262 ± 194
3	169 ± 74	-27 ± 20
3,5	144 ± 63	154 ± 114
4	263 ± 116	-227 ± 168

Tabelle 6.1: Ermittelte Werte der Pulsdauern und des Chirps in Abhängigkeit der Spaltöffnung vor dem Gitter.

tronenspektren verwendet. Dadurch ergeben sich kleine Korrekturen in der Berechnung. Im ersten Schritt wird aus der Breite des gemessenen Spektrums $\sigma_{Mess,\pm}$ für jedes Spektrometer \pm die Gouyphase nach:

$$\sigma_{real,\pm} = \sqrt{\sigma_{Mess,\pm}^2 - s_{\pm}^2 * \tau_{Gouy}^2} \quad (6.1)$$

entfaltet um die reale Breite $\sigma_{real,\pm}$ des Spektrums zu erhalten. Dabei ist s_{\pm} die jeweils bestimmte Streakgeschwindigkeit der Streakrichtung und τ_{Gouy} der in Abschnitt (5.2) bestimmte Wert des Einflusses der Gouyphase.

Im zweiten Schritt wird aus der so bestimmten Breite des Spektrums die Breite des Spektrums in Abwesenheit des THz-Feldes $\sigma_{0,\pm}$ nach:

$$\sigma_{Entfalt,\pm} = \sqrt{\sigma_{real,\pm}^2 - \sigma_{0,\pm}^2} \quad (6.2)$$

entfaltet und man erhält die direkt in die Berechnung der Pulsdauer eingehende Breite $\sigma_{Entfalt,\pm}$. Dieser Schritt stellt eine leichte Abweichung zu [ABB⁺18] dar, da für diese Arbeit mit der Möglichkeit zweier verschiedener Spektrenbreiten $\sigma_{0,\pm}$ durch die Nutzung von 2 Spektrometern gerechnet wird. Im letzten Schritt wird die Pulsdauer des XUV-Pulses τ_{XUV} mit:

$$\tau_{XUV} = \frac{\sqrt{\sigma_{Entfalt,+}^2 * s_- + \sigma_{Entfalt,-}^2 * s_+}}{(s_+ + s_-) * s_+ * s_-} \quad (6.3)$$

und der entsprechende Frequenzchirp c mit:

$$c = \frac{\sigma_{Entfalt,+}^2 * s_-^2 - \sigma_{Entfalt,-}^2 * s_+^2}{4 * s_+ * s_- * (s_+ + s_-) * \tau_{XUV}^2} \quad (6.4)$$

berechnet.

Die Auswertung der Daten auf Einzelschussbasis ergibt keine physikalisch sinnvollen Werte. Ursache hierfür ist die mangelnde Anzahl detektierter Elektronen von etwa 10 bis 20 Elektronen pro Schuss. Insbesondere im Fall der Überlagerung von THz und XUV-Strahl sinkt diese Zahl weiter auf unter 10. Dadurch ist keine sinnvolle Messung der

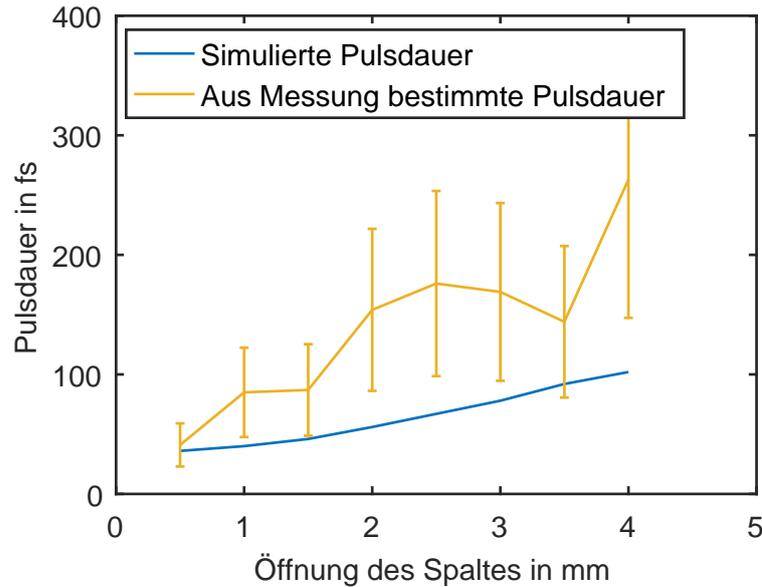


Abbildung 6.1: Darstellung der aus der Messung ermittelten und mit RAY simulierten Werte der Pulsdauern in Abhängigkeit der Spaltöffnung vor dem Gitter. Die Messung erfolgte für die 25. Harmonischenordnung in Neon. Die Werte weisen deutliche Abweichungen auf.

Breite des Photoelektronenspektrums möglich und eine Berechnung der Pulsdauer liefert imaginäre Werte.

Aus diesem Grund wurde die Auswertung mit Hilfe gemittelter Spektren durchgeführt. Hierfür wurde vor der Durchführung der oben angegebenen Berechnung das gemessene Spektrum σ_{Mess} aus einer Entfaltung des tatsächlich gemessenen Spektrums $\sigma_{Mess,Jitter,\pm}$ mit dem Einfluss des Jitters τ_{Jitter} aus dem Kapitel 5.2 ermittelt durch:

$$\sigma_{Mess,\pm} = \sqrt{\sigma_{Mess,Jitter,\pm}^2 - s_{\pm}^2 * \tau_{Jitter}^2} \quad (6.5)$$

Ein Vergleich der simulierten und experimentell bestimmten Werte weist deutliche Abweichungen auf. Ursache hierfür können Inhomogenitäten im XUV-Strahlprofil und Abweichungen im Jitter zwischen XUV- und THz-Strahl sein. Zudem ist die Datenbasis mit 100 Schüssen sehr gering. Durch die Auswertung der gemittelten Spektren wächst der Fehler der Bestimmung der Pulsdauer und des Chirps deutlich an. Für die Pulsdauer wurde eine Unsicherheit von 44% und für den Chirp ein Wert von 74% bestimmt.

Pulsdauern der erzeugten Harmonischen

Ein Vorteil des hier vorgestellten experimentellen Aufbaus ist die spektrale Variabilität der Harmonischenstrahlung in der Wechselwirkungszone des Experimentes. Um diese zu demonstrieren, wurden Streakingspuren für alle erzeugten Harmonischen aufgenommen. Ziel dieser Messreihe ist eine Untersuchung der Abhängigkeit der Pulsdauer von der Harmonischenordnung. Es konnten Streakingspuren von der 15. Harmonischenord-

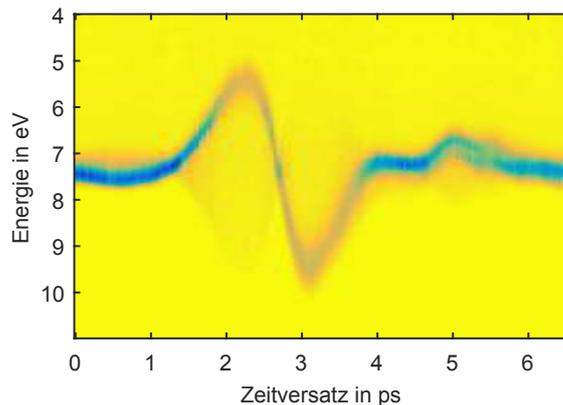


Abbildung 6.2: Darstellung des Spektrogramms der Photoelektronen von Argon, aufgenommen mit der 15. Harmonischenordnung.

nung bei 53 nm , wie in Abbildung 6.2 dargestellt, bis zur 42. Harmonischenordnung bei 19 nm , wie in Abbildung 6.3 dargestellt, aufgenommen werden.

Die 15. Harmonische stellt die untere Grenze der Harmonischenordnungen dar, welche in der verwendeten Konfiguration durch den Monochromator propagieren können. Grund hierfür ist, dass das Gitter, welches zur Selektion der Harmonischenordnungen in der Wechselwirkungszone um die Strahlachse gekippt wird, sich am Anschlag der Drehung befindet. Durch eine Änderung der Halterung des Gitters könnte dieser Bereich erweitert werden. Jedoch wird der Abstand zwischen den Harmonischenordnungen mit fallender Ordnungszahl größer, so dass für niedrigere Ordnungen größere Drehungen benötigt werden.

Die 42. Harmonischenordnung ist die höchste Ordnung, für welche in der vorliegenden Arbeit Elektronenspektren aufgenommen wurden. Deutlich erkennbar ist die drastische Abnahme des Signals. Durch die Verwendung einer anderen Düse im späteren Verlauf der Arbeit konnte die Signalstärke zwar deutlich erhöht werden, jedoch wurden keine Versuche unternommen, das in Abbildung 6.3 dargestellte Spektrogramm zu reproduzieren. Neben der Signalstärke limitiert der Abstand zu den benachbarten Harmonischen an dieser Stelle den Versuchsaufbau, da höhere Ordnungen näher beieinander liegen und von der Rasierklingskombination vor der Wechselwirkungszone nicht mehr vollständig voneinander getrennt werden können, ohne signifikante Beiträge der benötigten Harmonischenordnung zu blocken.

Auf Grund der im vorangegangenen Abschnitt dargestellten Fehler ergibt die Auswertung dieser Messreihen keinen physikalischen Mehrwert. Gemäß [PVB⁺08] und [ALES⁺16] werden Abweichungen zwischen den Harmonischen im Bereich von wenigen Femtosekunden erwartet, welche bei der Ungenauigkeit der Messungen im Fehlerbalken untergehen. Auf eine Darstellung der Ergebnisse wird aus diesem Grund verzichtet.

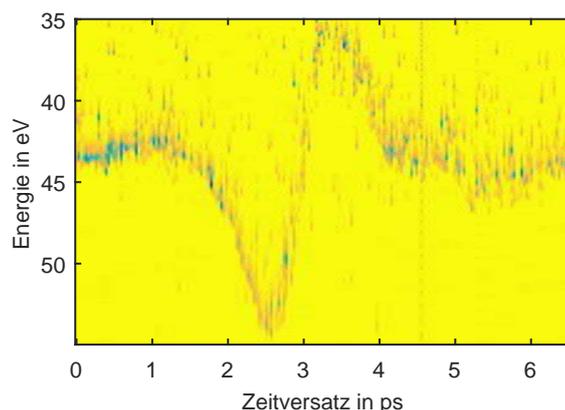


Abbildung 6.3: Darstellung des Spektrogramms der Photoelektronen von Argon, aufgenommen mit der 42. Harmonischenordnung. Im Gegensatz zu Abbildung 6.2 wird hier das Signal des anderen Elektronenflugzeitspektrometers dargestellt.

Überlappscan

Zur Erzeugung der Harmonischen wurde ein Zwei-Farben-Erzeugungsschema genutzt. Dieser Aufbau bietet die Möglichkeit die Erzeugendenpulse zeitlich zueinander zu verschieben. Im Fall gerader Harmonischer werden diese Harmonischenordnungen nur für einen Überlapp von Fundamental - und zweitem Harmonischenpuls erzeugt. Dies bietet die Möglichkeit die Erzeugendenpulse derart zeitlich zu überlagern, das nur ein geringer Überlapp besteht. Die geraden Harmonischen können dementsprechend nur in einem sehr kleinen Zeitfenster erzeugt werden. Die Erwartung ist, dass sich dies direkt auf die Pulsdauer der erzeugten Harmonischen überträgt. Eine Messreihe zur Bestätigung dieser Annahme lieferte keine Erkenntnisse, da im Bereich des geringen Überlapps das Signal der Harmonischen derart schwach ist, das eine Bestimmung der Pulsdauer fehlschlägt.

6.2 Auger-Meitner Elektronen in Iodmethan

Zur Demonstration der Leistungsfähigkeit des experimentellen Aufbaus für zeitaufgelöste spektroskopische Messungen an Molekülen wurde ein Auger-Meitner Übergang in Iodmethan ausgewählt und vermessen.

Im Unterschied zu den zeitaufgelösten Messungen zur Bestimmung der Pulseigenschaften der ionisierenden Strahlung wird eine Methode ähnlich zur in [WWB⁺19] vorgestellten Messung angewendet. Ebenso wie in dieser Veröffentlichung vorgestellt wird der Zeitversatz zwischen den spektralen Linien der Photoelektronen und der Auger-Meitner Elektronen gemessen. Da es sich bei der vorliegenden THz Quelle jedoch um eine Einzelzyklusquelle handelt, wird der Zeitversatz durch die Bestimmung des Nulldurchgangs des Vektorpotentials bestimmt. Dieser Nulldurchgang ist für Photoelektronen und Auger-Meitner Elektronen verschieden. Im Anschluss muss die so bestimmte Zeitkonstante auf Grund der Lebensdauer des Auger-Meitner Überganges und der Puls-

dauer korrigiert werden.

Mit Hilfe des Monochromators wurden für verschiedene Harmonischenordnungen Spektren in Abwesenheit des THz-Feldes von Iodmethan aufgenommen. Diese sind in Abbildung 6.4 und Abbildung 6.5 dargestellt. Die in Abbildung 2.4 aufgeführten Übergänge sind deutlich erkennbar. Insbesondere die niederenergetischsten Ionisationsübergänge $(2e)^{-1}$, $(3a_1)^{-1}$ und $(1e)^{-1}$ werden gut dargestellt. Der Übergang $(2a_1)^{-1}$ hingegen ist für Abbildung 6.4 (a) und Abbildung 6.5 (c) schwer vom Rauschen zu unterscheiden. Auf Grund von Schwankungen im Trigger ergeben sich zwischen den Spektren für die verschiedenen Photoenergien teilweise kleine Verschiebungen. Das Hintergrundsignal der langsamen Elektronen kann auf Elektronen aus shake-off Übergängen zurückgeführt werden. Des Weiteren ist erkennbar, dass für Abbildung 6.4 (a) keine Auger-Meitner Elektronen aus dem σ^* Übergang erkennbar sind, da die Anregungsenergie den Zustand σ^* nicht bevölkern kann. Die Oszillatorstärke dieses Überganges ist in Abbildung 6.6 dargestellt. Für Abbildung 6.4 (b) und (c) werden liefern sie hingegen einen Signalbeitrag knapp unter 20 eV. Für Abbildung 6.4 (d) sind sie wiederum nicht erkennbar, da die Anregung bei 53,9 eV nicht resonant erfolgt. Für Photonenenergien ab 55,4 eV in Abbildung 6.5(a) bildet sich ein weiterer Auger-Meitner Beitrag bei etwa 25 eV.

Im nächsten Schritt wurde die Messung der Spektren in Anwesenheit des THz-Feldes wiederholt. Dabei wurde der Zeitversatz zwischen dem XUV und THz-Puls derart gewählt, dass sich die Messung in der Umgebung des Nulldurchganges des Vektorpotentials befindet. Für die so erhaltenen Spektren wurde jeweils die Lage der Photolinie und der Auger-Meitner Linie bestimmt. Für die jeweilige Elektronenlinie kann eine lineare Funktion an die Messwerte angepasst werden. Der Schnittpunkt dieser so bestimmten Gerade mit dem jeweiligen Energiewert für das Spektrum in Abwesenheit des THz-Feldes gibt die Lage des Nulldurchganges des Vektorpotentials an. Abbildung 6.7 stellt diesen Sachverhalt exemplarisch für ein Elektronenflugzeitspektrometer graphisch dar. Wie zu erwarten unterscheidet sich dieser Zeitpunkt für die Photolinien nur im Rahmen der Messgenauigkeit, während der Zeitpunkt für die Auger-Meitner Linie deutlich davon abweicht. Die Lage des Zeitnullpunktes wird aus Mittelung der drei Schnittpunkte erstellt, da die Photoelektronen im Rahmen der Messgenauigkeit instantan erzeugt werden. Die Differenz dieses Zeitpunktes zum Zeitpunkt des Nulldurchganges der Auger-Meitner Linie gibt die gemessene Zeitdifferenz an. Die Ergebnisse sind in Tabelle 6.2 dargestellt. Für die Photoelektronenlinien ergibt sich ein Mittelwert von (252 ± 53) fs für TOF 1 und von (150 ± 33) fs für TOF 2. Die Differenz zwischen diesem Mittelwert und dem Wert des Auger-Meitner Überganges beträgt damit (38 ± 128) fs und (33 ± 133) fs. Der Mittelwert für beide Detektoren beträgt damit (35 ± 131) fs.

Aus dieser so bestimmten Zeitdifferenz von (38 ± 128) fs wird mit Hilfe von $I_{Auger-Meitner}(t) = \exp\left[\frac{1}{\tau}\left(\frac{\sigma^2}{2\sigma\tau^2} - t\right)\right] * \left[1 - \operatorname{erf}\left(\frac{1}{\sqrt{2}\sigma}(t - \frac{\sigma^2}{\tau})\right)\right]$ aus [WWB⁺19] die Lebensdauer bestimmt, wobei I die Intensität, τ die Lebensdauer des Auger-Meitner Übergangs, σ die rms Pulsdauer des anregenden XUV-Pulses und t die Zeit bezeichnet. Die Lage des Maximums

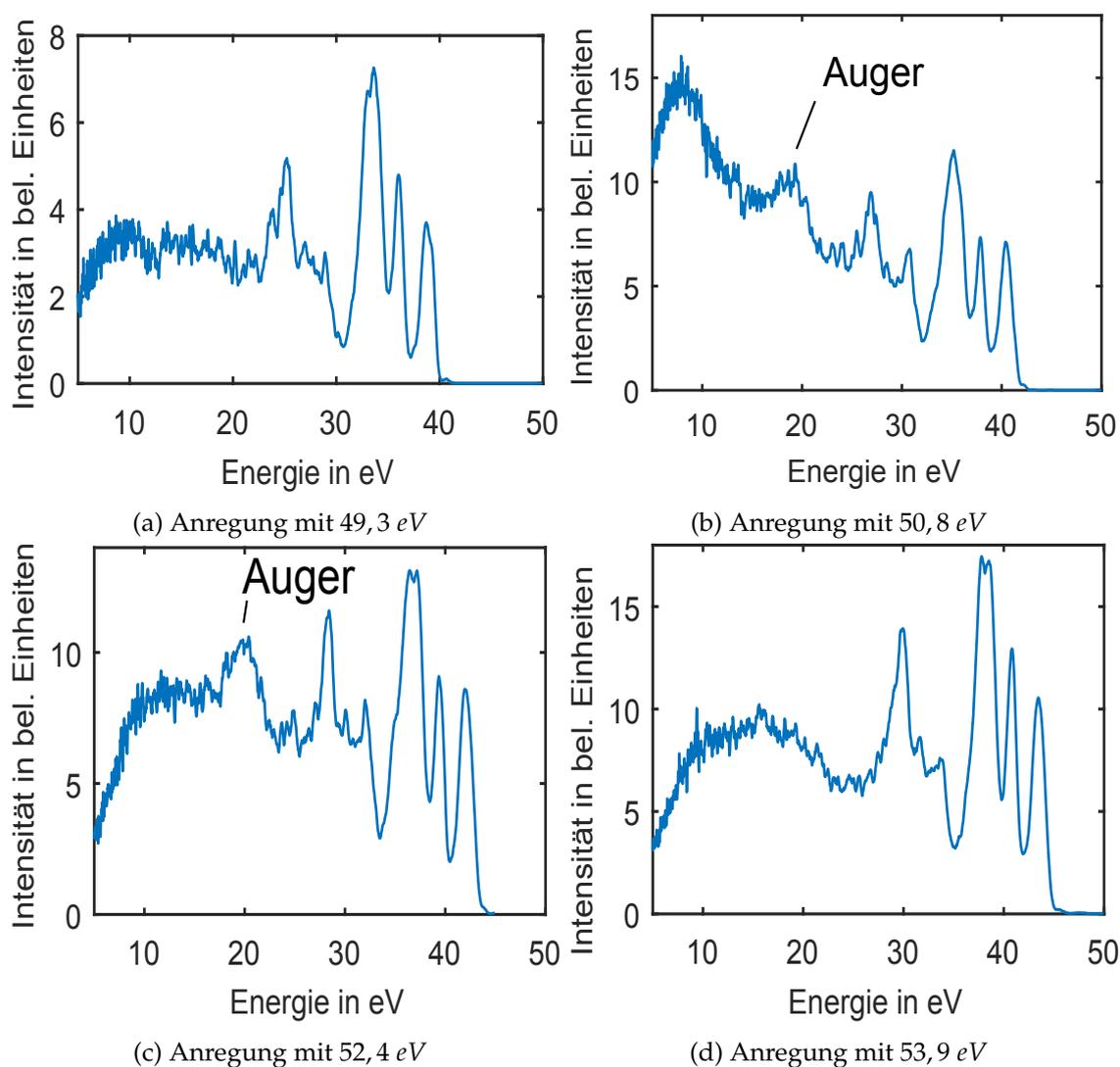


Abbildung 6.4: Darstellung der Elektronenspektren von Iodmethan für verschiedene Photonenanregungsenergien. Für die Spektren in (a) und (d) sind keine Auger-Meitner Elektronen im Spektrum erkennbar. Für (b) findet sich ein Signalbeitrag bei 17 bis 20 eV, für (c) von 19 bis 21 eV.

Übergang	t_0 in fs TOF 1	t_0 in fs TOF 2
$(2e)^{-1}$	259 ± 57	144 ± 28
$(3a_1)^{-1}$	250 ± 52	152 ± 38
$(1e)^{-1}$	248 ± 51	154 ± 34
Auger-Meitner	215 ± 74	183 ± 100

Tabelle 6.2: Ergebnisse der aus 6.7 bestimmten Zeitpunkte.

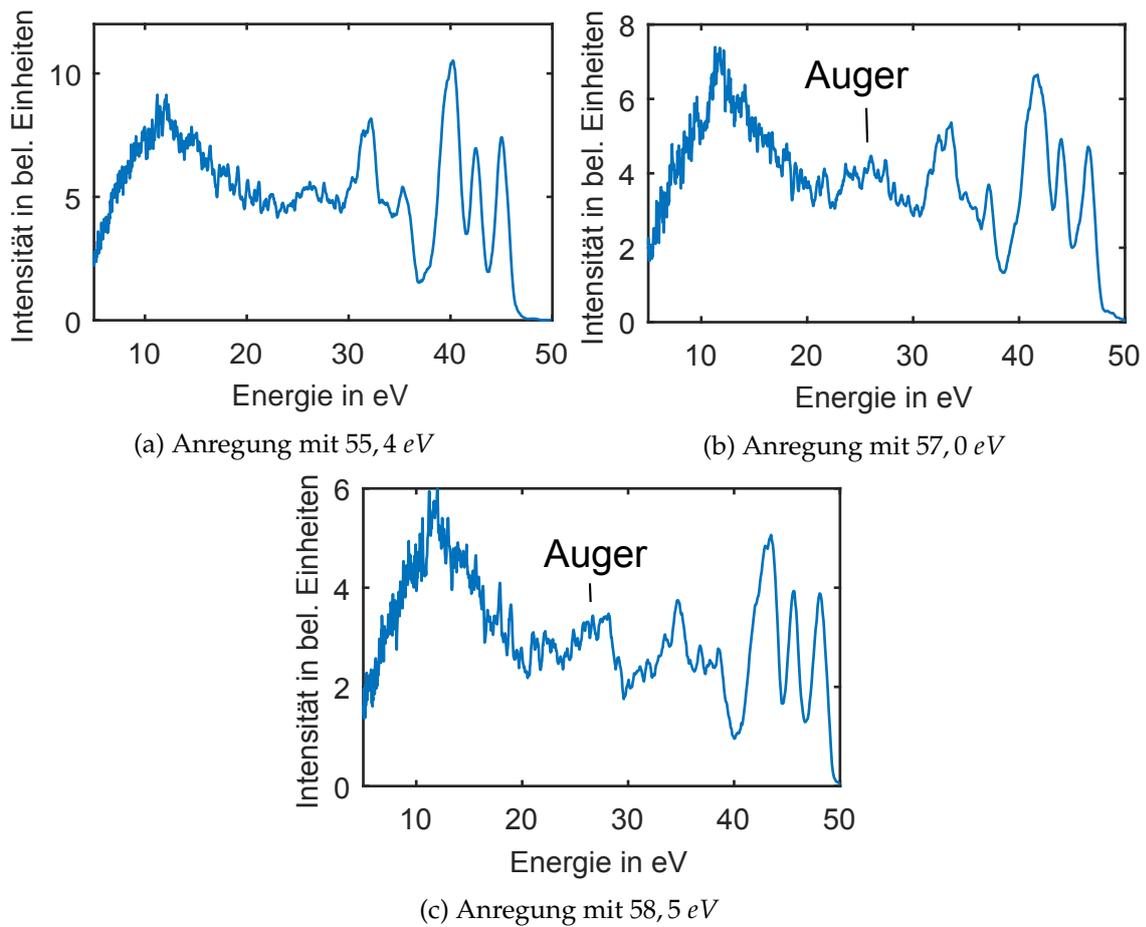


Abbildung 6.5: Darstellung der Elektronenspektren von Iodmethan für verschiedene Photonenanregungsenergien. Bei den hier dargestellten Spektren bildet sich ein weiterer Auger-Meitner Prozess bei Elektronenenergien von etwa 25 eV heraus.

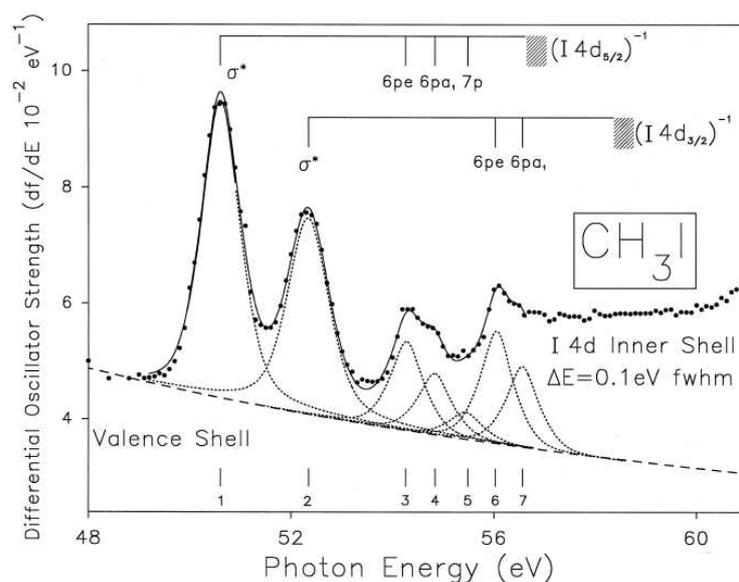


Abbildung 6.6: Darstellung der Oszillatorstärke des untersuchten σ^* Überganges. Darstellung entnommen aus [OCB98]

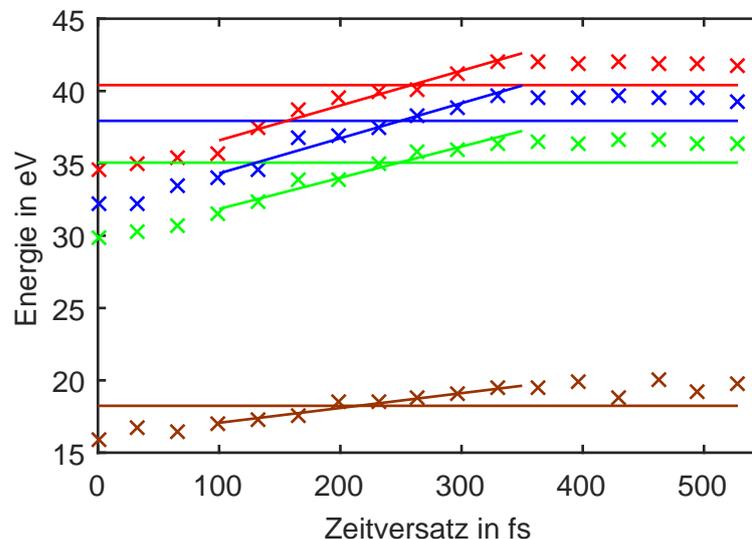


Abbildung 6.7: Darstellung der Messwerte und angepassten Kurven zur Bestimmung des Zeitversatzes zwischen Photoelektronen und Auger-Meitner Elektronen. Die Kreuze stellen die bestimmten Energiewerte, die horizontalen Linien die Energien in Abwesenheit des THz-Feldes und die ansteigenden Linien die an die Messwerte angepassten Kurven für die Übergänge $(2e)^{-1}$ (rot), $(3a_1)^{-1}$ (blau), $(1e)^{-1}$ (grün) und die Auger-Meitner Übergänge (braun) dar.

der Verteilung $I_{Auger-Meitner}(t)$ entspricht dem Zeitversatz zwischen Auger-Meitner Elektronen und Photoelektronen. Bei einer Nutzung der gemessenen Pulsdauer von 85 fs ergibt sich eine Auger-Meitner-Lebensdauer von 67 fs. Eine Nutzung der simulierten Pulsdauer führt zu einer Lebensdauer von 330 fs. Ein Vergleich mit den in [DGR⁺16] und [BGAR18] angegebenen Zeitkonstanten von unter 40 fs zeigt insbesondere für den Wert der simulierten Pulsdauer extreme Abweichungen und ist ein Indiz für die Validität der gemessenen Pulsdauer. Auf Grund der Messungenauigkeiten durch die verschiedenen Effekte ist der Fehlerbalken jedoch fast 4 Mal so groß wie das Ergebnis, so dass die Abweichung vom Literaturwert nicht beurteilt werden kann. Stattdessen ist festzustellen, dass mit diesen Abweichungen keine Aussage über die Lebensdauer getroffen werden kann.

7 Fazit und Ausblick

Im Zuge der Arbeit wurde der Aufbau eines zeitauflösenden Spektrometers für Molekül- und Edelgase im extrem ultravioletten Spektralbereich demonstriert. Dabei wurde eine Quelle ionisierender Strahlung durch die Erzeugung höherer Harmonischer eines Ultrakurzpulslasers erfolgreich entwickelt, aufgebaut und charakterisiert. Die Quelle liefert dabei ausreichend Photonen, um in kurzer Zeit Spektren mit gutem Signal- zu Rauschverhältnis detektieren zu können. Zur Demonstration wurden Spektren von Edelgasen im Bereich von 23 eV bis 65 eV gezeigt. Durch die Nutzung des Zwei-Farben Erzeugungsschemas bei der Erzeugung der Harmonischenstrahlung steht die doppelte Anzahl von Harmonischenordnungen im Vergleich zur Erzeugung mit einer treibenden Laserfrequenz zur Verfügung, was die Anzahl potentiell untersuchbarer Elektronenübergänge verdoppelt. Durch eine Variation des Spektrums des Ultrakurzpulslasers ist es möglich, die Energie der Harmonischenordnungen für einen speziellen Übergang zu optimieren.

Des Weiteren wurde ein Einzelgittermonochromator zur spektralen Trennung der erzeugten Harmonischen erfolgreich entwickelt, aufgebaut und charakterisiert. Die Fokussgröße der XUV Strahlung in der Wechselwirkungszone ist dabei in dem Bereich, welcher durch die Simulation vorher gesagt wurde. Die Trennung der einzelnen Harmonischen funktioniert sehr gut und ist bis zu einer Harmonischenordnung von 42 bei 65 eV ohne Probleme möglich. Die Transmission dieses Monochromators ist auf Grund der geringen Anzahl optischer Elemente im Vergleich zu anderen Monochromatoren außergewöhnlich hoch. Ebenso ist der spektrale Arbeitsbereich des Monochromators außergewöhnlich groß.

Die erwartete Zeitauflösung des Systems, so wie sie an Hand von analytischen Rechnungen und Simulationen gezeigt wurde, konnte experimentell nicht bestätigt werden. Der kürzeste gemessene Puls hatte eine Dauer von 41 fs. Die Ursache für die schlechtere Zeitauflösung im Vergleich zur Simulation ist im Detail unklar. Es wurden Messungen präsentiert, welche ein unerwartetes Verhalten der Spektrogramme des THz-Streaking dokumentieren. Dieses Verhalten führt zu einer Verbreiterung der Spektren und es ergeben sich in der Auswertung längere Pulsdauern als erwartet. Die Ursache dieses Verhaltens ist im THz-Feld zu suchen. Auf Grund dieses Verhaltens ist die Vermessung des Auger-Meitner Elektronenüberganges in Iodmethan nicht erfolgreich verlaufen. Die mit dem vorliegenden System bestimmte Lebensdauer des Überganges deckt sich nicht mit Literaturwerten und weist inakzeptable Fehler auf. Nichts desto trotz ist eine Untersuchung möglich gewesen.

Das hier vorgestellte System zur zeitaufgelösten Untersuchung von Molekülübergän-

gen ist ein interessanter Ansatz für ein effizientes, zeitauflösendes Spektrometer in einem weiten Wellenlängenbereich, bedarf jedoch weiterer Verbesserungen um sein Potential der Zeitauflösung auszuspielen zu können.

Um die sehr gute Effizienz des Systems beweisen zu können, ist eine Messung der Transmission des Monochromators nötig. Möglich ist hier eine Messung des Photonenflusses der einzelnen Harmonischen vor und hinter dem Monochromator. Denkbar ist hier die Messung der Gesamtenergie der Harmonischenstrahlung vor dem Monochromator mit Hilfe einer kalibrierten EUV Diode und ein Abgleich des Spektrums zur Bestimmung der Energie einer einzelnen Harmonischen. Die Messung der Energie hinter dem Monochromator kann wie in dieser Arbeit gezeigt erfolgen. Das Gitter könnte auf einem Lineartisch gehalten werden, um einen Austausch gegen Gitter mit höherer und geringerer Liniendichte zu ermöglichen und so den Spektralbereich des Spektrometers noch zu vergrößern. Somit würde der Spektralbereich nur noch von den Beschichtungen der Toroidspiegel und der Effizienz der Harmonischenquelle abhängen.

Für den THz Strahl ist die Nutzung eines Spiegels zur Fokussierung der Strahlung sinnvoll, um mögliche negative, chromatische Effekte durch die genutzte Linse auszuschließen und die Transmission des THz Transportes zu erhöhen. Ebenso ist eine bessere Charakterisierung des THz Fokus wünschenswert, beispielsweise durch die Nutzung einer THz Kamera (Pyrocam) und der Vermessung der Rayleighlänge über eine große Anzahl von Knife-Edge Messungen. Für die Bereitstellung der Proben in der Wechselwirkungszone bietet sich die Entwicklung einer Düse mit stark gerichtetem Gasstrahl an um auch in einem Abstand von einem oder wenigen Millimetern eine hohe Gasdichte für ein gutes Signal- zu Rauschverhältnis gewährleisten zu können. Gleichzeitig verhindert dies die gemessenen Einflüsse der Düse auf die Spektrogramme. Des Weiteren ist es notwendig, den zeitlichen Überlapp zwischen THz- und XUV Strahlung zu stabilisieren. Eine Möglichkeit ist es, die Halterungen der Optiken vibrationsfrei zu gestalten. Dies kann über massive Grundgerüste und die Nutzung von stabileren Optikhalterungen erfolgen. Eine weitere Möglichkeit ist der Strahltransport oder die Verlagerung des gesamten THz-Aufbaus ins Vakuum. Dies würde negative Effekte durch Luftverwirbelungen ausschließen. Zudem ist ein besseres Strahlüberwachungssystem im THz-Strahlzweig wünschenswert, um Abweichungen von der Ideallage dokumentieren zu können.

Eine Weiterentwicklung des hier vorgestellten Konzeptes könnte durch den Austausch der Elektronenflugzeitspektrometer durch andere Detektormodelle erfolgen. Eine Kombination mit „Velocity Map Imaging“ Detektoren, wie sie kürzlich in der Arbeitsgruppe durch Martin Ranke erfolgreich demonstriert wurden [Ran19], oder die Nutzung eines Reaktionsmikroskops [DMJ⁺00] ist dabei möglich.

Nach den vorgeschlagenen Optimierungen ist es möglich, die Messungen an Iodmethan zu wiederholen und verlässliche Werte für den Auger-Meitner Prozess zu erlangen. Des Weiteren sind Messungen von interatomaren- oder molekularen Coulombzerfällen, beispielsweise in Neon-Krypton Dimeren [Kar19], möglich [TWW⁺13]. Diese Art von

Zerfällen stellen ein aktuelles, interessantes Forschungsgebiet dar, da sie für das Verständnis der Energiedissipation in einer chemischen Umgebung wie Wasser [RHS⁺18] von zentraler Bedeutung sind.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Darstellung des Drei-Stufen-Modells der Erzeugung höherer Harmonischer. (1) stellt den Prozess der Ionisation des Elektrons dar, (2) die Beschleunigung im Laserfeld und (3) die Rekombination des Elektrons unter Aussendung eines hochenergetischen Photons. Darstellung adaptiert von [WSG08].	11
2.2	Darstellung des Verhaltens der Intensitäten höherer Harmonischer. Die Ordnung des Prozesses nimmt nach rechts zu. Im gestörten Regime liegt ein exponentieller Abfall vor, bevor sich ein flacher Plateaubereich mit erneut folgendem exponentiellen Abfall anschließt. Darstellung adaptiert von [Sch11].	13
2.3	Darstellung des Zusammenhangs zwischen Kohärenzlänge, Absorptionslänge und Länge des Mediums für eine fiktive Quelle höherer Harmonischerstrahlung.	14
2.4	Darstellung der Kippung der Pulsfront mit Hilfe eines Gitters zur Erzeugung von THz Strahlung. Die Pulsfront des von links einlaufenden Strahls wird am Gitter gekippt. Anschließend wird die Polarisation des Strahls durch eine Wellenplatte angepasst und der Strahl durch eine Linse auf den Kristall fokussiert. Die THz-Strahlung wird aus der langen Kristallseite emittiert. Darstellung adaptiert von [HYH ⁺ 01].	17
2.5	Darstellung der konischen Gitterkonfiguration mit Bezeichnung der Winkel. Die Beugungsordnungen bilden einen Kegel mit halben Öffnungswinkel φ . Abbildung adaptiert von [PBG ⁺ 06a]	19
2.6	Darstellung eines Blazegitters mit positiven und negativen Beugungsordnungen. Eingezeichnet ist auch der Blazewinkel, welcher die Effizienz des Gitters bestimmt. Abbildung adaptiert von [Wik]	20
2.7	Schematische Darstellung einer lichtfeldgetriebenen Streak Kamera. Ein XUV Puls ionisiert ein Gastarget. Die frei werdenden Elektronen werden von einem THz Feld abgelenkt und über ein Elektronenflugzeitspektrometer detektiert. Darstellung adaptiert von [Frü11].	23
2.8	Darstellung des Streaking-Prozesses mit dem Vektorpotential eines THz-Pulses bei gechirptem Elektronenwellenpaket. Gut erkennbar ist die Abweichung der Breite des Impulsspektrums bei geändertem Vorzeichen des Vektorpotentials des THz-Pulses, entsprechend der Messung mit gegenüberliegenden Detektoren. Abbildung adaptiert aus [FTK ⁺ 15].	27

2.9	Darstellung des Iodmethan-Moleküls. Die rote Kugel repräsentiert das Iodatomb, die schwarze Kugel Kohlenstoff und die blauen Kugeln die Wasserstoffatome, welche über Einfachbindungen verbunden sind. Abstände und Größen der Atome sind maßstabsgetreu.	28
2.10	Darstellung der Iodmethan-Valenzorbitale und der Anregung eines Elektrons durch einen XUV-Puls in ein nicht bindendes Orbital. Der in dieser Arbeit untersuchte Prozess ist der mit VVV Auger bezeichnete Übergang aus dem <i>I4d</i> Orbital. Die 5 dargestellten Orbitale finden sich im Photoelektronenspektrum wieder. Darstellung entnommen aus [DGR ⁺ 16]	29
2.11	Darstellung der Ionisations- und Zerfallskanäle von Iodmethan. Darstellung entnommen aus [OCB98]	29
3.1	Darstellung der mit Strahlverfolgung aus dem Programm Zemax erhaltenen Fokusgrößenabschätzung des Monochromators. Die horizontale und vertikale Achse haben eine Größe von 200 μm	32
3.2	Darstellung der mit Strahlverfolgung aus dem Programm Zemax erhaltenen Strahlausdehnungen beim Durchgang durch die Wechselwirkungszone. Der Abstand zwischen den einzelnen Abbildungen des Strahlprofils beträgt 10 mm und jede einzelne Strahldarstellung hat eine Ausdehnung von 200 μm	33
3.3	Ergebnisdarstellung der Simulation der Pfadlängenunterschiede im Fokus des Monochromators mit Hilfe des Programms RAY. Aus der angegebenen Halbwertsbreite der Pfadlängenunterschiede lässt sich die Halbwertsbreite der Pulsdauer zu 21 fs bestimmt. Die Parameter der Simulation sind im Text angegeben.	34
3.4	Darstellung des Vergleichs der berechneten Pulsdauern (rot) mit den mit Hilfe von Ray simulierten (blau) Pulsdauern in Abhängigkeit von der Öffnung des Spaltes für einen Deltapuls. Beide Kurven stimmen sehr gut überein und zeigen das erwartete lineare Verhalten der Gitterantwort eines infinitesimal kurzen Pulses.	34
3.5	Darstellung des Vergleichs der berechneten Pulsdauern (rot) mit den mit Hilfe von Ray simulierten (blau). Beider Kurven sind in guter Übereinstimmung. Die Schwankungen in der simulierten Kurve sind in der Statistik begründet und das plateauartige Verhalten für sehr kurze Pulse stellt die Auflösungsgrenze des Programmes dar.	35
3.6	Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen ungechirpten XUV-Puls. Die Verbreiterung zwischen (b) und (c) ist sehr gut erkennbar. Die Form des Spektrums in (b) ist durch die Auflösungsgrenze der Simulation bestimmt.	37

3.7	Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen XUV-Puls mit linear positiven Chirp. Am Farbcode der Abbildung ist ersichtlich, dass das Spektrum in Anwesenheit des THz-Feldes an der ersten und dritten Flanke gestaucht wird.	38
3.8	Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen XUV-Puls mit linear negativen Chirp. Am Farbcode der Abbildung ist ersichtlich, dass das Spektrum in Anwesenheit des THz-Feldes an der zweiten Flanke gestaucht wird.	40
3.9	Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen XUV-Puls mit quadratisch positivem Chirp.	41
3.10	Darstellung der Ergebnisse der Simulation mit AttoGram für einen XUV-Puls mit quadratisch negativem Chirp.	42
4.1	Gliederung des Gesamtaufbaus in Segmente. Die vorliegende Arbeit befasst sich hauptsächlich mit den Abschnitten der Harmonischenquelle und dem Monochromator, welche für diese Arbeit aufgebaut wurden.	43
4.2	Schematische Darstellung des experimentellen Gesamtaufbaus. Ausgangspunkt ist das Lasersystem (1-7), welches die Strahlung für die Zweige der THz-Quelle und Harmonischenquelle (8-10) bereitstellt. Im Strahlzweig der Harmonischenquelle befindet sich ein Monochromator (11+12) zur Selektion der erzeugten höheren Harmonischen. In der Experimentierkammer (13) werden beide Strahlzweige kollinear überlagert und propagieren gemeinsam durch die Wechselwirkungszone. Die hier erzeugten Elektronen werden vom Detektionssystem erfasst.	44
4.3	Schematische Darstellung des Lasersystems. Ausgangspunkt ist der Oszillator, dessen Pulse durch einen Pump laser verstärkt werden. Anschließend propagiert der Strahl zum Stretcher, wo er durch Gitter zeitlich gedehnt wird. Dieser verlängerte Puls propagiert in die erste Verstärkerstufe und wird hier durch einen akustoptischen Modulator, welcher die Pulse für das 25 Hz und 1 kHz-System selektiert werden. Im Strahlpfad des genutzten 25 Hz-Zweiges befindet sich eine zweite Verstärkerstufe, welche den Puls blitzlampengepumpt verstärkt. Es folgt der Gitterkompressor, welcher den verlängerten und verstärkten Puls wieder zeitlich komprimiert. Im Gitterkompressormodul befindet sich ein Strahlteiler, welcher den Ausgangsstrahl für die Strahlzweige der Harmonischenquelle und THz-Quelle aufteilt. Eingezeichnet ist ebenso der Spider, welcher zur Pulsdiagnostik des Ausgangsstrahls des Lasers genutzt wurde.	46

-
- 4.4 Schematische Darstellung des Aufbaus zur Frequenzverdopplung. Der Fundamentalpuls wird mit Hilfe eines BBO-Kristalls frequenzverdoppelt, dieser Kristall ist um die Strahlachse rotierend gelagert, um da Verhältnis der Intensitäten zwischen beiden Pulsen einstellen zu können. Der frequenzverdoppelte Puls ist orthogonal polarisiert und zeitlich verschoben zum Fundamentalpuls. Der zeitliche Versatz wird durch einen Kalzitkristall kompensiert, welcher um die Polarisationsachse rotierbar gelagert ist. Die Polarisation wird durch eine Wellenplatte, welche die Polarisation des Fundamentalpulses um $\lambda/2$ und die des frequenzverdoppelten Pulses um λ dreht, kompensiert. Zur Phasenfeinabstimmung befindet sich ein Glasplättchen im Strahl, welches um eine Achse senkrecht zur Polarisation und Ausbreitungsrichtung gedreht werden kann. 49
- 4.5 Darstellung des mit SNLO berechneten Zeitversatzes und der Pulsdauer von Fundamental- und zweitem Harmonischenpuls. Der Fundamentalstrahl eilt dem frequenzverdoppelten Strahl voraus. Die Intensitäten der beiden Strahlen sind zur besseren Darstellung des Zeitversatzes auf 1 normiert. 50
- 4.6 Darstellung der relativen Intensitäten von Fundamental (blau)- und zweitem Harmonischenpuls (rot). Es ergeben sich 2 Regionen, an welcher die Frequenzverdopplung auftritt. Die Intensitäten sind zur besseren Darstellung auf sich selbst normiert. Die Fehler der Intensität des Fundamentalstrahls ergeben sich aus der Mittelung der Messung über 200 Einzelschüsse. Die Fehler für den SH-Strahl ergeben sich aus Mittelung der gemessenen Minimal- und Maximalwerte, da vom Messgerät keine zeitliche Mittelung angeboten wird. Für kleine Messwerte nahe Null wird die Schwankung des Messwertes des Thermomesskopfes überrepräsentiert. 51
- 4.7 Darstellung des Zeitversatzes von Fundamental- und zweitem Harmonischenpuls. Die hervorgehobene Stelle markiert den Drehwinkel -8° der Kalzitplatte bezüglich der Polarisationsachse des Fundamentalstrahls, für welchen beide Pulse keinen Versatz aufweisen. In diesem Bereich kann die Änderung des Zeitversatzes mit dem Drehwinkel als linear angesehen werden. 52
- 4.8 Darstellung des Zeitversatzes von Fundamental- und zweitem Harmonischenpuls durch das Glasplättchen. Der Zeitversatz ist unabhängig vom Vorzeichen des Drehwinkels, da die Brechungsindizes beider Pulse nicht winkelabhängig sind. Die Verzögerung ergibt sich lediglich auf Grund der geänderten Dicke des transmittierenden Materials. 53
-

-
- 4.9 Schematische Darstellung des Aufbaus zur Erzeugung höherer Harmonischer. Der einlaufende Strahl (von links) passiert die runde Umlenkammer und wird mit Hilfe eines Spiegels in der Kammer zur Harmonischenerzeugung in Richtung Umlenkammer fokussiert. Ein Umlenkspiegel, dessen transmittierter Strahl als Strahlmonitor genutzt wird, reflektiert den Strahl zurück in die Wechselwirkungszone (2. Segment der Harmonischenkammer). Der hier erzeugte Harmonischenstrahl propagiert weiter in Richtung Monochromator. 54
- 4.10 Schematische Darstellung des Aufbaus der Düse zur Bereitstellung der Gase für die Harmonischenerzeugung. Das Gas wird über eine Düse (grün) in eine Metallkapillare geleitet (gelb). Diese kann das Gas nur durch die Öffnungen in Strahlrichtung verlassen, so dass sich im Inneren der Kapillare ein hoher Druck über ein langes Volumen ausbreitet. Der Fundamentalstrahl propagiert durch diese Kapillare und erzeugt dabei die höheren Harmonischen 55
- 4.11 Schematische Darstellung des Monochromator-Aufbaus. Der Harmonischenstrahl wird vom Gitter, welches sich in konischer Konfiguration im streifenden Einfall befindet, spektral aufgetrennt. Toroid 1 erzeugt in der horizontalen Achse einen Zwischenfokus, während die vertikale Achse kollimiert wird. Toroid 2 erzeugt dann den Fokus in der Experimentierkammer. Der Strahlweg von Harmonischenquelle bis Experimentierkammer befindet sich vollständig im Vakuum und hat eine Länge von etwa 13 m. . . . 57
- 4.13 links: Darstellung der mit Zemax und „Physical Optics Propagation“ simulierten Fokusgröße des Monochromator in der Wechselwirkungszone. rechts: Darstellung eines gemessenen Strahlprofils der 27. Harmonischen mit Hilfe eines MCP-Phosphor-Detektors wenige Zentimeter hinter der Wechselwirkung. Auffallend ist das asymmetrische Strahlprofil in horizontaler Richtung, welches zu einer Abweichung zwischen Simulation und Messung führt. Ursache hierfür können Koma-Abbildungsfehler durch die Toroidspiegel des Monochromators sein. In vertikaler Richtung stimmt die Größe des Fokus gut mit der Simulation überein. 58
- 4.14 Darstellung der berechneten Effizienzen des Monochromators. Die rote Kurve stellt die Reflektivität der mit Borcarbid beschichteten Toroiden dar und wurde mit Hilfe von XOP berechnet. Die blaue Kurve stellt die Effizienz des Gitters dar und wurde mit GSolver bestimmt. Die Gesamteffizienz wird maßgeblich von der Gittereffizienz bestimmt. Mit Werten nahe 50% für den Wellenlängenbereich um 27 nm und 30% für den breiten Bereich von 22 nm bis 40 nm stellt der Aufbau somit ein außergewöhnlich effizientes System zur spektralen Trennung von XUV-Strahlung dar. 59
-

-
- 4.15 Schematische Darstellung des Aufbaus zur Erzeugung von THz-Strahlung. Der einfallende Fundamentalstrahl wird durch zwei Zylinderlinsen ellip- tisch kollimiert und über ein Gitter und einen Achromaten in den Lithiumniobat- Kristall abgebildet. Zwischen dem Zylinderlinsenteleskop und dem Gitter befindet sich ein Verschiebetisch, welcher die Anpassung der Strahlweg- länge ermöglicht. Dies ermöglicht im späteren Experiment die Einstellung des zeitlichen Überlapps zwischen THz- und XUV-Strahl. 61
- 4.16 Schematische Darstellung der Experimentierkammer. Der XUV-Strahl ge- langt von links in die Kammer und passiert eine Klängenkombination. Die- se ermöglicht es, benachbarte Harmonischenordnungen der fürs Experi- ment benötigten Ordnung zu blocken. Anschließend propagiert er durch die Löcher eines Kupferlochspiegels und eine TPX-Linse. Der Fokus befin- det sich in der Wechselwirkungszone zwischen beiden Elektronenflugzeit- spektrometern. Am Ende der Kammer trifft er auf einen MCP-Phosphor- Detektor, welcher durch eine Kamera abgefilmt wird und dadurch eine Messung der Strahlage und Größe ermöglicht. Die THz-Strahlung wird durch ein TPX-Fenster in der Seite der Vakuumkammer eingekoppelt und durch den Kupferspiegel mit dem Harmonischenstrahl kollinear überla- gert. Der THz-Strahl wird durch die TPX-Linse in die Wechselwirkungs- zone fokussiert. In die Wechselwirkungszone wird das zu untersuchende Gas durch eine Düse senkrecht zur Ebene der Flugzeitspektrometer und Strahlausbreitungsrichtung eingebracht. Die in der Wechselwirkungszone entstehenden Elektronen werden durch die Elektronenflugzeitspektrome- ter detektiert. 62
- 4.17 Schematische Darstellung des Aufbaus zur Pulsenergiemessung. Der Har- monischenstrahl tritt von rechts durch einen Aluminiumfilter in den Tubus ein. Der Tubus ist bis auf 3 Öffnungen in der Halterung des Aluminium- filters geschlossen, um das Eindringen von Streulicht zu verhindern. Eine Unterlegscheibe blockiert die durch die Öffnungen einfallende Streustrah- lung. Der Bereich um die Photodiode ist damit hintergrundfrei. 63
- 4.18 Schematische Darstellung der Düse zur Bereitstellung der Proben. Die Dü- se befindet sich an einem Adapterrohr, welches an einem XYZ-Manipulator oberhalb der Wechselwirkungszone befestigt ist. Die Düse ist über Kup- ferlitze am Adapterrohr geerdet. Die Düse ist durch Heizdrähte beheizbar, um Proben mit niedrigen Dampfdrücken untersuchen zu können. Um die Düse befindet sich ein Kegel aus Mu-Metall, welcher mögliche von der Düse abgestrahlte elektromagnetische Felder abschirmt. 65
-

5.1	Darstellung der Transmission (blaue Linie) durch einen 200 <i>nm</i> dicken Aluminium-Filter mit je 2 <i>nm</i> Aluminiumoxidschicht pro Seite für die Identifizierung der erzeugten Harmonischenordnungen. Die rote Linie kennzeichnet die Lage der 9. Harmonischen, die gelbe Linie die Lage der 11. Harmonischen. Hinter dem Aluminiumfilter sind entsprechend nur Harmonischenordnungen ab 11. Ordnung erhalten. Die Dicke der Oxidschicht wurde nach [Mal12] abgeschätzt und die Daten aus [Cal] gewonnen. . . .	68
5.2	Zuordnung der Harmonischenordnung mit Hilfe eines Aluminiumfilters. Die Zahlen an den schwarzen Pfeilen geben die Harmonischenordnung an. Die Signalspitze auf der linken Seite zeigt die 0. Beugungsordnung. Im Spektrum sind auch die zweiten Beugungsordnungen der 15. und 17. Harmonischen erkennbar. Die Harmonischen wurden mit dem Fundamentalstrahl und einer Fokussierung von 3 <i>m</i> bei 12,5 <i>mJ</i> Pulsenergie und 4,2 <i>bar</i> Vordruck in Argon erzeugt.	69
5.3	Darstellung gemessener Harmonischenspektren der verfügbaren Edelgase. Die Harmonischenordnung sinkt nach rechts ab. Die Harmonischen wurden mit dem Fundamentalstrahl und einer 2 <i>m</i> -Fokussierlinse erzeugt. Die Quelle ist für Neon und Argon bei dem genutzten Parametersatz am effizientesten.	70
5.4	Darstellung gemessener Harmonischenspektren für verschiedene Drücke in Argon. Die beste Effizienz wurde bei diesem Parametersatz für einen Vordruck von 2.75 <i>bar</i> erreicht. Die Harmonischen wurden mit dem Fundamentalstrahl und einer Fokussierung von 1,5 <i>m</i> erzeugt.	71
5.5	Darstellung des Einflusses des Verhältnisses zwischen Fundamental- und zweitem Harmonischenstrahl auf das Spektrum der höheren Harmonischen. Die Spektren sind jeweils auf 1 normiert. Die Prozentangaben beziehen sich auf den Anteil bezüglich der insgesamt zur Verfügung stehenden Pulsenergie. Höhere Harmonischenordnungen werden für eine moderate Beimischung der Frequenzverdopplung erreicht.	73
5.6	Darstellung des Einflusses des zeitlichen Überlapps zwischen Fundamental- und zweitem Harmonischenstrahl auf das Spektrum der höheren Harmonischen. Die höheren Harmonischen können sowohl für eine Überlagerung beider Pulse (blaue und grüne Kurve), als auch bei zeitlich getrennten Pulsen erzeugt werden (grüne Kurve). Dabei werden abhängig von den Bedingungen unterschiedliche Harmonischenordnungen bevorzugt erzeugt.	75
5.7	Darstellung des mit Hilfe des THz-Roboters gemessenen und rekonstruierten THz Strahlprofils.	76
5.8	Darstellung der Strahltaillie des THz-Strahles in der Wechselwirkungszone in horizontaler Richtung. Die Daten wurden aus mehreren Messungen unter Verwendung des THz-Roboters erhalten.	76

5.9	Darstellung der Strahltaillie des THz-Strahls in der Wechselwirkungszone in vertikaler Richtung. Die Daten wurden aus mehreren Messungen unter Verwendung des THz-Roboters erhalten.	77
5.10	Darstellung des Spektrogramms, welches durch die 24. Harmonische im Targetgas Neon durch die Überlagerung mit dem THz Feld erzeugt wurde.	78
5.11	Darstellung der ermittelten THz Feldstärke für das Spektrogramm in Abbildung 5.10.	79
5.12	Darstellung des ermittelten THz Spektrums für das Spektrogramm in Abbildung 5.10.	79
5.13	Darstellung der Messung zur Bestimmung der Strahlbreite. Die Düse wurde durch einen Verschiebetisch orthogonal zur Strahlrichtung durch den Strahl gefahren und das Elektronensignal auf beiden TOFs detektiert. Durch die Anpassung einer Gausskurve an die Messdaten wird eine Gaspulshalbwertsbreite von $1,2 \pm 0,1$ mm erhalten.	81
5.14	Darstellung eines mit der THz-Streak Technik gemessenen Spektrogramms. Die Spektren wurden durch die 21. Harmonischenordnung in Neon erzeugt, wobei eine Mittelung über 100 Spektren durchgeführt wurde. Das Delay wurde mit einer Auflösung von 33 fs abgetastet, erzeugt durch einen Verschiebetisch im THz-Strahlzweig. Das Spektrogramm ist eine direkte Repräsentation des Vektorpotentials des elektrischen Feldes des THz-Pulses.	82
5.15	Darstellung der rekonstruierten elektrischen Felder des THz-Pulses aus den an verschiedenen Positionen gemessenen Spektrogrammen. Es sind deutliche Abweichungen in der Amplitude zwischen den angepassten Kurven und den Messdaten erkennbar. Das Wellenverhalten wird jedoch gut reproduziert.	83
5.16	Darstellung des rekonstruierten Spektrums der aus dem Spektrogramm bestimmten elektrischen Felder des THz-Pulses. Der Schwerpunkt befindet sich bei etwa 0,7 THz. Das Spektrum ist typisch für THz-Strahlung, welche durch optische Gleichrichtung in $LiNbO_3$ erzeugt wurde.	84
5.17	Darstellung des aus den Messungen bestimmten Phasenverlaufs des elektrischen Feldes der THz Strahlung beim Durchgang durch den Fokus. Die bestimmten Phasenwerte reproduzieren den Verlauf der Gouyphase (schwarze Kurve) gut. Der Anstieg der linearen Kurve (rot) ist der entscheidende Wert für den Einfluss der Gouyphase auf die Zeitauflösung des Experimentes.	85
5.18	Histogramm der Einzelschussmessungen zur Stabilität des Photoelektronenspektrums in Abwesenheit des THz Feldes. Es wurden 10000 Einzelschüsse detektiert und eine Abweichung von $(1,20 \pm 0,02)$ ns bestimmt.	86

5.19	Histogramm der Einzelschussmessungen zur Stabilität des Photoelektronenspektrums in Anwesenheit des THz Feldes. Die Messung wurde im Nulldurchgang des Vektorpotentials des THz Feldes durchgeführt um eine Verschiebung der Zentralenergie zu vermeiden. Es wurden 10000 Einzelschüsse detektiert und eine Abweichung von $(4,9 \pm 0,1) \text{ ns}$ bestimmt.	87
5.20	Darstellung eines Spektrogramms (a) und der zugehörigen Einzelspektren im ungestreakten Fall (b) und im Fall der maximalen (b) und minimalen (c) kinetischen Energie der Elektronen. Abbildung (d) zeigt das Spektrum im Nulldurchgang, welches für die Berechnungen der Pulsdauer verwendet wurde.	89
5.21	Spektrogramm, welches gegenläufiges Streaking zeigt.	91
5.22	Darstellung des Spektrogramms der Photoelektronen von Argon, aufgenommen mit der 15. Harmonischenordnung. Die Messung wurde am Tag der Iodmethanmessungen durchgeführt, um ein Referenzspektrogramm für das THz-Feld zu erhalten.	92
5.23	Darstellung der gemessenen Spektrogramme in Abhängigkeit vom Rotationswinkel des Polarisators. Es ist deutlich zu erkennen, dass das THz-Feld eine sehr gute lineare Polarisation aufweist und der Effekt des gegenläufigen Streakings unabhängig vom Drehwinkel ist. Mit Hilfe des Polarisators konnte eine vollständige Modulation der Intensität des THz-Feldes in der Wechselwirkungszone eingestellt werden.	92
5.24	Darstellung der gemessenen Spektrogramme in Abhängigkeit vom Abstand der Düse zum XUV Strahl. Deutlich erkennbar ist das Ausschmieren der Kurve für (a) und (b), wobei dieses Verhalten zeitverzögert, etwa im Bereich des Maximums bei $3,5 \text{ ps}$, einsetzt. Zwischen den Spektrogrammen bei $0,8 \text{ mm}$ und $1,3 \text{ mm}$ besteht kein großer Unterschied.	93
6.1	Darstellung der aus der Messung ermittelten und mit RAY simulierten Werte der Pulsdauern in Abhängigkeit der Spaltöffnung vor dem Gitter. Die Messung erfolgte für die 25. Harmonischenordnung in Neon. Die Werte weisen deutliche Abweichungen auf.	97
6.2	Darstellung des Spektrogramms der Photoelektronen von Argon, aufgenommen mit der 15. Harmonischenordnung.	98
6.3	Darstellung des Spektrogramms der Photoelektronen von Argon, aufgenommen mit der 42. Harmonischenordnung. Im Gegensatz zu Abbildung 6.2 wird hier das Signal des anderen Elektronenflugzeitspektrometers dargestellt.	99
6.4	Darstellung der Elektronenspektren von Iodmethan für verschiedene Photonenanregungsenergien. Für die Spektren in (a) und (d) sind keine Auger-Meitner Elektronen im Spektrum erkennbar. Für (b) findet sich ein Signalbeitrag bei 17 bis 20 eV , für (c) von 19 bis 21 eV .	101

- 6.5 Darstellung der Elektronenspektren von Iodmethan für verschiedene Photonenanregungsenergien. Bei den hier dargestellten Spektren bildet sich ein weiterer Auger-Meitner Prozess bei Elektronenenergien von etwa 25 eV heraus. 102
- 6.6 Darstellung der Oszillatorstärke des untersuchten σ^* Überganges. Darstellung entnommen aus [OCB98] 103
- 6.7 Darstellung der Messwerte und angepassten Kurven zur Bestimmung des Zeitversatzes zwischen Photoelektronen und Auger-Meitner Elektronen. Die Kreuze stellen die bestimmten Energiewerte, die horizontalen Linien die Energien in Abwesenheit des THz-Feldes und die ansteigenden Linien die an die Messwerte angepassten Kurven für die Übergänge $(2e)^{-1}$ (rot), $(3a_1)^{-1}$ (blau), $(1e)^{-1}$ (grün) und die Auger-Meitner Übergänge (braun) dar. 103
-

Literaturverzeichnis

- [ABB⁺18] AZIMA, A. ; BÖDEWADT, J. ; BECKER, O. ; DÜSTERER, S. ; EKANAYAKE, N. ; IVANOV, R. ; KAZEMI, M. M. ; LAZZARINO, L. L. ; LECHNER, C. ; MALTEZPOULOS, T. ; MANSCHWETUS, B. ; MILTECHEV, V. ; MÜLLER, J. ; PLATH, T. ; PRYZSTAWIK, A. ; WIELAND, M. ; ASSMANN, R. ; HARTL, I. ; LAARMANN, T. ; ROSSBACH, J. ; WURTH, W. ; DRESCHER, M.: Direct measurement of the pulse duration and frequency chirp of seeded XUV free electron laser pulses. In: *New Journal of Physics* (2018), S. 2117–2132
- [ALES⁺16] ARDANA-LAMAS, F. ; ERNY, C. ; STEPANOV, A. G. ; GORGISYAN, I. ; JURANIC, P. ; ABELA, R. ; HAURI, C. P.: Temporal characterization of individual harmonics of an attosecond pulse train by THz streaking. In: *Physical Review A* 93 (2016)
- [BGAR18] BRAUSSE, F. ; GOLDSTEJN, G. ; AMINI, K. ; ROLLES, D.: Time-resolved inner-shell photoelectron spectroscopy: From a bound molecule to an isolated atom. In: *Physical Review A* 97 (2018)
- [Bra16] BRANNATH, R.: *Zeitliche Verteilung von Auger-Elektronen-Wellenpaketen aus der Photoionisation von Atomen*, Universität Hamburg, Dissertation, 2016
- [Cal] http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html
- [CGB⁺99] CONSTANT, E. ; GARZELLA, D. ; BREGER, P. ; MÉVEL, E. ; DORRER, Ch. ; BLANC, C. L. ; AGOSTINI, P.: Optimizing High Harmonic Generation in Absorbing Gases: Model and Experiment. In: *Physical Review Letters* 82 (1999), S. 1668–1671
- [Cor93] CORKUM, P.B.: Plasma Perspective on Strong-Field Multiphoton Ionization. In: *Physical Review Letters* 71 (1993), S. 1994–1997
- [DGR⁺16] DRESCHER, L. ; GALBRAITH, M. C. E. ; REITSMA, G. ; DURA, J. ; ZHAVORONKOV, N. ; PATCHKOVSKII, S. ; VRAKING, M. J. J. ; MIKOSCH, J.: Communication: XUV transient absorption spectroscopy of iodomethane and iodobenzene photodissociation. In: *The Journal of Chemical Physics* 145 (2016)
- [DMJ⁺00] DÖRNER, R. ; MERGEL, V. ; JAGUTZUKI, O. ; SPIELBERGER, L. ; ULLRICH, J. ; MOSHAMMER, R. ; SCHMIDT-BÖCKING, H.: Cold Target Recoil Ion Mo-
-

- mentum Spectroscopy: A 'Momentum Microscope' To View Atomic Collision Dynamics. In: *Physics Reports* (2000)
- [DR06] DIELS, J.-C. ; RUDOLPH, W.: *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Boston : Academic Press, 2006
- [Ein05] EINSTEIN, A.: Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. In: *Annalen der Physik* (1905), S. 132–148
- [Ein16] EINSTEIN, A.: Zur Quantentheorie der Strahlung. In: *Physikalische Gesellschaft Zürich - Mitteilungen* 18 (1916)
- [Enq04] ENQVIST, H.: *A setup for efficient frequency tripling of high-power femtosecond laser pulses*, Lund University, Maserarbeit, 2004
- [FCF⁺11] FRASETTO, F. ; CACHO, C. ; FROUD, C. A. ; TURCU, I. C. E. ; VILLORESO, P. ; BRYAN, W. A. ; SPRINGATE, E. ; POLETTI, L.: Single-grating monochromator for extreme-ultraviolet ultrashort pulses. In: *Optics Express* 19 (2011)
- [FFLH⁺10] FALCAO-FILHO, E.L. ; LAI, C.-J. ; HONG, K.-H. ; GKORTSAS, V.-M. ; HUANG, S.-W. ; CHEN, L.-J. ; KÄRTNER, F.X.: Scaling of high-order harmonic efficiencies with visible wavelength drivers: A route to efficient extreme ultraviolet sources. In: *Applied Physics Letters* 97 (2010)
- [Frü09] FRÜHLING, U.: *Lichtfeld getriebene Streak-Kamera zur Einzelschuss Zeitstrukturmessung der XUV-Pulse eines Freie-Elektronen Lasers*, Universität Hamburg, Dissertation, 2009
- [Frü11] FRÜHLING, U.: Light-field streaking for FELs. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* (2011)
- [FTK⁺15] FRÜHLING, U. ; TRINTER, F. ; KARIMI, F. ; WILLIAMS, J.B. ; JAHNKE, T.: Time-resolved studies of interatomic Coulombic decay. In: *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* 204 (2015)
- [FWG⁺09] FRÜHLING, U. ; WIELAND, M. ; GENSCHE, M. ; GEBERT, T. ; SCHÜTTE, B. ; KRUKUNOVA, M. ; KALMS, R. ; BUDZYN, F. ; GRIMM, O. ; ROSSBACH, J. ; PLÖNJES, E. ; DRESCHER, M.: Single-shot terahertz-field-driven X-ray streak camera. In: *Nature Photonics* (2009)
- [Gag10] GAGNON, J.: *Attosecond Electron Spectroscopy Theory and its Applications*, L.M.U. München, Dissertation, 2010
- [GBSK05] GANEEV, R.A. ; BABA, M. ; SUZUKI, M. ; KURODA, H.: High-order harmonic generation from silver plasma. In: *Physics Letters A* 339 (2005), S. 103–109
-

-
- [GDS⁺11] GHIMIRE, S. ; DI CHIARA, A.D. ; SISTRUNK, E. ; AGOSTINI, P. ; DIMAURO, K.F. ; REIS, D.A.: Observation of high-order harmonic generation in a bulk crystal. In: *Nature Physics* 7 (2011), S. 138–141
- [Geb15] GEBERT, T.: *Messung ultrakurzer molekularer Zeitkonstanten mit nichtlinearer interferometrischer Autokorrelation bei 160 nm Wellenlänge*, Universität Hamburg, Dissertation, 2015
- [GJP⁺17] GAUMNITZ, T. ; JAIN, A. ; PERTOT, Y. ; HUPPERT, M. ; JORDAN, I. ; ARDANA-LAMAS, F. ; WÖRNER, H. J.: Streaking of 43-attosecond soft-X-ray pulses generated by a passively CEP-stable mid-infrared driver. In: *Optics Express* (2017)
- [GZT54] GORDON, J. P. ; ZEIGER, H. J. ; TOWNES, C. H.: Molecular Microwave Oscillator and New Hyperfine Structure in the Microwave Spectrum of NH₃. In: *Physical Review* 95 (1954)
- [HBK⁺09] HECKL, O.H. ; BAER, C.R.E. ; KRÄNKEL, C. ; MARCHESI, S.V. ; SCHAPPER, F. ; HOLLER, M. ; SÜDMEYER, T. ; ROBINSON, J.S. ; TISCH, J.W.G. ; COUNY, F. ; LIGHT, P. ; BENABID, F. ; KELLER, U.: High harmonic generation in a gas-filled hollow-core photonic crystal fiber. In: *Applied Physics B, Lasers and Optics* 97 (2009), S. 369–373
- [Hec14] HECHT, E.: *Optik*. München : De Gruyter, 2014
- [HYH⁺01] HEBLING, J. ; YEH, K.-L. ; HOFFMANN, M. C. ; BARTAL, B. ; NELSON, K. A.: Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities. In: *Science* (2001)
- [Jae98] JAEGLÉ, P.: *Vacuum Ultraviolet Lasers*. 1998
- [Kar13] KARIMI, F.: *Spectrometer for Diagnostics of Lower Orders of HHG XUV-Pulses*, Universität Hamburg, Diplomarbeit, 2013
- [Kar19] KARIMI, F.: *Towards Realtime Observation of Interatomic Coulombic Decay via XUV Pump - THz Probe Streaking*, Universität Hamburg, Dissertation, 2019
- [KDW⁺03] KAZAMIAS, S. ; DOUILLET, D. ; WEIHE, F. ; VALENTIN, C. ; ROUSSE, A. ; SEBBAN, S. ; GRILLON, G. ; AUGÉ, F. ; HULIN, D. ; BALCOU, P.: Global Optimization of High Harmonic Generation. In: *Physics Review Letters* 90 (2003)
- [KGJN97] KLEEMANN, B.H. ; GATZKE, J. ; JUNG, C. ; NELLES, B.: Design and efficiency characterization of diffraction gratings for applications in synchrotron monochromators by electromagnetic methods and its comparison with measurement. In: *Proceedings of Spie* 3150 (1997)
-

- [K.K] <https://www.hamamatsu.com/eu/en/product/photometry-systems/streak-camera/fesca-100-femtosecond-streak-camera/index.html>
- [KKK⁺05] KIM, I.J. ; KIM, C.M. ; KIM, H.T. ; LEE, G.H. ; LEE, Y.S. ; PARK, J.Y. ; CHO, D.J. ; NAM, C.H.: Highly Efficient High-Harmonic Generation in an Orthogonally Polarized Two-Color Laser Field. In: *Physical Review Letters* 94 (2005)
- [KLP⁺08] KIM, I.J. ; LEE, G.H. ; PARK, S.B. ; LEE, Y.S. ; KIM, T.K. ; NAM, C.H. ; MOCEK, T. ; JAKUBCZAK, Krysztof: Generation of submicrojoule high harmonics using a long gas jet in a two-color laser field. In: *Applied Physics Letters* 92 (2008)
- [KRT⁺13] KUNITSKI, M. ; RICHTER, M. ; THOMSON, M. D. ; VREDENBORG, A. ; WU, J. ; JAHNKE, T. ; SCHÖFFLER, M. ; SCHMIDT-BÖCKING, H. ; ROSKOS, H. G. ; DÖRNER, R.: Optimization of single-cycle terahertz generation in LiNbO₃ for sub-50 femtosecond pump pulses. In: *Optics Express* 21 (2013)
- [LBI⁺94] LEWENSTEIN, M. ; BALCOU, P. ; IVANOV, M. Y. ; L'HUILLIER, A. ; CORKUM, P. B.: Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. In: *Physical Review A* 49 (1994), S. 2117–2132
- [LKSW06] LIU, T.T. ; KANAI, T. ; SEKIKAWA, T. ; WATANABE, S.: Significant enhancement of high-order harmonics below 10 nm in a two-color laser field. In: *Physical Review A* 73 (2006)
- [Mai60] MAIMAN, T. H.: Stimulated optical radiation in ruby. In: *Nature* 187 (1960)
- [Mal12] MALTEZOPOULUS, T.: *Direct HHG seeding at FLASH*. 2012
- [MEH⁺10] MILLER, R. J. D. ; ERNSTORFER, R. ; HARB, M. ; GAO, M. ; HEBEISEN, C. T. ; JEAN-RUEL, H. ; LU, C. ; MORIENA, G. ; SCIAINI, G.: 'Making the molecular movie': first frames. In: *Dynamical Structural Science* (2010)
- [MN87] MORIN, P. ; NENNER, I.: Photoionization Decay of Core Excited Molecules. In: *Physica Scripta* 17 (1987)
- [Mou82] MOULTON, P. F.: Ti-doped Sapphire: Tunable Solid-State Laser. In: *Optics News* 8 (1982)
- [OCB98] OLNEY, T. N. ; COOPER, G. ; BRION, C. E.: Quantitative studies of the photo-absorption (4.5 - 488 eV) and photoionization (9 - 59.5 eV) of methyl iodide using dipole electron impact techniques. In: *Chemical Physics* 232 (1998)
- [PBG⁺06a] PASCOLINI, M. ; BONORA, S. ; GIGLIA, A. ; MAHNE, N. ; NANNARONE, S. ; POLETO, L.: Gratings in a conical diffraction mounting for an extreme-ultraviolet time-delay-compensated monochromator. In: *Applied Optics* 45 (2006)
-

-
- [PBG⁺06b] PASCOLINI, M. ; BONORA, S. ; GIGLIA, A. ; MAHNE, N. ; NANNARONE, S. ; POLETTI, L.: Gratings in a conical diffraction mounting for an extreme-ultraviolet time-delay-compensated monochromator. In: *Appl. Opt.* 45 (2006)
- [Pol04] POLETTI, L.: Time-compensated grazing-incidence monochromator for extreme-ultraviolet and soft X-ray high-order harmonics. In: *Applied Physics B* 78 (2004), S. 1013–1016
- [PTB⁺01] PAUL, P. M. ; TOMA, E. S. ; BREGER, P. ; MULLOT, G. ; AUGÉ, F. ; BALCOU, P. ; MULLER, H.G. ; AGOSTINI, P.: Observation of a Train of Attosecond Pulses from High Harmonic Generation. In: *Science* (2001)
- [PVB⁺08] POLETTI, L. ; VILLORESI, P. ; BENEDETTI, E. ; FERRARI, F. ; STAGIRA, S. ; SANSONE, G. ; NISOLI, M.: Temporal characterization of a time-compensated monochromator for high-efficiency selection of extreme-ultraviolet pulses generated by high-order harmonics. In: *Optical Society of America* (2008)
- [QMI05] QUÉRÉ, F. ; MAIRESSE, Y. ; ITATANI, J.: Temporal characterization of attosecond XUV fields. In: *Journal of Modern Optics* 20 (2005)
- [Ran19] RANKE, M.: *Investigation of low-energy photoelectron dynamics accelerated in terahertz light fields using a novel Velocity-Map-Imaging spectrometer*, Universität Hamburg, Dissertation, 2019
- [RHS⁺18] RICHTER, C. ; HOLLAS, D. ; SAAK, C.-M. ; FÖRSTEL, M. ; MITEVA, T. ; MUCKE, M. ; BJÖRNEHOLM, O. ; SISOURAT, N. ; SLAVICEK, P. ; HERGENHAHN, U.: Competition between proton transfer and intermolecular Coulombic decay in water. In: *Nature Communications* (2018)
- [RKH⁺14] ROTHHARDT, J. ; KREBS, M. ; HÄDRICH, S. ; DEMMLER, S. ; LIMPET, J. ; TÜNNERMANN, A.: Absorption-limited and phase-matched high harmonic generation in the tight focusing regime. In: *New Journal of Physics* 16 (2014)
- [Sch11] SCHÜTTE, B.: *Laser-based terahertz-field-driven streak camera for the temporal characterization of ultrashort processes*, Universität Hamburg, Dissertation, 2011
- [SM85] STRICKLAND, D. ; MOUROU, G.: Compression of amplified chirped optical pulses. In: *Optics Communications* (1985)
- [Sum15] SUMFLETH, M.: *Untersuchung der Strahlparameter einer lasergetriebenen Terahertz Quelle basierend auf optischer Gleichrichtung in Lithiumniobat*, Universität Hamburg, Bachelor-Arbeit, 2015
- [TIN⁺99] TAMAKI, Y. ; ITATANI, J. ; NAGATA, Y. ; OBARA, M. ; MIDORIKAWA, K.: Highly Efficient, Phase-Matched High-Harmonic Generation by a Self-Guided Laser Beam. In: *Physical Review Letters* 82 (1999), S. 1422–1425
-

- [TWW⁺13] TRINTER, F. ; WILLIAMS, J. B. ; WELLER, M. ; WAITZ, M. ; PITZER, M. ; VOIGTSBERGER, J. ; SCHOBER, C. ; KASTIRKE, G. ; MÜLLER, C. ; GOIHL, C. ; BURZYNSKI, P. ; WIGANDT, F. ; BAUER, T. ; WALLAUER, R. ; SANN, H. ; KALININ, A. ; SCHMITDT, L. P. H. ; SCHÖFFLER, M. ; SISOURAT, N. ; JAHNKE, T.: Evolution of Interatomic Coulombic Decay in the Time Domain. In: *Physical Review Letters* (2013)
- [VHM⁺01] VELOTTA, R. ; HAY, N. ; MASON, M.B. ; CASTILLEJO, M. ; MARANGOS, J.P.: High-Order Harmonic Generation in Aligned Molecules. In: *Physical Review Letters* 87 (2001)
- [Wer77] WERNER, W.: X-ray efficiencies of blazed gratings in extreme off-plane mountings. In: *Applied Optics* 16 (1977)
- [Wik] https://commons.wikimedia.org/wiki/File:Diffraction_from_a_blazed_grating.svg
- [WSG08] WINTERFELD, C. ; SPIELMANN, C. ; GERBER, G.: Optimal control of high-harmonic generation. In: *Reviews of modern physics* 80 (2008)
- [WTY⁺11] WILLNER, A. ; TAVELLA, F. ; YEUNG, M. ; DZELZAINIS, T. ; KAMPERIDIS, C. ; BAKEREZOS, M. ; ADAMS, D. ; SCHULZ, M. ; RIEDEL, R. ; HOFFMANN, M.C. ; HU, W. ; ROSSBACH, J. ; DRESCHER, M. ; PAPADOGIANNIS, N.A. ; TATARAKIS, M. ; DROMEY, B. ; ZEPF, M.: Coherent Control of High Harmonic Generation via Dual-Gas Multijet Arrays. In: *Physical Review Letters* 107 (2011)
- [WWB⁺19] WENIG, K. ; WIELAND, M. ; BAUMANN, A. ; WALTHER, S. ; DIMITRIOU, A. ; PRANDOLINI, M. J. ; SCHEPP, O. ; MACIAS, I. B. ; SUMFLETH, M. ; STOJANOVIC, N. ; DÜSTERER, S. ; RÖNSCH-SCHULENBURG, J. ; ZAPOLNOVA, E. ; PAN, R. ; DRESCHER, M. ; FRÜHLING, U.: Electronic decay of core-excited HCl molecules probed by THz streaking. In: *Structural Dynamics* (2019)
-

Eidesstattliche Versicherung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und ohne fremde Hilfe angefertigt und mich anderer als der im beigefügten Verzeichnis angegebenen Hilfsmittel nicht bedient habe. Alle Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus Veröffentlichungen entnommen wurden, sind als solche kenntlich gemacht. Ich versichere weiterhin, dass ich die Arbeit vorher nicht in einem anderen Prüfungsverfahren eingereicht habe und die eingereichte schriftliche Fassung der auf dem elektronischen Speichermedium entspricht.

Ich bin mit einer Einstellung in den Bestand der Bibliothek des Fachbereiches einverstanden.

Hamburg, den _____ Unterschrift: _____

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich Allen danken, die an der Entstehung dieser Arbeit in irgendeiner Art und Weise mitgewirkt haben. Ich hoffe niemand fühlt sich durch die Reihenfolge benachteiligt oder ist traurig, nicht genannt zu werden. Dieser Kritik stelle ich mich dann.

An erster Stelle danke ich natürlich Ulrike Frühling dafür, mir die Möglichkeit zu dieser Arbeit und der damit verbundenen fachlichen und menschlichen Weiterentwicklung gegeben zu haben. Und meinem Zweitprüfer Michael Martins und der Prüfungskommission, ohne die diese Arbeit nicht zu einem Abschluss gekommen wäre. Und natürlich auch Markus Drescher, der mich 4 Jahre lang in seinem Labor toleriert hat.

Zum wissenschaftlichen Personal ist zu sagen, dass ich: ... ohne Marek wohl kein Equipment ... ohne Thomas keinen Monochromator ... ohne Tassos gar keine Zeitauflösung ... ohne Armin kein einziges Photon ... ohne Mark keine Korrekturen der Arbeit ... ohne Arne keine Goldmedaille ... ohne Olli keine Anschlussverwendung ... ohne Martin weniger Zappzaraperfahrung ... ohne Sophie einen größeren Fleischkonsum ... ohne Malte und Lennart keine Software ... hätte.

Dem technischen Personal, allen voran Olli, dem ganzen Team der mechanischen Werkstatt und auch der E-Werkstatt ein großes Dankeschön für die Hilfe und die ganzen Teile und die Arbeit die ich euch gemacht habe. Ein weiterer Dank gilt der CUI Verwaltung für 5 Jahre reibungsloser Formalitäten.

Neben dem technisch-wissenschaftlichen Personal hat meine Familie großen Anteil an der Realisierung dieser Arbeit. Insbesondere meiner Frau Nicole, meinem Sohn Damian und unserer Tochter Maia (auf die ich noch warte, während ich diese Zeile schreibe), welche meine Launen und geistige Abwesenheit über eine lange Zeit ertragen haben. Meine Schwester Kristin und mein Schwager Robert waren ein großer Ansporn die Arbeit erfolgreich zu beenden. Und natürlich danke ich meinen Eltern und Großeltern, ohne die es nie so weit gekommen wäre.

Und zu guter Letzt:

Am Ende wird alles gut! Wenn es nicht gut ist, ist es nicht das Ende.

– *Oscar Wilde*
