

# INAUGURAL-DISSERTATION

zur Erlangung der Doktorwürde  
der Naturwissenschaftlich-Mathematischen Gesamtfakultät  
der Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

vorgelegt von  
**Helga Rietz**  
aus Köln

**Tag der mündlichen Prüfung: 12.12.2012**



Attosekundenphysik mit dem Reaktionsmikroskop:  
Eine Konzeptstudie, erste Experimente  
und mögliche Anwendungen

**Gutachter: Prof. Dr. Joachim Ullrich  
Prof. Dr. Marcus Motzkus**



**Zusammenfassung** — Diese Arbeit beschreibt den Aufbau einer Apparatur für die zeitaufgelöste Impulsspektroskopie an kleinen Quantensystemen sowie die ersten Experimente, die damit durchgeführt wurden. Durch die Kombination der kürzesten derzeit verfügbaren Laserimpulse, die nur einige 100 Attosekunden dauern ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ), mit einem Reaktionsmikroskop, welches die vollständige Rekonstruktion der Impulsvektoren der geladenen Bruchstücke eines Ionisations- oder Dissoziationsvorgangs ermöglicht, werden mit dieser Apparatur präzise und detaillierte Untersuchungen von Vorgängen in der Elektronenhülle von Atomen und kleinen Molekülen zugänglich. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen dienten zunächst der Charakterisierung der erzeugten Attosekunden-Impulse. Deren Dauer beträgt  $\approx 250 \text{ as}$ , wobei die Strahlung abhängig von der Dauer der erzeugenden Infrarot-Laserpulse in Impulsfolgen von jeweils  $\approx 30$  Einzelpulsen emittiert wird. Auf die vorbereitenden Messungen folgte eine detaillierte, energieaufgelöste Untersuchung der Winkelverteilung der bei der Ionisation mit Attosekunden-Impulsen in einem schwachen, externen Infrarot-Laserfeld emittierten Photoelektronen. Dabei konnten Beobachtungen anderer Forschungsgruppen bestätigt werden. Darüber hinaus stehen mit diesen Messungen erstmals umfassende, energie- und winkelaufgelöste Daten zur zwei-Farben-Ionisation verschiedener Edelgase mit Attosekunde-Impulsen zur Verfügung, welche unter denselben experimentellen Bedingungen durchgeführt wurden.

**Abstract** — This work describes the setup of an experimental apparatus dedicated for time-resolved momentum-spectroscopy of small quantum systems and the first measurements conducted with it. The combination of the shortest currently available laser pulses that last for a few 100 attoseconds only ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ) with a reaction-microscope, a detector capable of the complete reconstruction of the momentum-vectors of all charged particles that emerge from an ionization- or a dissociation-process, enables precise and detailed investigations of processes that occur in the electronic structure of atoms and small molecules. The first measurements carried out in the context of this thesis were aimed at a complete characterization of the generated attosecond pulses. Their duration was measured to be  $\approx 250 \text{ as}$ , and the XUV-radiation is delivered in pulse trains of  $\approx 30$  separate pulses each. After the preparative experiments, a comparative study of the photoelectron angular distributions following ionization by attosecond pulses in an IR dressing field was carried out. In doing so, observations of previously published results could be reproduced. In addition, our measurements present for the first time detailed, energetically and angularly resolved data on the two-colour photoionization of four noble gases, all taken under the same experimental conditions.



There is plenty of ~~room~~ at the bottom.  
*time*

Unter dem Titel „There is Plenty of Room at the Bottom“ sprach Richard P. Feynman am 26. Dezember 1959 – die Amerikanischen Phsikalischen Gesellschaft hatte sich so kurz nach Weihnachten am California Institute of Technology zum Jahrestreffen versammelt – über die Fülle von Perspektiven, die in verschiedensten ingenieurwissenschaftlichen Disziplinen durch *Miniaturisierung* der jeweils relevanten funktionellen Einheiten ermöglicht würde [Fey60]. Dazu gehörte unter anderem die Vorstellung, einzelne Atome nach Belieben zu manipulieren, um beispielsweise winzige Datenspeicher mit zugleich riesiger Kapazität zu erschaffen. Jahrzehnte später wurden viele der von Feynman skizzierten Ideen umgesetzt, der visionäre Titel seiner Vorlesung zum geflügelten Wort. Sie gilt bis heute als konzeptioneller Wegbereiter der Nanotechnologie.

Heute wird Feynmans Diktum gerne umgedeutet. Denn selbst wenn der Raum auf atomarer Skala lückenlos erforscht wäre, bliebe eine weitere Dimension, deren kleinste Größenordnungen eine Fülle noch lange nicht vollständig verstandener Phänomene verbergen: die Zeit. Den Ereignissen der Quantenwelt, die innerhalb winziger Sekundenbruchteile ablaufen – und die kaum weniger befremdlich anmuten als Feynmans nanotechnologische Utopien vor einem halben Jahrhundert – widmet sich die Attosekundenphysik. Die ersten zehn Jahre dieses jungen Forschungsbereichs zeigen: Nicht nur am unteren Ende der Längenskala ist viel Platz, auch die kürzesten *Zeiträume* sind voller Möglichkeiten.

Die Entdeckungsreise hat gerade erst begonnen.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Attosekundenphysik mit dem Reaktionsmikroskop</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen der Attosekundenphysik mit harmonischer Strahlung</b>	<b>9</b>
2.1	Lasereimpulse – Grundlagen und Definitionen . . . . .	11
2.2	Hohe Harmonische Strahlung . . . . .	15
2.2.1	Semiklassisches Modell . . . . .	17
2.2.2	Quantenmechanische Beschreibung . . . . .	25
2.3	Makroskopische Effekte und Phasenanpassung bei hohen Harmonischen	26
2.4	Zeitstruktur harmonischer Strahlung . . . . .	28
2.4.1	Attosekundenimpulszüge . . . . .	28
2.4.2	Einzelne Attosekundenimpulse . . . . .	30
2.5	Attosekundenmetrologie . . . . .	33
2.5.1	Entstehung von Seitenbändern . . . . .	33
2.5.2	RABITT-Messungen . . . . .	35
2.5.3	Weiterentwicklungen . . . . .	38
2.6	Anwendungen der Attosekundenphysik . . . . .	39
2.6.1	Streaking . . . . .	39
2.6.2	Neue Anwendungen für Attosekundenimpulse . . . . .	41
<b>3</b>	<b>Eine Attosekundenquelle für Reaktionsmikroskope</b>	<b>45</b>
3.1	Lasersystem . . . . .	45
3.2	Vakuumsystem . . . . .	48
3.3	Attosekunden-Quelle . . . . .	51
3.3.1	Optimierung . . . . .	52
3.3.2	Kalibrierung der Spektren . . . . .	54
3.3.3	Abschätzung der Photonenzahlen . . . . .	56
3.3.4	Gerade und ungerade Harmonische . . . . .	58
3.4	Interferometer, Rekombinationskammer und Zweifarben-Beamline . . . . .	60
3.4.1	Delaystabilität . . . . .	62
3.4.2	Differentielle Pumpstufe . . . . .	63
3.4.3	Fokussierung . . . . .	64
3.4.4	Justage . . . . .	65
3.5	Druckkontrolle von der Harmonischen-Quelle bis zum Reaktionsmikroskop	68
3.6	Aktuelle Spezifikationen und mögliche Verbesserungen . . . . .	69
<b>4</b>	<b>Reaktionsmikroskop – Grundlagen und Anwendungen</b>	<b>73</b>
4.1	Anwendungen . . . . .	73
4.2	Messprinzip und Aufbau . . . . .	74
4.3	Rekonstruktion der Impulsvektoren . . . . .	78

---

4.4	Spezifikationen des Heidelberger Attosekunden-Reaktionsmikroskops . . .	80
<b>5</b>	<b>Experimente mit Attosekundenimpulszügen in Edelgasen</b>	<b>85</b>
5.1	IR-IR-Autokorrelation . . . . .	85
5.2	Photoionisation mit hoher harmonischer Strahlung . . . . .	87
5.3	Seitenbandoszillationen . . . . .	90
5.3.1	Amplituden der Harmonischen . . . . .	93
5.3.2	Phasen der Harmonischen . . . . .	96
5.3.3	<i>In situ</i> -Rekonstruktion des Attosekundenimpulszugs . . . . .	98
5.3.4	Filterkorrektur . . . . .	99
5.4	Die Winkelverteilung der Photoelektronen . . . . .	103
5.5	Vergleich mit Simulationsrechnungen . . . . .	108
5.6	Einflüsse hoch liegender, gebundener Zustände . . . . .	110
5.7	Streaking . . . . .	112
<b>6</b>	<b>Schluss</b>	<b>115</b>
	<b>Anhang</b>	<b>123</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>127</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>129</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>145</b>

# 1 Attosekundenphysik mit dem Reaktionsmikroskop

Die *Attosekunde*,  $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ , ist die typische Zeitskala der Elektronendynamik in äußeren Schalen von Atomen und Molekülen. Das zeigt sich bereits an der Definition der atomaren Zeiteinheit  $t_{at} [\text{a.u.}] = \hbar/2Ry = 24 \text{ as}$  ( $Ry$  bezeichnet hier die Rydberg-Konstante), welche der Zeitspanne entspricht, in der ein Elektron im Bohr'schen Modell des Wasserstoffatoms eine Distanz von der Länge des Bohr'schen Radius zurücklegt. Zeitaufgelöste Spektroskopie mit Attosekundenpräzision, so der Grundgedanke des noch jungen Forschungsbereichs der Attosekundenphysik, sollte deshalb die Untersuchung von Elektronenbewegungen in den Orbitalen von Atomen und Molekülen ermöglichen, und damit einen Schlüssel zu einem tieferen Verständnis jener fundamentalen Quantenprozesse bieten, die das Aufbrechen, Umarrangieren und Neubilden von chemischen Bindungen bestimmen [Kli08b]. Auch die kollektive Dynamik von Elektronen in Nanostrukturen, Clustern und Plasmen läuft innerhalb einiger hundert Attosekunden ab. Das macht die Attosekundenphysik zur „Wissenschaft der Elektronen in Bewegung“ [Kra09], die – mit jeweils geeigneten spektroskopischen Methoden – einerseits grundlegende Fragen der Quantenphysik, andererseits aber auch technologisch und biologisch relevante Phänomene angeht.

Zeitaufgelöste Spektroskopie wird heute an den verschiedensten Systemen durchgeführt. Die Experimente reichen von Atomen und kleinen Molekülen in der Gas- oder Flüssigphase bis hin zu Strukturen in Clustern, Nanopartikeln, großen Biomolekülen und Festkörpern [Pfe08]. Ein Großteil der experimentellen Arbeiten wird mit verschiedenen Varianten der sogenannten Pump-Probe-Spektroskopie durchgeführt, bei der ein erster „Pump“-Laserimpuls einen dynamischen Prozess in Gang setzt, der nach Ablauf einer definierten Zeitspanne mit einem zweiten, „Probe“ genannten Impuls analysiert wird. Sofern deren Impulsdauer in etwa der Zeitskala der zu untersuchenden dynamischen Prozesse entspricht, erreichen solche Pump-Probe-Experimente eine Zeitauflösung, die für das detaillierte Nachvollziehen der jeweiligen physikalischen Vorgänge notwendig ist. In der Vergangenheit musste man sich dabei in erster Linie auf die Bewegung der Atomkerne, Veränderungen in der Kristallstruktur oder die Dynamik von Quasiteilchen wie Phononen beschränken, die auf Femtosekundenzeitskala stattfinden und so mit gepulsten Lasern im sichtbaren, infraroten und ultravioletten Spektralbereich zugänglich sind. Elektronenbewegungen in Atomen und Molekülen hingegen entzogen sich einer Untersuchung nach demselben Schema weitgehend, weil ihre Bewegungen um zwei bis drei Größenordnungen schneller ablaufen als die mit den damaligen Techniken zugänglichen Laserimpulse. Lediglich an hoch angeregten Rydberg-Zuständen, die in Hinblick auf das Verständnis chemischer Bindungen oder gezielter technischer Anwendungen kaum relevant sind, gelangen solche zeitaufgelösten Experimente [Pis04].

Den oben skizzierten experimentellen Möglichkeiten gegenüber steht der Wunsch, die Dynamik von Elektronen bzw. den schnellen Ladungstransfer innerhalb chemisch relevanter, bindender Zustände zu verfolgen und sogar gezielt zu beeinflussen [Pfe08]. Bindende Molekülorbitale sind stets mit zwei Elektronen besetzt, deren Dynamik schon aufgrund der Spin-Wechselwirkung miteinander korreliert – das heißt voneinander abhängig – sein muss. Dieses konzertierte Wechselspiel in Zusammenhang mit der Bewegung der Kerne in Echtzeit zu beobachten und zu manipulieren, ist die große Erwartung, die mit der Entwicklung der Attosekunden-Impulse geweckt wurde. Neben der schlichten Neugier an den fundamentalen Gesetzen der Quantendynamik zielt die Attosekundenphysik aber auch – wenngleich mit eher langfristiger Perspektive – auf technologische Fragestellungen ab. Etwa eine Attosekunden-Mikroskopie, die Zeitauflösungen im Attosekundenbereich mit Nanometerpräzision im Raum verbindet, und zum Studium, gegebenenfalls auch der Manipulation der bereits erwähnten kollektiven Elektronenbewegung in Festkörpern dienen soll [Sto07]. Ein Experiment das die prinzipielle Machbarkeit von Attosekunden-Experimenten zur kollektiven elektronischen Bewegungen in komplexen Systemen demonstriert wurde bereits durchgeführt [Cav07] und hatte intensive Diskussionen in der Literatur zur Folge.

Darüber hinaus wurden in den letzten Jahren auf der Basis von ersten Erfolgen bei Forschungsarbeiten mit Attosekunden-Impulsen völlig neue, ganz elementare Fragen gestellt: Wie lange „dauert es“, ein Elektron aus einem Atom oder Molekül zu entfernen, und inwieweit unterscheidet sich dies abhängig von der elektronischen Struktur? Wie schnell passt sich die Elektronenhülle eines Atoms oder Moleküls an die infolge einer Ionisation veränderte Elektronenkonfiguration an? Diese Prozesse, obwohl im Rahmen früherer Diskussionen meist als „instantan“ angenommen, werden mit den Techniken der Attosekundenphysik zugänglich, so dass sich die Frage stellt, inwiefern das Konzept instantaner Veränderungen in Quantensystemen, bzw. die Projektion der Wellenfunktion auf eine Observable durch den Messprozess, überhaupt tragfähig ist [Gal12].

Aufgrund der Unschärferelation können Laserpulse<sup>1</sup> mit einer Dauer im Attosekundenbereich nur mit bestimmten spektralen Eigenschaften erzeugt werden. Für optimal komprimierte Impulse mit gaußförmigem Intensitätsverlauf gilt das *Zeit-Bandbreite-Produkt*  $\Delta t \cdot \Delta E \approx 1,8 \text{ fs} \cdot \text{eV}$ ; darin sind  $\Delta t$  und  $\Delta E$  die Impulsdauer und die spektrale Breite des Impulses. Für einen Subfemtosekunden-Impuls wird deshalb ein mindestens 2 eV breites, kohärentes Spektrum benötigt, für Impulsdauern von 100 as sind bereits 20 eV notwendig. Darüber hinaus ergibt sich aus der Dauer des elektromagnetischen

---

<sup>1</sup>Über die korrekte Verwendung der deutschen Begriffe „Puls“ und „Impuls“ in der Laserphysik gehen die Meinungen auseinander. Im althergebrachten Sprachgebrauch bezeichnet der *Puls*, abgeleitet vom physiologischen, durch den Herzschlag verursachten Puls „eine Folge von periodisch wiederkehrenden, gleichen *Impulsen*“, wobei letzterer einen „einmalige[n] stoßartige[n] Vorgang von beschränkter Dauer, z.B. Stromstoß oder Spannungsstoß“ bezeichnet [Sch81]. Aufgrund der Verwechslungsgefahr sowohl mit mechanischen Impulsen als auch mit dem Impuls, den das Photon mitführt hat sich in der Laserphysik allerdings eingebürgert, *Puls* und *Impuls* synonym zu verwenden, wenn von einem einzelnen Laser-Lichtblitz die Rede ist (der physikalisch ohnehin nur als Gedankenkonstrukt existiert). Folgen wiederkehrender Impulse werden in Anlehnung an den im Englischen gängigen Begriff „pulse train“ als *Impulszug* oder *Pulszug* bezeichnet. Diesem unkomplizierten, doch inkonsequenten Sprachgebrauch schließt sich auch diese Arbeit an.

Schwingungszyklus  $T$ , der die Welle transportiert, eine weitere Beschränkung: kürzer als  $T$  kann ein Impuls bei der entsprechenden Trägerwellenlänge  $\lambda = c \cdot T$  nicht werden, da sonst die Information über die Wellenlänge – und damit auch die über die Photonenenergie – verloren ginge. Bei infraroten Wellen mit  $\lambda = 800$  nm beträgt die Schwingungsdauer schon 2,7 fs, deshalb müssen Attosekunden-Impulse zwingend mit deutlich kürzeren Trägerwellenlängen arbeiten, die üblicherweise im fernen ultravioletten, zuweilen auch im weichen Röntgenbereich liegen.

Die Techniken, Laserimpulse mit genau diesen Eigenschaften im Labor zu erzeugen, wurden in den letzten 25 Jahren entwickelt, nachdem Experimente zur Wechselwirkung hochintensiver Laserstrahlung mit verschiedenen Gasen zur Entdeckung der *hohen harmonischen Strahlung*<sup>2</sup> geführt hatten [McP87]. Dabei wird intensives Laserlicht, die sogenannte „Fundamentale“, in ein geeignetes Erzeugendengas fokussiert. Das elektrische Feld des Lasers ionisiert die Atome dieses Gases, beschleunigt die dabei freiwerdenden Elektronen und lenkt sie, sobald das elektrische Feld seine Richtung umkehrt, nach einer festgelegten Zeit wieder zurück zum Ionenrumpf. Dort rekombinieren sie mit dem Ion und emittieren zugleich die bei der Bewegung im Feld gewonnene Energie in Form hoher harmonischer Strahlung. Zur Beschreibung der zugrundeliegenden physikalischen Prozesse wurde ein eingängiges *Drei-Schritt-Modell* entwickelt [Cor93].

Beim HHG-Prozess entstehen Photonen mit Energien bis hin zu mehreren hundert eV [Spi97], das Spektrum erstreckt sich über einige 10 eV. In einzelnen Laboren gelang sogar die Erzeugung von Strahlung im keV-Bereich [Gib03, Ser04], und unlängst wurde ein mehr als 0,7 keV breites Harmonischen-Spektrum beobachtet, das bei perfekter Pulskompression einen Attosekundenimpuls mit nur noch 2,5 as Dauer ergeben würde [Pop12]. Die Trajektorien der freien Elektronen im Laserfeld sind dabei intrinsisch mit dem elektrischen Feld der Fundamentalen synchronisiert – und zwar so, dass die Rekollision mit dem Ionenrumpf auf enge Zeitintervalle innerhalb des IR-Zyklus beschränkt ist. Die Emission hochenergetischer Photonen geschieht deshalb – zeitgleich mit der Rekollision – innerhalb von einigen hundert Attosekunden. Diese Zeitstruktur und die feste Phasenbeziehung zur Fundamentalen eröffnen eine Vielzahl messtechnischer Möglichkeiten.

Wesentlichen Einfluss hat dabei unter anderem die Impulslänge der Fundamentalen: in „langen“, das heißt in diesem Zusammenhang aus vielen optischen Zyklen bestehenden Impulsen, wiederholt sich der Drei-Schritt-Prozess der Harmonischenproduktion einmal pro Halbzyklus, so dass Impulszüge aus doppelt so vielen Einzelimpulsen entstehen. Schränkt man die Erzeugung harmonischer Strahlung dagegen mit geeigneten Techniken ein, lassen sich auch isolierte Attosekunden-Impulse herstellen. Das ist bis hin zu Pulslängen von nur 80 as gelungen [Gou08].

Obwohl die Attosekundenphysik anfangs als spektrale wie zeitliche Extrapolation bereits vorhandener experimenteller Techniken in den Attosekunden- bzw. XUV-Bereich gedacht [Lin06] und entsprechende Bemühungen unternommen wurden [Tza11], erwies sich die Übertragung der für infrarote, sichtbare und ultraviolette Strahlung konzipierten Spektroskopieschemata als nur bedingt umsetzbar. Eine „Attochemie“ in Analogie zur Femtochemie [Jud92, Rab00, Zew00] gibt es bislang nicht. Das hat eine ganze Rei-

<sup>2</sup>Aus dem Englischen „high harmonic generation“ üblicherweise als HHG abgekürzt.

he von Gründen: zum Einen sind die Wirkungsquerschnitte für die Photoabsorption im XUV relativ klein, und die bisher verfügbaren Attosekundenquellen im Vergleich dazu nicht besonders intensiv [Nis09]. Außerdem entziehen sich die mit hohen Harmonischen erzeugten Wellenlängen der Manipulation mit herkömmlichen Optiken. Wegen der Absorption fern-ultravioletter Strahlung in Raumluft müssen die Experimente zudem unter Vakuum stattfinden.

Deshalb wurden für die Attosekundenphysik eine Reihe neuer Messprinzipien entwickelt, von denen vor allem die „Attosecond Streak-Camera“ [Hen01] und die RABITT-Methode<sup>3</sup> [Mul02] spektakuläre Ergebnisse lieferten [Dre02, Gou04, Swo09, Klü11]. Sie wandeln die aus dem sichtbaren, infraroten und ultravioletten Spektralbereich bekannten Pump-Probe-Schemata insofern ab, als dass die zu untersuchenden quantendynamischen Prozesse zwar mit einem ultravioletten Attosekundenimpuls initiiert, anschließend aber nicht mit einem zweiten Attosekundenimpuls, sondern mit dem elektrischen Feld eines zum XUV-Puls phasengekoppelten infrarot-Impulses abgefragt werden – nämlich desjenigen fundamentalen Pulses, der den Attosekundenpuls auch erzeugt. Nicht die Intensitätsvariation über die Pulseinhüllende (die sich im Femtosekundenbereich verändert), sondern vielmehr der Gradient des elektrischen Feldes selbst bestimmt dann die erreichbare Zeitaufösung. Dadurch werden Zeitskalen unterhalb der Dauer eines halben optischen Zyklus,  $\leq 1$  fs, zugänglich.

Bei RABITT-Messungen entstehen Interferogramme, aus deren Strukturen sich die spektrale Phase des Attosekunden-Impulses errechnen lässt. Dies erlaubt eine prinzipiell vollständige Charakterisierung des XUV-Pulses. Darüber hinaus lassen sich aus diesen Interferogrammen bei vergleichenden Messungen an verschiedenen Gasen und unter Zuhilfenahme von theoretischen Berechnungen auch Informationen über Vorgänge auf kleinsten Zeitskalen – codiert in einem symptomatisch veränderten Phasenverlauf – ermitteln [Klü11].

Die Extraktion der gesuchten Zeitinformationen für verschiedene, zum Teil bereits untersuchte physikalische Prozesse hat sich allerdings als äußerst komplex erwiesen, auch bei den inzwischen vergleichsweise etablierten Techniken wie Streak-Kamera und RABITT [Dah12] und wird bis in die jüngste Zeit kontrovers diskutiert. Beide Verfahren messen nämlich nicht direkt ein Zeitintervall, sondern eine Impuls- oder Phasenverschiebung von Photoelektronen relativ zu einer für das jeweilige Experiment zu bestimmenden Referenz. Letztere festzulegen ist indes schon im (aus naiver Sicht) einfachsten Fall, nämlich der Frage nach der sogenannten Wigner-Zeit<sup>4</sup> [Wig55], schwierig, da die Wechselwirkung des Kontinuumselektrons mit dem langreichweitigen Coulombpotential des Ionenrumpfs eine zusätzliche Phasenverschiebung verursacht. Diese ist überdies energieabhängig; bei niedrigen Elektronenenergien ist sie am größten und verschwindet asymptotisch bei großen Elektronenenergien. Jüngste Messungen sowohl mit einzelnen Attosekunden-Impulsen [Sch10] und Attosekunden-Impulszügen [Klü11] als auch unter Ausnutzung zirkular polarisierter Probe-Impulse, die Zeitverzögerungen in Winkeldifferenzen übertragen [Eck08], nutzten deshalb die simultane Messung an zwei

---

<sup>3</sup>Reconstruction of Attosecond Beating by Interference of Two-photon Transitions

<sup>4</sup>„Wigner Time Delay“: die Zeit die für einen Ionisationsvorgang benötigt wird.

verschiedenen Energieniveaus, um den Einfluss unbekannter oder nur mit aufwändigen theoretischen Abschätzungen greifbarer Phasenterme zu eliminieren.

Sieht man von den der Transmissions-Absorptionsspektroskopie ab, mit der in jüngster Zeit spektakuläre erste Ergebnisse erzielt wurden [Ott12], so beruhen Experimente zur Attosekundendynamik ausschließlich auf dem Nachweis von Photoelektronen und ionischen Fragmenten. Insbesondere Fragen zur korrelierten Elektronendynamik in Atomen und kleinen Molekülen bei Isomerisierungs-, Lokalisierungs- und Ladungstransfer-Phänomenen erfordern den koinzidenten Nachweis von Elektronen und Ionen. Hier kommt das Reaktionsmikroskop [Ull03] (oft auch COLTRIMS<sup>5</sup> [Dör00] genannt) ins Spiel, denn diese Technologie erlaubt es, sämtliche geladene Bruchstücke in einem großen Raumwinkel bis hin zu  $4\pi$  zu registrieren und deren Impulsvektoren räumlich zu rekonstruieren. Dadurch werden die Winkelverteilungen emittierter Ladungsträger unmittelbar zugänglich; durch das Ausnutzen von Koinzidenzbedingungen können verschiedene Reaktionskanäle voneinander getrennt analysiert werden. Im Bereich der Attosekundenphysik, wo so gut wie alle Meilensteine seit dem ersten experimentellen Nachweis der Attosekundenstruktur harmonischer Strahlung [Pau01] mit *magnetic-bottle*- und *velocity-map-imaging*-Spektrometern erzielt wurden, ermöglicht der Schritt zum Reaktionsmikroskop die Untersuchung kleiner Moleküle – und damit genau jener Systeme, die sich in ihrer Komplexität Experimenten mit den zuvor genannten Techniken entziehen, zugleich aber nicht zu komplex für detaillierte theoretische Untersuchungen sind. Damit stellen sie ein ideales Testfeld für die theoretische Beschreibung der zugrunde liegenden, fundamentalen Wechselwirkungen auf der Ebene weniger Quantenteilchen dar. Aus diesen Überlegungen heraus gilt die Verbindung von Reaktionsmikroskop und Attosekundenimpulsen vielen Forschern in diesem Gebiet als zwingend notwendig [San12]. Dementsprechend haben mehrere Forschungsgruppen in den letzten Jahren ein eigenes System aus Reaktionsmikroskop und Attosekundenquelle aufgebaut, teilweise mit Hilfe unserer Heidelberger Gruppe. Aufgrund der Komplexität solcher Experimente sind bislang allerdings – gemessen an der investierten Zeit – nur vergleichsweise wenige Resultate publiziert worden [Guy05, Böt05, Guy08a, Guy08b, San08, Gag07].

Diese Arbeit befasst sich mit dem Aufbau, der Charakterisierung und ersten Anwendungen einer solchen Attosekundenapparatur am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg (MPIK). Sie ist in sechs Kapitel gegliedert. Kapitel 1, die Einleitung, haben Sie jetzt schon fast zuende gelesen, und dabei erfahren, welche Argumente für den Aufbau eines Reaktionsmikroskops mit Attosekundenquelle sprechen.

In Kapitel 2 werden die theoretischen Grundlagen der Erzeugung, Charakterisierung und Anwendung von Attosekundenimpulsen zusammengefasst. Die Betrachtung beschränkt sich hier auf jene Attosekundenimpulse, die mittels hoher harmonischer Strahlung erzeugt werden, da eine Diskussion alternativer Methoden, wie sie zum Beispiel Freie-Elektronen-Laser oder neuartige Plasmalaserquellen bieten, den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde. Das Kapitel beginnt mit einem allgemein gehaltenen Abschnitt über die Grundlagen ultrakurzer Laserimpulse (Abschnitt 2.1), auf den die Theorie der Erzeugung hoher harmonischer Strahlung im semiklassischen (Abschnitt 2.2.1) und

---

<sup>5</sup>Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy

im vollständig quantenmechanischen Bild (Abschnitt 2.2.2) folgt. Danach wird in Abschnitt 2.3 kurz auf die Einflüsse des makroskopischen Gastargets auf die Harmonischenerzeugung eingegangen. Abschnitt 2.4 behandelt die Zeitstruktur harmonischer Strahlung, Abschnitt 2.5 die verschiedenen Möglichkeiten zu deren experimentellem Nachweis. Das Kapitel schließt mit einem Abriss über die verschiedenen, innerhalb des Forschungsgebiets diskutierten Anwendungsmöglichkeiten von Attosekundenimpulsen (Abschnitt 2.6).

Der Heidelberger Aufbau aus Attosekundenquelle, Strahlführung bzw. Beamline<sup>6</sup> für XUV- und IR-Impulse sowie dem Reaktionsmikroskop wird in den Kapiteln 3 und Kapitel 4 detailliert beschrieben. Die Arbeit an Beamline und Attosekundenquelle stellt den Hauptteil meiner Tätigkeit als Doktorandin dar, wobei ich auf die bereits im Rahmen meiner Diplomarbeit erzielten Ergebnisse aufbauen konnte [Rie07]. Das Kapitel beginnt mit einer Beschreibung des kommerziellen Lasersystems (Abschnitt 3.1); in Abschnitt 3.2 wird das Vakuumsystem und in Abschnitt 3.3 die Attosekundenquelle mit ihren Spezifikationen dargelegt. Abschnitt 3.4 erläutert diejenigen experimentellen Teilaufbauten, die der präzisen Überlagerung der XUV- und IR-Impulse im Zentrum des Reaktionsmikroskops dienen. Dies sind neben einem geeigneten Interferometer mit Verzögerungsstrecke die Rekombinations- und Fokussieroptiken für beide Strahlen sowie die Beamline zum Reaktionsmikroskop. Auf die Kontrolle der Druckunterschiede zwischen der Harmonischenerzeugung und dem Reaktionsmikroskop geht Abschnitt 3.5 genauer ein. Zum Schluss werden in Abschnitt 3.6 die Spezifikationen der Attosekundenquelle zusammengefasst und mögliche Verbesserungen diskutiert.

Auf die Funktionsweise und die Spezifikationen des Reaktionsmikroskops wird in Kapitel 4 nur knapp eingegangen, da dieser Teil des Experiments im Rahmen einer anderen Doktorarbeit aufgebaut wurde [Gop10]. Nach einer kurzen Einführung (Abschnitt 4.1) werden das Messprinzip und der Aufbau erläutert (Abschnitt 4.2), darauf folgen die Grundlagen der Rekonstruktion von dreidimensionalen Impulsvektoren aus den Messdaten des Reaktionsmikroskops (Abschnitt 4.3). Abschnitt 4.4 schließlich fasst die relevanten Spezifikationen der Apparatur zusammen.

In Kapitel 5 werden die verschiedenen, an der neuinstallierten Beamline durchgeführten Experimente diskutiert. Weil es sich bei dem Aufbau zum Zeitpunkt der Inbetriebnahme um eines der ersten Systeme überhaupt handelte, das ein Reaktionsmikroskop mit einer Attosekunden-Beamline kombinierte, wurden – nachdem die experimentellen Hürden vor allem in Bezug auf die Druckunterschiede zwischen Harmonischenerzeugung und Reaktionsmikroskop, die Stabilität und Positionsgenauigkeit der Verzögerungsstrecke sowie die Überlagerung der Foki von IR- und XUV-Strahl überwunden waren – zunächst einmal wichtige Schlüsselexperimente der Attosekundenphysik reproduziert. Diese werden sonst mit experimentellen Methoden<sup>7</sup> durchgeführt, die im Vergleich zum Reaktionsmikroskop einen weitaus geringeren apparativen Aufwand bedeuten. Insbesondere wird dort mit hohen Targetdichten gearbeitet, so dass sehr viele Ereignisse pro Laserimpuls registriert werden können. In der Regel genügen

---

<sup>6</sup>in dieser Arbeit wird der englische Begriff „Beamline“ verwendet, da er unter Forschern praktisch eingedeutscht ist.

<sup>7</sup>In der Regel *time-of-flight*-, *magnetic-bottle*- und *velocity-map-imaging*-Spektrometer

daher Messzeiten von wenigen Minuten bis unter einer Stunde – abhängig von der gewünschten Zeitauflösung und dem maximal überdeckten Bereich. Demgegenüber arbeitet man im Reaktionsmikroskop mit weniger als einem Ereignis pro Laserpuls, sonst wäre die vollständige Rekonstruktion der Impulsvektoren für alle geladenen Reaktionsprodukte nicht möglich. Offensichtlich erfordert dies wesentlich längere Integrationszeiten, wobei die Stabilität und Reproduzierbarkeit sowohl der Verzögerungsstrecke als auch des Lasersystems mit HHG-Quelle über die gesamte Messzeit gewährleistet sein muss. Im Rahmen dieser grundlegenden Experimente gelang es, die Stabilität und die Leistungsfähigkeit des Systems zu testen und in einigen Punkten entscheidend zu verbessern. Darüber hinaus ermöglichten ausführliche RABITT-Messungen eine genaue Charakterisierung der erzeugten Attosekunden-Impulszüge.

Daran anschließend zeigten vergleichende Untersuchungen der in verschiedenen Edelgasen aufgezeichneten RABITT-Interferogramme sowie die energieaufgelösten Winkelverteilungen interessante Beobachtungen. Sie deuten darauf hin, dass Resonanzen sowohl hoch liegender gebundener als auch autoionisierender Zustände die Messungen massiv beeinflussen. Kürzlich von Difa Ye [Ye] begonnene theoretische Untersuchungen bestätigten dies, können die experimentellen Ergebnisse jedoch nicht vollständig erklären. In den Simulationsrechnungen weist die energetisch niedrigste Linie des RABITT-Interferogramms in Helium außerdem eine deutliche Doppelpeak-Struktur auf, deren Auftreten aus der gängigen Beschreibung und früheren Messungen nicht erwartet worden war. Diese Struktur konnte nach einer eingehenden Analyse auch in den experimentellen Daten nachgewiesen werden.

Kapitel 6 schließt mit einer Zusammenfassung der experimentellen Arbeiten und der erzielten Resultate, und geht auf die vielfältigen Möglichkeiten ein, mit dem am MPIK in Heidelberg installierten System aus Attosekunden-Beamline und Reaktionsmikroskop den aktuellen Fragen der Attosekundenphysik nachzugehen.

Im Anhang folgen eine Zusammenstellung der Formeln zur Berechnung von Strömungsleitwerten, welche beim Aufbau der Attosekunden-Beamline gebraucht wurden (vgl. Abschnitt 3.5), sowie die Parameter der bei der Untersuchung der Winkelverteilungen in Abschnitt 5.4 verwendeten Fitfunktionen in Tabellenform.



## 2 Grundlagen der Attosekundenphysik mit harmonischer Strahlung

Die Entwicklung kurzer Laserimpulse begann bereits unmittelbar nach der ersten experimentellen Realisation des Lasers [Mai60b, Mai60a]: Die Erfindung der Güteschaltung [Hel61a, Hel61b], die bereits Impulsdauern von 10 ns erlaubte, stellt in dieser Hinsicht den ersten Meilenstein dar. Noch im selben Jahrzehnt wurde die Technik der Modenkopplung [Har64, DeM66] erstmals demonstriert. Breitbandige Verstärkung [Sha74] und die Dispersionskontrolle im Resonator mit Gittern bzw. Prismen [For87] verkürzten die erreichbaren Impulsdauern um weitere 4 Größenordnungen [Blo99]. In den Bereich von wenigen Femtosekunden drang man im Zuge der Entwicklung der „chirped pulse amplification“ [Str85] vor – also der Verstärkung von zuvor zeitlich gestreckten Laserpulsen. Mit Beginn der 90er Jahre wurden die damals in der Kurzpulsphysik dominierenden Farbstofflaser nach und nach durch Festkörperlaser auf der Basis von Titan-Saphir-Kristallen abgelöst. Diese sind weniger anspruchsvoll, was die Wartung der Systeme angeht; darüber hinaus sind sie stabiler und liefern besser reproduzierbare Impulsparameter [Sil00]. Einen Überblick über diese Entwicklung gibt Abbildung 2.1.

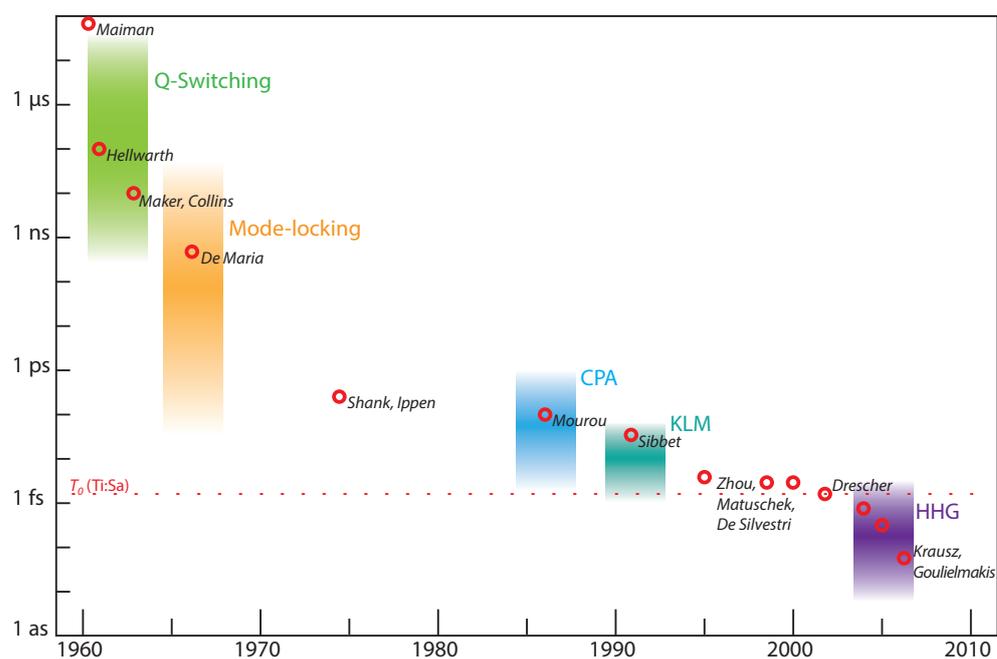
Für die Grundlagenforschung eröffneten diese gepulsten Lasersysteme unter anderem die Möglichkeit, photochemische Prozesse zeitaufgelöst zu untersuchen. In diesem Zusammenhang spielen vor allem sogenannte Pump-Probe-Experimente eine Schlüsselrolle. Bei diesen arbeitet man mit Impulspaaren, deren zeitlicher Abstand variiert wird. Der zuerst eintreffende „Pump“-Impuls präpariert das zu untersuchende System in geeigneter Weise. Das kann zum Beispiel die Anregung einer Vibrationsbewegung oder einer photochemischen Reaktion sein, die anschließend mit dem „Probe“-Impuls analysiert wird (z.B. [Erg06b]). Hierbei bestimmt die Impulsdauer  $\tau$  die erreichbare zeitliche Auflösung. In einer einfachen Analogie kann man sich das vorstellen wie bei einer Kamera, bei der die Verschlusszeit bestimmt, ob schnell bewegte Objekte scharf oder verwischt auf der Fotografie erscheinen.

Ebenso große Bedeutung kommt Kurzpulslasern in der anwendungsorientierten Lasertechnik zu: Ihre hohen Spitzenleistungen machen gepulste Laser zu idealen Werkzeugen für die präzise, computergesteuerte Materialbearbeitung; in der Medizin sorgen gepulste Laser als „Lichtskalpell“ dafür, dass Gewebe nur lokal und unter Schonung der umliegenden Gewebeschichten abgetragen oder per Lichtimpuls vernäht wird [Sil00].

Ab Mitte der 1990er Jahre stieß man mit den Titan-Saphir-Lasersystemen jedoch an die bereits erwähnte 2,5 fs-Barriere<sup>1</sup>, die durch die Schwingungsdauer des elektrischen Feldes bei der Ti:Sa-Wellenlänge von rund 800 nm gegeben ist. Unter diese Schwelle kann man mit Strahlung im infraroten Wellenlängenbereich folglich nicht vordringen. Deshalb wurden mit dem Erreichen dieses fundamentalen Limits für Pulse im infraro-

---

<sup>1</sup>Im Englischen „2,5 fs barrier“ oder auch „single-cycle-limit“



**Abbildung 2.1:** Die historische Entwicklung kurzer Laserimpulse. Deutliche Verkürzungen gingen stets mit neu entwickelten Technologien einher: Den Anfang machte kurz nach der Erfindung des Lasers die Güteschaltung (englisch „Q-switching“), wenig später folgten die Techniken der Modenkopplung („mode-locking“) und der „chirped pulse amplification“ (CPA). Mitte der 1990er Jahre schließlich gelang es mit dem sogenannten „Kerr-Lens-Modelocking“ (KLM), Impulse zu erzeugen, die nur noch wenig länger als eine Oszillation des elektrischen Feldes dauern. Bei einem Titan-Saphir-Lasersystem entspricht dies einer Impulsdauer von rund 3 fs. Diese „2,5 fs-Barriere“ zu durchbrechen wurde erst mit hoher harmonischer Strahlung (HHG) möglich. Nach [Ago04].

ten Spektralbereich Ideen entwickelt, kohärente Strahlung im UV und XUV durch Fourniersynthese zu erzeugen. Die vorgeschlagenen Konzepte zielten von Anfang an darauf ab, die kurzen Wellenlängen auch (wenn auch nicht ausschließlich) im Sinne kürzerer Impulsdauern auszunutzen. Die bislang kürzeste erreichte Pulsdauer liegt bei 80 as [Gou08], neueste Experimente konnten allerdings schon spektrale Breiten von rund 0,7 keV mit harmonischer Strahlung erzeugen, welche prinzipiell Pulsdauern von nur noch 2,5 as unterstützen [Pop12].

Damit schließt die Attosekundenphysik an die jahrzehntelange Entwicklung kurz gepulster Laser an – wenngleich nicht nahtlos, wie man an den vielfältigen technischen Schwierigkeiten bei der experimentellen Umsetzung der Ideen ablesen kann. Auf der Suche nach geeigneten Messmethoden für die Attosekundenphysik wurden zum einen aus anderen Bereichen bekannte Prinzipien auf Laserfelder übertragen (vgl. Abschnitt 2.6.1), zum anderen völlig neue Techniken wie das RABITT-Verfahren (Abschnitt 2.5.2) oder die „Attosekundenuhr“ (vgl. Abschnitt 2.6.1) erprobt. Noch immer beherrschen nur wenige Labore – weltweit nicht mehr als 15 – die experimentellen Techniken, so dass sich das zukünftige Potential der Technik erst noch zeigen muss. Die Frage, ob Attosekunden-Impulse tatsächlich einen Paradigmenwechsel in der Laserphysik herbeiführen werden, ist in diesem Sinne noch offen.

Die Grundlagen der Techniken zur Erzeugung und Charakterisierung von Attosekundenimpulsen sollen im Folgenden beschrieben werden; der Abriss zur Theorie der hohen harmonischen Strahlung folgt dabei im Wesentlichen den Darstellungen in [Cha11, Ago04, Scr06, Var05a].

## 2.1 Laserimpulse – Grundlagen und Definitionen

Der zeitabhängige Teil des elektrischen Feldes eines Laserimpulses wird mathematisch durch

$$(2.1) \quad E(t) = \Re \left[ E_0 \mathcal{E}(t) e^{i(\omega_0 t + \phi(t))} \right],$$

beschrieben.  $\omega_0$  bezeichnet die Mitten- oder Trägerfrequenz,  $\phi(t)$  die Phase,  $E_0$  die maximale Amplitude des elektrischen Feldes und  $\mathcal{E}(t)$  die zeitabhängige Einhüllende [Die06].

Über die Lichtgeschwindigkeit  $c$  sind Wellenlänge  $\lambda$ , die Schwingungsdauer  $T_0$ , die Schwingungsfrequenz des elektromagnetischen Feldes  $\nu$  und die entsprechende Kreisfrequenz  $\omega = 2\pi\nu$  mit der Photonenenergie  $E_\gamma$  verknüpft:

$$(2.2) \quad E_\gamma = \hbar\omega = h\nu = \frac{hc}{\lambda} = \frac{h}{T_0},$$

wobei  $h$  das Planck'sche Wirkungsquantum bezeichnet,  $\hbar = h/2\pi$ . Für Abschätzungen kann man daraus den Zusammenhang  $\hbar\omega[\text{eV}] \approx \frac{1240}{\lambda[\text{nm}]}$  berechnen, mit dem sich aus der Photonenenergie in Elektronenvolt direkt die Wellenlänge in Nanometer ergibt.

Das elektrische Feld geht mit einem magnetischen Feld gleicher Frequenz einher, dessen Amplitude allerdings um 8 Größenordnungen kleiner ist als die des elektrischen Fel-

des. Die magnetischen Feldkomponenten können daher in aller Regel ignoriert werden. Lediglich bei extrem starken Laserfeldern ( $> 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>) treten Magnetfeldeffekte auf, die Gegenstand theoretischer Untersuchungen sind (siehe z.B. [Koh11]).

Neben der zeitabhängigen Darstellung ist oft eine frequenzabhängige, d.h. spektrale Darstellung des Laserpulses hilfreich. Man erhält sie durch Fouriertransformation des zeitabhängigen Ausdrucks:

$$(2.3) \quad \tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t)e^{-i\omega t} dt \equiv E_0 \tilde{\mathcal{E}}(\omega) e^{i\tilde{\phi}(\omega)},$$

wobei  $\tilde{\phi}(\omega)$  und  $\tilde{\mathcal{E}}(\omega)$  die spektrale Phase und Amplitude des elektrischen Feldes sind.

Zur Vereinfachung wird in der Laserphysik oft eine gaußförmige Einhüllende angenommen, die mathematisch gut zu handhaben ist. In diesem Fall gilt

$$(2.4) \quad \mathcal{E}(t) = e^{-2\ln 2 \cdot (\frac{t}{\tau})^2}, \quad \text{bzw.} \quad \tilde{\mathcal{E}}(\omega) = e^{-2\ln 2 \cdot \frac{(\omega - \omega_0)^2}{\Delta\omega^2}},$$

worin  $\Delta\omega$  die spektrale Breite und  $\tau$  die Impulsdauer bezeichnen. Beide Werte werden als „full width half maximum“ (FWHM) angegeben, beziehen sich also auf die gesamte Breite bzw. Dauer des Impulses bei halber Intensität.

Die momentane und die maximale Intensität des elektrischen Feldes,  $I(t)$  und  $I_0$ , lassen sich daraus wie folgt berechnen:

$$(2.5) \quad I(t) = I_0 e^{-4\ln 2 (\frac{t}{\tau})^2} \quad \text{mit} \quad I_0 = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E_0^2.$$

Darin ist  $\epsilon_0$  die Dielektrizitätskonstante des Vakuums.

## Chirp

Der sogenannte Chirp<sup>2</sup> charakterisiert die zeitliche Variation der Trägerwellenlänge eines Laserpulses. Man erhält ihn durch Ableiten der Phase des elektrischen Feldes nach der Zeit:

$$(2.6) \quad \omega(t) = \frac{d}{dt} [\omega_0 t + \phi(t)] = \omega_0 + C t.$$

Je nach Vorzeichen von  $C$  unterscheidet man positiv und negativ gechirpte Impulse, bei denen die Trägerfrequenz unter der Einhüllenden mit der Zeit zunimmt bzw. abnimmt. Darüber hinaus kann  $C$  von höheren Potenzen von  $t$  abhängen; man spricht dann von Chirp höherer Ordnung. Wie man an Gleichung 2.6 sieht, ist dies der Fall sobald die zeitabhängige Phase  $\phi(t)$  in höherer als zweiter Ordnung von der Zeit  $t$  abhängt, wobei dann  $C$  in  $C(t)$  übergeht.

<sup>2</sup>aus dem Englischen „to chirp“ – „zwtischern“. Der Begriff wurde inzwischen so eingedeutscht, dass man von „gechirpten“ Pulsen spricht.

## Modenkopplung

In den ersten Abschnitten dieses Kapitels ist bereits angeklungen, dass kurze Pulse sich mit verschiedenen Methoden erzeugen lassen, unter denen im sichtbaren und infraroten Spektralbereich vor allem die Technik der Modenkopplung<sup>3</sup> für die Erzeugung von Femtosekundenimpulsen von Bedeutung ist. Sie ist außerdem die Grundlage für die Erzeugung von Attosekunden-Impulsen. Die Modenkopplung erzwingt feste Phasenbeziehungen zwischen einer großen Anzahl axialer Moden eines Laserresonators, die aufgrund dieser festen Phasenbeziehung dann als Wellenpaket im Resonator umlaufen. Die Repetitionsrate eines modengekoppelten Lasers ist daher stets  $T_{\text{rep}} = 2L_{\text{R}}/c$ , wobei  $L_{\text{R}}$  die Resonatorlänge bezeichnet.

Da die zeitabhängige und die spektrale Darstellung eines Laserimpulses durch Fouriertransformation ineinander übergehen, ist die Impulsdauer  $\tau$  mit der spektralen Breite  $\Delta\omega$  verknüpft: Je breiter das Spektrum der im Resonator verstärkten Frequenzen, desto kürzer die Impulse, die damit erzeugt werden können. Für einen in Zeit- und Frequenzbereich gaußförmigen Laserimpuls gilt der Zusammenhang  $\tau \cdot \Delta\omega \geq 0,441 \cdot 2\pi$ , wobei man beim Gleichheitszeichen von einem *fourierlimitierten* Laserimpuls spricht. Er entsteht immer dann, wenn die Phasendifferenz zwischen den Frequenzkomponenten verschwindet, bzw. der Chirp  $C = 0$  ist.

Daüber hinaus ist die Modenkopplung die Voraussetzung für das sogenannte „pulse shaping“, also die Pulsformung. Dabei werden – vereinfacht gesprochen – durch kontrollierte Veränderungen der relativen Phasen zwischen den Moden des Laserimpulses Lichtwellen wie in einem Wellenformgenerator kontrolliert und gezielt manipuliert [Sil09]. Mit diesen können bestimmte molekulare Reaktionen gesteuert werden (z.B. [Ass98]).

## Träger-Einhüllenden-Phase

Die Träger-Einhüllenden-Phase<sup>4</sup>  $\phi_{\text{CEP}}$  ist ein Maß für den Abstand zwischen dem höchsten Punkt der Einhüllenden und dem Feldmaximum, das diesem Punkt am nächsten liegt. Mit ihr wird das Laserfeld wie folgt geschrieben:

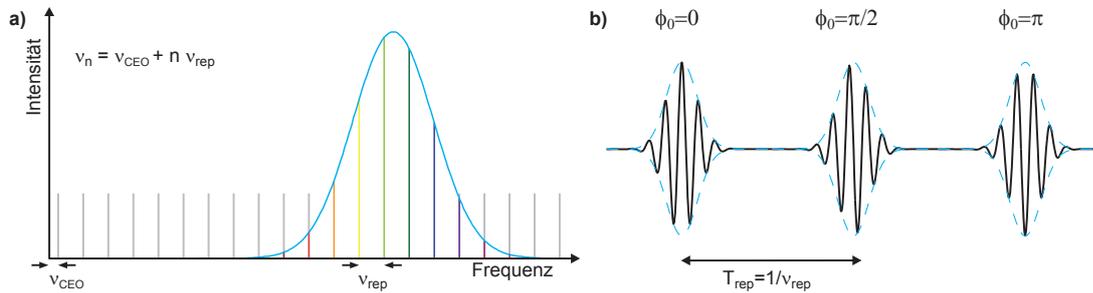
$$(2.7) \quad E(t) = E_0 \mathcal{E}(t) \cos(\omega t + \phi_{\text{CEP}})$$

$\phi_{\text{CEP}}$  ist in der Praxis kein fester Impulsparameter, sondern verändert sich, sobald der Lichtimpuls ein Medium durchläuft. CEP-Effekte kommen in der Regel nur bei sehr kurzen, sogenannten *few-cycle*-Pulsen zum Tragen, bei welchen die Einhüllende nur wenig länger als  $T_0$  ist. Bei diesen Pulsen bestimmt die CE-Phase, wann und wie oft das Feldmaximum erreicht wird (vgl. Abbildung 2.2). Dies kann man unter anderem bei der Harmonischenerzeugung und bei der Impulsformung ausnutzen (vgl. Abschnitt 2.4.2).

Deshalb muss die CE-Phase bei Experimenten mit Pulsen mit wenigen Zyklen Dauer, die diese Phänomene messen oder ausnutzen sollen, stabilisiert, gegebenenfalls auch

<sup>3</sup>englisch „modelocking“

<sup>4</sup>CEP aus dem Englischen „carrier-envelope-phase“



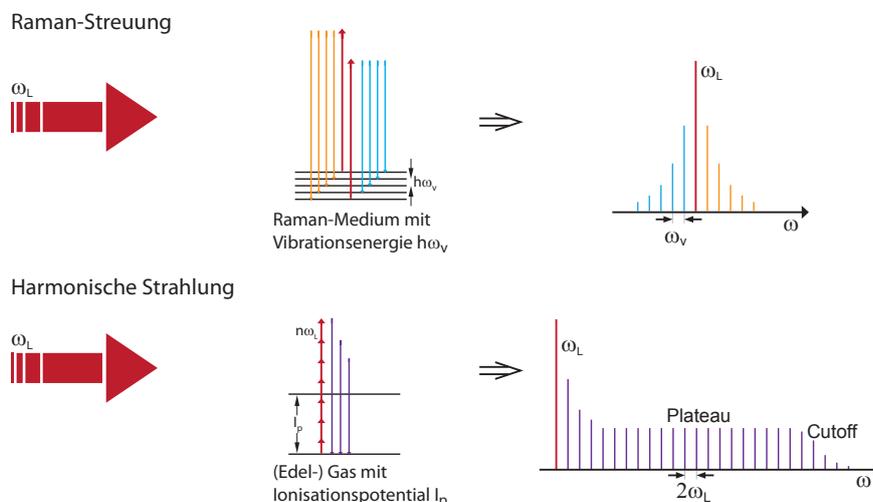
**Abbildung 2.2:** Stabilisierung der Träger-Einhüllenden-Phase für Laserimpulse mit wenigen Schwingungszyklen: die Offset-Frequenz  $\nu_{\text{CEO}}$  bestimmt, mit welcher Wiederholrate Impulse gleicher CEP-Phase den Oszillator verlassen: für  $\nu_{\text{CEO}} = 0$  und  $\nu_{\text{CEO}} = \nu_{\text{rep}}$  sind alle Impulse gleich, im hier gezeigten Fall von  $\nu_{\text{CEO}} = \nu_{\text{rep}}/4$  springt  $\phi_{\text{CEP}}$  zwischen zwei aufeinanderfolgenden Pulsen um  $\pi/2$ . Nach [Cha11].

präzise manipuliert werden. Das geschieht in der Regel entweder mit einem piezoelektrischen Kristall, der über einen der Endspiegel direkt die Oszillatorlänge verändert, oder man greift mit einem akusto-optischen Modulator in die Intensität des Pumplasers ein. Letztere bewirkt über den Kerr-Linsen-Effekt [Sil00] eine geringfügige Änderung der dispersiven Eigenschaften des Resonators, was sich in einer Änderung der Offset-Frequenz  $\nu_{\text{CEO}}$  äußert, die wiederum die Änderung von  $\phi_{\text{CEP}}$  von Puls zu Puls bestimmt (siehe Abbildung 2.2). Üblicherweise wird nach dem Verstärkungsprozess ein weiteres Mal die CEP-Phase gemessen und über den Gitterabstand im Kompressor reguliert.

Die CEP-Stabilisierung wurde zuerst für Laseroszillatoren umgesetzt [Ude99] und stieß unter anderem die Entwicklung des Frequenzkamms an. Wenig später folgten CEP-stabilisierte Verstärker, so dass CEP-Effekte bei den für atomphysikalische Untersuchungen notwendigen hohen Intensitäten untersucht werden konnten [Gim06, Kre09]. Bei der Wechselwirkung der Pulse mit Materie wurden erst in jüngster Zeit für die Einfach- und Doppelionisation von Atomen und Molekülen CEP-Effekte nachgewiesen (z.B. [Lin05, GB11]). Hier bestimmen aufgrund der stark nichtlinearen Mechanismen der Multi-Photon-Ionisation bereits geringfügige Veränderungen von  $\phi_{\text{CEP}}$  und damit der maximal erreichten Feldstärke die Effizienz und die Dynamik der Prozesse. Dies äußert sich dann unter anderem in einer Asymmetrie der räumlichen Verteilung emittierter Photoelektronen. Für in Bezug auf  $\phi_{\text{CEP}}$  stabilisierte Impulse mit wenigen Femtosekunden Dauer gelang es kürzlich, Informationen über den zeitlichen Verlauf der Elektronenemission bei der Doppelionisation zu gewinnen [Cam12, Ber12].

### Fouriersynthese von kürzesten Laserimpulsen

Zu Beginn der neunziger Jahre kam die Idee auf, noch kürzere Laserimpulse als sie mit der Modelocking-Technik und den Trägerwellenlängen der Titan-Saphir-Laser möglich waren, durch Fouriersynthese zu erzeugen. Dazu sollte ein breiter Frequenzkamm äquidistanter Spektrallinien, deren relative Phasen genau kontrolliert werden können, das Verhalten eines modengekoppelten Lasers imitieren und spektral erweitern. Das künstlich verbreiterte Spektrum würde dann entsprechend kürzere Pulse ermöglichen.



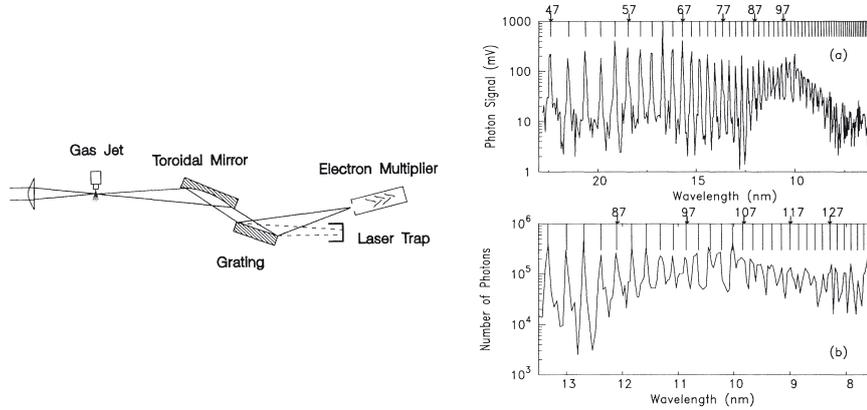
**Abbildung 2.3:** Mögliche Wege zur Erzeugung spektral breiter kohärenter Strahlung, aus der sich durch Fouriersynthese ultrakurze Lichtimpulse herstellen lassen. Aus den im Text beschriebenen Gründen hat sich der Weg über hohe harmonische Strahlung durchgesetzt. Nur bei diesem Schema entstehen die für die Erzeugung sehr kurzer Impulse notwendigen spektrale Eigenschaften. Prinzipiell ist aber annähernd dieselbe Physik auch mit Seitenbändern aus Raman-Streuung denkbar.

Zur experimentellen Umsetzung wurden verschiedene Vorschläge diskutiert: die notwendige Verbreiterung könnte über eine Kaskade von Summen- und Differenzfrequenzen [Hän90], durch stimulierte Ramanstreuung [Kap94], oder mit hoher harmonischer Strahlung geschehen [Far92]. Sowohl das Konzept zur Ramanstreuung als auch das auf Basis der harmonischen Strahlung wurde experimentell umgesetzt (Abbildung 2.3).

Dass sich inzwischen der Ansatz mit hoher harmonischer Strahlung durchgesetzt hat ist dem Umstand geschuldet, dass diese Frequenzen bei ungeraden Vielfachen der Fundamentalwellenlänge erzeugt, das zur Verfügung stehende Spektrum also in den kurzen Wellenlängenbereich bis hin zu tiefer UV- und weicher Röntgenstrahlung erweitert. Dies verschiebt auch die Trägerwellenlänge eines aus dem HHG-Spektrum synthetisierten Impulses zu kürzeren Wellenlängen. Demgegenüber entstehen die Seitenbänder der Ramanstreuung symmetrisch um die Frequenz der erzeugenden Laserstrahlung herum; die Trägerwellenlänge eines aus dem Ramanspektrum zusammengesetzten Impulses bleibt folglich an der gleichen Stelle – und stößt an das bereits diskutierte single-cycle-Limit.

## 2.2 Hohe Harmonische Strahlung

Hohe harmonische Strahlung entsteht, wenn intensive, linear polarisierte Laserstrahlung nichtlinear mit einem geeigneten Medium wechselwirkt. Der Prozess ist, was die Phänomenologie angeht, eng verwandt mit jenen nichtlinearen Effekten, die bei der Frequenzmischung in Kristallen stattfinden [Boy03]; die der HHG zugrunde liegenden



**Abbildung 2.4:** Frühe experimentelle Messung hoher harmonischer Strahlung. Hier wurde ein Nd:YLF-Laser mit einer Wellenlänge von 1035 nm in Neon fokussiert (Targetdichte 53 mbar). Die Pulse der Fundamentalen sind 1 ps lang, die Spitzenintensität beträgt  $1,5 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$ . Aus [L'H93a].

physikalischen Effekte sind jedoch andere, und auch die mathematischen Werkzeuge zur Beschreibung nichtlinearen Effekte niedriger Ordnung greifen hier nicht.

Die ersten Beobachtungen von HHG fallen in die späten 1980er Jahre, als bei der Bestrahlung gasförmiger Targets mit den damals neuen, intensiven Piko- und Femtosekundenlasern unerwartet kurzweilige Strahlung beobachtet wurde, deren Frequenzspektrum ungeraden Vielfachen der Laserfrequenz entsprach [McP87, Fer88]. Abbildung 2.4 zeigt eine solche Messung aus dem Jahr 1993.

Systematische Messungen an verschiedenen Erzeugendengasen und mit unterschiedlichen Lasersystemen erschlossen die Gesetzmäßigkeiten der hochkonvertierten Strahlung: Ein breites *Plateau* mit Linien annähernd gleicher Intensität fällt bei einer bestimmten Frequenz, deren Wert vom Gastarget, der Wellenlänge des treibenden Lasers und der maximalen Feldintensität abhängt, abrupt ab. Diese Grenzfrequenz wird *Cutoff* genannt, die Wellenlänge bzw. Frequenz des treibenden Lasers *Fundamentale*, und die neu entstehenden Frequenzen *Harmonische*, die ihrer Frequenz  $\omega_{\text{HHG}} = q\omega_0$  entsprechend in *harmonischen Ordnungen*  $q$  durchnummeriert werden. Beim HHG-Prozess in isotropen Medien ist  $q$  in der Regel ungerade. Für die Cutoff-Frequenz wurde zunächst experimentell, später im klassischen Bild der HHG der Zusammenhang

$$(2.8) \quad E_{\text{max}} = I_p + 3,17 U_p$$

ermittelt. Darin ist  $I_p$  das Ionisationspotential des als Target verwendeten Atoms und

$$(2.9) \quad U_p = \frac{(eE_0)^2}{4m_e\omega_0^2} = 9,33 \cdot 10^{-14} I[\text{W/cm}^2] \lambda^2[\mu\text{m}] \text{eV}$$

das *ponderomotive Potential*<sup>5</sup> des Elektrons, in dessen Berechnung Ladung  $e$  und Masse  $m_e$  des Elektrons sowie die Frequenz  $\omega_0$  und die maximale Feldamplitude  $E_0$  der

<sup>5</sup>Das ponderomotive Potential ist ein Maß für die mittlere kinetische Energie, das ein zuvor ruhendes, freies Elektron bei der Bewegung in einem oszillierenden elektromagnetischen Feld aufnehmen kann.

fundamentalen Laserstrahlung eingehen. Für Abschätzungen im Labor lässt sich dies wie auf der rechten Seite von Gleichung 2.9 in solcher Weise umschreiben, dass die experimentell schneller zugänglichen Werte Intensität  $I$  im Fokus (angegeben in  $\text{W}/\text{cm}^2$ ) und fundamentale Wellenlänge  $\lambda$  in  $\mu\text{m}$  eingehen.

Harmonische Strahlung erreicht Konversionseffizienzen von  $10^{-6}$  bis  $10^{-5}$  der Fundamentalen und liegt damit weit unter den Photonenzahlen, die beispielsweise mit Laserplasma-Röntgenquellen oder mit Freie-Elektronen-Lasern (FEL) erzielt werden können [Sal01b, Ull12]. Dafür bietet die HHG jedoch eine Reihe anderer Vorteile: harmonische Strahlung wird in einem sehr kleinen Raumwinkel  $< 1$  mrad und innerhalb von Zeitintervallen der Größenordnung weniger Femtosekunden, bei Anwendung geeigneter Techniken sogar bis unter hundert Attosekunden abgegeben. Da als Fundamentale in der Regel ein Titan-Saphir-Laser dient, werden hohe Repetitionsraten im kHz-Bereich erreicht, der Platzbedarf für das gesamte System beträgt wenige Quadratmeter.

### 2.2.1 Semiklassisches Modell

Der HHG-Prozess wird in der Literatur meist mit einem semiklassischen Modell veranschaulicht, das auf Paul Corkum zurückgeht [Cor93]<sup>6</sup> und als *Drei-Schritt-Modell*<sup>7</sup> bezeichnet wird. Die Kernidee des Drei-Schritt-Modells ist die Vorstellung, dass Ion und Elektron nach einem Ionisationsprozess nicht sofort vollständig voneinander getrennt sind, sondern dass das Elektron für eine gewisse Zeit in der Nähe des Ionenrumpfs verbleibt, so dass eine Rekombination mit dem Atomkern möglich ist. Mit den drei Schritten Ionisation, Bewegung im Kontinuum und Rekombination – letzteres gegebenenfalls unter Aussendung hochenergetischer Strahlung – erlaubt dies eine physikalisch einleuchtende, anschauliche Beschreibung der Zweifachionisation, der Ionisation über Schwelle<sup>8</sup> und der Entstehung hoher harmonischer Strahlung. Auch für quantitative Abschätzungen taugt das Drei-Schritt-Modell; genauere und vollständig quantenmechanische Berechnungen bestätigten die auf diesem einfachen Vorstellungen beruhenden Resultate in ihrer prinzipiellen Charakteristik. Insofern liegt die große Stärke von Corkums Theorie darin, dass sie nicht nur die wesentlichen Merkmale harmonischer Spektren zu reproduzieren, sondern auch physikalisch plausible Bilder zum Verständnis der inneratomaren Vorgänge zu vermitteln vermag.

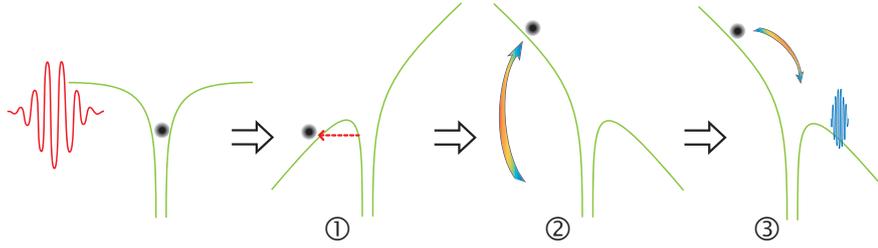
#### Schritt eins: Ionisation

Unter dem Einfluss des Laserfeldes verformt sich das Atompotential und bildet eine Coulombbarriere, die von einem oder mehreren der gebundenen Elektronen durchtun-

<sup>6</sup>Schon fünf Jahre früher hatte Michael Yu. Kuchiev einen sehr ähnlichen Ansatz publiziert [Kuc87], damit aber weniger Aufmerksamkeit in der wissenschaftlichen Gemeinde erzeugt. Er beschreibt denselben Mechanismus, lässt aber die Möglichkeit außen vor, dass das Elektron die gesamte im Laserfeld aufgenommene Energie in einem einzigen Photon abgibt. Das Modell nannte Kuchiev „atomare Antenne“, weil ein Elektron hier genau wie eine klassische Antenne als Absorber von Feldenergie dient.

<sup>7</sup>im Englischen „Three-Step Model“

<sup>8</sup>abgekürzt ATI aus dem Englischen *above threshold ionisation*



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung von Paul Corkums „Drei-Schritt-Modell“: Unter dem Einfluss eines starken externen Feldes wird die Coulombbarriere für gebundene Elektronen so weit abgesenkt, dass diese ins Kontinuum tunneln können. Das nun quasi-freie Elektron gewinnt bei der Beschleunigung im externen oszillierenden Feld Energie, die es bei der Rekombination mit dem Ion in Form eines hochenergetischen Photons abgibt.

nelt werden kann. Die Ionisationswahrscheinlichkeit  $P(t)$  während eines Zeitintervalls  $dt$  ist dabei durch

$$(2.10) \quad P(t) = W_{\text{ADK}}(E(t))dt$$

gegeben. Die Ionisationsrate  $W_{\text{ADK}}$ , die auch das zeitliche Profil des zum Atomrumpf zurückkehrenden Elektronenwellenpaketes bestimmt, wird dafür aus Modellrechnungen zur Tunnelionisation von Ammosov, Delone und Kraĭnov [Amm86] abgeleitet. Sie hängt, neben der Feldstärke, im Wesentlichen von den effektiven Quantenzahlen  $n^*$  und  $l^*$  sowie vom Ionisationspotential  $I_p$  des Atoms ab:

$$(2.11) \quad W_{\text{ADK}} = |C_{n^*l^*}|^2 G_{lm} I_p \left( \frac{2F_0}{E(t)} \right)^{2n^* - |m| - 1} e^{-\left( \frac{2F_0}{3E(t)} \right)}.$$

Darin sind die Koeffizienten  $C_{n^*l^*}$  und  $G_{lm}$  von den Quantenzahlen des Elektrons vor Ionisation abhängig.  $(2F_0/E(t))^{2n^*}$  ist eine Korrektur für das langreichweitige Coulombpotential, worin  $F_0 = (2I_p)^{3/2}$  das Coulomb-Feld beschreibt und  $E(t)$  die Feldstärke des Lasers. Dieses Modell, nach den Initialen der Urheber *ADK-Theorie* genannt, beschreibt die Entstehung einer Serie von Elektronenwellenpaketen, die jeweils in der Nähe des elektrischen Feldmaximums emittiert werden.

### Schritt zwei: Bewegung im elektromagnetischen Feld

Der zweite Schritt von Corkums Theorie behandelt die Bewegung des Elektrons außerhalb des Atompotentials unter dem Einfluss des Laserfeldes, und wird meist in Form eines freien Elektronen-Wellenpakets angenähert. Dann bestimmt die Oszillation des elektromagnetischen Feldes  $E(t) = E_0 \cos(\omega_0 t)$  die Bewegung des nun freien Elektrons vollständig. Der Einfluss des Potentials des Atomrumpfs wird ignoriert (*Strong-Field Approximation*), ebenso die langsame Variation der Feldmaxima mit der Einhüllenden  $\mathcal{E}(t)$ . Auch das magnetische Feld des Lasers bleibt unbeachtet. Man nimmt weiter an, dass das Elektron mit  $v_0 = 0$  ins Kontinuum geboren wird, und dass das ionisierte Atom am Koordinatenursprung liegt, so dass  $x_0 = 0$ . Weiterhin wird die Betrachtung

oft auf eine Dimension reduziert, indem linear polarisiertes Laserlicht vorausgesetzt wird. Dann beschreibt folgende Bewegungsgleichung die Kinematik:

$$(2.12) \quad \frac{d^2x}{dt^2} = -\frac{e}{m_e}E(t) = -\frac{e}{m_e}E_0 \cos(\omega_0 t)$$

Für ein Elektron, das zum Zeitpunkt  $t_0$  „geboren“ wird, ist die Lösung dieser Gleichung

$$(2.13) \quad v(t) = -v_{\max} [\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_0)] \quad \text{und}$$

$$(2.14) \quad x(t) = x_{\max} \{[\cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0)] + \omega_0 \sin(\omega_0 t_0)(t - t_0)\}$$

mit

$$(2.15) \quad x_{\max} = \frac{eE_0}{m_e\omega_0^2} \quad \text{und} \quad v_{\max} = \frac{eE_0}{m_e\omega_0}.$$

$x_{\max}$  ist die maximale Auslenkung, die das Elektron im Laserfeld erfahren kann. Für die in der Attosekundenphysik typischen Feldintensitäten von  $E_0 = 5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  ist  $x_{\max} = 1,95 \text{ nm}$  [Cha11].

### Schritt drei: Rekombination unter Aussendung eines Photons

Im dritten Schritt rekombiniert das Elektron zum Zeitpunkt  $t$  sowie bei  $x = 0$  mit dem Ionenrumpf. Dabei wird ein Photon emittiert, dessen Energie sich aus der im Feld gewonnenen kinetischen Energie und dem Ionisationspotential des Targetatoms zusammensetzt:

$$(2.16) \quad \hbar\omega_{\text{xuv}}(t) = I_p + \frac{1}{2}mv^2(t) = I_p + 2U_p [\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_0)]^2$$

mit  $U_p$  aus Gleichung 2.9.  $t_0$  bezeichnet wie gehabt den Zeitpunkt der Ionisation.

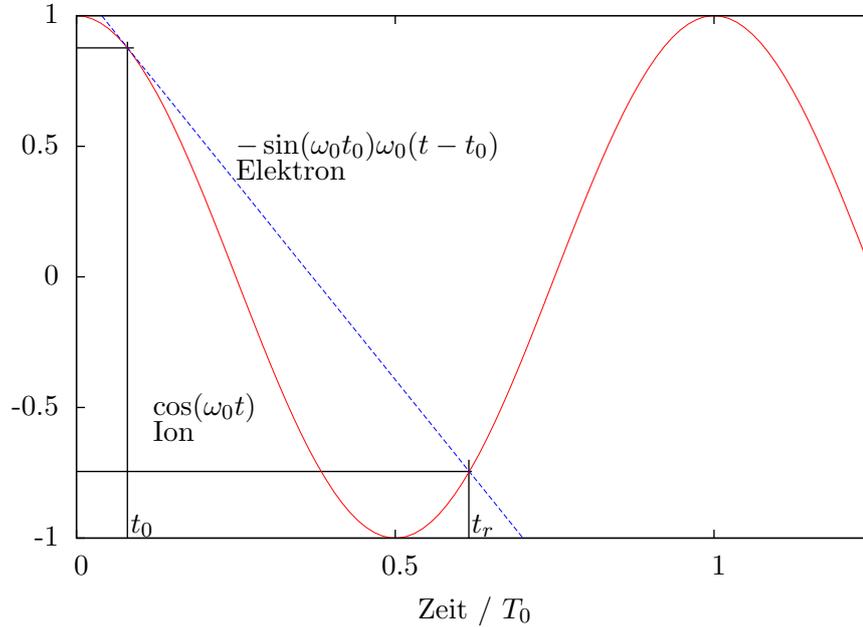
Aus den Bewegungsgleichungen folgt außerdem ein unmittelbarer Zusammenhang zwischen Emissions- und Rekombinationszeit ( $t_0$  und  $t$  in Gleichung 2.17) der Elektronen, da die Rekombination am Ort des Ionenrumpfs,  $x = 0$ , stattfinden muss; aus der Geschwindigkeit des Elektrons bei Rekombination folgt dann wiederum die Energie des emittierten HHG-Photons. Es gilt:

$$(2.17) \quad x(t) \propto \cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0) + \omega_0 \sin(\omega_0 t_0)(t - t_0) = 0.$$

Diese Gleichung ist nicht analytisch lösbar, es gibt allerdings eine instruktive graphische Lösung, wenn man die Gleichung als Differentialgleichung auffasst

$$(2.18) \quad \cos(\omega_0 t) - \cos(\omega_0 t_0) = \frac{d}{d(\omega_0 t)} [\cos(\omega_0 t)]_{\omega_0 t_0} (\omega_0 t - \omega_0 t_0)$$

und wie in Abbildung 2.6 zeichnet. Dann zeigt die oszillierende Kurve eine (fiktive) Ionenbewegung, und die jeweiligen Tangenten an  $\cos(\omega_0 t)$  bei einem Ionisationszeitpunkt



**Abbildung 2.6:** Trajektorien von Ion (rot) und Elektron (blau gestrichelt) in dem von Kramers und Henneberger eingeführten Bezugssystem. Dieses ermöglicht eine graphische Bestimmung der Rekombinationszeit als Funktion der Tunnelphase. Nach [Cha11].

$t_0$  den Verlauf der Elektronentrajektorie relativ zur Position des Ions. Schneidet diese Tangente die zeitabhängige Trajektorie des Ions zu einem späteren Zeitpunkt  $t$ , dann ist dies der Rekombinationszeitpunkt [Scr06].

Aus der graphischen Lösung kann man wichtige Charakteristika der Elektronenbewegung im Feld ableiten. So rekombinieren Elektronen, die bei einer Phase von  $\omega_0 t_0 = 0$  emittiert werden, genau einen Schwingungszyklus später. Sie haben die längste Exkursionszeit, das heißt sie halten sich von allen rekombinierenden Elektronen am längsten im Kontinuum auf (wenn man von solchen Elektronen absieht, die noch einen oder mehrere ganze Zyklen später rekombinieren, d.h. unter Vernachlässigung der sogenannten multiplen Rekombination). Elektronen, die zwischen  $\omega_0 t_0 = 0$  und  $\omega_0 t_0 = \pi/2$  ionisieren, kommen an den Ursprung zurück und rekombinieren, während diejenigen, die im Intervall  $\omega_0 t_0 = \pi/2$  und  $\omega_0 t_0 = \pi$  freigesetzt werden, das nicht tun, weil ihre Trajektorien den Nullpunkt nicht mehr kreuzen. Analog kehren Elektronen aus Ionisationsereignissen zwischen  $\omega_0 t_0 = \pi$  und  $\omega_0 t_0 = 3/2\pi$  zum Ursprung zurück und solche aus  $\omega_0 t_0 = 3/2\pi$  bis  $\omega_0 t_0 = 2\pi$  nicht. Insgesamt kehren die Elektronen also nur auf der Hälfte aller möglichen Trajektorien zum Ion zurück [Cha11].

## HHG-Energien, lange und kurze Trajektorien

Für die erzeugte XUV-Photonenenergie ist die kinetische Energie ausschlaggebend, die das Elektron bei der Bewegung im Feld aufnimmt. Diese beträgt

$$(2.19) \quad E_{\text{kin}}(\omega_0 t_0) = \frac{1}{2} m v^2(t) = 2U_p [\sin(\omega_0 t) - \sin(\omega_0 t_0)]^2.$$

Zur Lösung dieser Gleichung wird der Zusammenhang zwischen Emissions- und Rekombinationszeitpunkt ( $t_0$  und  $t$ ) benötigt, der aber, wie bereits erwähnt, nur numerisch gefunden werden kann. Allerdings gibt es eine analytische Fitfunktion der numerischen Lösung:  $\frac{t}{T_0} = \frac{1}{4} - \frac{3}{2\pi} \sin^{-1} \left( 4 \frac{t_0}{T_0} - 1 \right)$ , wobei  $T_0$  die Zyklusdauer der Fundamentalen bezeichnet. Mit Hilfe dieser Näherungsfunktion lässt sich die kinetische Energie wie in Abbildung 2.7 darstellen.<sup>9</sup>

Daraus ergibt sich die maximale kinetische Energie  $E_{\text{kin}}^{\text{max}} \approx 3,17U_p$ . Sie wird von denjenigen Elektronen erreicht, die zum Zeitpunkt  $\omega_0 t_0 \approx 0,05 \cdot 2\pi$  ionisieren und bei  $\omega_0 t_0 \approx 0,7 \cdot 2\pi$  rekombinieren. Die maximal erreichbare Photonenergie ist folglich  $\hbar\omega_{\text{xuv}}^{\text{max}} = I_p + 3,17U_p$ .

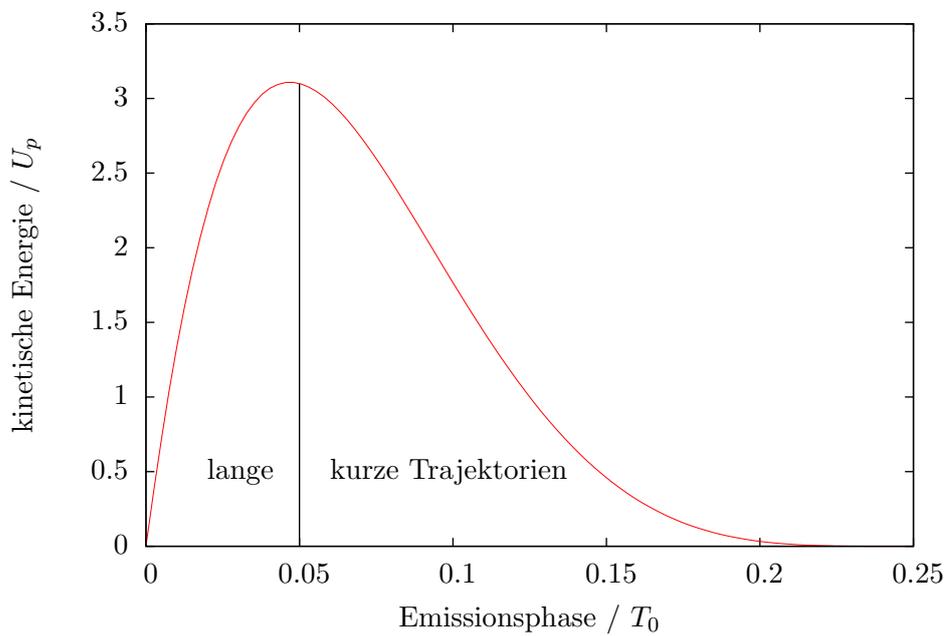
Die Energien der abgestrahlten Photonen können sehr hoch werden: so liegt die ponderomotive Energie bei Laserintensitäten von  $5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ , wie sie mit Titan-Saphir-Systemen leicht erreicht werden, bei knapp 30 eV, was bei HHG in Argon ( $I_p = 15,48 \text{ eV}$ ) zu einer Photonenergie von  $E_{\text{kin}}^{\text{max}} = (15,48 + 3,17 \cdot 30) \text{ eV} \approx 110 \text{ eV}$  führt.

Aus Abbildung 2.7 ist ersichtlich, dass es für die verschiedenen Werte der kinetischen Energie des Elektrons zwei unterschiedliche Emissionszeitpunkte vor und nach  $0,05 T_0$  bzw.  $17^\circ$  gibt. Früher emittierte Elektronen legen dabei einen längeren Weg außerhalb des Atoms zurück als später emittierte. Deshalb unterscheidet man „kurze“ und „lange“ Trajektorien.

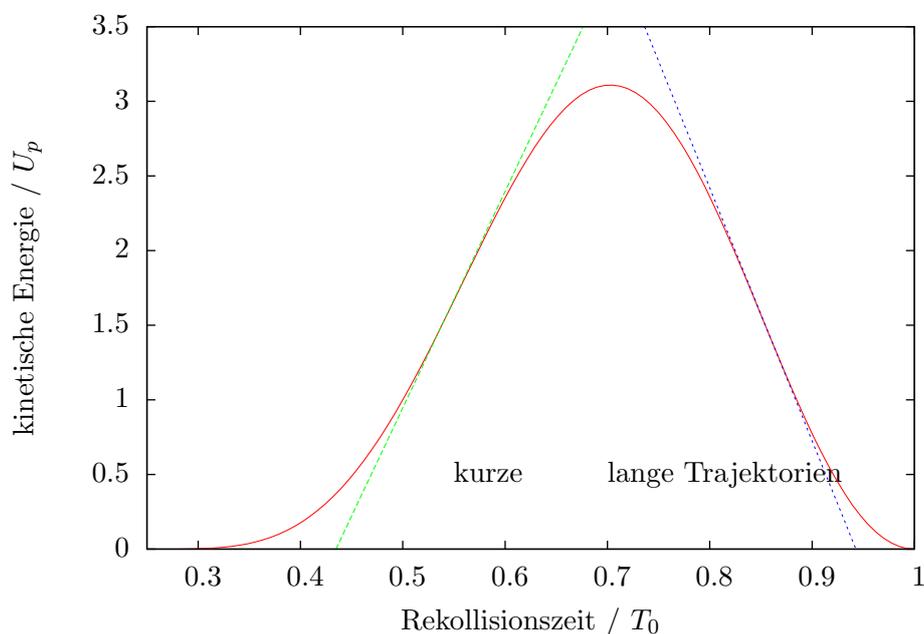
Durch selektive Phasenanpassung (vgl. Abschnitt 2.3) ist es im Experiment möglich, Elektronen auf langen Trajektorien zu unterdrücken, so dass nur Elektronen auf kurzen Trajektorien zum HHG-Strahl beitragen. Die Tatsache, dass deren Rekollisionszeiten nicht über den ganzen Schwingungszyklus der Fundamentalen verteilt sind, sondern nur jeweils zwischen  $0,25 T_0 < t < 0,7 T_0$  vorkommen, ist ein erster, intuitiver Hinweis auf die Zeitstruktur der HHG: harmonische Strahlung wird, wie wir noch sehen werden, in Pulsen von sub-Femtosekunden-Dauer emittiert [Cha11].

Aus der Systematik der entstehenden Frequenzen rührt auch der Name „Hohe Harmonische Strahlung“ – bzw. HHG aus dem Englischen *High Harmonic Generation* – her: die entstehenden Frequenzen entsprechen stets einem Vielfachen der Fundamentalen. Eine intuitive Erklärung des HHG-Prozesses findet sich bei der Betrachtung der Vorgänge in einem klassischen Wellenbild: Jeweils im Maximum des Feldes, also zweimal pro Laserzyklus, werden Elektronen durch Tunnelionisation freigesetzt. Je nach Tunnelphase

<sup>9</sup>Die Abbildungen 2.7 und 2.8, die in diesem Abschnitt die wesentlichen Charakteristika harmonischer Strahlung aus dem semiklassischen Modell ableiten, verwenden der Einfachheit halber diese Fitfunktion anstelle der korrekten numerischen Lösung. Die Abweichungen sind allerdings geringfügig, wie man zum Beispiel in [Cha11] nachlesen kann, wo jeweils die numerische Lösung zusammen mit der Näherungsfunktion gezeigt wird.



**Abbildung 2.7:** Kinetische Energie des zum Ionenrumpf zurückkehrenden Elektrons in Vielfachen von  $U_p$  in Abhängigkeit von der Phase des fundamentalen Laserfelds bei Emission. Für alle Energien außer  $E_{\text{kin}}^{\text{max}}$  gibt es zwei Emissionszeitpunkte, die zur gleichen Energie führen. Hier ist nur das erste Viertel des Schwingungszyklus gezeigt, da die im zweiten und im vierten Viertel emittierten Elektronen nicht zum Ursprung zurückkehren. Zwischen  $t = 1/2T_0$  und  $t = 3/4T_0$  wiederholt sich der hier gezeigte Zusammenhang zwischen Energie und Emissionszeit, bis auf die Tatsache dass die Elektronen aufgrund des umgekehrten Vorzeichens des Laserfelds aus der entgegengesetzten Richtung zum Atomkern zurückkehren.



**Abbildung 2.8:** Der Chirp der harmonischen Strahlung auf langen und kurzen Trajektorien ergibt sich aus der Betrachtung der kinetischen Energie (hier in Vielfachen von  $U_p$ ) in Abhängigkeit vom Rekollisionszeitpunkt  $t$ . Von diesem wird angenommen, dass er auch dem Emissionszeitpunkt des hochenergetischen Photons entspricht. Weil  $t$  mit den verschiedenen möglichen Photonenenergien variiert, wird die harmonische Strahlung gechirpt abgegeben.

nehmen die Elektronen unterschiedlich viel Energie im oszillierenden elektrischen Laserfeld auf, werden auf entsprechend unterschiedlichen Wegen zum Ion zurückgetrieben und rekombinieren dort unter Abgabe eines Photons (siehe Abbildung 2.5). Weil die Repetitionsrate des Prozesses über die Fouriertransformation mit dem Frequenzabstand des entstehenden Spektrums zusammenhängt, müssen die Harmonischen um das Doppelte der fundamentalen Frequenz separiert sein.

### Attochirp

Wie wir gesehen haben, ist bei der rein klassischen Beschreibung der Bewegung der Elektronen im Laserfeld im Drei-Schritt-Modell mit dem Zeitpunkt der Emission des Elektrons in das externe Feld also nicht nur dessen kinetische Energie bei Rekollision, sondern auch der Zeitpunkt der Rekombination festgelegt. Der Zusammenhang zwischen Rekollisionszeitpunkt und -energie ist in Abbildung 2.8 illustriert. Daraus folgt direkt, dass zu jeder Phase des fundamentalen Laserfelds nur eine jeweils festgelegte Photonenenergie erzeugt werden kann, und dass HHG-Strahlung schon aufgrund der physikalischen Grundlagen ihrer Entstehung gechirpt emittiert wird.

Quantitativ entspricht der Chirp  $C_{\text{HHG}}$  der Steigung  $dt/dE_{\text{kin}}(t)$ . Kurze Trajektorien sind positiv gechirpt (grün gestrichelte Linie in Abbildung 2.8), lange weisen einen negativen Chirp auf (blau gestrichelte Linie in Abbildung 2.8). Im Plateau der harmonischen

Strahlung ist der Verlauf der kinetischen Energie in Abhängigkeit von der Rekollisionszeit über einen großen Bereich annähernd linear, der Chirp demzufolge konstant. Für diese Bereiche gilt

$$(2.20) \quad C_{\text{HHG}} = \frac{dt}{d(\hbar\omega_{\text{XUV}})} = 0,069 \frac{T_0}{U_p} \quad \text{für kurze Trajektorien}$$

und

$$(2.21) \quad C_{\text{HHG}} = \frac{dt}{d(\hbar\omega_{\text{XUV}})} = -0,059 \frac{T_0}{U_p} \quad \text{für lange Trajektorien,}$$

das entspricht bei den hier verwendeten Intensitäten und Fundamentalfrequenzen einigen 10 as/eV. Die höchsten erzeugten Harmonischen sind stärker gechirpt als die Strahlung aus dem Plateaubereich (ein flacherer Kurvenverlauf in Abbildung 2.8 bedeutet einen größeren Chirp); dort kann der Chirp nicht mehr linear genähert werden.

$C_{\text{HHG}}$  ist von  $U_p$  und  $T_0$  und damit nur von Parametern des fundamentalen Laserfelds abhängig. Das verwendete Gastarget hat hingegen keinerlei Einfluss auf den Chirp der Attosekundenpulse. Genau wie im sichtbaren und infraroten Spektralbereich kann der Chirp auch für Attosekundenimpulse durch dispersive Materialien ausgeglichen werden. Dafür werden zum Beispiel Filter aus Aluminium verwendet [LM05, Kim04]. Nicht zu verwechseln ist der Attochirp mit dem sogenannten *Harmonischenchirp*, dessen Ursprung im Chirp der Fundamentalen liegt (vgl. Abschnitt 2.5.1).

### Der Einfluss der Ionisationsrate

Die Ionisationsrate  $W$  hängt in einem oszillierenden externen elektrischen Feld von der Feldstärke ab. Deshalb ist  $W$  in einem linear polarisierten Laserimpuls nicht im ganzen Schwingungszyklus identisch, sondern erreicht zusammen mit dem Feld zweimal pro Zyklus ein Maximum. Dementsprechend lässt sich die intensitätsabhängige ADK-Rate der Photoionisation (2.11) für Laserimpulse in eine vom Zeitpunkt der Ionisation abhängige Rate  $W_{\text{ADK}}(t_0)$  umformulieren. Sie weist bei jedem Intensitätsmaximum des Feldes einen engen Peak auf (vgl. z.B. [Cha11]), der bereits bei einer Abweichung um  $0,1 \cdot T_0$  vom Feldmaximum auf beinahe Null abgefallen ist. Zusammen mit den Überlegungen zur klassischen Bewegung des Elektrons im Feld folgt daraus, dass lediglich Trajektorien mit Startpunkten nahe des Feldmaximums überhaupt zur harmonischen Strahlung beitragen. Aus der (zeitlichen) Breite der Ionisationspeaks lässt sich abschätzen, wie lang die erzeugten Pulse hochenergetischer Strahlung sein können: für kurze Trajektorien erhält man als Zeitfenster der Emission  $0,05 T_0 < t_0 < 0,1 T_0$  (und das selbe einen halben Zyklus später); dazu gehörenden Rekollisionszeiten liegen im Intervall  $0,57 T_0 < t < 0,7 T_0$ . Dies entspricht beim Titan-Saphir-Schwingungszyklus ( $T_0 = 2,67$  fs) 350 as, und gibt einen weiteren Hinweis auf die zu erwartende Zeitstruktur der harmonischen Strahlung: zwei Ionisationsmaxima pro Schwingungszyklus lassen intuitiv erwarten, dass die Strahlung in Impulszügen emittiert wird, deren Repetitionsrate gerade der doppelten Frequenz der Fundamentalen entspricht.

Auch die Position des Cutoff wird wesentlich vom Ionisationsvorgang mitbestimmt. Obleich der Zusammenhang aus Gleichung 2.8,  $\hbar\omega_{\text{XUV}}^{\text{max}} = I_p + 3,17 U_p$  suggeriert, dass

die Cutoff-Frequenz mit steigender Laserintensität beliebig erhöht werden kann, gilt das nur mit Einschränkungen: Starke Ionisation des Targetgases verändert dessen dispersive Eigenschaften und führt zu Phasenfehlpassungen (vgl. auch Abschnitt 2.3). Deshalb gibt es je nach verwendetem Targetgas eine für die Harmonischenerzeugung maximale Laserintensität, bei deren Überschreitung die Ausbeute an harmonischer Strahlung wieder sinkt. Man schreibt dann  $\hbar\omega_{\text{xuv}}^{\text{max}} = I_p + 3,17U_p(I_S)$  mit der *Sättigungs-Intensität*<sup>10</sup>  $I_S$ , die wiederum von den Parametern des Lasers und des verwendeten Targetgases bestimmt wird. Ein ungefährender Wert von  $I_S$  kann ebenfalls im Rahmen der ADK-Theorie ermittelt werden (vgl. [Cha11]) und ermöglicht die Berechnung der durch Sättigung modifizierten Cutoff-Frequenz.

### 2.2.2 Quantenmechanische Beschreibung

Corkums Ansatz zur Beschreibung der HHG im Drei-Schritt-Modell beruht auf Annahmen, die die mathematische Beschreibung des Prozesses wesentlich erleichtern. Diese sind: 1.) die Elektronen gelangen bei der Ionisation mit der kinetischen Energie  $E_{\text{kin}} = 0$  in das Kontinuum und 2.) der Einfluss des Atompotentials auf die Bewegung im Laserfeld und auf die Dispersion des Elektronenwellenpaketes bleibt unberücksichtigt. Diese Phaseneffekte, die in der klassischen Beschreibung vernachlässigt werden, haben Einfluss auf die korrekte Beschreibung der Zeitstruktur der Attosekunden-Impulse. Daher wurde Corkums Theorie in den 90er Jahren zu einer vollständig quantenmechanischen Beschreibung ausgebaut [Lew94, Sch97].

Auch die quantenmechanische Version des Three-Step-Models macht ähnliche Annahmen und Näherungen wie die semiklassische Beschreibung Corkums: Abgesehen vom Grundzustand und dem Kontinuum werden (a) alle elektronischen Zustände des Atoms ignoriert, (b) die Entleerung des Grundzustandes vernachlässigt und (c) das Elektron im Kontinuum wie ein freies Teilchen im oszillierenden elektromagnetischen Feld beschrieben, d.h. das Potential des Atomrumpfs wird während der Bewegung im Kontinuum ignoriert. Rechnungen unter diesen Näherungen werden auch unter dem Begriff *Strong Field Approximation* zusammengefasst.

Unter diesen Voraussetzungen wird die Wellenfunktion zu

$$(2.22) \quad |\Psi(t)\rangle = e^{iI_p t} \left( a(t) |0\rangle + \int d^3\mathbf{v} b(\mathbf{v}, t) |\mathbf{v}\rangle \right),$$

wobei  $a(t)$  und  $b(\mathbf{v}, t)$  die Amplituden von Grund- bzw. Kontinuumszustand sind, die ihrerseits mit  $|0\rangle$  und  $|\mathbf{v}\rangle$  bezeichnet werden.  $I_p$  ist das Ionisationspotential des betrachteten Atoms.

Aus der Lösung der Schrödingergleichung lässt sich dann das zeitabhängige Dipolmoment  $x(t)$  ableiten:

$$(2.23) \quad x(t) = \langle \Psi(t) | x | \Psi(t) \rangle = \int d^3\mathbf{v} d_x^*(\mathbf{v}) b(\mathbf{v}, t) + \text{c.c.},$$

<sup>10</sup>englisch „saturation intensity“

wobei  $d_x(\mathbf{v}) = \langle \mathbf{v} | x | 0 \rangle$  das Matrixelement des Übergangs vom gebundenen zum Kontinuumszustand ist. Dann wird ein kanonischer Impuls mit  $m_e = 1$  und  $e = 1$  bzw. in atomaren Einheiten eingeführt ( $\mathbf{A}$  ist das Vektorpotential des elektrischen Feldes),

$$(2.24) \quad \mathbf{p} = \mathbf{v} + \mathbf{A},$$

mit dem das Dipolmoment aus Gleichung 2.23 folgendermaßen geschrieben werden kann [Ago04]:

$$(2.25) \quad x(t) = i \int_0^t dt_0 \int d^3\mathbf{p} \cdot \underbrace{E \cos(t_0) d_x(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t_0))}_A \underbrace{\exp[-i\mathbf{S}(\mathbf{p}, t, t_0)]}_B \times \underbrace{d_x^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t))}_C + \text{c.c.}$$

worin

$$(2.26) \quad \mathbf{S}(\mathbf{p}, t, t_0) = \int_{t_0}^t dt' \left( \frac{[\mathbf{p} - \mathbf{A}(t')]}{2} + I_p \right)$$

eine quasi-klassische Bewegung beschreibt, bei dem das freie Elektron im elektrischen Feld Energie aufnimmt.

Gleichung 2.25 kann man folgendermaßen interpretieren:  $A = E \cos(t_0) d_x(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t_0))$  beschreibt den Übergang vom Grundzustand ins Kontinuum; das geschieht zum Zeitpunkt  $t_0$  und mit dem Impuls  $\mathbf{p}$ . In  $B$  propagiert das Wellenpaket von  $t_0$  nach  $t$ , wobei es einen Phasenfaktor  $\exp[-i\mathbf{S}(\mathbf{p}, t, t_0)]$  aufammelt. Im letzten Teil der Dipolgleichung rekombiniert das Elektron mit dem Ionenrumpf und einer Wahrscheinlichkeitsamplitude von  $C = d_x^*(\mathbf{p} - \mathbf{A}(t))$ . Das heißt, auch im quantenmechanischen Formalismus lassen sich die einzelnen Abschnitte des Drei-Schritt-Modells als Wahrscheinlichkeitsamplituden identifizieren [Ago04].

Die quantenmechanischen Rechnungen bestätigen alle Erkenntnisse des Corkum-Modells, behandeln dabei aber die Diffusion des Elektronen-Wellenpakets und auftretende Interferenzen im Rahmen der auch hier noch gemachten Näherungen korrekt. Es zeigt sich, dass alle Trajektorien außer denen, die der klassischen Beschreibung entsprechen, durch schnelle Oszillationen ausgelöscht werden. Die klassische Beschreibung der freien Elektronen im Laserfeld ist demnach unter den gemachten Einschränkungen gerechtfertigt [Sal01a].

## 2.3 Makroskopische Effekte und Phasenanpassung bei hohen Harmonischen

Sowohl das semiklassische Modell nach Corkum als auch die vollständig quantenmechanische Beschreibung der HHG beschränken sich auf die Betrachtung eines einzelnen Targetatoms im externen Laserfeld. Makroskopische Effekte, die in einem dichten Gastarget eine Rolle spielen, werden dabei außen vor gelassen. Die Erzeugung harmonischer Strahlung ist jedoch – ebenso wie die von Summen- und Differenzfrequenzen in nichtlinearen Kristallen – wesentlich von den physikalischen Vorgängen im makroskopischen Target abhängig: die Phasen harmonischer Wellen, die von benachbarten

Targetatomen emittiert werden, müssen kohärent, also in einer Weise aneinander angepasst sein, dass sich die Wellen nicht gegenseitig auslöschen. Analog zur Physik der nichtlinearen Kristalle spricht man von *Phasenanpassung*<sup>11</sup>, obwohl die Kohärenz über das gesamte Targetvolumen bei der Harmonischenerzeugung auf ganz anderem Wege erzwungen wird.

Bei der theoretischen Untersuchung der der Phasenanpassung zugrunde liegenden physikalischen Zusammenhänge unterscheidet man zwischen dem Dipolmoment, das das elektrische Laserfeld in einem einzelnen Targetatom hervorruft, und der nichtlinearen Polarisation des Targetmediums, die sich aus der Summe der Dipolmomente ergibt. Weil das Dipolmoment stark von der Intensität des Laserfelds abhängt, die wiederum gerade im Laserfokus auf kleinem Raum große Änderungen erfährt, ist die nichtlineare Polarisation, die im Medium hervorgerufen wird, eine komplizierte Funktion von Raum und Zeit [Sal95]. Von Seiten der Laserintensität tragen im Wesentlichen zwei Terme bei: zum einen die Guoy-Phase  $-\arctan(2x/b)$  – wobei  $x$  die Koordinate in Ausbreitungsrichtung des Lichts ist und relativ zum Fokus gemessen wird,  $b = \frac{2\pi\omega_0^2}{\lambda} = 2z_R$  ist der konfokale Parameter – zum anderen die Dipolphase, die mit dem Intensitätsverlauf in der unmittelbaren Umgebung des Fokus variiert. Die Intensität nahe am Fokus hat bei gaußförmigen Strahlen mit  $I(x) = I_0/(1 + 4x^2/b^2)$  die Form einer Glockenkuve, die symmetrisch um  $x = 0$  liegt, wohingegen die Guoy-Phase bei negativen  $x$  positiv und für positive  $x$  negativ ist. Die Summe beider Beiträge ist deshalb asymmetrisch: bei negativen  $x$ -Werten verläuft sie sehr steil, während es für  $x > 0$  einen bestimmten Bereich gibt, in dem sich die Beiträge der beiden Terme beinahe zu einem konstanten Wert ausgleichen. Dort sind die Bedingungen für die Phasenanpassung der Harmonischen am Besten.

Bei dreidimensionaler Betrachtung zeigt sich, dass auch für  $x < 0$  Phasenanpassung erreicht werden kann, allerdings nicht entlang der Ausbreitungsachse der Fundamentalen. Dort werden die Harmonischenwellen bevorzugt in ringförmige Moden emittiert, mit denen sich gute Intensitäten erzielen lassen [Sal95]. Eine weitere Alternative stellt die Harmonischenerzeugung in mikrostrukturierten Hohlfasern dar, die der Quasi-Phasenanpassung in periodisch gepolten nichtlinearen Kristallen ähnelt. Auf diesem Weg gelang insbesondere die Erzeugung extrem hochenergetischer Harmonischer bis hin zu mehreren 100 eV Photonenenergie [Pau03].

Neben dem Ionisationspotential  $I_p$ , dem ponderomotiven Potential  $U_p$  und der in Abschnitt 2.2.1 besprochenen Sättigungsintensität  $I_S$  beeinflusst auch die Phasenanpassung die beobachtete Cutoff-Frequenz. Insbesondere in dichten Gastargets sind Phasenfehlanpassungen fast unvermeidlich, so dass der beobachtete Cutoff weitaus niedriger liegt als der theoretisch erwartete. Hinzu kommt, dass die bei der Harmonischenerzeugung üblicherweise als Target verwendeten Edelgase die erzeugten Wellenlängen absorbieren. Bei dichten Targets bestimmt diese Reabsorption das Konversionslimit [Con99]. Messungen, bei denen das gesamte Spektrum bis zur Cutoff-Energie beobachtet werden soll, werden deshalb stets bei sehr niedrigen Targetdrücken durchgeführt, um makroskopische Effekte so weit wie möglich zu reduzieren. Für den Aufbau einer Attosekundenbeamline steht hingegen die Produktion hoher Photonenzahlen im

---

<sup>11</sup>engl. „phase-matching“

Vordergrund, so dass hier das Hauptaugenmerk auf der Optimierung der niedrigeren Harmonischen lag.

Für die experimentelle Optimierung der Erzeugung von hohen Harmonischen im Labor lassen sich aus den oben erläuterten Zusammenhängen einfache Faustregeln ableiten: Im Sinne einer möglichst guten Phasenanpassung sollte der Fokus der Fundamentalen einige Millimeter vor dem Target liegen. Eine weiche Fokussierung mit langbrennweitigen Spiegeln oder Linsen führt zu einem flacheren Verlauf der intensitätsabhängigen Phasenterme und trägt so zur Phasenanpassung bei. Ebenso sollten steile Druckgradienten im HHG-Target vermieden werden. Eine Abschätzung der Kohärenzlänge  $L_{\text{koh}}$  einer Harmonischen der Ordnung  $q$  ist mit

$$(2.27) \quad L_{\text{koh}} = \frac{\pi b}{2(q-1)}$$

möglich, wobei  $b$  wieder der konfokale Parameter ist [L'H93b].  $L_{\text{koh}}$  darf offensichtlich nicht kleiner als die Targetlänge werden, sonst führt die Fokalgeometrie zu schlechter Phasenanpassung.

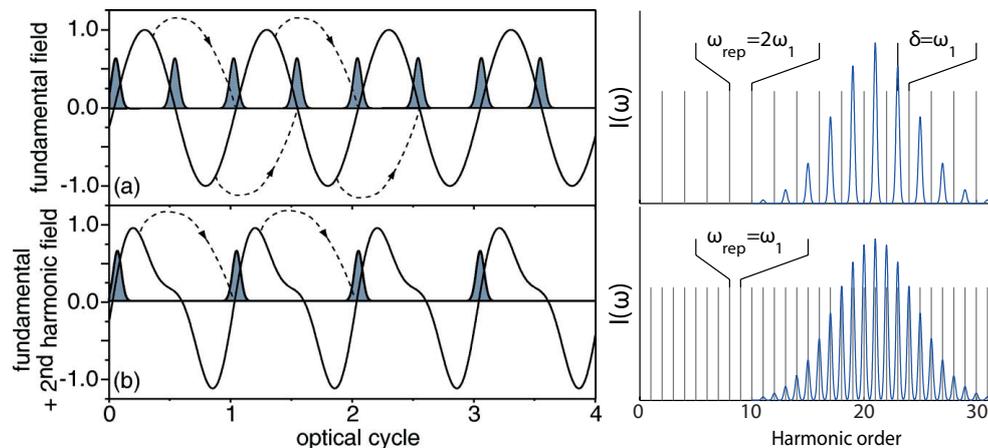
## 2.4 Zeitstruktur harmonischer Strahlung

Bereits die theoretische Betrachtung des HHG-Prozesses liefert mit der Vorstellung, dass sich die an der Erzeugung harmonischer Strahlung beteiligten Elektronen entlang klassischer Trajektorien bewegen, starke Argumente dafür, dass die Emission der XUV-Photonen innerhalb kurzer Zeitspannen  $< \frac{T_0}{2}$  geschieht [Cor94], sofern das feste Phasenverhältnis, das die Harmonischen dem Drei-Schritt-Modell zufolge unmittelbar nach der Emission haben, nicht durch Dispersion oder makroskopische Effekte im Target verloren geht. Der Nachweis dieser Zeitstruktur gelang mit der ersten RABITT-Messung [Pau01], auf die in Abschnitt 2.5.2 noch genauer eingegangen wird.

Nur wenig jünger als die ersten Überlegungen zur Zeitstruktur der Harmonischen ist die Idee, isolierte Attosekundenimpulse mit single-cycle Femtosekundenimpulsen zu erzeugen [Chr97], deren experimentelle Umsetzung 2004 am Max-Planck-Institut für Quantenoptik in Garching gelang [Bal03, Kie04].

### 2.4.1 Attosekundenimpulszüge

Dem Drei-Schritt-Modell zufolge wiederholt sich die Emission harmonischer Strahlung periodisch zweimal pro Laserzyklus der Fundamentale, wobei die Dauer der einzelnen Emissionspulse auf Bruchteile der Zyklusdauer  $T_0$  der Fundamentalen beschränkt ist. Diese Hinweise aus der semiklassischen Theorie wurden von vollständig quantenmechanischen Berechnungen bestätigt [Mac93, Lew94] und belegten, dass diese Zeitstruktur auch bei der Propagation im Medium der HHG unter entsprechenden Bedingungen weitgehend erhalten bleibt [Jin11]. Bei der Harmonischenerzeugung entsteht demnach ein Impulszug, dessen zeitliches Profil – stark vereinfacht – mathematisch als Summe über



**Abbildung 2.9:** Attosekundenimpulszüge mit symmetrischem (oben) und asymmetrischem (unten) treibendem Laserfeld im Zeit- und im Frequenzbild. Die Deformation der Fundamentalen durch Beimischung der doppelten Frequenz modifiziert den Attosekundenimpulszug, so dass auch gerade harmonische Ordnungen entstehen. Aus [Pfe06] (links) und [Mau06] (rechts).

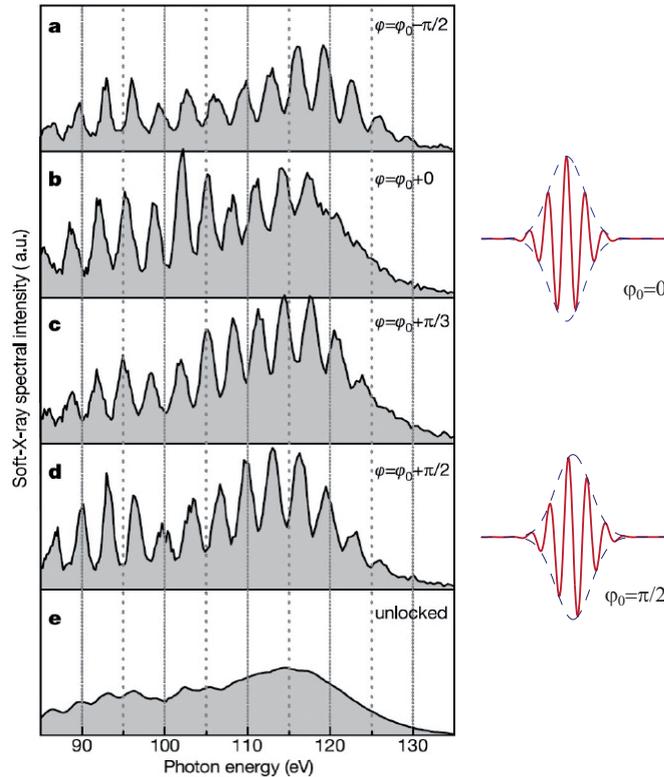
die Frequenzkomponenten beschrieben werden kann:

$$(2.28) \quad I_{\text{XUV}} = \left| \sum_{q\text{ odd}} A_q e^{-i\omega_q t + i\phi(\omega_q)} \right|^2,$$

wobei  $A_q$  und  $\phi(\omega_q)$  Amplitude und Phase der harmonischen Ordnung  $q$  sind. Die Phase hängt davon ab, inwiefern die Emission der Strahlung verschiedener harmonischer Ordnungen synchronisiert ist. Bei (hypothetischer) perfekter Synchronisation würden alle harmonischen Ordnungen zeitgleich emittiert und die Impulsdauer der harmonischen Strahlung wäre  $T_0/2N$  [Nis09], wobei  $N$  die Anzahl beteiligter Frequenzkomponenten ist. Der experimentelle Nachweis und die vollständige Charakterisierung der Zeitstruktur von Attosekundenimpulszügen wird in Abschnitt 2.5.2 diskutiert.

Die Emission zweimal pro Zyklus der Fundamentalen ist dabei der Symmetrie des Prozesses geschuldet. Dies kann man sich anhand des semiklassischen Bildes vergegenwärtigen: für die zweimalige Wiederholung des HHG-Prozesses pro Zyklus muss sowohl das atomare Target isotrop als auch die linear polarisierte Fundamentale in der Schwingungsebene symmetrisch sein. Daraus erwächst andererseits die Möglichkeit, mit einer erzwungenen Symmetriebrechung die Charakteristik der Strahlung zu verändern, etwa indem dem elektrischen Feld der Fundamentalen eine zweite Frequenzkomponente beigemischt wird. Dann findet der HHG-Prozess nur einmal pro Zyklus statt, die Wiederholrate der Einzelimpulse im Pulszug halbiert sich. Im Frequenzbild liegen die Harmonischen dementsprechend nur noch um  $\omega_0$  separiert, so dass Harmonische sowohl gerader als auch ungerader Ordnung erzeugt werden. Zur experimentellen Umsetzung des Konzepts wird üblicherweise mit einem BBO<sup>12</sup> ein Teil der Fundamentalen frequenzverdoppelt (Abbildung 2.9). Impulszüge mit diesen Eigenschaften werden in Abschnitt 3.3.4 charakterisiert und in Abschnitt 5.7 für Streakingexperimente verwendet.

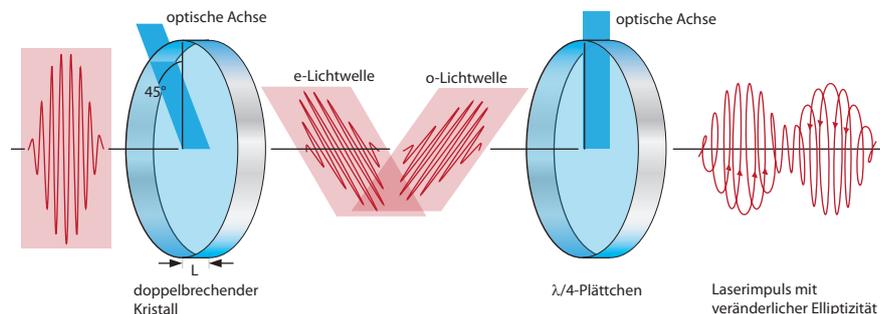
<sup>12</sup> $\beta$ -Bariumoxid. Kristall zur Verdoppelung der fundamentalen Frequenz



**Abbildung 2.10:** Spektren hoher harmonischer Strahlung und die jeweils dazugehörigen fundamentalen Laserpulse. Diese können zur Erzeugung einzelner Attosekunden-Impulse verwendet werden. Aus [Bal03].

### 2.4.2 Einzelne Attosekundenimpulse

Solange die Erzeugung hoher Harmonischer mit langen Laserimpulsen geschieht – wobei „lang“ hier in dem Sinne zu lesen ist, dass innerhalb der Einhüllenden für viele (mindestens 10) Schwingungen des elektromagnetischen Feldes der Trägerwelle Zeit ist – bildet der HHG-Prozess in jedem Halbzyklus der Fundamentalen einen XUV-Impuls. Dies ändert sich, wenn statt dessen kurze oder gar sogenannte single-cycle-Pulse als Fundamentalstrahlung verwendet werden. Die Amplitudenänderung von Zyklus zu Zyklus ist dann so groß, dass in jedem Halbzyklus ein der momentanen Intensität entsprechendes HHG-Spektrum erzeugt wird. Im Extremfall konzentriert sich die Produktion der höchsten HHG-Energien auf einen einzigen Halbzyklus in unmittelbarer Nähe des Maximums der Einhüllenden. Dies zeigt sich auch im Spektralbereich (vgl. Abbildung 2.10): je kürzer die erzeugenden Impulse, desto breiter werden die harmonischen Frequenzkomponenten im Spektralbereich. Besteht die Fundamentale aus Impulsen im single-cycle-Limit, dann sind im Cutoff-Bereich je nach CEP-Phase gar keine separaten Harmonischen mehr zu sehen, sondern ein kontinuierliches UV-Spektrum. Abhängig von der Phase  $\phi_{\text{CEP}}$  enthält ein single-cycle-Impuls ein oder zwei Halbzyklen, in denen die maximale Feldstärke erreicht wird, und erzeugt demzufolge einen einzelnen Attosekunden-Impuls oder einen Doppelpuls.

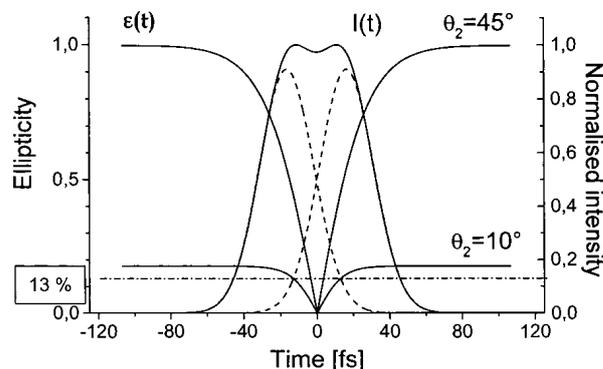


**Abbildung 2.11:** Schematischer Aufbau eines Polarisationsgatings. In einem doppelbrechenden Kristall wird der ursprünglich linear polarisierte Laserimpuls in zwei Pulse zerlegt, deren Polarisationsvektoren senkrecht zueinander stehen. Aufgrund der unterschiedlichen Lichtgeschwindigkeiten entlang der ordentlichen und der außerordentlichen Achse verlassen diese beiden Impulse den Kristall mit einem Zeitversatz  $\Delta\tau = L(1/v_a - 1/v_o)$ . Darin ist  $L$  die Länge des Kristalls,  $v_{o,a}$  die Lichtgeschwindigkeit auf der ordentlichen bzw. außerordentlichen Achse. Im  $\lambda/4$ -Plättchen werden die linearen Polarisationen der beiden Teilimpulse in zirkuläre umgewandelt; dabei entsteht dort wo die Pulse überlappen ein kurzer Bereich linearer Polarisation. Nur in diesem ist die Erzeugung harmonischer Strahlung möglich. Nach [Sha05].

In dieser Situation ist eine spektrale Selektion derjenigen Harmonischen möglich, die nur in einem Halbzyklus erzeugt werden – zum Beispiel mit dünnen Metallfiltern, die als Fenster für den passenden Wellenlängenbereich fungieren (vgl. Abbildung 3.11). Im Zeitbild erhält man auf diesem Weg isolierte Attosekundenimpulse mit der Repetitionsrate der Fundamentalen. Mit dieser Methode wurden die ersten [Bal03] und darüber hinaus auch die – mit einer Impulsdauer von nur 80 as – bis heute kürzesten je gemessenen Laserimpulse hergestellt [Gou08].

Viele der in der Attosekundenphysik vorgeschlagenen Anwendungen gehen von der Verfügbarkeit isolierter Attosekundenimpulse aus (vgl. Abschnitt 2.6). Die oben beschriebene Vorgehensweise zu deren Erzeugung stellt jedoch höchste Anforderungen an die Stabilität der Fundamentalen – inklusive deren CEP. Deshalb suchte man gezielt nach alternativen Möglichkeiten, einzelne Attosekundenimpulse zu erzeugen. Sogenannte „gating“-Techniken wurden entwickelt, von denen einige inzwischen gut etabliert sind [Kli08b]. Ihnen allen liegt die Idee zugrunde, die Harmonischenproduktion innerhalb des fundamentalen Impulses so einzugrenzen, dass nur ein XUV-Puls pro Puls der Fundamentalen entsteht.

Das sogenannte Polarisationsgating verwendet dazu ein Laserfeld mit zeitlich variierender Elliptizität. Die Rekollision, die bei der HHG zu der entscheidenden Aussendung eines XUV-Photons führt, ist nur in linear polarisierten Laserfeldern möglich (bzw. solchen mit geringer Elliptizität unterhalb von ca. 13%). Andernfalls überquert die Trajektorie der Elektronen im externen Feld den Ionenrumpf nicht mehr, und die Rekombination ist ausgeschlossen [Cor94]. Die experimentelle Realisation eines solchen Laserfeldes geschieht, indem der fundamentale Impuls in zwei Komponenten zirkular polarisierten Lichtes mit entgegengesetzter Chiralität geteilt und diese Teilstrahlen zeitlich versetzt wieder überlagert werden [LM04a, Sol06]. In einem engen Zeitintervall  $\delta t_G$



**Abbildung 2.12:** Verlauf der Elliptizität beim Polarisationsgating. Gezeigt sind die zeitabhängigen Intensitätsprofile  $I(t)$  des Gesamtpulses (durchgezogene Linie) und der überlagerten Einzelimpulse (gestrichelt, Skala rechts) sowie die Elliptizität  $\varepsilon(t)$  (Skala links) für zwei verschiedene Einstellungen  $\theta_2$  des  $\lambda/4$ -Plättchens, das die Elliptizität in den Flanken des Gesamtpulses reguliert. Unterhalb von 13% Elliptizität gilt das Laserfeld als linear polarisiert bzw. das „gate“ als „geöffnet“; d.h. durch Veränderung von  $\theta_2$  kann  $\delta t_G$  variiert werden. Aus [Tch03].

kombinieren die beiden Teilstrahlen dann zu einem Laserfeld linearer Polarisation, und nur in diesem Zeitraum können Harmonischenwellen entstehen. Der prinzipielle Aufbau ist in Abbildung 2.11 skizziert, Abbildung 2.12 zeigt einen typischen Verlauf von Elliptizität und Intensität in einem durch Polarisationsgating modulierten Impuls. Mit dieser Technik sind bis zu 130 as kurze XUV-Pulse erzeugt worden [San06].

Bei der Technik des „double optical gating“ wird dem fundamentalen Laserfeld zusätzlich noch dessen zweite Harmonische beigemischt, so dass nicht mehr in jedem Halbzyklus, sondern nur noch einmal pro Zyklus ein XUV-Impuls emittiert wird (vgl. Abschnitt 2.4.1). Der vergrößerte zeitliche Abstand zwischen den Einzelimpulsen des Pulszugs erlaubt, die Gating-Zeit  $\delta t_G$  zu verlängern. Diese Technik ermöglichte unlängst die Erzeugung von isolierten Attosekunden-Impulsen mit Fundamentalimpulsen von 20 bis 28 fs Dauer [Fen09].

Ein weiterer Ansatz nutzt den Umstand, dass in einem vollständig ionisierten Medium keine Harmonischenerzeugung mehr möglich ist. Bei dieser „ionization gating“ genannten Methode werden daher hochintensive Fundamentalimpulse verwendet, die das HHG-Target noch auf der ansteigenden Flanke ionisieren, so dass im restlichen Verlauf des Pulses keine HHG mehr möglich ist [Abe09, Fer10]. Auf diesem Weg gelang auch die Erzeugung von XUV-Impulsen mit einer Pulsenergie von 2,1 nJ, dem höchsten bisher erreichten Wert für Attosekundenimpulse aus harmonischer Strahlung.

Neue Entwicklungen zielen darauf ab, Attosekunden-Impulse mit Methoden der optischen Pulsformung „nach Maß“ zu schneiden. Dabei kann die Pulsformung sowohl auf die fundamentale als auch auf die harmonische Strahlung angewendet werden. Dies erlaubt die gezielte Herstellung von Doppel- und Tripelpulsen sowie das Arbeiten mit ungeradzahligem Harmonischen [Rai11, Rai12].

## 2.5 Attosekundenmetrologie

Diejenigen Techniken, die für die vollständige Charakterisierung von Laserpulsen im sichtbaren und im ultravioletten Spektralbereich entwickelt wurden, können nicht ohne weiteres auf die Attosekundenimpulszüge und einzelne Laserpulse im XUV übertragen werden, denn Autokorrelation [Die85], FROG<sup>13</sup> [Tre97] und SPIDER<sup>14</sup> [Iac98] basieren auf optischen Elementen, die für den Spektralbereich der hohen harmonischen Strahlung nicht ausgelegt sind. Außerdem stellt bei allen drei Verfahren die Frequenzverdopplung in einem nichtlinearen Kristall einen wesentlichen Schritt der Charakterisierung dar; Materialien mit den entsprechenden Eigenschaften stehen im XUV-Bereich jedoch nicht zur Verfügung. Darüber hinaus wird die experimentelle Analyse der Zeitstruktur von Attosekundenimpulsen dadurch erschwert, dass die Arbeit mit hohen Harmonischen stets im Vakuum geschehen muss, weil praktisch alle bei Atmosphärenbedingungen gasförmigen Stoffe Wellenlängen unterhalb von rund 200 nm stark absorbieren.

Für die Charakterisierung von Attosekundenimpulsen wurden deshalb Methoden entwickelt, die dieselben physikalischen Phänomene ausnutzen, die auch die Erzeugung der Attosekundenimpulse ermöglichen, nämlich die präzise Steuerung von Elektronen im Laserfeld unmittelbar nach deren Ionisation. Hier sind Forschungswerkzeug und Charakterisierungseinheit komplementär im gleichen Prozess verzahnt: bekannte atomphysikalische Prozesse erlauben die Vermessung der Pulsparameter, bekannte Impulse dienen zur Untersuchung noch unbekannter Prozesse.

Alle derzeit gängigen Techniken nutzen den Umstand aus, dass die XUV-Pulse perfekt synchron mit dem fundamentalen Laserfeld erzeugt werden. Als Nachweismedium werden in der Regel Edelgase verwendet. Deren Ionisationsschwelle ist hoch genug, so dass die Einphoton-Ionisation durch die IR-Strahlung vernachlässigt werden kann. Aufgrund der üblicherweise niedrigen XUV-Photonenzahlen ist außerdem ein großer Wirkungsquerschnitt für die Photoionisation im fraglichen Wellenlängenbereich wünschenswert [Cha11].

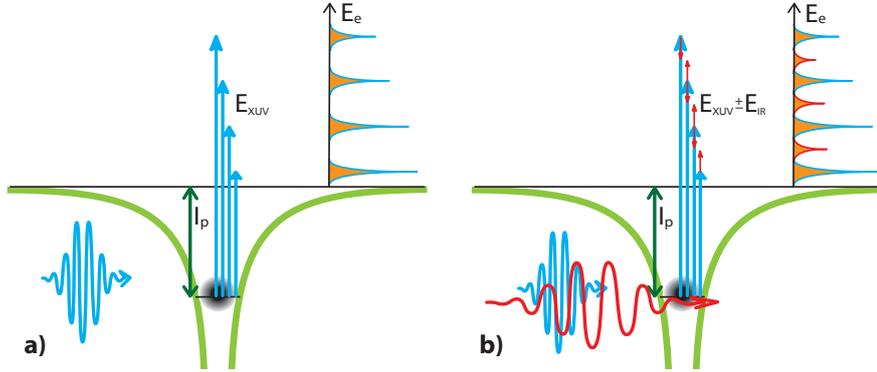
### 2.5.1 Entstehung von Seitenbändern

Bei der Einfachionisation von Atomen mit hoher harmonischer Strahlung genügt ein einzelnes XUV-Photon, sofern dessen Energie das Ionisationspotential  $I_p$  übersteigt. Dies spiegelt sich im Impuls- bzw. Energiespektrum der Photoelektronen wider:  $E_e = E_{\text{XUV}} - I_p$ , das heißt das Energiespektrum der Elektronen besteht wie das Harmonischespektrum aus äquidistanten Linien, die um jeweils  $2\hbar\omega_0 = 3,2$  eV separiert. Auch die Intensitäten der Photoionisationslinien im Elektronenspektrum entsprechen denen der harmonischen Strahlung modifiziert mit dem energieabhängigen Wirkungsquerschnitt für die Photoionisation. Abbildung 2.13a) illustriert diesen Zusammenhang.

Wenn zusätzlich zur harmonischen Strahlung ein schwaches ( $I_{\text{IR}} \approx 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>) Infrarotfeld mit den Atomen im Erzeugendengas wechselwirkt, entstehen sogenannte Seitenbänder (Abbildung 2.13b), wobei die Elektronen im Kontinuum zusätzliche

<sup>13</sup>„Frequency Resolved Optical Gating“

<sup>14</sup>„Spectral Phase Interferometry For Direct Electric Field Reconstruction“



**Abbildung 2.13:** Entstehung von Seitenbändern: Photoionisation nur mit harmonischer Strahlung (a) bzw. mit einem zusätzlichen, schwachen IR-Feld (b). Elektronen im Kontinuum können in b) zusätzliche Photonen aus dem IR-Feld absorbieren oder emittieren, dabei entstehen Seitenbänder.

Photonen aus dem IR-Feld absorbieren oder emittieren. Dieser Prozess wird in der Literatur manchmal als LAPE für „laser assisted photoelectric effect“ bezeichnet. Da der Energieabstand der Harmonischen gerade der doppelten Energie eines Photons aus der Fundamentalstrahlung entspricht, bilden sich die Seitenbänder genau zwischen den Harmonischenlinien, an den Positionen gerader harmonischer Ordnungen.

Da zur Entstehung eines Seitenbandes beide Pulse – IR und XUV – im Nachweismedium überlappen müssen, kann das Seitenbandsignal für eine Impulscharakterisierung mittels Kreuzkorrelation herangezogen werden. Unter der Voraussetzung, dass die Intensität der Seitenbänder  $S(\tau)$  proportional zur IR-Intensität ist (was im Rahmen der Keldysh-Faisal-Reiss (KFR)-Theorie [Rei80] gezeigt werden kann), ist das zeitliche Profil der Seitenbänder  $\tau_{\text{TPI}}$  die Faltung der Intensitäts-Einhüllenden des Impulszugs  $\tau_{\text{XUV}}$  mit dem (bekannten) IR-Impuls  $\tau_{\text{IR}}$  [Glo96]:

$$(2.29) \quad S(\tau) \propto \int_{-\infty}^{+\infty} I_{\text{XUV}}(t - \tau) I_{\text{IR}}(t) dt.$$

Für gaußsche Pulsformen ergibt Gleichung 2.29 folgende Beziehung zwischen den Impulsdauern:

$$(2.30) \quad \tau_{\text{XUV}} = \sqrt{\tau_{\text{TPI}}^2 - \tau_{\text{IR}}^2 - \tau_{\text{geo}}^2},$$

wobei mit  $\tau_{\text{geo}}$  ein geometrischer Korrekturfaktor in die Berechnung eingehen kann. Dieser tritt immer dann auf, wenn XUV- und IR-Strahl nicht kollinear verlaufen [Mau04]. Die Methode ist sowohl für Impulszüge als auch für einzelne Attosekundenimpulse geeignet, und wurde in Abschnitt 5.2 auf die Impulszüge der Heidelberger Attosekunden-Beamline angewendet.

Die Analyse des Zweifarben-Photoionisationssignals kann außerdem auf kleine ( $< 0,2$  eV) Veränderungen der Energie der Seitenbänder mit dem Delay ausgeweitet werden. Diese sind eine Folge des Chirps der Fundamentalstrahlung [Mau04, LM04b] und ermöglichen es, den Chirp der Harmonischen – das heißt deren Frequenzänderung mit dem Chirp der Trägerwellenlänge der Fundamentalen – zu bestimmen.

## 2.5.2 RABITT-Messungen

Ebenfalls auf der Analyse der Seitenbänder beruht die RABITT-Technologie [Mai03]. Sie erlaubt die Rekonstruktion der Zeitstruktur einzelner Attosekunden-Impulse innerhalb eines Impulszugs, macht dabei aber eine Reihe zum Teil starke Vereinfachungen: Die Harmonischenwellen werden als monochromatisch und dementsprechend unendlich lang angesehen. Variationen der Intensität und der spektralen Phase der Harmonischen von Puls zu Puls werden ebenfalls vernachlässigt, auch wenn sie sich aufgrund des zeitlichen Verlaufs der Einhüllenden der Fundamentalen in der Realität offensichtlich nicht vermeiden lassen.

Mit diesen Vereinfachungen kann der Feldverlauf  $E_{\text{XUV}}$  des Impulszugs bzw. dessen Intensität  $I_{\text{XUV}}$  wie in Gleichung 2.28 als Summe über die Harmonischenwellen geschrieben werden:

$$(2.31) \quad E_{\text{XUV}} = \sum_{q_{\text{odd}}} A_q \exp(i(q\omega_0 + \phi_q)).$$

Darin bezeichnet  $A_q$  die spektrale Amplitude der Harmonischen der Ordnung  $q$  und  $\phi_q$  deren spektrale Phase<sup>15</sup>.

Experimentell können die Werte von  $A_q$  mit einem geeigneten optischen Spektrometer oder nach einem Ionisationsprozess mit einem Elektronenspektrometer ermittelt werden; die Phasen  $\phi_q$  der harmonischen Frequenzkomponenten erhält man aus einer Pump-Probe-Messung der sogenannten Seitenbandoszillationen. Diese kommen folgendermaßen zustande: Photoelektronen können ein Seitenband der harmonischen Ordnung  $q$  auf zwei nicht unterscheidbaren Quantenpfaden erreichen, je nachdem ob auf die Absorption eines XUV-Photons der Ordnung  $q \pm 1$  die Emission oder Absorption eines weiteren IR-Photons folgt<sup>16</sup>. Dies führt zu Interferenzen, so dass die Intensität der Seitenbänder nicht konstant, sondern von den relativen Phasen der Harmonischenwellen und des Infrarotfeldes abhängig ist. Bei zeitlicher Verschiebung des IR-Feldes gegenüber dem Attosekunden-Impulszug beobachtet man deshalb Oszillationen der Seitenbandintensität.

Dass die delayabhängigen Oszillationen der Seitenbänder Informationen über die relativen Phasen der Harmonischenwellen enthalten, folgt direkt aus der störungstheoretischen Analyse (hier zitiert nach [Var05a]). Der Einfachheit halber werden zur Herleitung monochromatische Harmonischenwellen und ein ebenfalls monochromatisches IR-Feld angenommen, die Intensitäten der harmonischen Frequenzkomponen-

<sup>15</sup>Mit dem Index  $q$  werden sowohl bei der nun folgenden Beschreibung als auch bei der Auswertung und Diskussion der Messergebnisse die Photonenenergien  $q \cdot \omega_0$  bzw. die entsprechenden Energien der Photoelektronen  $E = q\omega_0 - I_p$  bezeichnet.  $q$  ist demzufolge ungerade für Harmonische bzw. die ATI-Linien im Elektronenspektrum, gerade für die im Elektronenspektrum auftretenden Seitenbänder.

<sup>16</sup>Grundsätzlich ist auch die umgekehrte Reihenfolge im Zweiphotonenprozess möglich, das heißt auf die Absorption oder Emission eines IR-Photons würde die Absorption des XUV-Photons folgen. Dies wird in den allermeisten Betrachtungen jedoch vernachlässigt (vgl. [Var05a]).

ten sind für alle Ordnungen gleich. Dann kann man die beteiligten Felder schreiben als

$$\begin{aligned}\epsilon_{q-1}(t) &= E_{q-1}e^{i(\omega_{q-1}t+\phi_{q-1})} \text{ für die Harmonische der Ordnung } q-1, \\ \epsilon_{q+1}(t) &= E_{q+1}e^{i(\omega_{q+1}t+\phi_{q+1})} \text{ für die Harmonische der Ordnung } q+1, \\ \epsilon_0^+(t) &= E_0e^{i(\omega_0t)} \text{ für die Absorption eines IR-Photons,} \\ \epsilon_0^-(t) &= E_0e^{-i(\omega_0t)} \text{ für die Emission eines IR-Photons.}\end{aligned}$$

Nach Fermis goldener Regel ist die Intensität des Seitenbands bei der Harmonischen Ordnung  $q$  dann

$$(2.32) \quad I_q(\tau) \propto \left| \int_{-\infty}^{+\infty} [A_+ + A_-] dt \right|^2$$

mit

$$(2.33) \quad A_{\pm} = \underbrace{\sum_i \frac{\langle f|\mathbf{r}|i\rangle \langle i|\mathbf{r}|g\rangle}{\varepsilon_i - \varepsilon_g - (q \pm 1)\omega_0}}_{M_{\pm}} \epsilon_0^{\pm}(t - \tau) \epsilon_{q\pm 1}(t) e^{iI_p t}.$$

Darin bezeichnen  $g$ ,  $i$ , und  $f$  den Grundzustand, den intermediären und den Endzustand des Zweiphotonenübergangs,  $\varepsilon_g$ ,  $\varepsilon_i$  und  $\varepsilon_f$  die dazugehörigen Energien,  $\epsilon_0^{\pm}$  und  $\epsilon_{q\pm 1}$  beschreiben das harmonische bzw. infrarote Laserfeld.  $I_p$  ist das Ionisationspotential,  $\tau$  die Zeitverzögerung zwischen den Feldern, und  $M_{\pm}$  die Summe der Übergangswahrscheinlichkeiten für alle möglichen Quantenpfade.

Beim Quadrieren von Gleichung 2.32 ergibt sich ein Mischungsterm, der die Differenz der Phasen der Harmonischen  $\Delta\phi_q$  enthält:

$$(2.34) \quad I_q \propto 1 + \cos(2\omega_0\tau + \phi_{q+1} - \phi_{q-1} + \Delta\phi_{\text{at}}) = 1 + \cos(2\omega_0\tau + \Delta\phi_q + \Delta\phi_{\text{at}}).$$

Im Experiment nimmt man die Intensität der Seitenbänder  $I_q$  als Funktion der Verzögerung  $\tau$  auf und passt die Messdaten mit einer Sinusfunktion an. Daraus erhält man die Phasen der Seitenbänder  $\Delta\phi_{q\pm 1}$ , die den Phasendifferenzen der Harmonischen  $q\pm 1$  entsprechen. Die Phasen der einzelnen harmonischen Frequenzkomponenten erhält man daraus durch Integration (vgl. Abschnitt 5.3).

In Gleichung 2.34 taucht ein zusätzlicher Phasenterm  $\Delta\phi_{\text{at}}$  auf, die sogenannte „atomare Phase“, die ein Photoelektron infolge des Ionisationsvorgangs erhält [Vén96, Tom02]. In RABITT-Experimenten ist sie von der Phasendifferenz der Harmonischen  $\Delta\phi_q$  nicht ohne weiteres trennbar [Pau01], weil experimentell nur das Elektronenwellenpaket zugänglich ist, nicht der XUV-Puls selbst. Soll  $\Delta\phi_{\text{at}}$  berücksichtigt werden, müssen die entsprechenden Werte aus theoretischen Berechnungen herangezogen werden (z.B. [Mau05a]). Diese zeigen, dass  $\Delta\phi_{\text{at}}$  nah an der Ionisationsschwelle am größten ist und mit zunehmender Elektronenenergie asymptotisch gegen Null geht; der Verlauf ist für alle Edelgase ähnlich.

In den ersten Jahren nach dem ersten experimentellen Nachweis der Attosekunden-Impulszüge [Pau01] wurde der Einfluss der atomaren Phase intensiv diskutiert, geriet je-

doch seither ein wenig in Vergessenheit, auch weil der Fokus der beteiligten Forschungsgruppen sich hin zu isolierten Attosekunden-Impulsen und Streaking-Experimenten verschob. In jüngster Zeit ist  $\Delta\phi_{\text{at}}$  im Zusammenhang mit der Diskussion um die Extraktion von Zeitinformationen aus RABITT-Interferogrammen wieder in den Mittelpunkt des Interesses gerückt (vgl. [Dah12]).

Der Beitrag der atomaren Phase ist allerdings klein gegenüber den Einflüssen der spektralen Phase des Attosekunden-Impulses (die absoluten Werte von  $\Delta\phi_{\text{at}}/2\omega_0$  bei niedrigen Elektronenenergien entsprechen einer zeitlichen Verzögerung von  $< 100$  as), und wird bei der Impuls-Rekonstruktion deswegen häufig vernachlässigt. Dort bewirkt  $\Delta\phi_{\text{at}}$  einen Fehler in der berechneten Impulsdauer  $\tau_{\text{as}}$  von rund 10 as [Var05a], was die Genauigkeit der Rekonstruktion ohnehin häufig übersteigt.

Für die Rekonstruktion der Attosekundenimpulse muss die Intensität des Infrarotfeldes hinreichend schwach sein, so dass keine Mehrphotonenprozesse auftreten. Diese führen zu zusätzlichen Oszillationstermen mit  $2n\omega_0$ , wobei  $n$  die Anzahl beteiligter IR-Photonen ist. Das verfälscht die Phasenextraktion in einer Weise, welche die tatsächliche Impulsdauer unterschätzt [Swo09]. Bei zu geringer IR-Intensität wiederum verschlechtert sich der Kontrast der Seitenbandoszillationen. Als optimal haben sich Intensitäten im Bereich  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup> erwiesen [Var05a].

Die RABITT-Technologie ist inzwischen gut etabliert: Schon wenige Jahre nach der ersten Beobachtung der Seitenbänder bei der Photoionisation mit harmonischer Strahlung [Sch94] gelang der experimentelle Nachweis der festen Phasenbeziehung zwischen benachbarten Harmonischen [Pau01] und damit auch die erste RABITT-Rekonstruktion eines Attosekunden-Impulszugs. Die Einflüsse kurzer und langer Trajektorien wurden sowohl theoretisch als auch experimentell untersucht [Mai03] und mit der Synchronisation der Attosekundenstrahlung auf Subzyklen der Fundamentalen erklärt [Din03]. Auch der experimentelle Nachweis, dass sich dünne Metallfilter zur Manipulation der Zeitstruktur von Attosekundenimpulsen eignen, wurde mittels RABITT-Messungen erbracht [LM05, Kim04]. Außerdem wurde unlängst gezeigt, dass über eine Analyse der gesamten Ionenausbeute bei der Photoionisation mit XUV- und überlagertem IR-Probe-Feld die absolute Zeitverschiebung zwischen dem Attosekunden-Impulszug und dem infrarot-Feld gemessen werden kann [Shi12].

Inzwischen werden die Charakteristika der Seitenbandoszillationen verstärkt für atomphysikalische Experimente ausgenutzt, bei welchen der Fokus nicht mehr auf der Charakterisierung der Impulse liegt. So diente ein Vergleich der RABITT-Interferogramme bei Photoemission aus verschiedenen Elektronenschalen ( $3s^2$  bzw.  $3p^6$  in Argon) dazu, die Wigner-Zeit zu bestimmen [Klü11]. Diese ist ein Maß für die Phase, welche die Wellenfunktion des Photoelektrons beim Verlassen des gebundenen Zustands akkumuliert. Die Kombination eines XUV-Impulszugs mit einem durchstimmbaren IR-Feld zeigte, dass hohe Rydbergzustände die Phase der Seitenbänder unmittelbar oberhalb der Ionisationsschwelle bestimmen [Swo10]. Der Detailreichtum der RABITT-Interferogramme und insbesondere deren vergleichsweise einfachere Interpretation im Rahmen der störungstheoretischen Ansätze eröffnen so viele Möglichkeiten zur Untersuchung verschiedenster Phänomene, dass diese Technologie den Methoden mit einzelnen

Attosekunden-Impulsen je nach Fragestellung seit neuestem ebenbürtig erscheint. Wohin sich das Forschungsfeld entwickelt, kann indes nur die Zukunft zeigen.

### 2.5.3 Weiterentwicklungen

Die Erzeugung hoher Harmonischer geschieht mit gepulsten Femtosekundenlasern, deren Einhüllende im Idealfall einer Gaußkurve folgt. Dies hat Auswirkungen auf die harmonische Strahlung: die veränderliche Intensität  $I(t)$  des IR-Feldes führt dazu, dass sich die spektralen Eigenschaften der erzeugten Harmonischen von Halbzyklus zu Halbzyklus leicht verändern. Lediglich in der Mitte des Pulses, wo sich die IR-Intensität kaum oder nur sehr langsam ändert, können aufeinanderfolgende Halbzyklen als identisch angesehen werden. Ebenso beeinflusst der Chirp der Fundamentalen das HHG-Spektrum: die im Verlauf des Infrarot-Impulses veränderliche Trägerfrequenz  $\omega_0(t)$  wird dabei direkt auf den sogenannten Harmonischenchirp<sup>17</sup>  $q \cdot \omega_0(t)$  abgebildet. All diese Einflüsse vernachlässigt die Impulsrekonstruktion mittels RABITT. Darüber hinaus ist die Anzahl der Einzelimpulse innerhalb eines Impulszugs bei Fundamentalpulsen von wenigen IR-Zyklen ein überaus interessanter Parameter, der mit dem RABITT-Verfahren jedoch nicht unmittelbar zugänglich ist.

Diese Einflüsse berücksichtigt die RABITT-Rekonstruktion mit adiabatischer Phasenexpansion [Var05b]. Sie ergänzt in der Gleichung  $E_{\text{xuv}} = \sum_{q \text{ odd}} A_q \exp(i(q\omega_0 + \Psi_q(t)))$  die Phase der Harmonischenwelle mit drei Phasentermen, in denen die verschiedenen Effekte berücksichtigt werden:

$$(2.35) \quad \Psi_q(t) = q\Phi_0(t) - \Phi_q(t) - \Phi_q^{\text{prop}}.$$

In  $\Phi_0(t) = \omega_0 t + \phi_0 + \Gamma t^2$  gehen mit  $\Gamma$  und  $\phi_0$  Chirp und Phase der Fundamentalen ein;  $\Phi_q(t)$  enthält Phasenterme, deren Ursprung im HHG-Mechanismus selbst liegt,  $\Phi_q^{\text{prop}}$  schließlich bezieht sich auf Phasenverschiebungen aufgrund von Dispersion. Mit diesen Mitteln können aus einem RABITT-Interferogramm, das sich im Hinblick auf die Zeitverzögerung über den gesamten Attosekunden-Impulszug erstreckt, die Einzelimpulse für sich rekonstruiert werden [Mau05b].

Ein alternativer Ansatz wurde mit der CRAB-Methode<sup>18</sup> entwickelt [Mai05]. Bei dieser wird die Quantenphase

$$(2.36) \quad \Phi_G(t) = - \int_t^\infty [\mathbf{v} \mathbf{A}_L(t') + 1/2 \mathbf{A}_L^2(t')] dt'$$

eines Elektronenwellenpakets gemessen, die dieses nach der Ionisation durch einen Attosekunden-Impuls in einem infraroten Laserfeld akkumuliert.  $\mathbf{A}_L$  ist darin das Vektorpotential des IR-Feldes,  $\mathbf{v}$  der Impuls des Elektronenwellenpakets. Unter der Annahme, dass das Elektronenwellenpaket eine exakte Replik des Photonenimpulses ist, der zur Ionisation geführt hat, kann aus der Quantenphase die zeitliche Struktur der XUV-Strahlung rekonstruiert werden. Wegen des Skalarproduktes  $\mathbf{v} \mathbf{A}_L(t')$  ist  $\Phi_G(t)$

<sup>17</sup> „harmonic chirp“

<sup>18</sup> „Complete Reconstruction of Attosecond Bursts“

abhängig von der Beobachtungsrichtung; das heißt, die Messung muss unter einem bestimmten Winkel durchgeführt werden. Für die Modulation von  $\Phi_G(t)$  sind deutlich höhere IR-Felder notwendig als bei RABITT; üblich sind  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> [Cha11]. CRAB eignet sich für die vollständige Charakterisierung von Impulszügen [Kim10] ebenso wie für Einzelimpulse [Qué05].

## 2.6 Anwendungen der Attosekundenphysik

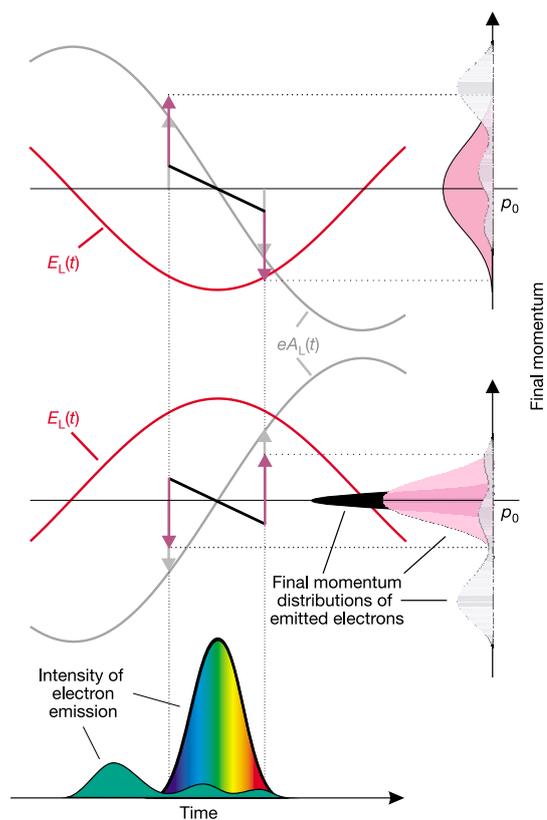
Die naheliegendste, direkteste Anwendung von Attosekunden-Impulsen, die deren überlegene Zeitauflösung ausnutzt, wäre in Analogie zu den in der Femtochemie etablierten Technologien ein Pump-Probe-Experiment, bei dem sowohl der Trigger- als auch der Abfragstrahl aus einzelnen Attosekunden-Impulsen bestehen. Dies ist beim gegenwärtigen Stand der Entwicklungen jedoch nur in einzelnen Laboren möglich, da die aus hohen Harmonischen erzeugten Impulse in der Regel nicht intensiv genug und die Übergangswahrscheinlichkeiten für Zweiphotonenprozesse im XUV zu klein sind [Nis09]. Dennoch sind Zeitauflösungen unterhalb einer Femtosekunde mit den zur Verfügung stehenden Quellen erreichbar, indem einer der beteiligten Impulse durch einen infraroten Femtosekundenpuls ersetzt wird. Dies kann wie bei RABITT-Messungen über Quanteninterferenzen, oder durch Ausnutzen der schnellen Intensitätsänderung in einem linear polarisierten Laserfeld geschehen. Letzteres ist mit dem Begriff *Streaking* bzw. *attosecond streak camera* gemeint. Dabei dient das oszillierende IR-Laserfeld selbst als Messsonde für Prozesse, die zuvor von einem Attosekundenimpuls initiiert wurden.

### 2.6.1 Streaking

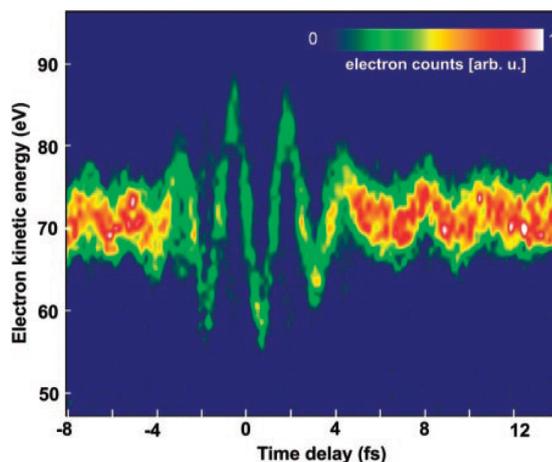
Das Prinzip der Streak-Kamera beruht darauf, zeitabhängige Informationen *ortsabhängig* darzustellen, etwa indem ein veränderliches Lichtsignal mit einem rotierenden Spiegel so auf einen Filmstreifen projiziert wird, dass aufeinanderfolgende Zeitschritte auf dem Film bzw. Detektor nebeneinander zu liegen kommen. Die erreichte Zeitauflösung  $\Delta t$  hängt dann unmittelbar mit der Ortsauflösung  $\Delta x$  und der Geschwindigkeit des Spiegels  $v_S$  zusammen:  $\Delta t = \Delta x/v_S$ . In einem elektronischen Analogon wird die in geladenen Teilchen enthaltene Information mit einem elektrischen Feld abgelenkt, so dass die Zeitabhängigkeit des Signals in eine ortsabhängige Messung übersetzt wird. Bei der Attosekunden-Streak-Kamera ist das elektrische Feld des infraroten Probe-Strahls selbst der Ablenkmechanismus.

Das Prinzip ist in Abbildung 2.14 skizziert: Photoelektronen, die zu verschiedenen Zeiten in das externe Probe-Feld emittiert werden, erhalten je nach Phase und momentaner Feldstärke des IR-Pulses einen zusätzlichen Impuls. Eine Analyse der Impulsverteilung nach dem Streaking im Infrarot-Feld erlaubt daher die Rekonstruktion der Zeitabhängigkeit der Emission [Kie04].

Mit der Streaking-Methode wurden in den letzten Jahren die wohl aufsehenerregendsten Ergebnisse der Attosekundenphysik erzielt, darunter die zeitaufgelöste Messung des Auger-Zerfalls in Krypton [Dre02], die direkte Rekonstruktion des elektrischen Fel-



**Abbildung 2.14:** Schematischer Aufbau der Attosekunden Streak-Kamera: Verschiedene Emissionszeiten für Photoelektronen (unten) nehmen im Infrarot-Feld zusätzliche Impuls-komponenten auf, deren Stärke von der Phase und Feldstärke des IR-Probe-Pulses abhängt (rechts). Aus [Kie04].



**Abbildung 2.15:** Rekonstruktion des elektrischen Feldes eines infraroten Laserpulses. Die Dauer des Pulses entspricht, wie man direkt ablesen kann, etwa 3,5 optischen Zyklen. Aus [Gou04].

des eines wenige optische Zyklen umfassenden Infrarot-Impulses [Gou04], die auch in Abbildung 2.15 zu sehen ist. Wenig später folgte ein erstes Streaking-Experiment an einem Festkörper-Target [Cav07]; im gleichen Jahr wurde die Dynamik der Tunnelionisation mit einzelnen Attosekundenimpulsen vermessen [Uib07]. Auch die Verwendung zirkular statt linear polarisierter Streaking-Felder ist möglich und wurde zu Messungen der Zeitverzögerung bei der Tunnelionisation benutzt [Eck08]. Das Verfahren wird dann „Attoclock“ genannt, weil man den um die Propagationsachse rotierenden elektrischen Feldvektor in einem simplifizierten Bild als „Uhrzeiger“ auffassen kann, bei dem die Winkelunterschiede zwischen zwei „Zeigerstellungen“ die Messwerte sind.

## 2.6.2 Neue Anwendungen für Attosekundenimpulse

Eine Fülle von Anwendungen werden derzeit für Attosekunden-Impulse diskutiert. Das Spektrum reicht dabei von sehr fundamentalen Fragestellungen der Atom- und Molekülphysik bis hin zu ingenieurwissenschaftlich geprägten Ansätzen in der Nanotechnologie [Lev06, Nis09, Gal12].

### Dynamik molekularer Wellenpakete

Anknüpfend an die vollständige Rekonstruktion der Vibration von  $D_2^+$ -Molekülonen [Erg06b], die mit Femtosekundenimpulsen in einem Reaktionsmikroskop durchgeführt wurde, eröffnet die um ein bis zwei Größenordnung verbesserte Zeitauflösung, die mit einzelnen Attosekundenimpulsen unlängst in Reichweite gerückt ist, die Möglichkeit zu noch weitaus detaillierteren Untersuchungen der Dynamik von molekularen Wellenpaketen. Simulationsrechnungen [Lin06] lieferten bereits Hinweise auf äußerst detailreiche Strukturen, die mit Impulsen von 300 as Dauer gut aufgelöst werden könnten.

Bislang reicht allerdings die Brillanz<sup>19</sup> der allermeisten Attosekundenquellen nicht aus, um Experimente durchzuführen, bei denen Attosekundenimpulse sowohl als Pump- als auch als Probe-Strahlung benötigt werden. Erst kürzlich gelang dies zum ersten Mal [Tza11]. Durch die Kombination eines Attosekundenimpulses mit einem Infrarotfeld wurden hier jedoch schon Fortschritte erzielt [San10, Kli08a].

### **Korrelierte Elektronenbewegung**

Auch für die Untersuchung von korrelierten Bewegungen in Systemen aus mehreren Elektronen, zum Beispiel bei der Doppelionisation von Helium [Hu06], werden Pump-Probe-Experimente mit Attosekundenstrahlung diskutiert. Korrelierte Mehrteilchen-Dynamiken wie diese sind sowohl in der theoretischen als auch in der Experimentalphysik derzeit von großem Interesse, da viele fundamentale Fragen auf diesem Gebiet ungeklärt und zum Teil auch noch nicht untersucht sind. Hier bieten Attosekundenimpulse vor allem aufgrund ihrer exzellenten Zeitauflösung und den hohen Photonenenergien (die etwa für Mehrfachionisationen in Edelgasen benötigt werden) ein neues Analysewerkzeug für Theorie und Experiment.

### **Ladungstransfer in großen Molekülen**

Elektronenbewegungen in großen Molekülen spielen bei vielen biologischen und chemischen Prozessen eine Rolle, etwa bei der Photosynthese. Die Elektronenbewegungen und die der Kerne beeinflussen sich dabei gegenseitig, so dass strukturelle Veränderungen der Elektronenhülle das darunter liegende „Gerüst“ aus Atomkernen beeinflusst [Rem06, Bre05]. Hier ergeben sich also vielfältige Möglichkeiten zur Analyse, Manipulation und Steuerung. Die fraglichen Dynamiken spielen sich auf Zeitskalen von einigen Femtosekunden bis zur Größenordnung von 10 Attosekunden ab, und stellen deshalb eine interessante Forschungsmöglichkeit für die Attosekundenphysik dar.

In ähnlicher Weise bestimmen Elektronenbewegungen in wesentlich kleineren Molekülen Isomerisierungsreaktionen, die sich ebenfalls für die Erforschung mit Attosekundenimpulsen anbieten. Sie sind experimentell außerdem wesentlich leichter zu handhaben als große Biomoleküle. Erste Messungen dieser Art wurden mit Freie-Elektronen-Lasern durchgeführt [Jia10].

### **Transiente Spektroskopie**

Bislang ist das Streaking die erfolgreichste Methode zur zeitaufgelösten Spektroskopie im Attosekundenbereich. Dennoch ist sie begrenzt, was die Bandbreite möglicher physikalischer Systeme angeht, die damit untersucht werden können. Dies liegt vor allem

---

<sup>19</sup>Die Brillanz einer Lichtquelle bezieht die Anzahl Photonen eines schmalen Wellenlängenbereichs, die pro Fläche, Raumwinkel und Zeit am Ort des Experiments eintreffen. Sie ist damit ein Maß dafür, wie stark gebündelt und wie frequenzrein eine Lichtquelle ist. Der Satz von Liouville (auch „Phasenraumsatz“) besagt, dass die Brillanz einer Lichtquelle nicht durch nachgeschaltete optische Elemente erhöht werden kann. Damit ist die Brillanz auch ein Gütekriterium oder Charakteristikum der Lichtquelle.

daran, dass die Streaking-Methode ausschließlich auf geladene Teilchen angewendet werden kann, zum anderen stört das starke Streaking-Feld das zu untersuchende System. Deshalb ist es noch immer unklar, inwieweit die Streaking-Technologie auf weitaus komplexere Systeme übertragen werden kann [Gal12].

Einen Ausweg aus dem Dilemma zeigte in jüngster Zeit die transiente Absorption mit Attosekundenimpulsen<sup>20</sup> auf: dabei handelt es sich um eine rein optische Methode, die dementsprechend mit vergleichsweise schwachen XUV-Feldstärken auskommt. Im Bereich der Femtochemie ist sie bereits gut etabliert [Loh08], außerdem lässt sie sich sowohl auf gasförmige wie auch flüssige und feste Systeme anwenden. Das macht diese Technik für die Erforschung chemischer Reaktionen besonders interessant [Pfe08]. Das Prinzip beruht darauf, die Änderung der XUV-Transmission durch das Target hindurch zu messen. Diese Änderung wird mit einem Infrarotpuls bestimmt und kann in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung zwischen XUV- und IR-Puls sowie der IR-Intensität gemessen werden. Dafür ist kein Ionisationsschritt notwendig; der Nachweis der XUV-Photonen genügt. Dies bringt erhebliche Vereinfachungen der experimentellen Abläufe mit sich. Für die transiente Spektroskopie eignen sich sowohl isolierte Attosekunden-Impulse als auch Attosekunden-Impulszüge. Messungen der Autoionisation von Argonatomen [Gou10] und der korrelierten Elektronendynamik in Helium [Ott12] dokumentieren das Potential der Methode.

### Attosekundentechnologie

Ausgesprochen technologieorientierte Anwendungen für Attosekunden-Impulse findet man im Bereich der Oberflächenphysik. Meist stehen dabei sogenannten Oberflächenplasmonen im Vordergrund, das heißt die kollektive, von einem externen Feld getriebene Oszillation freier Elektronen an der Festkörperoberfläche oder in Nanostrukturen [Bar03]. Untersuchungen mit Attosekundenimpulsen könnten dabei helfen, diejenigen physikalischen Zusammenhänge zu verstehen, die das Verhalten der Oberflächenplasmonen bestimmen – und damit die Grundlagen für neue, auf den Plasmonen beruhende Technologien schaffen. Man erhofft sich davon unter anderem neue Datenträger, verbesserte Solarzellen sowie Neuentwicklungen für die Kommunikationstechnik [Nis09].

---

<sup>20</sup>Attosecond Transient Absorption



## 3 Eine Attosekundenquelle für Reaktionsmikroskope

Die Kombination eines Reaktionsmikroskops mit den aktuellen Techniken zur Erzeugung von Attosekundenimpulsen ist in vielerlei Hinsicht eine technisch anspruchsvolle Aufgabe. Wie diese an der Attosekunden-Beamline des MPIK gelöst wurde, legt das nun folgende Kapitel dar.

Abschnitt 3.1 beginnt mit einer kurzen Beschreibung des kommerziellen Femtosekunden-Lasersystems, auf dessen Grundlage in den letzten Jahren die Attosekunden-Beamline entwickelt und aufgebaut wurde. Vakuumkammer und HHG-Quelle, beschrieben in Abschnitt 3.2 bzw. Abschnitt 3.3, habe ich im Rahmen meiner Diplomarbeit in Betrieb genommen [Rie07]. Die darauf folgenden Kapitel legen den Hauptteil der technischen Aufgaben meiner Doktorarbeit dar. Dazu gehören das Interferometer unter Vakuum für Pump-Probe-Messungen und die Zweifarbenbeamline, welche in Abschnitt 3.4 detailliert beschrieben sind. Abschnitt 3.4.4 umreißt die wichtige und komplexe Justageprozedur, die eine präzise Überlagerung der Pump- und Probe-Impulse in Ort und Zeit ermöglicht.

Für den Betrieb des Reaktionsmikroskops ist ein Restdruck im Bereich von  $10^{-9}$  bis  $10^{-10}$  mbar erforderlich. Weil andererseits für die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung ein dichtes Gastarget nötig ist, das mit einer hohen Gaslast einhergeht, können im Bereich der HHG-Kammer nur wesentlich schlechtere Drücke erreicht werden. Die Druckdifferenz in der Beamline muss deshalb durch differentielles Pumpen aufrechterhalten werden. Wie dies im vorliegenden Experiment umgesetzt wurde, steht in Abschnitt 3.5. Zugleich beherbergt die differentielle Pumpstufe die optischen Elemente für die Überlagerung des infraroten Zweigs mit den ultravioletten HHG-Impulsen. Das Kapitel über experimentelle Techniken schließt mit einer Zusammenstellung der aktuellen Spezifikationen der Beamline und einer Diskussion verschiedener Verbesserungsmöglichkeiten und geplanter Erweiterungen des Aufbaus (Abschnitt 3.6).

### 3.1 Lasersystem

Das Lasersystem ist ein kommerzielles System, das die Firma KML<sup>1</sup> vertreibt. Es erzeugt nach dem Prinzip der „chirped pulse amplification“ – also die Verstärkung zuvor zeitlich gestreckter Laserimpulse – infrarote Pulse mit einer Zentralwellenlänge von 790 nm, rund 32 fs Dauer und Einzelimpulsenergien bis zu 1 mJ. Die Repetitionsrate des Systems ist zwischen 3 und 10 kHz variabel<sup>2</sup>; die durchschnittliche Ausgangsleistung liegt

---

<sup>1</sup>„Dragon“ von Kapteyn-Murnane Labs Inc., Boulder, CO 80301 USA, [www.kmlabs.com](http://www.kmlabs.com)

<sup>2</sup>Bei den in dieser Arbeit beschriebenen Experimenten ist die Repetitionsrate stets 8 kHz.

zwischen 8 und 9 W. Das Verstärkungsmedium ist ein Titan-Saphir-Kristall (Ti:Sa), der von einem gütegeschalteten und frequenzverdoppelten Neodym-YAG-Laser<sup>3</sup> mit einer Ausgangsleistung von 100 W bei 532 nm optisch gepumpt wird.

Verglichen mit Ti:Sa-Systemen, die für ähnliche Experimente verwendet werden, zeichnete sich der „Dragon“ von KML zum Zeitpunkt des Erwerbs vor allem durch die hohe Repetitionsrate aus, die auch noch heute durchaus konkurrenzfähig ist. Diese ist gerade bei Experimenten mit harmonischer Strahlung von Vorteil, weil der HHG-Prozess intrinsisch ineffizient ist (vgl. Abschnitt 2.2). Die niedrigen Photonendichten der HHG-Quelle führen nicht bei jedem Lichtimpuls zu einem Ereignis im Reaktionsmikroskop, so dass bei Repetitionsraten von 3 kHz und weniger, wie sie immer noch für die meisten Ti:Sa-Systeme typisch sind, die Messzeit extrem lang würde. Darüber hinaus wäre das Einstellen geeigneter Parameter am Reaktionsmikroskop deutlich erschwert, ist doch die Aquisition ausreichender Datenmengen zur Beurteilung zum Beispiel der Lage des Magnetfelds oder der Werte für die Extraktionsspannungen bereits beim 8 kHz-System äußerst zeitaufwändig. Die in dieser Arbeit vorgestellten Daten wurde mit Ereignisraten von 1000 bis 2000 Hz aufgenommen; die Anzahl für das jeweilige Experiment interessanter und physikalisch richtiger Counts liegt nochmals einen Faktor 0,8 bis 5 darunter.

Um einen optimalen Betrieb des Verstärkers zu gewährleisten, wird die Temperatur des Ti:Sa-Kristalls in einem geschlossenen Helium-Kreislauf stabil bei ca. 60 K gehalten. Die starke Kühlung hat zwei Vorteile: sie vermeidet spontane Emissionen aus dem oberen Laserniveau, das heißt die Besetzungsinversion ist bei niedrigeren Temperaturen stabiler. Darüber hinaus springt die Wärmeleitfähigkeit von Titan-Saphir unterhalb von 77 K auf über 2000 W/mK (bei Raumtemperatur sind es 46 W/mK). Wärme, die sich durch unvollständig konvertierte Pumpenergie ansammelt, kann deshalb bei tiefen Temperaturen wesentlich besser abgeleitet werden. Dies wiederum vermeidet Temperaturgradienten im Kristall, die zu unerwünschten „thermal lensing“-Effekten führen können [Bac97].

Der Verstärker benötigt geeignete Eingangsimpulse, die ein modengekoppelter Ti:Sa-Oszillator<sup>4</sup> zur Verfügung stellt. Seine Mittenfrequenz liegt bei rund 800 nm, wobei die spektrale Breite der Impulse ca. 65 nm und die Repetitionsrate 80 MHz beträgt. Der Oszillator wird seinerseits von einem frequenzverdoppelten Nd:YVO-Dauerstrichlaser<sup>5</sup> mit einer Ausgangsleistung von 6 W gepumpt.

Zusätzliche Module<sup>6</sup> ermöglichen einen phasenstabilen Betrieb des Lasers. Dabei wird zwischen der „schnellen“ Phasenstabilisierung (XPS) und der „langsamen“ Phasenstabilisierung (APS) unterschieden. Erstere regelt die Träger-Einhüllenden-Phase (CE-Phase, vgl. Abschnitt 2.1) des Oszillators, zweitens wirkt auf die CE-Phase der verstärkten Pulse. Der phasenstabile Betrieb spielt indes nur bei sehr kurzen Laserimpulsen eine Rolle, bei denen nur wenige Zyklen des elektromagnetischen Felds in der Einhüllenden Platz

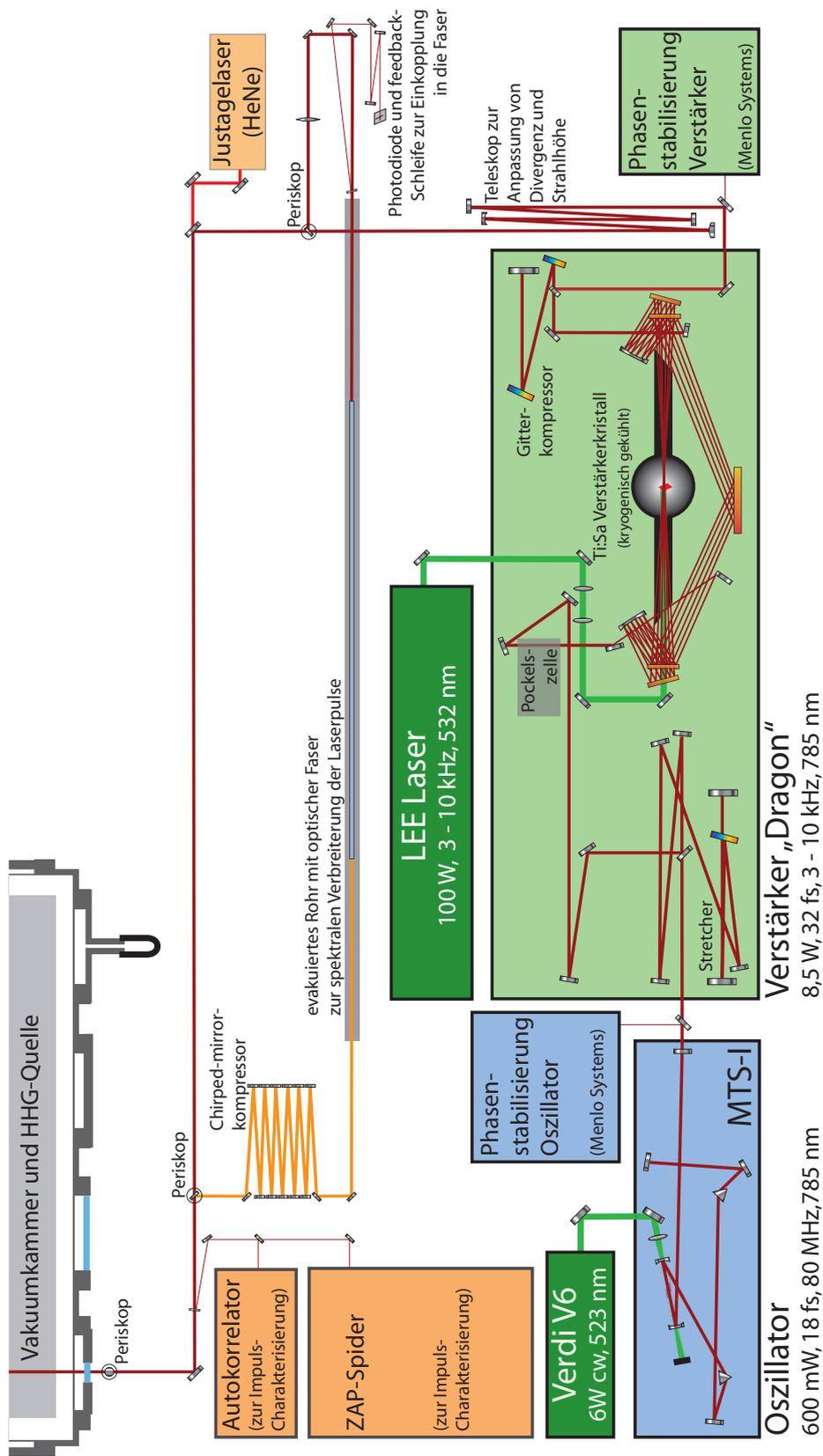
---

<sup>3</sup>LDP-200MQG von LEE Lasers Inc. Orlando, Florida 32809 USA, [www.leelaser.com](http://www.leelaser.com)

<sup>4</sup>MTS-I von Kapteyn-Murnane Labs Inc., Boulder, CO 80301 USA, [www.kmlabs.com](http://www.kmlabs.com)

<sup>5</sup>Verdi V6, Coherent Deutschland GmbH, 64807 Dieburg, [www.coherent.de](http://www.coherent.de)

<sup>6</sup>XPS800 Femtosecond Phase Stabilization Unit und APS800 Amplifier Phase Stabilization Unit, Menlo Systems GmbH, 82152 Martinsried, [www.menlosystems.com](http://www.menlosystems.com)



**Abbildung 3.1:** Das Lasersystem: modengekoppelte Lichtimpulse aus dem Oszillator (MTS-I) werden im Verstärker (K&M-Labs Dragon) zunächst zeitlich gestreckt. Die Pockelszelle (grau hinterlegter Bereich) selektiert Laserimpulse – während der Oszillator bei 80 MHz arbeitet, wird die Repetitionsrate vor der Verstärkung auf 3 bis 10 kHz abgesenkt. Die Laserimpulse durchlaufen 13 mal den Verstärkerkristall und werden anschließend auf eine Impulsdauer von ca. 32 fs komprimiert. Die Glaskapillare ermöglicht eine weitere Verkürzung der Laserimpulse.

haben. Bei der Ti:Sa-Wellenlänge von ca. 800 nm beginnt dieser Bereich unterhalb von 10 fs; der Einsatz der Phasenstabilisierung ist also erst dann sinnvoll, wenn dem Verstärker ein zusätzlicher Aufbau zur Impulsverkürzung nachgeschaltet wird.

Für diese optionale Verkürzung der Ausgangsimpulse des Verstärkers durchläuft der Lichtstrahl eine mit Neon gefüllte Hohlleiter<sup>7</sup>. Dabei bleibt das Laserlicht aufgrund der Totalreflexion an der Innenseite der Faser auf engem Raum gebündelt – typische Innendurchmesser der Fasern liegen bei 200 bis 400  $\mu\text{m}$  – und propagiert über eine lange Wegstrecke mit hoher Intensität in dichtem Edelgas. Verschiedene nichtlineare Effekte, insbesondere aber die Selbstphasenmodulation, bewirken eine spektrale Verbreiterung des Impulses [Gad07]. Anschließend wird die spektrale Phase des Pulses mit einem Satz dispersiver („gechirpter“) Spiegel geglättet, wodurch eine zeitliche Komprimierung des Pulses bis nah an das Fourierlimit (vgl. Abschnitt 2.1) erreicht wird. Die Dispersion verschiedenster optischer Elemente, die der Laserimpuls auf dem Weg zum Reaktionsmikroskop noch überwinden muss, kann im selben Schritt vorkompensiert werden, so dass der Impuls, wenn er in der Mitte des Reaktionsmikroskops das Target trifft, die gewünschten Eigenschaften besitzt. Eine detaillierte Beschreibung und Charakterisierung dieses Teilaufbaus findet sich in [Spe13, Spe09, Gad07].

Die spezifische Beschichtung der dispersiven Spiegel wird im Voraus für das Experiment berechnet, da sie individuell auf die durchlaufenen Materialien abgestimmt sein müssen. Spiegel für diese Anwendung sind deshalb stets eine Spezialanfertigung. In unserem Labor steht zusätzlich ein Weißlichtinterferometer zur Verfügung, mit dem die Dispersionskurven einzelner Spiegel experimentell ermittelt werden können [Fis10].

Zur Charakterisierung der Femtosekundenimpulse dienen ein dispersionsfreier Autokorrelator [Spe09] und ein ZAP-Spider [Tar07]. Eine Überblick über die Komponenten des Lasersystems und den Strahlengang gibt Abbildung 3.1.

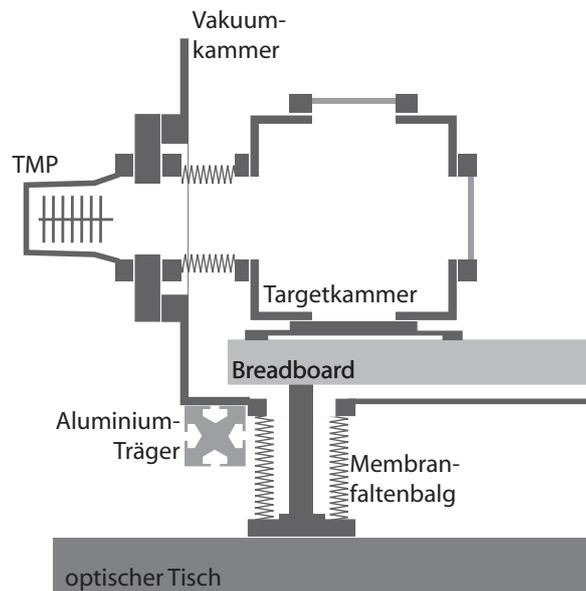
## 3.2 Vakuumsystem

Der HHG-Prozess erzeugt Strahlung im fernen UV-Bereich. Weil Luft und Glas Photonen dieser Wellenlängen absorbieren, muss die Erzeugung der harmonischen Strahlung im Vakuum stattfinden. Auch dürfen vom HHG-Target bis zum Reaktionsvolumen im Zentrum des Spektrometers keine Linsen, Fenster oder anderweitige Komponenten aus Glas mehr verwendet werden. Lediglich dünne Metallfolien mit Dicken zwischen 0,1 und 1  $\mu\text{m}$  eignen sich als Fenster für HHG-Strahlung, beeinflussen diese aber sowohl spektral als auch dispersiv (vgl. Abschnitt 2.2.1). Große Druckunterschiede lassen sich mit Mikrometer-dünnen Metallfiltern offensichtlich nicht aufrecht erhalten. Deshalb werden Versuchsaufbauten für Experimente mit hoher harmonischer Strahlung stets insgesamt unter Vakuum betrieben, und auch im vorliegenden Experiment wurde eine solche Lösung gewählt.

Auch der infrarote Zweifarb-Interferometers für Pump-Probe-Messungen wurde im Vakuum aufgebaut, das hält äußere Störungen durch Luftbewegungen oder

---

<sup>7</sup>Die verwendeten Kapillaren sind 1 m lang, der Innendurchmesser beträgt 300  $\mu\text{m}$ , der Außendurchmesser 2 mm. Die Faser liegt in einem Druckrohr, das mit ca. 2 bar Ne gefüllt ist.



**Abbildung 3.2:** Schwingungsisolierung des optischen Aufbaus von der Vakuummutter: Um eine Beeinträchtigung der Messungen durch die Schwingungen und Vibrationen von beispielsweise Vakuumpumpen zu vermeiden, sind optische und vakuumtechnische Aufbauten voneinander mechanisch entkoppelt. Die notwendigen Verbindungen wurden über hochflexible Membranfaltbalge realisiert, so dass Störungen optimal abgedämpft werden. Aus [Rie07].

Temperaturgradienten fern und dient damit der Stabilität des Interferometers. Um den Aufbau so flexibel wie möglich zu halten, wurde die Vakuummutter<sup>8</sup> so konzipiert, dass eine handelsübliches „Breadboard“<sup>9</sup> darin Platz findet. Auf dieser sind alle notwendigen optischen Elemente und die HHG-Quelle montiert. Das Breadboard erlaubt es, verschiedenste Strahlengänge zu realisieren, die dem jeweiligen Experiment angepasst werden können. Abbildung 3.9 zeigt einen Überblick über die Vakuumanlage und den Strahlengang in der Kammer.

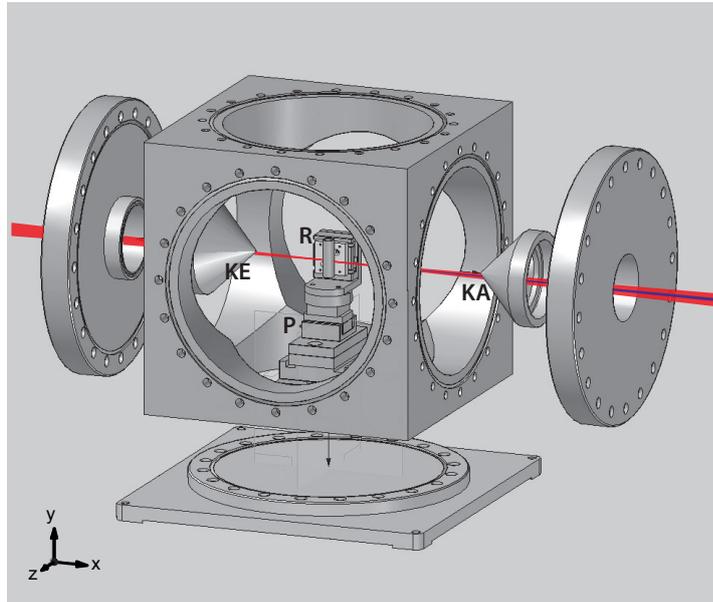
Die Kammer ist darüber hinaus so ausgelegt, dass sie problemlos häufig belüftet werden kann: der Deckel ist mit Vitonringen gedichtet und zweigeteilt, so dass das Öffnen auch ohne Kran möglich ist. Damit sich Schwingungen und Vibrationen der Vakuumpumpen nicht auf die optischen Elemente übertragen, ruht die Vakuummutter selbst auf einem Gerüst aus Aluminium-Trägern<sup>10</sup>, während das Breadboard in der Kammer auf drei Säulen steht, die über Spannpratzen fest mit dem optischen Tisch verbunden sind. Alle Verbindungen zwischen Kammer und optischem Tisch sind durch Membranfaltbalge hoch elastisch gehalten. Mechanische Schwingungen werden so nur minimal auf die optischen Komponenten übertragen. Das Prinzip ist in Abbildung 3.2 illustriert.

Das HHG-Target ist innerhalb der Vakuummutter von einer kleineren „Targetkammer“ umschlossen, welche in Abbildung 3.3 zu sehen ist. Sie dient in erster Linie dazu,

<sup>8</sup>Spezialanfertigung durch PINK GmbH Vakuumtechnik, 97877 Wertheim, [www.pink.de](http://www.pink.de)

<sup>9</sup>Stahlplatte mit Gewinderaster für optische Aufbauten

<sup>10</sup>item Industrietechnik und Maschinenbau GmbH, 42699 Solingen, [www.item.info](http://www.item.info)

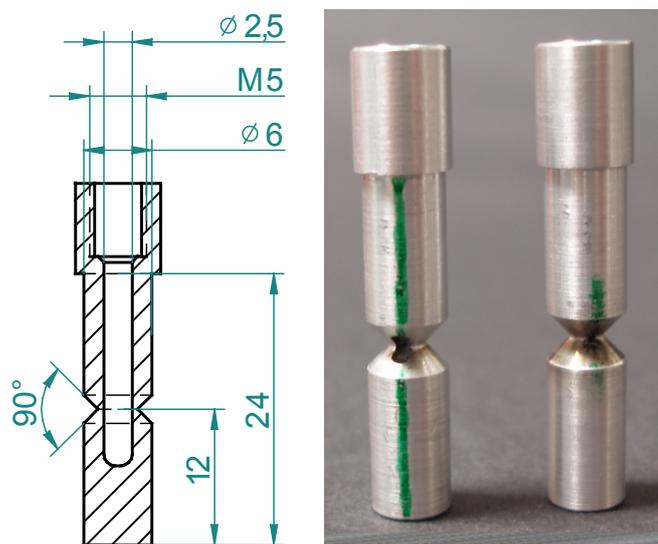


**Abbildung 3.3:** Targetkammer für die Erzeugung hoher harmonischer Strahlung: Das Gasröhrchen **R** wird außerhalb der Kammer vorbereitet und später mit Piezoaktuatoren **P** auf den Laserstrahl „aufgefädelt“. Die konusförmigen Ein- und Austrittsflansche **KE** und **KA** reduzieren die Gaslast in der äußeren Vakuumkammer und minimieren die Wegstrecke, welche die erzeugte XUV-Strahlung im Bereich hohen Drucks zurücklegen muss.

die Gaslast, die das HHG-Target verursacht, in den anderen Bereichen der Apparatur möglichst gering zu halten und auf einen kleinen Raum zu begrenzen. Das verhindert einerseits, dass erzeugte harmonische Strahlung auf dem Weg zum Reaktionsmikroskop im ausströmenden Edelgas absorbiert wird, und erleichtert andererseits, den für Messungen mit dem Reaktionsmikroskop notwendigen Druck im Bereich von wenigen  $10^{-10}$  mbar durch differentielles Pumpen aufrecht zu erhalten. Deshalb wird die Targetkammer auch separat gepumpt. Eine schnell rotierende „Seitenverdichterpumpe“<sup>11</sup>, die als Vorvakuumpumpe eingesetzt wird, hält zusammen mit einer Turbomolekularpumpe (300 l/s) den Druck in der Targetkammer auf ca.  $2 \cdot 10^{-2}$  mbar bei laufender Gaszufuhr zum HHG-Target. Ein Interlock in der Vakuumleitung zur Seitenverdichterpumpe schützt die Kammer vor ungewollter Belüftung und schaltet bei Störungen auch die Turbopumpe und die Gasleitung zum Target ab. Das HHG-Target ist über eine Schnellschusstür an der Oberseite der Targetkammer leicht für Justagearbeiten zugänglich.

Die fundamentale Laserstrahlung für den HHG-Prozess tritt durch den in Abbildung 3.3 linken Konus **KE** ein; der Fokuspunkt liegt im Röhrchen **R** in der Mitte der Targetkammer. Durch den gegenüberliegenden Konus **KA** treten infrarote und harmonische Strahlung kollinear aus. Dabei definieren die Mündungen der konusförmigen Flansche (Bohrungsdurchmesser an der Konusspitze: 1,5 bzw. 2 mm) die Strahlrichtung der Harmonischen zum Experiment: Entlang dieser Linie sind alle Komponenten – auch das

<sup>11</sup>OnTool-Booster, Pfeiffer Vacuum GmbH, 35614 Asslar, [www.pfeiffer-vacuum.net](http://www.pfeiffer-vacuum.net)



**Abbildung 3.4:** Ein Targetröhrchen aus Aluminium und die zugehörige Konstruktionszeichnung. Die Einschnürung vereinfacht den Herstellungsprozess (die dünne Wandstärke von 0,5 mm muss nur auf kleinem Raum erreicht werden) und erlaubt es, Röhrchen verschiedener Innendurchmesser mit denselben Adaptern an den Piezo-Positionierern und der Zuleitung für das Targetgas zu befestigen. Auch beim Bohren der Ein- und Austrittslöcher für den Laserstrahl und bei der Justage des Röhrchens erwies sich die Einschnürung als außerordentlich hilfreich.

Reaktionsmikroskop – ausgerichtet. Zwei Überlegungen waren für die Gestaltung des Ein- und Austrittsflanschs mit nach innen gerichteten Koni ausschlaggebend: Erstens können nah am IR-Fokus engere Blendenöffnungen verwendet werden, so dass der Leitwert zwischen Targetkammer und der äußeren Vakuumkammer möglichst klein gehalten wird. Außerdem muss die harmonische Strahlung in dieser Anordnung nur eine kurze Wegstrecke im Bereich mit dem höchsten Druck, also der Targetkammer, zurücklegen.

### 3.3 Attosekunden-Quelle

Als HHG-Quelle dient ein gasgefülltes Aluminiumröhrchen mit einem Innendurchmesser von 2,5 mm (vgl. Abbildung 3.4). Die Ein- und Austrittslöcher für fundamentale und harmonische Laserstrahlung werden vor dem Einbau des Röhrchens mechanisch gebohrt, und sind im Durchmesser 200  $\mu\text{m}$  (Eintritt) bzw. 150  $\mu\text{m}$  (Austritt) groß. Die asymmetrische Bohrung bewirkt, dass der größere Teil des Targetgases in Gegenrichtung zum Laserstrahl ausströmt, was die Absorption der harmonischen Strahlung verringert. Am oberen Ende des Röhrchens ist über einen Gewindeadapter<sup>12</sup> ein dünner Silikonschlauch ( $\varnothing$  5 mm) befestigt, durch den das Targetgas ins Röhrchen gelangt. Der Druck im Target wird über ein Nadelventil dosiert und mit einem Pirani-Manometer kontrolliert.

<sup>12</sup>Festo AG & Co. KG, 73734 Esslingen-Berkheim, [www.festo.de](http://www.festo.de)

Die Verwendung von Aluminiumröhrchen mit exakt vorgebohrten Ein- und Austrittslöchern erfordert motorisierte Positionierer, mit denen das Röhrchen exakt auf den Strahlengang des fundamentalen Laserlichts justiert und die HHG optimiert werden kann. Dafür werden Piezomotoren<sup>13</sup> verwendet, die Verschiebungen entlang der Propagationsachse des Lasers  $z$  und in der Höhe  $y$  um jeweils 4,3 mm sowie Drehungen um die vertikale  $y$ -Achse erlauben (vgl. Abbildung 3.3). Vor allem die Drehbewegung könnte ohne Piezo beim Befestigen des Röhrchens nicht genau genug eingestellt werden. Die Verschiebung in  $x$ -Richtung ist bei belüfteter Kammer mit einem manuellen Verschiebetisch möglich.

Die Fokussierung der fundamentalen Laserstrahlung geschieht außerhalb der Targetkammer mit einem sphärischen Spiegel ( $f = 1000$  mm); der Strahlengang ist in Abbildung 3.9 auf Seite 61 oben links zu sehen. Zur Anpassung der Fokalkpunktposition für die HHG lässt sich der Abstand zwischen dem fokussierenden Spiegel **UvF** und dem Targetröhrchen **HHG** mit einem motorisierten Verschiebetisch<sup>14</sup> (grau hinterlegter Bereich in der Skizze auf Seite 61) um 50 mm verstellen. So kann die für die Optimierung der HHG kritische Fokalkpunktposition unter Vakuumbedingungen angepasst werden.

Streaking-Experimente (vgl. Abschnitt 2.6.1 und Abschnitt 5.7) benötigen – sofern mit Impulsszügen gearbeitet wird – sowohl gerade als auch ungerade Ordnungen harmonischer Strahlung. Wie in Abschnitt 2.4.1 beschrieben, lässt sich dies experimentell leicht bewerkstelligen, indem man mit einem BBO-Kristall (Beta-Bariumborat, **BBO** in Abbildung 3.9) eine teilweise Frequenzverdoppelung der Fundamentalen erzwingt. Der Winkel des Kristalls wird ebenso wie der übrige HHG-Prozess unter Vakuum optimiert (vgl. Abschnitt 3.3.4).

### 3.3.1 Optimierung

Zur Optimierung der experimentellen Parameter – beim HHG-Prozess sind dies Targetdruck, Fokalkpunkt, Röhrchenposition und gegebenenfalls der BBO-Winkel – ist an einem der Seitenflansche der Vakuumkammer ein XUV-Spektrometer montiert. Abbildung 3.5 zeigt dessen Aufbau. Es besteht aus einem freistehenden Transmissionsgitter mit einer Gitterperiode  $g = (99,90 \pm 0,05)$  nm<sup>15</sup>, welches ein Aluminiumfilter<sup>16</sup> vor der intensiven infraroten Fundamentalstrahlung schützt (**TG** bzw. **F** in Abbildung 3.9). Die am Gitter gebeugten HHG-Spektren können dann mit einer XUV-CCD-Kamera<sup>17</sup> beobachtet und gespeichert werden. Eine Abschirmung aus eloxiertem Aluminium schützt die Kamera vor Streulicht. Während der Messung wird der CCD-Chip mit einem Peltierelement auf  $-55^\circ\text{C}$  gekühlt, um das interne Rauschen zu minimieren. Dann beträgt die Quanteneffizienz in dem für unser Experiment interessanten Wellenlängenbereich 41%. Über einen Membranfaltbalg und geeignete Gelenke aus Aluminiumprofilen ist die Kamera um das Transmissionsgitter schwenkbar, bewegt sich also auf dem Rowland-

<sup>13</sup>Nanopositionierer PT30-5 und NDT24-30, OWIS GmbH, 79219 Staufen, [www.owis-staufen.de](http://www.owis-staufen.de)

<sup>14</sup>TRA-Serie, Newport Spectra-Physics GmbH, 64291 Darmstadt, [www.newport.com](http://www.newport.com)

<sup>15</sup>Tim Savas, MIT Nanotechnology Lab, Boston MA

<sup>16</sup>Targetlabor der LMU München bzw. Lebow Company, Goleta CA 93117, U.S.A., [www.lebowcompany.com](http://www.lebowcompany.com)

<sup>17</sup>pixis-XO, Princeton Instruments Inc., Trenton, NJ 08619, USA, [www.princetoninstruments.com](http://www.princetoninstruments.com)



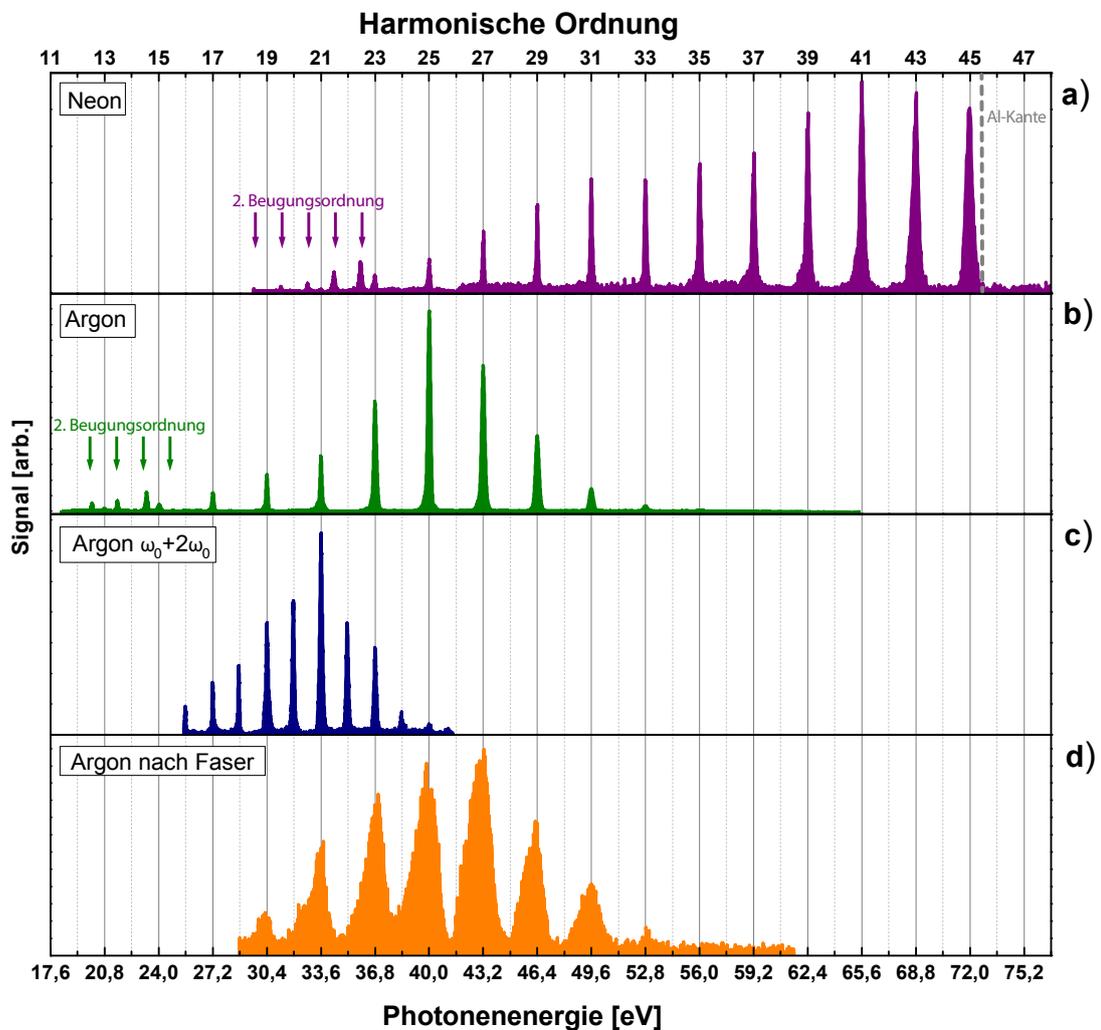
Daraus ergibt sich, dass **X1** mit  $\text{ROC} = 1500$  mm im Abstand von  $\approx 300$  mm von der HHG-Quelle das XUV-Licht in horizontaler Richtung kollimiert. **X2** mit  $\text{ROC} = 3000$  mm im Abstand von  $\approx 575$  mm von der XUV-Kamera bündelt die harmonische Strahlung wiederum in horizontaler Richtung auf den CCD-Chip. Das Licht fällt als vertikaler Strich auf das Transmissionsgitter und die Kamera. Experimentell wurde festgestellt, dass die Beugung nullter Ordnung in dieser Konfiguration auf der Kamera etwa 2 Pixel (FWHM) breit ist. Mit den Spezifikationen der Kamera<sup>20</sup> ergibt sich daraus eine Strahltaile von  $40 \mu\text{m}$  in horizontaler Richtung. Rechnerisch würde man  $22 \mu\text{m}$  erwarten; da die Kamera nicht exakt in der Fokalebene steht ist die Übereinstimmung dennoch zufriedenstellend.

### 3.3.2 Kalibrierung der Spektren

Zur Auswertung der Spektren werden die auf dem Chip registrierten Photonen in vertikaler Richtung addiert. Die Kalibrierung erfolgt anschließend anhand bekannter Kennlinien und der gegebenen physikalischen Zusammenhänge. Diese sind im Einzelnen:

- **Spektrometergeometrie:** Da der Beugungswinkel  $\alpha$  am Gitter nur von der Wellenlänge  $\lambda$  des einfallenden Lichts, der Gitterkonstante  $g$  und dem Einfallswinkel abhängt, ergibt sich bei bekannter Spektrometergeometrie die Wellenlänge aus dem Winkel, unter dem die Strahlung beobachtet wird:  $g \cdot \sin\alpha = \lambda$ .
- **Äquidistanz der Harmonischen:** Hohe harmonische Strahlung besteht aus einem Frequenzkamm, bei dem benachbarte Komponenten um jeweils  $2 \cdot h\omega_0$  separiert sind; das heißt aus der fundamentalen Wellenlänge ist der Energieabstand der harmonischen Ordnungen bereits bekannt (vgl. Abschnitt 2.2). Dieser Umstand kann nach einer ungefähren Bestimmung der Energien der XUV-Photonen zur Kalibrierung verwendet werden. Allerdings hat die Methode einen Haken: nichtlineare Effekte, die bei hohen Laserintensitäten in ionisierten Gasen auftreten, können die Wellenlänge des ionisierenden Laserfelds blauverschieben. Dies tritt zuweilen auch bei der Erzeugung hoher Harmonischer auf. Einige Forschungsgruppen machen sich den Effekt sogar zunutze, um die Wellenlänge einzelner harmonischer Ordnungen durchzustimmen, zum Beispiel [Alt99, Rei04]. Die Blauverschiebung tritt bei Laserintensitäten über  $10^{15} \text{ W/cm}^2$  auf und ist sowohl von der Impulsdauer der Fundamentalen als auch vom Gasdruck im Target abhängig.
- **Transmissionskanten von Metallfiltern:** Dünne Metallfolien, wie sie im Bereich der XUV-Optik als spektrale Filter verwendet werden, weisen oft scharfe Transmissionskanten auf, an denen die Absorption sprunghaft ansteigt oder abfällt (vgl. Abbildung 3.11 auf Seite 63). So ist beispielsweise Aluminium nur für Photonenenergien zwischen 16,5 und 72,65 eV durchlässig, Filter aus Zinn weisen eine scharfe Kante bei 24 eV auf. Diese Werte können bei der Kalibrierung als Markierungen dienen, so auch bei unserem Experiment (Aluminiumkante bei 72,65 eV). Fallen diese allerdings in die  $\approx 3$  eV breite Frequenzlücke zwischen zwei benachbarten Harmonischen, geben sie nur noch einen ungefähren Anhaltspunkt.

<sup>20</sup>  $400 * 1340$  Bildpunkte, der Abstand von Pixel zu Pixel (pitch) beträgt  $20 \mu\text{m}$



**Abbildung 3.6:** Typische Spektren harmonischer Strahlung, erzeugt in Neon (a)) und Argon (b)). Spektrum (c)) entstand durch Beimischung eines kleinen Teils frequenzverdoppelter Fundamentalstrahlung (vgl. Abschnitt 3.3.4). Das unterste Spektrum (d)) wurde mit Fundamentalstrahlung erzeugt, die mit Hohlleiter und Spiegelsystem (vgl. Abschnitt 3.1) verkürzt wurden. Pfeile markieren die zweite Beugungsordnung in Neon und Argon (a) und b)), die grau gestrichelte Linie in a) die Transmissionskante des Aluminiumfilters. Diese wurden zur Kalibrierung herangezogen. Die Spektren a), c) und d) wurden nicht bis zum maximalen Auslenkwinkel der Kamera gemessen und schneiden deshalb unterhalb der 19. bzw. 16. harmonischen Ordnung ab. Für die Messungen in Kapitel 5 wurden in Argon erzeugte Spektren verwendet die dem in b) gezeigten gleichen. Die einzige Ausnahme ist in Abschnitt 5.7 zu finden; für die Messungen dort wurde das Spektrum aus c) verwendet.

- **Zweite Beugungsordnung:** Bei großen Ablenkwinkeln  $\alpha$  wird die zweite Beugungsordnung der hohen Harmonischen sichtbar (vgl. Spektren **a**) und **b**) in Abbildung 3.6), die in Zusammenhang mit der Bragg-Formel für die Beugung am Gitter –  $g \cdot \sin \alpha = k\lambda$ , wobei  $g$  die Gitterkonstante,  $\lambda$  die Wellenlänge und  $k$  die Beugungsordnung ist – ebenfalls zur Kalibrierung herangezogen werden kann.
- **Plasmalinien:** Eine weitere Möglichkeit zur Kalibrierung ergibt sich bei der Beobachtung von Plasmalinien. Diese entstehen bei der Ionisation des Targetgases, wenn das Gas bei der Rekombination mit freien Elektronen charakteristische Strahlung aussendet. Die optimalen Fokalbedingungen für die Erzeugung harmonischer Strahlung beziehungsweise Plasmalinien sind jedoch komplementär: während bei der HHG mit losen Foki gearbeitet wird, eben um die Ausdünnung des Targets durch Ionisierung zu vermeiden, treten Plasmalinien bei möglichst enger Fokussierung am stärksten auf [Far09]. Bei dem hier beschriebenen Aufbau müsste zur Beobachtung dieser Linien die Fokussierung auf das HHG-Target umgestaltet werden. Weil die übrigen Anhaltspunkte zur Identifizierung der beobachteten Spektren ausreichen, wurde darauf verzichtet.

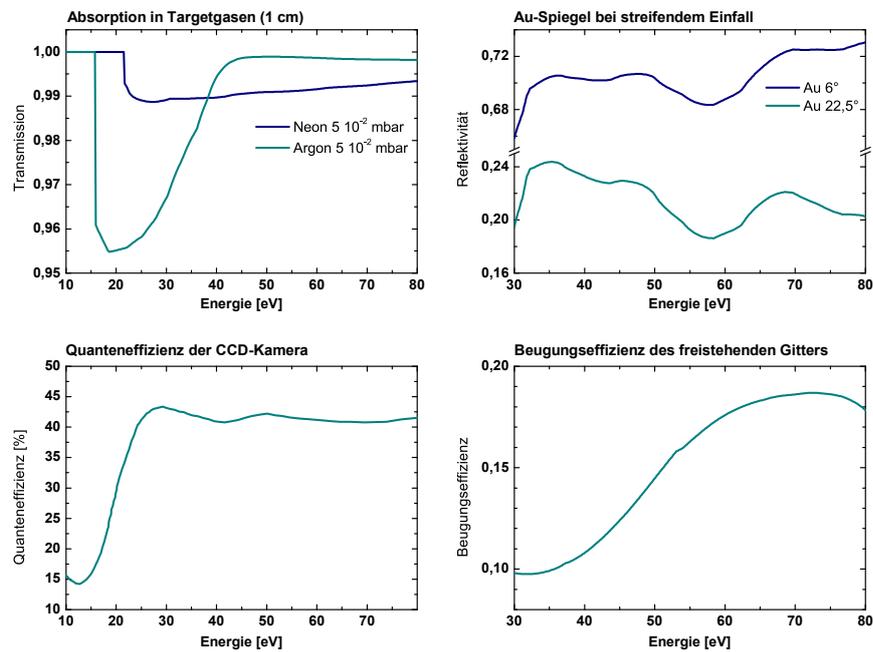
Abbildung 3.6 zeigt kalibrierte Spektren von in Argon und in Neon erzeugten Harmonischen. Sie wurden auf der Kamera nach Transmission durch einen Aluminium-Filter beobachtet. Anhand der Kameradaten kann auch eine grobe Abschätzung der Photonenzahl je harmonischer Ordnung vorgenommen werden. Eine genaue Bestimmung ist jedoch nicht möglich, weil durch die Fokussierung ausschließlich in horizontaler Richtung sowohl an der Halterung für den Aluminiumfilter als auch am Transmissionsgitter selbst Teile der Strahlung abgeschnitten werden. Um die gesamte harmonische Strahlung auf den Chip zu bündeln, wäre eine aufwändigere Fokussierung zum Beispiel mit einem Toroidalspiegel oder einem Setup ähnlich der Anordnung vor dem Reaktionsmikroskop (vgl. Abschnitt 3.4) nötig. Darauf wurde aus Platz- und Kostengründen verzichtet.

### 3.3.3 Abschätzung der Photonenzahlen

Wie viele XUV-Photonen pro Sekunde oder pro Laserimpuls erzeugt werden, lässt sich aus den Daten der XUV-Kamera abschätzen:

$$(3.3) \quad \#\gamma = \frac{cts_{\text{Signal}} - cts_{\text{Hintergrund}}}{\#e \cdot QE \cdot T_{\text{Filter}} \cdot DE_{\text{Gitter}} \cdot R_{\text{Au}}^2 \cdot \tau}$$

Dabei bezeichnen  $cts_{\text{Signal}}$  und  $cts_{\text{Hintergrund}}$  die während der Belichtungszeit  $\tau$  auf der CCD akkumulierten Ladungsträger, die man durch Integration der Spektrallinien ( $cts_{\text{Signal}}$ ) nach Korrektur auf den Hintergrund ( $cts_{\text{Hintergrund}}$ ) erhält. Zum Hintergrund tragen das Rauschen der CCD sowie diverse Streulichtanteile bei. Durch Division durch die Anzahl Elektronen  $\#e$ , die ein XUV-Photon gegebener Energie im CCD-Chip auslöst ergibt sich daraus die Anzahl registrierter ultravioletter Photonen, denn  $\#e = E_{\text{HHG}}/3,65 \text{ eV}$ . Die Eigenschaften der optischen Elemente des Spektrometers sind in der Regel wellenlängenabhängig, so dass eine Korrektur des Spektrums auf deren



**Abbildung 3.7:** Wellenlängenabhängige Parameter, die in die Berechnung der Photonenzahlen eingehen.

Einfluss vorgenommen werden muss. Dazu gehören in erster Linie die Quanteneffizienz  $QE$  der CCD-Kamera, die Beugungseffizienz des Gitters  $DE_{\text{Gitter}}$ , die Reflexion  $R_{\text{Au}}$  an zwei Goldspiegeln bei einem streifenden Einfallswinkel von  $22,5^\circ$  sowie die Transmission des Aluminiumfilters  $T_{\text{Filter}}$ . Zahlenwerte für diese Parameter können zum Beispiel in der Datenbank des „Center of X-Ray Optics“ in Berkeley<sup>21</sup> abgefragt werden und sind in Abbildung 3.7 sowie 3.11 zusammengestellt. Diese Korrekturen gingen in die Berechnung der Photonenzahlen in Tabelle 3.1 auf Seite 58, nicht jedoch in die Spektren in Abbildung 3.6 ein. Die Belichtungszeiten lagen typischerweise zwischen 100 und 400 ms.

Damit ergeben sich für unsere HHG-Quelle bei 8 kHz Pulswiederholrate Photonenzahlen in der Größenordnung  $10^9$  Photonen/s für die intensivsten harmonischen Ordnungen in Argon und knapp  $10^7$  Photonen/s in Neon. Andere HHG-Labore erzielen ähnliche Ergebnisse [Nis07, Pol07, Pol08, Kap05]. Eine Übersicht bietet die nachfolgende Tabelle; die Daten beziehen sich auf dieselben Spektren, die in Abbildung 3.6 gezeigt wurden. Da alle zur Bestimmung der Photonenzahlen herangezogenen Parameter recht genau bekannt sind, liegt die Unsicherheit dieser Berechnung an und für sich bei wenigen Prozent; aufgrund der fehlenden Fokussierung in der Vertikalen kommt allerdings eine hohe systematische Unsicherheit dazu, die sich nicht ohne weiteres quantifizieren lässt. Insofern können die unten angegebenen Photonenzahlen nur als untere Abschätzung gelten.

<sup>21</sup>X-Ray-tools, Center of X-Ray Optics (CXRO) at Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL), [henke.lbl.gov/optical\\_constants](http://henke.lbl.gov/optical_constants)

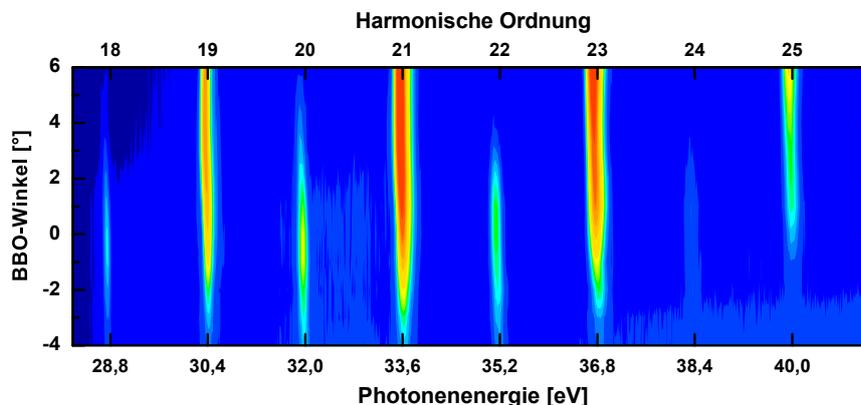
HHG-Photonenzahlen in Argon und Neon			
H.O.	$E_\gamma$	Targetgas	#HHG – Photonen/s
39	62,4	Ne	$6,91 \cdot 10^6$
41	65,6	Ne	$7,52 \cdot 10^6$
43	68,8	Ne	$7,11 \cdot 10^6$
45	72,0	Ne	$7,00 \cdot 10^6$
25	40,0	Ar	$1,17 \cdot 10^9$
27	43,2	Ar	$7,14 \cdot 10^8$
29	46,4	Ar	$2,65 \cdot 10^8$
31	49,6	Ar	$5,48 \cdot 10^7$
21	33,6	Ar ( $\omega_0 + 2\omega_0$ )	$2,55 \cdot 10^7$
22	35,2	Ar ( $\omega_0 + 2\omega_0$ )	$5,37 \cdot 10^7$
23	36,8	Ar ( $\omega_0 + 2\omega_0$ )	$5,53 \cdot 10^7$
24	38,4	Ar ( $\omega_0 + 2\omega_0$ )	$9,22 \cdot 10^7$

**Tabelle 3.1:** Zahl der HHG-Photonen für verschiedene Gase und harmonische Ordnungen (H.O.); die Berechnung ist im Text erklärt.

Im Vergleich mit den theoretischen Vorhersagen und den im einleitenden Kapitel präsentierten experimentellen Spektren fällt auf, dass unseren HHG-Spektren die niedrigeren Ordnungen des Plateaus zu fehlen scheinen: anstelle des erwarteten Frequenzkamms im ganzen Bereich des Aluminiumfensters (15 bis 72,65 eV) fällt die Intensität der Harmonischen unterhalb von 65,6 eV in Neon, in Argon unter 40 eV bzw. 33,6 eV systematisch ab. Wie wir im Kapitel über Seitenbandoszillationen sehen werden, sind diese „niedrigeren“ hohen Harmonischen sehr wohl vorhanden; sie werden allerdings aufgrund der Beugungseffizienz des freistehenden Gitters im HHG-Spektrometer stark abgeschwächt. Die Beugungseffizienz ist zusammen mit den für die Berechnung der Photonenzahlen verwendeten Größen in Abbildung 3.7 gezeigt. Aufgrund des dichten Gastargets limitieren Phasenfehlanpassungen und Reabsorption der harmonischen Strahlung die Cutoff-Frequenz [Con99]. Die Intensität der Fundamentalen,  $I \approx 3 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>, ergibt mit Gleichung 2.9 ein ponderomotives Potential von  $\approx 18$  eV, was wiederum mit  $E_{\max} \approx I_p + 3U_p$  Cutoff-Frequenzen bei  $\approx 70$  eV bei der Erzeugung in Argon und  $\approx 75$  eV in Neon erwarten lässt. Insbesondere in Argon, wo mit im Vergleich zu Neon höheren Targetdrücken gearbeitet wurde, ist der Einfluss von Reabsorption und Phasenfehlanpassungen im dichten Target augenfällig.

### 3.3.4 Gerade und ungerade Harmonische

In Abschnitt 2.4.1 wurde gezeigt, dass durch Beimischung eines schwachen frequenzverdoppelten Laserfeldes zur Fundamentalen nicht nur ungerade, sondern auch gerade Harmonische erzeugt werden können: bereits ein kleiner Anteil der zweiten Harmonischen genügt, um die Symmetrie des treibenden Laserfeldes in einer Weise zu manipulieren, dass der HHG-Prozess im Targetgas nicht mehr isotrop ist. Infolgedessen findet der Rekollisionsprozess nur noch einmal pro Zyklus statt, dafür sind die Harmonischen nicht mehr um  $2\omega_0$ , sondern nur noch um  $\omega_0$  separiert. Das heißt, die Verdopplung des



**Abbildung 3.8:** Erzeugung gerader und ungerader Harmonischer durch teilweise Frequenzverdopplung der Fundamentalen. Bei geeigneter Stellung des nichtlinearen Kristalls ist der Zyklus der Fundamentalen asymmetrisch und dadurch die Symmetrie des Erzeugungsprozesses gebrochen, die Harmonischen infolgedessen nur noch um  $\omega_0$  separiert.

zeitlichen Abstandes zwischen zwei Attosekundenimpulsen im Pulszug schlägt sich im Frequenzraum in der Halbierung des Energieabstands zwischen benachbarten Harmonischen nieder.

Von den verschiedenen technischen Lösungen für die Harmonischenerzeugung mit zwei Farben wurde hier nur die einfachste realisiert, für die lediglich ein nichtlinearer Kristall zur Frequenzverdopplung benötigt wird (**BBO** in Abbildung 3.9 auf Seite 61). Man verwendet hier ein Phasematching vom Typ II [Boy03], das heißt, je ein infrarotes Photon des ordentlichen und des außerordentlichen Strahls summieren sich zu einem blauen Photon der zweiten Harmonischen, das im außerordentlichen Strahl emittiert wird. Unter diesen Voraussetzungen gibt es eine Kristallstellung, in der sowohl die frequenzverdoppelte als auch die fundamentale Komponente den Kristall auf dem außerordentlichen Strahl verlassen.

Abbildung 3.8 zeigt das auf der CCD-Kamera beobachtete HHG-Spektrum bei Drehung des nichtlinearen Kristalls über einen engen Winkelbereich von  $10^\circ$ , wobei die Nullposition die experimentell ermittelte optimale Stellung für die Erzeugung gerader und ungerader Harmonischer bezeichnet. Bei größeren Winkeln nimmt der Anteil blauen Lichts im treibenden Laserfeld ab, die Fundamentale wird symmetrischer, so dass nur noch ungerade Harmonische emittiert werden. Zu kleineren Winkeln hin nimmt der blaue Anteil der Fundamentalen weiter zu. Das geschieht allerdings auf Kosten der Intensität, die emittierte harmonische Strahlung wird entsprechend insgesamt schwächer.

Die Frequenzverdopplung nach dem oben beschriebenen Schema verursacht eine Drehung der Polarisationssebene der Fundamentalen, die in aller Regel nicht erwünscht ist. Deshalb durchläuft der Laserstrahl zur Erzeugung der Harmonischen unmittelbar vor der Frequenzverdopplung ein  $\lambda/2$ -Plättchen, mit dem die Drehung durch den Kristall so vorkompensiert werden kann, dass der HHG-Strahl im Reaktionsmikroskop wieder entlang der Spektrometerachse polarisiert ist. Dies lässt sich am besten über die Win-

kelverteilung der emittierten Photoelektronen im Reaktionsmikroskop überprüfen (vgl. Abschnitt 5.4).

### 3.4 Interferometer, Rekombinationskammer und Zweifarben-Beamline

In der Vakuumkammer wird die infrarote Laserstrahlung – je nach erforderlicher Impulslänge entweder direkt aus dem Verstärker oder nach Durchlaufen von Faser und Kompressor – am Beamsplitter **BS** geteilt. 70% der Leistung wird im XUV-Zweig des Interferometers zur Erzeugung harmonischer Strahlung verwendet. Die übrigen 30% durchlaufen den infraroten Zweig: nach der Reflexion am Beamsplitter unter  $11^\circ$  wird der Strahl auf einen Rückreflektor geleitet, der auf einem hochgenauen Piezo-Verschiebetisch mit kapazitiver Positionsauslese<sup>22</sup> montiert ist. Dieser erlaubt Verfahrwege von bis zu  $1500\ \mu\text{m}$  bei einer Schrittweite von  $3\ \text{nm}$ ; einmal angesteuerte Positionen sind auf  $\pm 14\ \text{nm}$  reproduzierbar. Die Ansteuerung erfolgt mit einem Funktionsgenerator. Für Pump-Probe-Messungen mit dem Reaktionsmikroskop wurde in der Regel ein dreieckiges Spannungssignal bei einer Frequenz von  $0,01\ \text{Hz}$  bis  $0,5\ \text{Hz}$  verwendet; die Amplitude variiert je nach der Länge des gewünschten Verfahrwegs zwischen  $5\ \text{mV}$  und  $10\ \text{V}$ .  $100\ \text{mV}$  entsprechen dabei einem Hub von  $15\ \mu\text{m}$  bzw. einer Zeitverzögerung von  $100\ \text{fs}$ <sup>23</sup>. Die Mittenposition wird über einen DC-Spannungsregler direkt an der Steuereinheit für den Piezotisch eingestellt. Der Piezotisch ist außerdem auf einem manuell verstellbaren Verschiebetisch mit einem Hub von  $4\ \text{cm}$  montiert, der die Grobeinstellung des zeitlichen Überlapps von Pump- und Probe-Impuls vereinfacht. In Abbildung 3.9 ist die Verzögerungsstrecke grau hinterlegt und mit (dem englischen, aber im Forschungsbetrieb praktisch eingedeutschten Begriff) **Delay** bezeichnet.

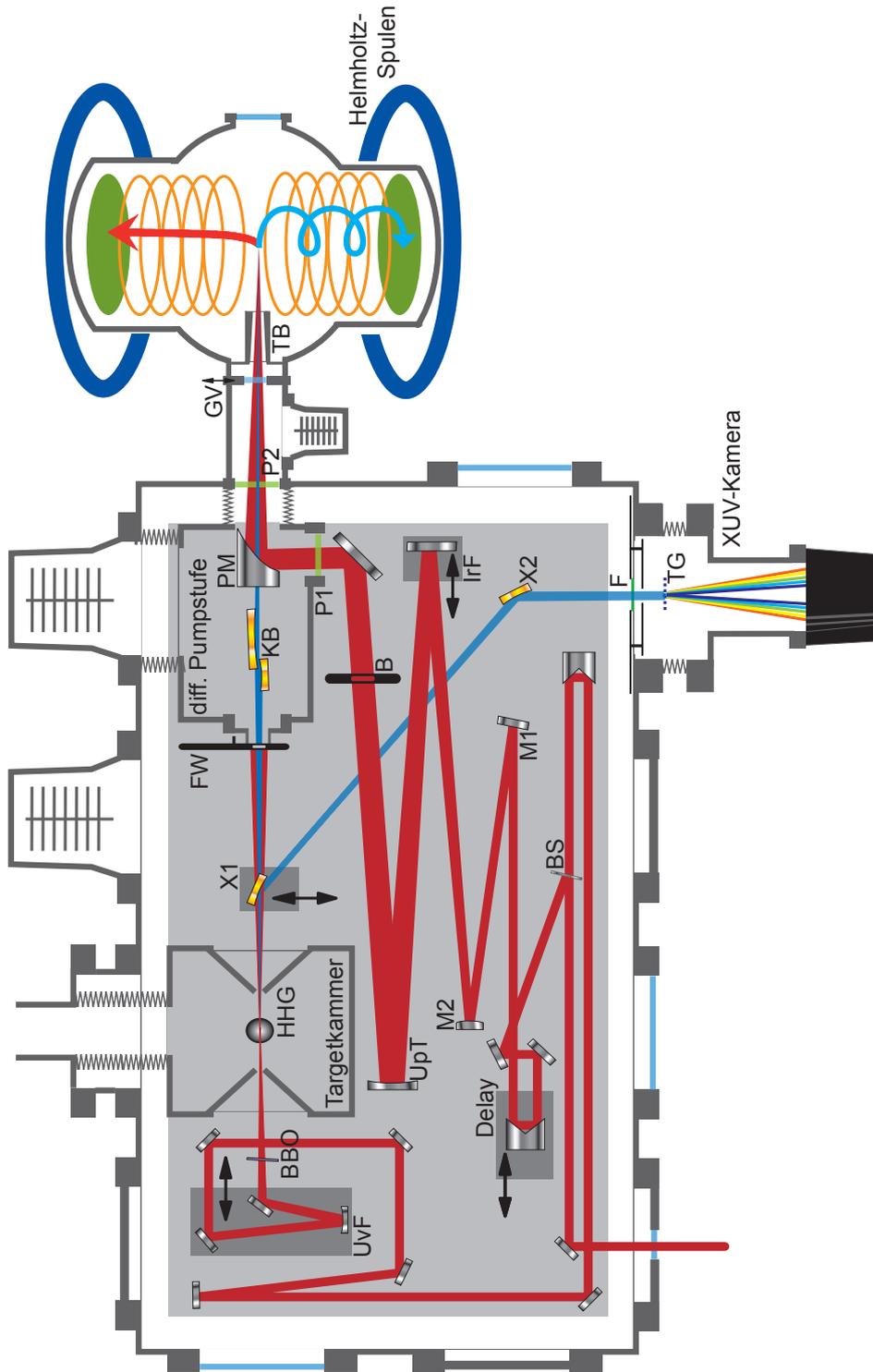
Die Justage des Interferometers muss unter Vakuum geschehen, weil sich bei der Optimierung der HHG-Quelle in aller Regel noch Abweichungen im Strahlengang ergeben. Die notwendigen Anpassungen der Interferometerjustage müssen dann, will man die Erzeugung harmonischer Strahlung nicht beeinträchtigen, ausschließlich im infraroten Zweig des Interferometers vorgenommen werden. Dies geschieht mit den Spiegeln **M1** und **M2**, welche mit Piezomotoren gesteuert werden<sup>24</sup>. Die Justageprozedur ist in Abschnitt 3.4.4 im Detail beschrieben.

Anschließend durchläuft der Laserstrahl ein Teleskop, das zur Anpassung des Strahldurchmessers sowie der Intensität und Position des infraroten Fokalfpunkts im Reaktionsmikroskop dient: **M2** und **UpT** sind sphärische Spiegel mit ROC  $800\ \text{mm}$  (**M2**) bzw.  $-3000\ \text{mm}$  (**UpT**), und erweitern den Strahldurchmesser von  $12$  auf  $45\ \text{mm}$ . Der auf einem Verschiebetisch montierte Spiegel **IrF** reguliert den Abstand der sphärischen Spiegel und bestimmt über die Divergenz die exakte Lage des infraroten Fokalfpunkts im Reaktionsmikroskop. Mit der Aufweitung des Strahls wird ein engerer Infrarotfokus erzeugt, der höhere Intensitäten im Reaktionsvolumen zur Verfügung stellt. **B** ist eine

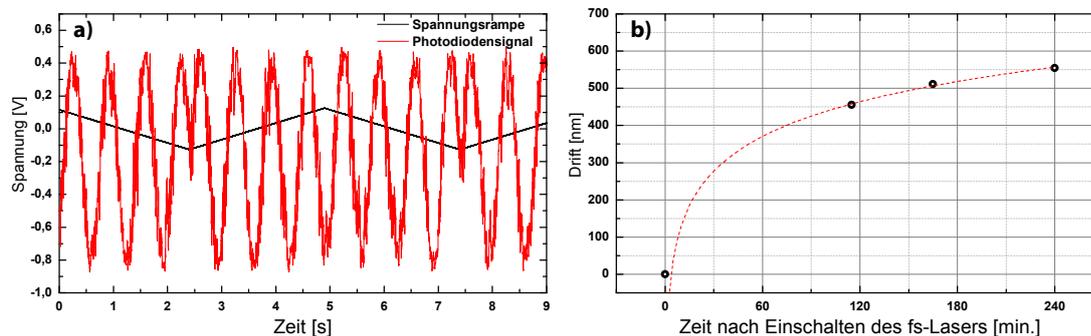
<sup>22</sup>PI Hera P-629.1, PhysikInstrumente GmbH & Co. KG, 76228 Karlsruhe, [www.physikinstrumente.de](http://www.physikinstrumente.de)

<sup>23</sup>Weil der Gangunterschied des Lichts dem doppelten Hub entspricht gilt für die Zeitverzögerung  $\Delta t = \frac{2 \cdot \text{Hub}}{c}$  mit Lichtgeschwindigkeit  $c$ .

<sup>24</sup>Agilis, Newport Spectra-Physics GmbH, 64291 Darmstadt, [www.newport.com](http://www.newport.com)



**Abbildung 3.9:** Vakuumkammer mit Interferometer und Zwei-Farben-Beamline. Grau eingezeichnete Flansche sind mit Vakuummessröhren und elektrischen Durchführungen für die motorisierten optischen Komponenten belegt; blaue Flansche symbolisieren Sichtfenster. Grau hinterlegte Bereiche kennzeichnen Verschiebetische für das Pump-Probe-Delay (**Delay**) sowie zur Anpassung der Fokalfpunkte des infrarot-Zweigs im Reaktionsmikroskop (**IrF**) und der Fundamentalen für die Erzeugung hoher Harmonischer (**UvF**). Der Spiegel (**X1**) ist ebenfalls auf einem Verschiebetisch montiert und lenkt die harmonische Strahlung bei Bedarf zur Beobachtung in das Spektrometer. Die übrigen Komponenten sind im fortlaufenden Text erklärt.



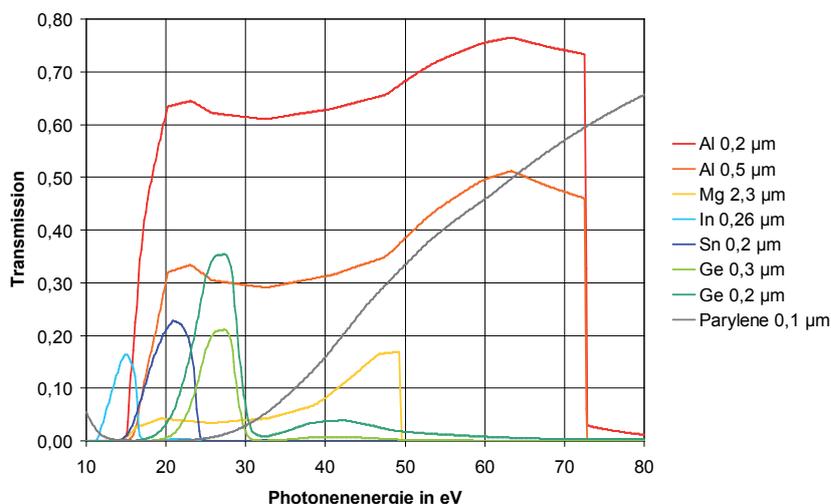
**Abbildung 3.10:** Interferometrische Kontrolle der Stabilität des Verschiebetisches mit Infrarotlaser und einer Photodiode hinter dem Reaktionsmikroskop: **a)** zeigt Interferenzminima und -maxima beim Durchlaufen von  $\approx 3,7$  IR-Zyklen. Die Phasenlage des Interferenzmusters relativ zum Maximum der Spannungsrampe (die die zeitliche Verschiebung der beiden Interferometerarme steuert) wurde über mehrere Stunden beobachtet und in **b)** gegen die seit dem Einschalten des Femtosekundenlasers verstrichene Zeit aufgetragen. In den ersten beiden Stunden des Betriebs driftet das Interferometer aufgrund thermischer Effekte stark.

motorisierte Blende, mit der der infrarote Zweig des Interferometers gesperrt oder im Strahldurchmesser eingeengt werden kann. Sie dient hauptsächlich dazu, die Intensität des infraroten Laserlichts im Experiment zu dosieren, allerdings wirkt sich eine Verengung des Strahldurchmessers vor der Fokussierung auch auf die Größe des Fokuspunkts aus (vgl. Abschnitt 3.4.3).

### 3.4.1 Delaystabilität

Pump-Probe-Experimente mit einer zeitlichen Auflösung unterhalb eines infrarot-Halbzyklus erfordern, dass die Verzögerung der Pulse relativ zueinander mit entsprechender Kontrolle, Stabilität und Reproduzierbarkeit geschieht. Inwieweit das erfüllt ist, lässt sich mit einer einfachen Messung überprüfen: das Interferometer wird wie gewohnt justiert und die beiden Pulse in Ort und Zeit überlagert. Die HHG-Quelle bleibt aus, so dass hinter dem Reaktionsmikroskop das Interferenzmuster zweier Infrarotpulse mit einer Photodiode aufgenommen werden kann. Die Steuerspannung, die den Hub des Piezo-Verschiebetisches regelt, ist wie im Experiment eine Sägezahnspannung mit 0,2 Hz, der Hub entspricht einer Zeitverzögerung von 3,5 elektromagnetischen Schwingungszyklen der Fundamentalen.

Das Interferenzmuster und seine Phasenlage zur Sägezahnspannung wird beim Einschalten des Lasers aufgezeichnet, dann noch einmal nach 100, 160 und 240 Minuten Laufzeit. Aus der Phasenverschiebung und der Wellenlänge des Infrarotlasers lässt sich die Drift der Interferometerarme in nm berechnen. Das Ergebnis der Messung zeigt Abbildung 3.10: in **a)** ist eines der Interferogramme zu sehen, in **b)** die Drift in nm in Abhängigkeit von der Zeit. Wie erwartet ergibt sich unmittelbar nach dem Einschalten des Infrarotlasers eine starke Drift, die man der thermischen Last auf den optischen Elementen zuschreiben kann. Erst nach etwa 2,5 Stunden erreicht der gesamte Aufbau das thermische Gleichgewicht, in dem das Interferometer dann weitgehend stabil ist. Beim



**Abbildung 3.11:** Transmissionskurven verschiedener Filter im Wellenlängenbereich 10 bis 80 eV. Den experimentellen Anforderungen entsprechend können unterschiedlich breite Spektralbereiche und verschiedene Photonenergien selektiert werden. Daten aus [xra].

Experimentieren wurde der Femtosekundenlaser deshalb stets so frühzeitig wie möglich in die Vakuumkammer geleitet. So hat das Interferometer genügend Zeit, das thermische Gleichgewicht zu erreichen, bevor ca. 3 bis 4 Stunden später die Datenaufnahme mit dem Reaktionsmikroskop beginnt.

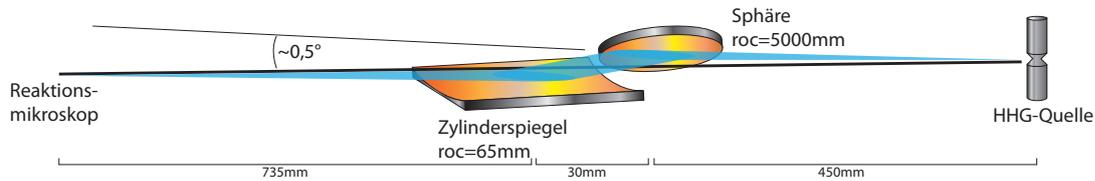
Darüber hinaus bieten die Seitenbandoszillationen selbst ein Signal, das die Phasenlage des Infrarotlasers enthält; bei einer RABITT-Messung wird insoweit die Interferometerdrift „mitgeschrieben“ und kann bei der Datenauswertung entsprechend berücksichtigt werden. Je länger die Messung ohne Unterbrechungen läuft, desto kleinere Korrekturen sind nötig. Abbildung 3.10 zeigt außerdem, dass die Gesamtdrift ab der zweiten Stunde Messbetrieb unterhalb von einigen zehn Nanometer über mehrere Stunden beträgt. Diese Korrekturen sind also nur dann notwendig, wenn über sehr kleine Delaybereiche gescannt wird, bei denen eine Zeitauflösung wesentlich kleiner als die Zykluslänge verlangt wird (vgl. Abschnitt 5.3).

### 3.4.2 Differentielle Pumpstufe

Eine weitere „Kammer in der Kammer“ (oben rechts in Abbildung 3.9 auf Seite 61) beherbergt die fokussierenden Optiken für harmonische und infrarote Laserimpulse. Hier werden die Impulse außerdem räumlich und zeitlich überlagert. Gleichzeitig dient die Kammer als differentielle Pumpstufe, die den Druck im Vergleich zur umgebenden Vakuumkammer um weitere zwei Größenordnungen verringert.

Infrarote und ultraviolette Strahlung treten durch verschiedene Flansche ein, weil als Fenster für den ultravioletten Strahl nur dünne Metallfilter in Frage kommen, die für infrarotes Licht undurchlässig sind. Auf dem Filtrrad **FW**<sup>25</sup> können je nach den Anfor-

<sup>25</sup>Newport Spectra-Physics GmbH, 64291 Darmstadt, www.newport.com



**Abbildung 3.12:** Fokussierungseinheit für hohe harmonische Strahlung. In diesem modifizierten Kirkpatrick-Baetz-Aufbau bündelt ein sphärischer Spiegel die Strahlung in horizontaler Richtung, ein Zylinderspiegel übernimmt die Fokussierung in vertikaler Richtung.

derungen des Experiments bis zu 8 verschiedene Metallfilter unterschiedlicher Dicken montiert werden. Abbildung 3.11 zeigt die Transmissionskurven einiger Filtermaterialien, die im Wellenlängenbereich der harmonischen Strahlung an unserem Experiment in Frage kommen.

Der aufgeweitete infrarot-Laserstrahl tritt durch ein Pellicle (**P1**), einen  $2\ \mu\text{m}$  dünnen Nitrozellulosefilm, in die differentielle Pumpstufe ein und fällt dort auf einen off-axis-Parabolspiegel<sup>26</sup> **PM**, der Strahlung bei  $90^\circ$  Ablenkung optimal fokussiert. Die Brennweite des Paraboloids beträgt  $600\ \text{mm}$ . Sein Substrat weist mittig eine Bohrung mit  $2\ \text{mm}$  Durchmesser auf, durch die die ultraviolette harmonische Strahlung ins Reaktionsmikroskop gelangt. Somit ist das Paraboloid auch dasjenige optische Element, an dem die beiden Zweige des Interferometers wieder überlagert werden. Die zentrale Bohrung im Parabolspiegel ist auch bei der Justage des Interferometers hilfreich – darauf wird in Abschnitt 3.4.4 genauer eingegangen. Ab dem Parabolspiegel verlaufen XUV- und IR-Strahlen kollinear bis zum Reaktionsvolumen.

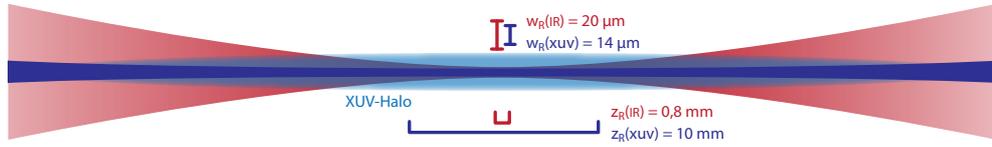
### 3.4.3 Fokussierung

Die Fokussierung der harmonischen Strahlung geschieht in einer modifizierten Kirkpatrick-Baetz-Anordnung (Abbildung 3.12), bei der die Fokussierung in den beiden Ebenen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Strahls mit separaten Spiegeln geschieht. Die ursprüngliche Kirkpatrick-Baetz-Konfiguration verwendet zwei sphärische Spiegel, deren Substrate im  $90^\circ$ -Winkel zueinander stehen [Ton79], unser Aufbau weicht davon insofern ab, als für die Fokussierung in vertikaler Richtung anstelle einer zweiten Sphäre ein kurzbrennweitiges Zylindersubstrat gewählt wurde. Aufgrund des streifenförmigen Einfalls sind die effektiven Brennweiten der Spiegel entsprechend Gleichung 3.1 und 3.2 auf Seite 53 verändert und so gewählt, dass sie bei einem Einfallswinkel von ca.  $6^\circ$  die HHG-Quelle auf das Zentrum des Reaktionsmikroskops abbilden.

Für das Gelingen von Pump-Probe-Messungen mit jeweils einem infraroten und einem ultravioletten Lichtimpuls ist eine optimale Anpassung der Fokalvolumina ausschlaggebend. So liefert ein Streaking-Experiment nur dann die gewünschten Ergebnisse, wenn der Infrarot-Fokus größer ist als derjenige der HHG-Strahlung. Unter Annahme gaußscher Strahlen erhält man für die Foki im vorliegenden Experiment

$$(3.4) \quad z_r(\text{IR}) = 0,8\ \text{mm} \quad \text{und} \quad \omega_f(\text{IR}) = 20\ \mu\text{m},$$

<sup>26</sup>Kugler GmbH, 88682 Salem, [www.kugler-precision.com](http://www.kugler-precision.com)



**Abbildung 3.13:** Räumliche Überlagerung der Foki von infrarotem und ultraviolettem Laserstrahl. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Messungen legen den Verdacht nahe, dass durch die Oberflächenrauigkeit der für die XUV-Fokussiereinheit verwendeten Spiegelsubstrate ein Halo ultravioletter Strahlung entsteht, der die rechnerisch aufeinander abgestimmten Foki aus dem Gleichgewicht bringt.

$$(3.5) \quad z_r(\text{XUV}) = 11 \text{ mm} \quad \text{und} \quad \omega_f(\text{XUV}) = 14 \text{ } \mu\text{m}.$$

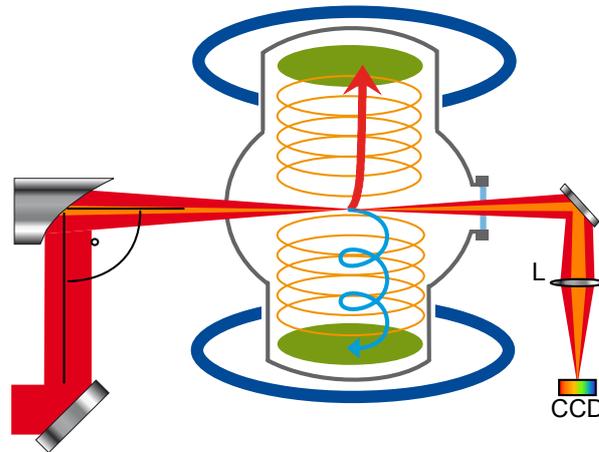
Dabei ist  $z_r$  die Rayleighlänge und  $\omega_f$  die Strahlweite am Fokus. Die Strahlparameter wurden unter Verwendung der Wellenlängen  $\lambda_{\text{IR}} = 790 \text{ nm}$  und  $\lambda_{\text{XUV}} = 30 \text{ nm}$ , der Fokallängen  $f_{\text{IR}} = 600 \text{ mm}$  und  $f_{\text{XUV}} = 750 \text{ mm}$  sowie der Strahldurchmesser am fokussierenden Spiegel  $d_{\text{IR}} = 30 \text{ mm}$  und  $d_{\text{XUV}} = 2 \text{ mm}$  berechnet. Allerdings wird die Intensität des Infrarot-Fokus über die Blendenöffnung von **B** in Abbildung 3.9 reguliert. Dies beeinflusst gleichzeitig auch das Fokolvolumen des IR-Strahls, so dass je nach den Anforderungen des jeweiligen Experiments gegebenenfalls Anpassungen vorgenommen werden müssen, etwa indem ein zusätzlicher Abschwächer zur Intensitätsregulierung eingesetzt wird.

Theoretisch sollte also der infrarot-Fokus ein wenig größer sein als der Fokuspunkt der HHG-Strahlung, was für die angestrebten Experimente optimal wäre. Die Ergebnisse der Streaking-Experimente (vgl. Abschnitt 5.7) deuten jedoch darauf hin, dass die Foki nicht so gut wie erwartet aufeinander abgestimmt sind. Ein Grund hierfür könnten nicht ausreichend glatte Oberflächen der Substrate in der Fokussiereinheit für die harmonische Strahlung sein. Diese können zu einer teilweisen diffusen Reflexion des ultravioletten Lichts führen und so einen Halo diffusen Lichts erzeugen, der den eigentlichen XUV-Fokus umgibt [Pfe], wie in Abbildung 3.13 angedeutet. Dieser Verdacht ist Gegenstand aktueller Untersuchungen.

Beim Durchlaufen der Fokussiereinheit erfährt die harmonische Strahlung einen seitlichen Versatz von 2 mm und eine Ablenkung um einen sehr kleinen Winkel von ca.  $0,5^\circ$ . Diese Abweichungen bestimmen den weiteren Verlauf der Beamline: Der Reduzierflansch an welchem die Beamline an die Vakuumkammer anschließt ist exzentrisch, und ein Membranfaltbalg vor dem Reaktionsmikroskop erlaubt kleine seitliche Verschiebungen zur Feinjustage der Beamline.

### 3.4.4 Justage

Neben im Verhältnis zueinander ausgewogenen Fokolvolumina ist bei Pump-Probe-Messungen eine optimale und zuverlässige Überlagerung der beteiligten Laserimpulse in Ort und Zeit die Grundvoraussetzung. Um dies sicher zu stellen, wurde hinter dem Reaktionsmikroskop ein Abbildungssystem aufgebaut, mit dem die Foki der beiden Interferometerarme außerhalb der Vakuumkammer beobachtet werden können (Abbildung



**Abbildung 3.14:** Ein Abbildungssystem hinter dem Reaktionsmikroskop dient zur Einstellung und Überwachung des zeitlichen und räumlichen Überlapps von infrarotem und ultraviolettem Laserimpuls.

3.14). Bei der Justage bleibt die HHG-Quelle stets aus; statt werden dessen zwei Ti:Sa-Impulse oder, bei größeren Änderungen am Aufbau, ein Helium-Neon-Laser verwendet.

Da der HHG-Strahl die Beamline definiert, beschränkt sich die Justage darauf, den IR-Strahl kollinear zur Propagation des ultravioletten Lichts auszurichten. Dazu werden zwei charakteristische und auch bei geschlossener Vakuumkammer gut zugängliche Punkte auf der Beamline benutzt: der Parabolspiegel und der Fokus, der mit Hilfe des Abbildungssystems auf einer Kamera hinter dem Reaktionsmikroskop beobachtet wird. Mit dem motorisierten Spiegel **M1** legt man die Mode des Infrarotstrahls konzentrisch auf die Bohrung im Substrat des Paraboloids – und damit auch zentrisch auf den XUV-Strahl. Die Lage des IR-Strahls auf dem Paraboloid lässt sich mit einem Papier am Sichtfenster des Reaktionsmikroskops beobachten: fällt auf dem Probe-Pfad Licht auf den Parabolspiegel, ist die zentrische Bohrung leicht auszumachen; die Justage des pump-Pfades durch die Mitte dieser Bohrung ist dann gut zu sehen. Mit **M2** überlagert man anschließend die Foki auf der Kamera. Weil beide motorisierte Spiegel im IR-Pfad des Interferometers stehen, lässt die Justage die HHG-Quelle unbeeinflusst. Eine zusätzliche Kontrolle über die Qualität der Justage liefert eine Verschiebung der Kamera entlang der Propagationsrichtung des Lasers: Nur wenn der Infrarotstrahl im richtigen Winkel auf das off-axis-Parabol fällt, ergibt sich hier ein runder, enger Fokus, der sich entlang der Propagationsachse des Lasers kreisförmig öffnet. Bereits geringe Abweichungen des Einfallswinkels führen zu Astigmatismen bzw. einem verzerrten Fokus.

Für die präzise Überlagerung der beiden Impulse entlang der Flugzeitachse des Spektrometers ( $z$  im Koordinatensystem des Reaktionsmikroskops, vgl. Abbildung 4.1 auf Seite 75) liefert das Reaktionsmikroskop selbst ein weiteres Hilfsmittel: Da bei Wechselwirkungen von Photonen mit Atomen der Impulsübertrag durch das Photon vernachlässigbar klein ist, wiegen sich bei Ionisation Elektronen- und Ionenimpuls gegenseitig auf. Die Summe der Impulse von Elektron und Ion,  $p_{\text{sum}} = p_{\parallel}^e + p_{\parallel}^i$ , ist bei

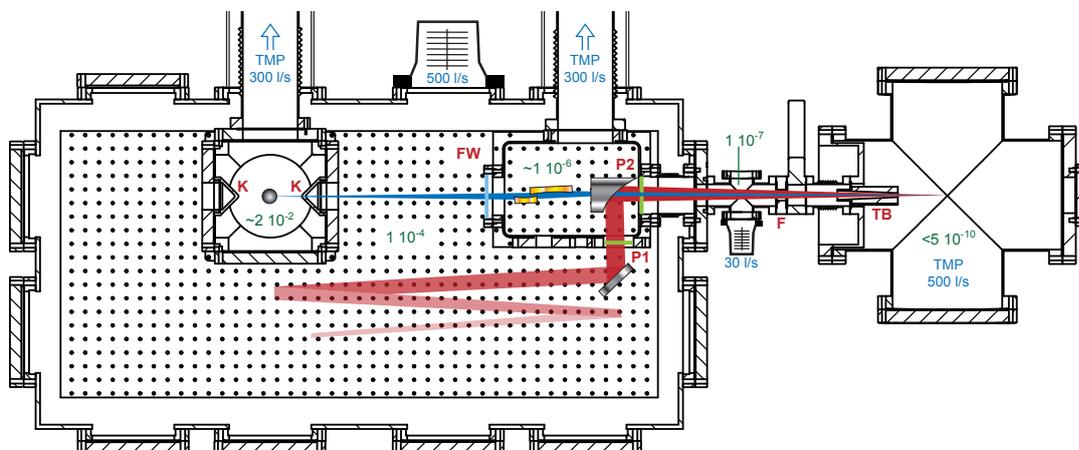
Einfachionisations-Ereignissen folglich eine enge Verteilung, die symmetrisch um Null liegt, sofern das Reaktionsvolumen mittig im Spektrometer liegt<sup>27</sup>:  $p_{\text{sum}} = \sum p_{\parallel} = 0$ . Werden die Targetatome von XUV- beziehungsweise IR-Strahlung an voneinander abweichenden Positionen entlang der Flugzeitachse ionisiert, sind auch die Verteilungen der Impulssummen der Ionisation mit jeweils einem der beiden Strahlen gegeneinander verschoben. Dies kann man ausnutzen, um die beiden Lichtimpulse genau im Mittelpunkt des Spektrometers zu überlagern. Zusammen mit den Beobachtungen mit Hilfe des Abbildungssystems und der Kamera erreicht man damit eine verlässliche und reproduzierbare räumliche Überlagerung des IR- mit dem XUV-Impuls.

Die räumliche Überlagerung unterliegt auch unter Anwendung der oben beschriebenen Vorgehensweise noch einer gewissen Unsicherheit bei der Beurteilung des Überlapps.  $p_{\text{sum}}$  ermöglicht zwar eine sehr genaue Einstellung in der Flugzeit-Richtung des Spektrometers; für die dazu senkrechten Achsen  $x$  und  $y$  ist die Orts- bzw. Impuls-Auflösung jedoch etwa um einen Faktor 3 schlechter, so dass das Reaktionsmikroskop für diese Raumrichtungen kein vergleichbar genaues Kriterium bietet (siehe Abschnitt 4.4). Deshalb wurden mögliche Verbesserungen diskutiert. Experimente mit Reaktionsmikroskopen am Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH) haben gute Erfahrungen mit Szintillator-Plättchen gemacht, die bei der Justage anstelle des Jets im Zentrum des Reaktionsmikroskop positioniert werden [Sen]. Aufgrund der Mehrphotonenprozesse, die bei der Justage mit infrarotem Licht notwendig sind, sind die beiden Foki im Szintillatormaterial sehr gut definiert, so dass ihre räumliche Lage zuverlässig beurteilt werden kann. Ein ähnlicher Aufbau für das Reaktionsmikroskop im Attosekunden-Labor könnte sich deshalb als hilfreich erweisen.

Zum Einstellen der zeitlichen Überlagerung stehen zwei verschiedene Methoden zur Verfügung: die Interferenzen zwischen den beiden Impulsen können entweder räumlich auf der Kamera beobachtet werden (die dazu ein Stück aus dem Fokus herausbewegt wird) oder im Frequenzraum mit einem Spektrometer<sup>28</sup>. Bei der spektrometrischen Methode sind die entstehenden Interferenzmuster leichter auszumachen als mit der Kamera, deshalb eignet sich dieses Verfahren besonders nach größeren Veränderungen des optischen Aufbaus in der Kammer, wenn die zeitliche Überlagerung ganz neu gefunden werden muss.

<sup>27</sup>Dieser Zusammenhang wird auch zur Kalibrierung des Spektrometers benutzt, da die genaue Kenntnis von Spektrometergeometrie und den angelegten elektrischen Spannungen dazu nicht ausreichen. Man verwendet deshalb zusätzliche Parameter, um anhand der dem Experiment zugrundeliegenden physikalischen Zusammenhänge  $p_{\text{sum}} = 0$  einzustellen. Diese Parameter sind empfindlich von der Position des Reaktionsvolumens abhängig.

<sup>28</sup>Das Spektrometer misst das von der Zeitverzögerung  $\Delta\tau$  abhängige Signal 
$$I(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} |E_1(t, \omega) + E_2(t - \Delta\tau, \omega)|^2 dt = E_1^2 + E_2^2 + E_1 \mathbf{e}_1 E_2 \mathbf{e}_2 \cdot 2 \cos(\omega \Delta\tau),$$
 wobei  $E_{1,2}$  die elektrischen Felder der beiden Interferometerarme sind und  $\mathbf{e}_{1,2}$  deren Richtungsvektoren. Das Signal ist aufgrund des Mischungsterms mit  $2 \cos(\omega \Delta\tau)$  moduliert; das heißt für große (positive wie negative) Zeitverzögerungen ergibt sich eine hochfrequente Modulation in  $\omega$ , bei verschwindendem  $\Delta\tau$  verschwindet auch die Modulation. Der Nullpunkt des Zeitüberlapps lässt sich auf diese Weise gut einstellen.



**Abbildung 3.15:** Zwei differentielle Pumpstufen sowie die separat gepumpte HHG-Quelle erlauben es, zwischen HHG-Quelle ( $2 \cdot 10^{-2}$ ) und Reaktionsmikroskop ( $< 5 \cdot 10^{-10}$ ) acht Größenordnungen Druckdifferenz aufrecht zu erhalten. Grüne Zahlen geben Drücke in mbar an, blaue die Saugleistung der verschiedenen Pumpen.

### 3.5 Druckkontrolle von der Harmonischen-Quelle bis zum Reaktionsmikroskop

Zwischen HHG-Quelle ( $2 \cdot 10^{-2}$  mbar) und Reaktionsmikroskop ( $< 5 \cdot 10^{-10}$  mbar) muss eine Druckdifferenz von acht Größenordnungen aufrecht erhalten werden. Dies gelang im vorliegenden Experiment mit zwei differentiellen Pumpstufen, die an dieser Stelle kurz besprochen werden sollen. Die verwendeten Formeln sind im Anhang auf Seite 123 zusammengestellt. Abbildung 3.15 gibt einen Überblick über das Vakuumsystem und die verwendeten Pumpen.

In der Targetkammer ist aufgrund der Gaslast der HHG-Quelle nur ein Druck von ca.  $2 \cdot 10^{-2}$  mbar erreichbar. Die Bohrungen an den Konusspitzen haben Durchmesser von 1,5 bzw. 2 mm. Für die Berechnung von deren Leitwert verwenden wir Gleichung A.4 für eine dünne Blende, und erhalten  $7,3 \cdot 10^{-4}$  m<sup>3</sup>/s. Bei einem Saugvermögen von 500 l/s erwarten wir in der HHG-Kammer einen Druck von  $2,9 \cdot 10^{-5}$  mbar. Tatsächlich ist der Druck in der Vakuumkammer aufgrund der großen Oberfläche der vielen optischen Komponenten und der häufigen Belüftungen üblicherweise um etwa einen Faktor 3 schlechter. Erst nach langer Pumpzeit werden Drücke im Bereich weniger  $10^{-5}$  mbar erreicht.

Die erste differentielle Pumpstufe, die auch die fokussierenden Optiken beherbergt, ist gegenüber der umliegenden Vakuumkammer theoretisch vollständig abgeschlossen, da die Strahlung durch gasundurchlässige Filter (im Fall der XUV-Strahlung) bzw. einen Nitrozellulosefilm (im infraroten Interferometerarm) eintritt. Jedoch schließen die Halterungen dieser Optiken nicht gasdicht. In der differentiellen Pumpstufe werden unter diesen Bedingungen Drücke im Bereich  $1 \cdot 10^{-6}$  mbar erreicht; das ist nur wenig schlechter als der rechnerisch ohne Leck und unter Vernachlässigung des Einflusses der in der

Kammer untergebrachten optischen Elemente erwartete Wert von  $\approx 6 \cdot 10^{-7}$  mbar (Berechnung im Anhang auf Seite 124).

Die Fokussierkammer ist zur Beamline hin mit einer Pellicle-Blende verschlossen, die infrarotes Licht durchlässt und in der Mitte ein Loch mit 2 mm Durchmesser aufweist, durch welches die HHG-Strahlung geht. Das Pellicle schließt allerdings nicht bündig mit der Kammerwand ab. Der Leitwert dieser Blende ist aufgrund der komplexen Geometrie nicht ohne weiteres zu bestimmen; zur Abschätzung kann man aber den Leitwert eines Spalts (für den Spalt zwischen Kammerwand und Pellicle-Halterung) und den des mittigen Lochs für die XUV-Strahlung addieren. Mit Gleichung A.4 und Gleichung A.7 ergibt sich ein gesamter Leitwert von

$$(3.6) \quad L_{\text{Pellicle}} = L_{\text{Spalt}} + L_{\text{Loch}} = 4,4 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s} + 3,6 \cdot 10^{-4} \text{ m}^3/\text{s} = 4,8 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s},$$

bzw. ein Druck von  $1,5 \cdot 10^{-7}$  mbar in der Beamline unmittelbar vor dem Eintritt ins Reaktionsmikroskop. Die experimentellen Werte stimmen damit gut überein.

Das Reaktionsmikroskop kann von der HHG-Kammer, die für Justagearbeiten häufig geöffnet werden muss, mit einem pneumatisch betriebenen Schiebeventil (**GV** in Abbildung 3.9 auf Seite 61) abgetrennt werden. Dieses hat ein Sichtfenster aus optischem Glas, so dass auch bei geschlossenem Ventil und belüfteter HHG-Kammer der gesamte Strahlengang bis nach dem Reaktionsmikroskop beobachtet und justiert werden kann.

Als letzte Druckbarriere vor dem Reaktionsmikroskop wurde ein trichterförmiges Rohr angefertigt, dessen Innendurchmesser sich am Umfang des fokussierenden Infrarotstrahls orientiert, so dass das Strahlrohr so eng wie möglich gehalten wird. Aus den Dimensionen dieses Rohrs – großer Innendurchmesser 17 mm, Innendurchmesser am Reaktionsmikroskop 7,7 mm, Länge 110 mm – errechnet man nach Gleichung A.6 den Leitwert  $1 \cdot 10^{-3} \text{ m}^3/\text{s}$  und erwartet im Reaktionsmikroskop einen Druck von  $2 \cdot 10^{-10}$  mbar. Dies entspricht auch den experimentellen Beobachtungen. Bei eingeschaltetem Targetjet im Reaktionsmikroskop verschlechtert sich der Druck dort abhängig von der Gasart des Jets, bleibt jedoch immer im Bereich von  $10^{-10}$  mbar.

### 3.6 Aktuelle Spezifikationen und mögliche Verbesserungen

Zum Abschluss des Kapitels über die Attosekunden-Quelle sollen hier nochmals deren wichtigste Spezifikationen zusammengestellt werden. Eine detaillierte Beschreibung des Reaktionsmikroskops – soweit nicht in Kapitel 4 abgehandelt – findet sich in [Gop10].

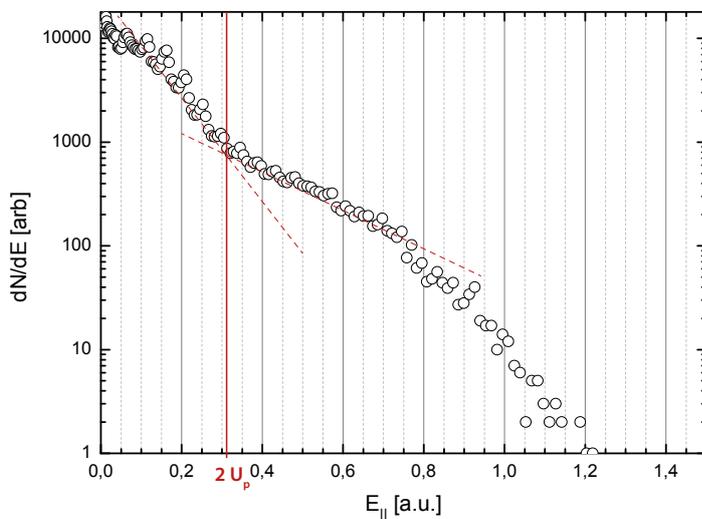
#### Zählraten

Bei Einfachionisation von Edelgasen mit harmonischer Strahlung aus der Attoskunden-Beamline wurden 1000 bis 2000 Ereignisse/s im Reaktionsmikroskop erreicht. Eine weitere Erhöhung der Zählraten war zu der Zeit, als die hier diskutierten Messungen durchgeführt wurden, aufgrund der beträchtlichen Anzahl sogenannter „prompts“ –

Ereignissen praktisch ohne Zeitverzögerung, die von reflektierten XUV-Photonen ausgelöst werden – nicht möglich. Im Zusammenspiel mit den zur Zeit durchgeführten Umbaumaßnahmen (siehe Abschnitt „Mögliche Verbesserungen“) konnten diese weitgehend eliminiert werden, so dass inzwischen wieder eine Erhöhung der HHG-Zählraten angestrebt wird.

## Intensität im Infrarotfokus

Zur Bestimmung der Intensität der Infrarotstrahlung *in situ* im Fokus des Reaktionsmikroskops wurde eine Methode verwendet, die in [Jes04] beschrieben ist. Dabei wird die kinetische Energie der Photoelektronen aus Einfachionisation von Neon entlang der linearen Polarisationsrichtung des Lasers gemessen. Der Tunneltheorie [Del98] zufolge erwartet man eine gaußförmige Verteilung in  $p$ , die Messung zeigt jedoch einen abrupten Knick bei einer Energie von  $2U_p$  (bzw. bei Impulsen  $p > 2\sqrt{U_p}$ ), weil oberhalb dieser Energie das sogenannte „rescattering regime“ beginnt – der Energiebereich also, in dem die Ionisation auch durch zurückgestreute Elektronen dominiert [Pau94]. Aus der Position des Knicks lässt sich  $U_p$  und daraus die Laserintensität im Fokus ermitteln.



**Abbildung 3.16:** Bestimmung der IR-Intensität im Fokus nach der in [Jes04] beschriebenen Methode: Bei der Einfachionisation von Neon mit Infrarotstrahlung zeigt die Energieverteilung entlang der Polarisationsrichtung emittierter Elektronen einen auffälligen Knick, der den Übergang von direkter Ionisation zur Ionisation durch Rückstreuung markiert. Dies geschieht bei  $2U_p$ , wobei  $U_p$  das ponderomotive Potential des Laserfeldes ist.

Die Messung zeigt Abbildung 3.16, die Blende **B** war dabei weit geöffnet ( $\varnothing = 18$  mm, Leistung im IR-Zweig 0,665 W). Dem Energiespektrum entnehmen wir, dass bei diesen Einstellungen  $2 \cdot U_p = 0,31$  a.u. = 8,432 eV =  $1,3515 \cdot 10^{-18}$  J ist. Daraus folgt mit Gleichung 2.9  $I_{\text{IR}} = 1,5 \cdot 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>.

Für die Messung der Seitenbandoszillationen bzw. RABITT-Traces, deren Ergebnisse in Abschnitt 5.3 präsentiert werden, muss die Intensität des Infrarotlichtes auf Werte im niedrigen  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>-Bereich abgesenkt werden, weil bei diesen Experimenten Multiphotonenprozesse ja gerade vermieden werden sollen. Dann ist eine *in situ*-Messung der Infrarotintensität wie oben beschrieben nicht mehr möglich. Man kann sich aber mit einer Abschätzung behelfen, wenn man die Veränderung der Blendenöffnung und die damit einhergehende Vergrößerung des Fokalvolumens berücksichtigt: Bei den Messungen der Seitenbandoszillationen war die Blende 5 mm weit geöffnet, die Leistung im Infrarotzweig des Interferometers noch 0,140 W/cm<sup>2</sup>. Das heißt, die Leistung sinkt auf etwa ein Fünftel, zugleich vergrößert sich das Fokalvolumen – unter Annahme gaußscher Strahlen – um den Faktor 200. Damit sinkt die Intensität im Fokus insgesamt um drei Größenordnungen auf rund  $1,5 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>. Mit diesen Parametern wurden, was die Sichtbarkeit der Seitenbandoszillationen angeht, die besten Resultate erzielt. Andere Forschungsgruppen arbeiten mit ähnliche intensiven IR-Feldern [Swo09].

## Mögliche Verbesserungen

Im Lauf der ersten Messungen am Attosekunden-Reaktionsmikroskop wurde die Notwendigkeit einzelner Verbesserungen am experimentellen Aufbau deutlich. Die wichtigsten sollen hier kurz zusammengefasst werden:

- **Neue Spiegel für die xuv-Fokussiereinheit:** Wie in Abschnitt 3.4.3 erläutert, reicht die Qualität der in der XUV-Fokussiereinheit verwendeten Substrate offenbar nicht aus, um die harmonische Strahlung sauber zu fokussieren. Die Spiegel werden deshalb in Kürze gegen deutlich bessere Substrate ausgetauscht, deren Oberflächenrauigkeit und Beschichtung für unsere Wellenlängenbereiche optimiert wurde<sup>29</sup>.
- **xuv-Spektrometer hinter dem Reaktionsmikroskop:** Zur Überwachung der Stabilität der HHG-Quelle während laufender Messungen ist es wünschenswert, das XUV-Spektrum ununterbrochen kontrollieren zu können. Das gilt insbesondere bei Experimenten mit einzelnen Attosekundenpulsen, deren Stabilität empfindlich von der Justage der Kapillare zur spektralen Verbreiterung abhängt. Deshalb wird momentan ein zweites XUV-Spektrometer aufgebaut, das hinter dem Reaktionsmikroskop angebracht und eine online-Überwachung des HHG-Spektrums erlauben wird [Sch13].
- **Vermeidung von Rückreflektionen vom Sichtfenster:** Das Sichtfenster am hinteren Ende des Reaktionsmikroskops – also dort, wo die Strahlung zur Überprüfung der Justage austritt und in das Abbildungssystem (Abschnitt 3.4.4) geleitet wird – stellt insofern einen Schwachpunkt dar, als dass an der Oberfläche des Fensters ein geringer Teil der nicht im Targetjet absorbierten XUV-Photonen reflektiert wird und auf die Detektoren trifft, die dann ein vermeintliches Teilchen registrieren (sogenannte „prompts“ bzw. „prompte“ Ereignisse praktisch ohne Zeitverzögerung). Das soll zusammen mit dem Einbau des neuen Spektrometers

<sup>29</sup>Fraunhofer-Institut für Angewandte Optik und Feinmechanik, 07745 Jena

behoben werden, indem den Photonen keine Reflektionsfläche so nah am Reaktionsvolumen mehr geboten wird.

## 4 Reaktionsmikroskop – Grundlagen und Anwendungen

Die im Rahmen dieser Doktorarbeit aufgebaute Beamline wurde zusammen mit einem Reaktionsmikroskop verwendet. Dieses besteht aus einem COLTRIMS<sup>1</sup> und einem Elektronenspektrometer, was die gleichzeitige Messung positiver wie negativer Fragmente quantendynamischer Vorgänge ermöglicht<sup>2</sup>. Im Zentrum der Apparatur trifft ein fokussierter Laserstrahl auf einen kalten und kollimierten Überschall-Gasjet, der die Targetatome oder -moleküle enthält. Bei der Wechselwirkung des Lichts mit den Atomen oder Molekülen im Gasjet entstehen – je nach Photonenenergie und Target – freie Elektronen, Ionen oder Molekülionen. Schwache elektrische und magnetische Felder projizieren diese auf seitlich angeordnete, zeit- und ortsempfindlichen Detektoren. Auf diese Weise wird ein großer Teil der geladenen Teilchen, die aus der Wechselwirkung mit den beiden Laserstrahlen hervorgehen, erfasst. Aus den Informationen über den Auftreffort und die Ankunftszeit eines Partikels am Detektor wird dessen dreidimensionaler Impulsvektor mit hoher Auflösung berechnet. Darüber hinaus erlauben Koinzidenzmessungen, verschiedene Reaktionskanäle zu unterscheiden. Dadurch ist es möglich, praktisch den gesamten relevanten Impulsraum auch für mehrere Teilchen gleichzeitig zu erfassen. Vor der Entwicklung dieser Technik war man gezwungen, viele kleine Ausschnitte des Impulsraums nacheinander zu untersuchen, was insbesondere bei Koinzidenzmessungen sehr lange Messzeiten zur Folge hatte. Messungen von besonders kleinen Wirkungsquerschnitten waren meist überhaupt nicht möglich.

Im Folgenden stellt dieses Kapitel in Abschnitt 4.1 verschiedene Anwendungen und in Abschnitt 4.2 das Messprinzip und den Aufbau eines Reaktionsmikroskops dar. Die Rekonstruktion der Impulsvektoren der geladenen Teilchen erklärt Abschnitt 4.3, bevor in Abschnitt 4.4 die Spezifikationen des Reaktionsmikroskops, das speziell für die Anforderungen der Attosekunden-Beamline aufgebaut wurde, im Detail dargestellt werden.

### 4.1 Anwendungen

Reaktionsmikroskope sind seit ihrer Erfindung [Mos96] für ein breites Spektrum unterschiedlicher Experimente an verschiedensten Quantensystemen eingesetzt worden [Ull03]. Ursprünglich wurden sie entwickelt, um Stöße von Ionen mit Atomen und Molekülen zu untersuchen, etwa in Speicherringen und Beschleunigeranlagen. In jüngeren Jahren wurden mit Reaktionsmikroskopen umfangreiche Messungen unter anderem zur

---

<sup>1</sup>Cold target recoil ion momentum spectrometer

<sup>2</sup>Zuweilen werden auch Reaktionsmikroskope als COLTRIMS bezeichnet. Dies ist jedoch irreführend, da es die Unterscheidung zwischen reinen Ionen-Detektoren und Detektoren für sowohl Ionen als auch Elektronen verschleiert.

Dissoziation von Wasserstoff ( $H_2$ ) und Deuterium ( $D_2$ ) mittels intensiven Laserpulsen durchgeführt. Unter Verwendung von Impulsen mit wenigen Femtosekunden Dauer gelangen „Echtzeitabbildungen“ von schnellsten Molekülschwingungen mit einer Periode von nur 11 fs; die Bewegung der Atomkerne gegeneinander konnte bezüglich Rotation und Vibration direkt verfolgt und abgebildet werden [Erg06b]. Bei den neuesten Entwicklungen zeichnet sich aus den in [Ull12] dargelegten Gründen ein Trend in Richtung hochenergetischer Photonen ab, die erst seit neuem in genügender Intensität und mit kurzen Impulsdauern zur Verfügung stehen: extrem ultraviolette Strahlung sowohl aus HHG-Quellen als auch aus Elektronenlasern (FELs) werden derzeit mit Reaktionsmikroskopen kombiniert.

Angesichts der überaus erfolgreichen Forschungsarbeiten mit COLTRIMS und Reaktionsmikroskopen in zahlreichen Laboren liegt es nahe, die selben experimentellen Techniken auch für Untersuchungen mit Attosekundenimpulszügen und einzelnen Attosekundenimpulsen auszunutzen. Da die derzeit kürzesten Lichtimpulse – der Rekord liegt bei 80 as – in den letzten zehn Jahren nicht nur massive Fortschritte in puncto Stabilität, Kontrolle und Manipulierbarkeit verzeichneten, sondern auch anderweitig unerreichbare Auflösungen in Zeit und Ort versprechen (vgl. Kapitel 2), eröffnet deren Kombination mit Reaktionsmikroskopen vollständig neue Möglichkeiten. Unter anderem in Lund<sup>3</sup>, Mailand<sup>4</sup>, Garching<sup>5</sup>, Paris<sup>6</sup> und Boulder<sup>7</sup> – und zum Teil angestoßen durch die Entwicklungen in Heidelberg – haben Forschungsgruppen eigene Projekte begonnen, welche die experimentellen Techniken von Reaktionsmikroskopen mit denen der Attosekundenphysik kombinieren. Aufgrund der enormen experimentellen Herausforderungen hält sich die Ausbeute experimenteller Ergebnisse bisher dennoch in Grenzen: bislang wurden die Doppelionisation von Xenon [Böt05, Guy08a], die Dissoziation von Stickstoff-Molekülen [Gag07] und die Evolution von Feshbach-Resonanzen bei der Dissoziation von Sauerstoff [San08] mit Hohen Harmonischen im Reaktionsmikroskop beobachtet. Bei der Photoionisation von Helium wurden die Winkelverteilungen zweier ATI-Linien und der dazugehörigen Seitenbänder ermittelt [Guy08b].

## 4.2 Messprinzip und Aufbau

Das Messprinzip eines Reaktionsmikroskops beruht auf der Idee, mit Hilfe von elektrischen und magnetischen Feldern die Teilchen so auf orts- und zeitempfindliche Detektoren zu lenken, dass eine Analyse quantendynamische Vorgänge dreidimensional im Impulsraum und bei Erfassung großer Raumwinkelbereiche bis hin zu  $4\pi$  möglich wird.

Dazu wird in einer Vakuumkammer ein Überschall-Gasjet, der die Targetatome oder -moleküle enthält, mit einem Projektilstrahl gekreuzt. Als Projektile können, wie oben erwähnt, sowohl Ionen und Elektronen als auch intensive Laserimpulse oder Photonen aus Synchrotronquellen dienen. Elektrische und magnetische Felder projizieren die bei

<sup>3</sup>Anne L’Huillier, Lunds Tekniska Högskola

<sup>4</sup>Giuseppe Sansone, Politecnico di Milano

<sup>5</sup>Matthias Kling, Max-Planck-Institut für Quantenoptik

<sup>6</sup>Olivier Guyétand, CNRS-Universität Paris Sud

<sup>7</sup>Henry Kapteyn, JILA, University of Colorado in Boulder

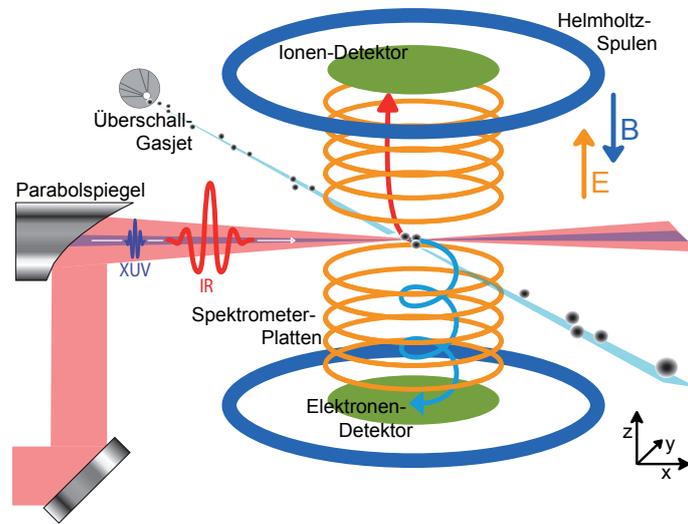


Abbildung 4.1: Schematischer Aufbau eines Reaktionsmikroskops

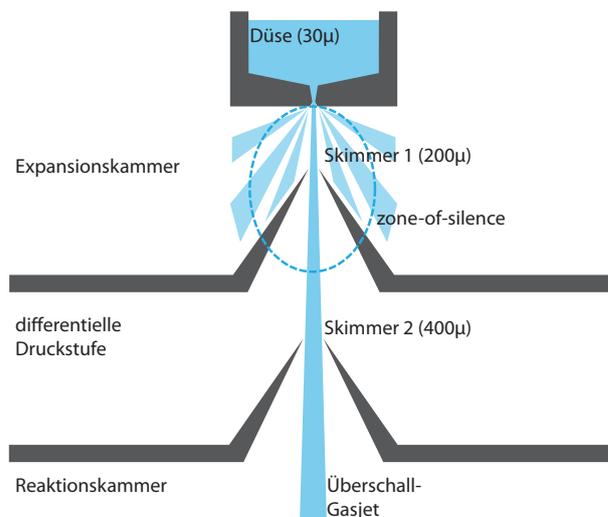
der Wechselwirkung von Projektil und Target erzeugten, elektrisch geladenen Fragmente, auf zeit- und ortssensitive Detektoren. Aus Auftreffort und -zeitpunkt werden anschließend die Impulsvektoren der Reaktionspartner ermittelt. Abbildung 4.1 zeigt schematisch den Aufbau eines Reaktionsmikroskops. Eine detaillierte Beschreibung der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Apparatur findet sich in [Gop10].

### Gasjet-Target

Bei der Impulsrekonstruktion im Reaktionsmikroskop rührt die größte Ungenauigkeit von der thermischen Bewegung der Targetatome her. Um diese möglichst gering zu halten, verwenden wir als Target einen Gasjet, der bei einer Überschallexpansion gekühlt wird. Das ist ein adiabatischer Prozess, der dann auftritt, wenn ein Gas aus einem Bereich hohen Drucks durch eine sehr kleine Öffnung in einen Bereich mit niedrigem Druck strömt. Die Entropie bleibt bei diesem Vorgang gleich, so dass die Abnahme der Gasdichte mit dem Absinken der Temperatur kompensiert wird. Dann gilt:

$$(4.1) \quad \underbrace{E_{\text{therm}} + E_p}_{\text{freie Enthalpie } H} = \frac{5}{2}k_B T_0 \Rightarrow p_{\text{Jet}} = \sqrt{5k_B T_0 m},$$

wobei  $H$  die freie Enthalpie bezeichnet, die sich aus der thermischen Energie  $E_{\text{therm}}$  und der im Molekül durch den Gasdruck gespeicherten Arbeit  $E_p = k_B T_0$  zusammensetzt.  $p_{\text{Jet}}$  ist der Impuls der Targetteilchen mit der Masse  $m$ ,  $T_0$  die Temperatur des Gases vor der Expansion und  $k_B$  die Boltzmannkonstante. Im Experiment lassen sich



**Abbildung 4.2:** Erzeugen eines Überschall-Gasjets: in der Expansionszone hinter der Düse entsteht eine „zone of silence“, in welcher sich die Gasteilchen mit Überschallgeschwindigkeit in Richtung Spektrometermitte fortbewegen. Scharfkantige Skimmer trennen diesen Teil des Gasstrahls von dem übrigen austretenden Gas.

diese idealen Bedingungen nicht erreichen, da die Teilchen untereinander und mit dem Restgas stoßen. Man verwendet daher eine empirische Näherungsformel, die *Speedratio*, welche die interne Temperatur des expandierenden Gases mit der Jetgeschwindigkeit und der thermischen Geschwindigkeit vor Eintritt in die Expansionsdüse verknüpft [Fis03]. Mit Düsendrücken von 3 bis 5 bar für Messungen an Edelgasen, wie sie in den hier vorgestellten Experimenten verwendet wurden in [Gop10] Targettemperaturen von  $T \approx 0,85$  K errechnet, die mit einer Impulsbreite von  $\Delta p \approx 0,26$  a.u. einhergehen.

Bei der schnellen Expansion ins Vakuum überschreiten die Gasteilchen die Schallgeschwindigkeit; an der Düsen Spitze bildet sich die „zone of silence“. Aus diesem Bereich schneiden scharfkantige Skimmer einen engen Strahl heraus (Abbildung 4.2). Dadurch wird die thermische Bewegung der Targetatome oder -moleküle in  $x$ - und in  $z$ -Richtung nochmals eingeschränkt, so dass  $\Delta p_x \approx \Delta p_z \approx 0,12$  a.u. [Gop10].

## Spektrometer

Die Homogenität der elektrischen und magnetischen Felder ist bei Reaktionsmikroskopen ausschlaggebend für die Qualität der Messungen. Deshalb wurde das elektrische Feld im vorliegenden Aufbau mittels 32 ringförmiger Platten in Abständen von jeweils 7 mm realisiert, die das Reaktionsvolumen und die Beschleunigungsstrecken umschließen. Die Platten sind über geeignete elektrische Widerstände leitend verbunden, so dass ein gleichmäßiger Spannungsabfall gewährleistet ist. Eine TRICOMP-Simulation [Gop10] des elektrischen Feldes im Inneren des Spektrometers bestätigt einen zufriedenstellend homogenen Feldverlauf. Die hohen Spannungen, die an den Detektoren anliegen, führen unvermeidlich zu Feldverzerrungen an den Enden des Spektrometers, die wie Linsen die geladenen Teilchen ablenken können. Um diesen Effekt zu minimieren wird das Feld

mit einem feinmaschigen Kupfergewebe abgeschlossen, das zu 85% durchlässig ist. Dies erzwingt eine plane Äquipotentialfläche am Übergang zwischen Spektrometer und Detektor.

## Magnetfeld

Für den Nachweis von Elektronen mit großem Transversalimpuls ist zusätzlich ein magnetisches Feld notwendig, welches diese auf eine Kreisbahn zwingt. Ohne dieses Feld würden bei den niedrigen, für den Ionennachweis optimalen elektrischen Feldern nur Elektronen mit sehr niedrigem Transversalimpuls auf den Detektor treffen (vgl. Abschnitt 4.3). Die Anordnung entspricht im Wesentlichen einer Helmholtz-Anordnung: Das Magnetfeld wird von einem Spulenpaar erzeugt, dessen Spulen bei einem Durchmesser von 750 mm im Abstand von 450 mm das Spektrometer in jeweils 9 Windungen umfassen.

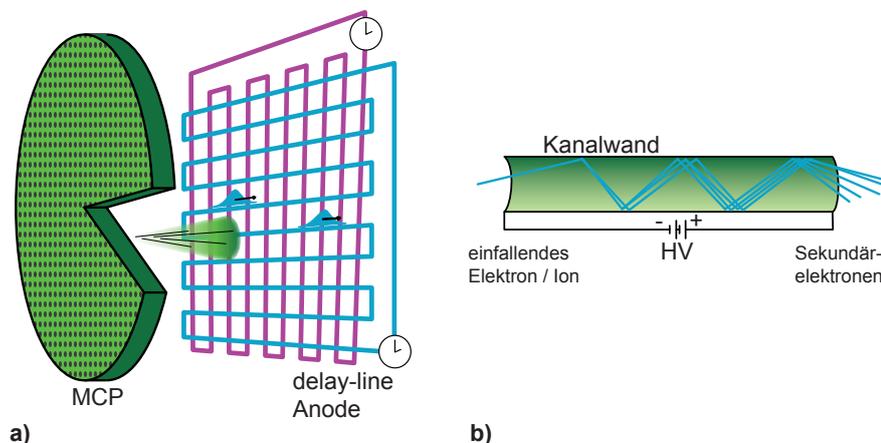
An den Spulen liegt eine elektrische Spannung von 2,6 V an, die Stromstärke beträgt 40 A. Daraus resultiert eine magnetische Flussdichte von 7,6 Gauß<sup>8</sup>. Die Spulen sind im Bezug auf die Spektrometerachse leicht gekippt angeordnet, so dass sie den Einfluss des Erdmagnetfelds sowohl auf die Richtung als auch auf den Betrag des  $B$ -Felds im Spektrometerinneren ausgleichen. Auf die vergleichsweise schweren Ionen hat das Magnetfeld nur einen vernachlässigbaren Einfluss. Um Feldverzerrungen zu vermeiden, müssen metallische Komponenten im sensitiven Magnetfeldbereich außerdem aus Materialien mit besonders niedriger magnetischer Suszeptibilität angefertigt werden.

## Detektoren

Die zeit- und ortsempfindlichen Detektoren sind über *micro channel plates* in Kombination mit *Delay-line-Anoden* realisiert<sup>9</sup> (Abbildung 4.3). Micro channel plates (MCP) sind etwa 1 mm dünne mikrostrukturierte Glasscheiben, die im Abstand von einigen 10  $\mu\text{m}$  von parallelen Kanälen durchzogen sind. Die Kanäle selbst haben je nach MCP-Typ einen Durchmesser von 10 bis 100  $\mu\text{m}$  und sind an der Innenseite mit einem Halbleitermaterial beschichtet. Auftreffende geladenen Teilchen lösen – wie in einem Photomultiplier – an den beschichteten Kanalwänden Kaskaden von Sekundärelektronen aus. Ein einzelnes MCP verstärkt ein Ladungssignal auf diese Weise um einen Faktor von ca. 10 000. Außerdem führt die Bildung der Ladungswolke zu einem Spannungsabfall an den Platten. Dieses Signal lässt sich auskoppeln und liefert die Ankunftszeit der Elektronen und Ionen für die Impulsrekonstruktion. Die Qualität der elektronische Signalverarbei-

<sup>8</sup>Das Magnetfeld eines Helmholtzspulenpaars (d.h. Spulenradius gleich Spulenabstand) ergibt sich aus Radius  $R$ , Stromstärke  $I$  und der Windungszahl  $N$  je Spule nach  $B = \mu_0 \cdot \frac{8IN}{\sqrt{125}R}$ . Für einen vom Spulenradius abweichenden Abstand  $d$  zwischen den Spulen wie im vorliegenden Experiment gilt  $B = \mu_0 \cdot \frac{NIR^2}{(R^2+(d/2)^2)^{3/2}}$ . Die Abweichung von der Helmholtz-Konfiguration ( $d = R$ ) bewirkt geringfügige Inhomogenitäten des magnetischen Feldes, erlaubt andererseits aber ein größeres Volumen, in dem das Feld annähernd homogen ist. Insbesondere ist der Abfall der Feldstärke in der Nähe der Detektoren weniger stark ausgeprägt, was für die Messungen mit dem Reaktionsmikroskop von Vorteil ist. Als optimal gilt  $d \approx 0,55 R$  [Lug87].

<sup>9</sup>RoentDek Handels GmbH, Im Vogelshaag 8, 65779 Kelkheim, [www.roentdek.com](http://www.roentdek.com)



**Abbildung 4.3:** Orts- und zeitaufgelöste Messung mit Delay-line-Anode und MCP: auftreffende geladene Teilchen lösen in den Kanälen des MCPs eine Kaskade von Sekundärelektronen aus (b), die als Ladungswolke auf die Drähte der Delay-line trifft (a). Aus den Ankunftszeiten der über die Drähte abfließenden Ladung lässt sich der Auftreffort rekonstruieren.

tung bestimmt hier auch die erreichbare Zeitauflösung; sie liegt bei rund 1 ns [Roe]. Durch Hintereinanderschaltung von mehreren MCPs können die Signalverstärkung und die Nachweiseffizienz weiter gesteigert werden.

Die im MCP erzeugte Ladungswolke fällt auf die sog. „delay lines“ (Verzögerungsstrecken) – vier voneinander isolierte Kupferdrähte, die paarweise in engen Windungen unter dem micro channel plate verlaufen. In diesen Drähten fließt die Ladung als elektrischer Impuls ab; aus der Differenz der Ankunftszeiten der elektrischen Impulse in den vier Drähten wird anschließend die Position des Ereignisses in zwei Dimensionen berechnet. Dichte und Durchmesser der Kanäle im micro channel plate sowie der Abstand und die Dichte der Drähte der Verzögerungsstrecke bestimmen die erreichbare Ortsauflösung. Sie beträgt nach Herstellerangaben 0,1 mm [Roe]. Die elektronische Weiterverarbeitung der Signale ist in [Gop10] beschrieben.

### 4.3 Rekonstruktion der Impulsvektoren

Der Rekonstruktion von Impulsvektoren in allen drei Raumrichtungen liegen die Bewegungsgleichungen für geladene Teilchen in elektrischen und magnetischen Feldern zugrunde. Dabei geht man davon aus, dass der Impuls der Atome und Moleküle in einem Koordinatensystem, das mit der Geschwindigkeit des Jets mitgeführt wird, vor Wechselwirkung mit dem Laserimpuls näherungsweise gleich null ist. In Experimenten mit Laserimpulsen ist außerdem der Impuls des absorbierten Photons klein im Vergleich zu den Impulsen der erzeugten Elektronen und Ionen, und kann deshalb vernachlässigt werden. Die Impulssumme aller Teilchen, die an der Reaktion beteiligt sind, ist deshalb ebenfalls Null.

Abhängig von der Masse  $m$  eines Teilchens, seiner elektrischen Ladung  $q$  sowie den Abmessungen des Spektrometers und der angelegten Beschleunigungsspannung  $U$  benötigen geladene Partikel unterschiedlich lange Flugzeiten vom Reaktionspunkt zum Detektor. Diesen Zusammenhang nutzt man aus, um aus der Flugzeit TOF<sup>10</sup> Ionen aus dem Gastarget nach Masse und Ladungszustand zu sortieren. Die Koinzidenzbedingung selektiert dann aus den gemessenen Elektronen diejenigen, die zu den gerade interessierenden Ionen gehören.

## Ionenimpulse

Für die Impulsrekonstruktion wird der Gesamtimpuls der geladenen Teilchen in Beiträge  $p_{\parallel}$  parallel und  $\mathbf{p}_{\perp}$  senkrecht zur Spektrometerachse zerlegt, so dass für die kinetische Energie  $E$  des Teilchens gilt:

$$(4.2) \quad E = \frac{\mathbf{p}_{\perp}^2}{2m} + \frac{p_{\parallel}^2}{2m} = E_{\perp} + E_{\parallel}.$$

Mit den bekannten Gleichungen für die Bewegung eines geladenen Teilchens im elektrischen Feld folgt daraus die Flugzeit TOF des Partikels

$$(4.3) \quad \text{TOF}_{\pm} = \sqrt{m} \frac{\sqrt{2}a}{\sqrt{E_{\parallel} + qU} \pm \sqrt{E_{\parallel}}}$$

wobei  $a$  die Länge der Beschleunigungsstrecke bezeichnet. Positive bzw. negative Vorzeichen beziehen sich auf Ionen und Elektronen die anfangs *in* oder *entgegen* der Beschleunigungsrichtung im elektrischen Feld emittiert werden<sup>11</sup>. Aus Gleichung 4.3 erhält man mit  $E_{\parallel} = \frac{p_{\parallel}^2}{2m}$  den Longitudinalimpuls.

Für die Berechnung der Transversalimpulse der Ionen muss man zusätzlich die Positionen heranziehen, an denen die geladenen Bruchstücke auf den Detektor treffen. Trotz der Symmetrie des Prozesses sind die detektierten Ionen nicht zentrisch auf dem Detektor verteilt; vielmehr sind sie aufgrund der Geschwindigkeit des Targetjets um einen bestimmten Betrag nach unten verschoben. Deshalb wählt man als Nullposition die Mitte dieser Verteilung bei  $(x_{i0}, y_{i0})$  anstelle der Detektormitte. Den Auftreffort *relativ* zu  $(x_{i0}, y_{i0})$  beschreibt dann – unter Vernachlässigung jeglicher Einflüsse des Magnetfelds – die Gleichung

$$(4.4) \quad r_i = \sqrt{(x_i - x_{i0})^2 + (y_i - y_{i0})^2} = \frac{\text{TOF}_i \cdot |\mathbf{p}_{\perp}|}{m_i},$$

<sup>10</sup>Die Abkürzung folgt dem englischen Begriff für die Flugzeit: **t**ime **o**f **f**light

<sup>11</sup>Viele Reaktionsmikroskope, insbesondere solche die in Beschleunigerringen eingesetzt werden haben darüber hinaus eine *Driftstrecke*, die ursprünglich für das *Time-Focusing* entwickelt wurde. Dies ist allerdings nur dann notwendig, wenn in einer Apparatur ein sehr großes Interaktionsvolumen vorliegt. Dann sorgt die Driftstrecke dafür, dass Teilchen mit gleichem Impuls, die an unterschiedlichen Orten erzeugt werden, trotzdem zur gleichen Zeit auf dem Detektor aufkommen. Bei Experimenten mit Laserimpulsen ist das Reaktionsvolumen jedoch so klein, dass die mit dem Verzicht auf die Driftstrecke einhergehende Verschlechterung der Auflösung vernachlässigt werden kann. Mit dem zusätzlichen Term für die Driftstrecke ist Gleichung 4.3 nicht exakt lösbar, so dass genähert werden muss.

woraus mit der Formel für die Flugzeit 4.3 der Transversalimpuls folgt. Darüber hinaus lassen sich aus den Impulskomponenten senkrecht und parallel zur Spektrometerachse mit den trigonometrischen Formeln Emissionswinkel berechnen und – bei gestreckten Molekülen – die Ausrichtung der Molekülachse rekonstruieren [Fis03].

## Elektronenimpulse

Während der Longitudinalimpuls der Elektronen wie in Gleichung 4.3 aus der direkt gemessenen Flugzeit bestimmt werden kann, ist die Rekonstruktion der Transversalimpulse für die Elektronen komplizierter. Elektronen werden im Reaktionsmikroskop von dem Magnetfeld der Helmholtz-Spulen auf Zyklotron-Bahnen gezwungen; die Umlauffrequenz  $w_c$  ist durch

$$(4.5) \quad w_c = \frac{qB}{m_e}$$

gegeben. Darin bezeichnet  $q$  wie gewohnt die Ladung,  $m_e$  die Elektronenmasse und  $B$  die magnetische Flußdichte. Abhängig vom Transversalimpuls des Elektrons ist der Radius der Zyklotronbahn unterschiedlich groß; er beträgt

$$(4.6) \quad r_c = \frac{p_{\perp}}{eB}.$$

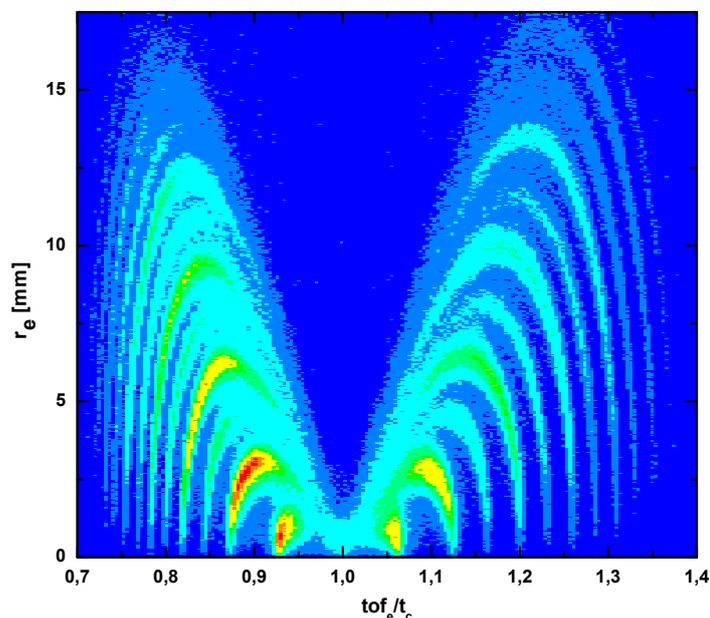
Das heißt, man muss zur Ermittlung des Transversalimpulses den Bahnradius ermitteln. Dies geschieht über trigonometrische Überlegungen [Fis03].

Je nach verwendeter Extraktionsspannung durchlaufen die Elektronen auf dem Weg vom Reaktionsvolumen im Zentrum der Apparatur bis zum Detektor oft mehr als einmal die gesamte Zyklotronbahn. Nach jeweils vollen Zyklotronperioden  $(2\pi)/w_c$  kehrt das Elektron zum Ursprungsort – projiziert auf die Detektorebene – zurück. Zu diesen Flugzeiten ist folglich der Auftreffort für alle Elektronen gleich, und das unabhängig vom jeweiligen Transversalimpuls. Deshalb hat das Elektronenspektrometer an diesen Stellen keine Auflösung in transversaler Richtung.

Abbildung 4.4 zeigt den Radialimpuls der Elektronen in Abhängigkeit von der Flugzeit (in Vielfachen der Zyklotronfrequenz) für eine typische Extraktionsspannung (hier 144 V). Weil die Zyklotron-Umlaufzeit  $t_Z$  nur von der Magnetfeldstärke abhängt, dienen Messungen dieser Art zur genauen Bestimmung des Magnetfelds  $B$ .

## 4.4 Spezifikationen des Heidelberger Attosekunden-Reaktionsmikroskops

Das vorliegende Design basiert auf einem Prototypen, der zuvor für Experimente mit vergleichsweise wenig brillanten Lichtquellen [Dew06] am Max-Planck-Institut für Kernphysik entwickelt worden war. Dessen kompakter Aufbau kommt den Besonderheiten der Attosekunden-Beamline entgegen, denn anders als bei den Reaktionsmikroskopen für Experimente mit infraroter Laserstrahlung ist es bei einer HHG-Quelle nicht



**Abbildung 4.4:** Radialer Auftreffort  $r_e$  in Abhängigkeit von der Flugzeit  $\text{tof}_e$  in Vielfachen der Zyklonperiode  $t_c$ . Die verschiedenen Windungen der Zyklotronbahn zeigen sich in Knotenpunkten, bei denen die Rekonstruktion des Transversalimpulses nicht mehr möglich ist. Dieser Plot wird außerdem zur genauen Bestimmung der Magnetfeldstärke  $B$  herangezogen.

möglich, die Lichtimpulse mit kurzbrennweitigen Spiegeln direkt in der Apparatur zu fokussieren (vgl. [Erg06a]).

Statt dessen wurden die Fokussiereinheiten für den infraroten und den ultravioletten Zweig des Interferometers wie in Abschnitt 3.4.3 in einer Rekombinationskammer untergebracht. Bei einem großen Reaktionsmikroskop würde dieses Konzept eine sehr weiche Fokussierung auf das Gastarget im Zentrum der Messapparatur bedingen. Im hier beschriebenen Aufbau erlauben jedoch die kurze Beamline und das vergleichsweise kleine und kompakte Reaktionsmikroskop eine Fokussierung auf einer Weglänge von nur 600 mm.

### Impulsakzeptanz

Während Ionen und Elektronen unbegrenzt erfasst werden, wenn sie sich nach der Reaktion in Richtung des Detektors bewegen, gibt es für Teilchen, die in die entgegengesetzte Richtung oder senkrecht zur Spektrometerachse emittiert werden eine Obergrenze, die von der verwendeten Extraktionsspannung  $U$  und dem Magnetfeld  $B$  abhängt. Dieser maximale noch detektierte Impuls definiert die *Akzeptanz*  $p_{\max}$  des Spektrometers. Für Impulse senkrecht zur Spektrometerachse ist  $p_{\max}$  zusätzlich noch vom Durchmesser  $r_{\max}$  des Detektors und von der Länge  $a$  der Beschleunigungsstrecke abhängig:

$$(4.7) \quad p_{\parallel \max} \leq \sqrt{2mqU} \quad \text{und} \quad p_{\perp \max}(\text{Ion}) \leq r_{\max} \frac{\sqrt{2mqU}}{2a}.$$

Die Extraktionsspannung muss deshalb den beobachteten Prozessen und den daran beteiligten geladenen Fragmenten angepasst werden. Für einfach ionisierte Edelgase reichen niedrige Extraktionsspannungen um 1 V/cm. In Molekülen treten dagegen oft relativ hohe Fragmentationsenergien auf, etwa bei der Coulomb-Explosion von Wasserstoff. Bei diesen Experimenten muss die Beschleunigungsspannung entsprechend erhöht werden.

Der maximal erfassbare Transversalimpuls für Elektronen ist durch die Größe des Detektors und die Stärke des angelegten Magnetfelds begrenzt, da letzteres den Radius der Zyklotronbahn bestimmt:

$$(4.8) \quad p_{\perp \max}(\text{Elektron}) \leq qBr_{\max}$$

Bei den im vorliegenden Aufbau gewählten Parametern, also Detektoren mit 40 mm Radius und Magnetfeldern von typischerweise 7,6 G werden dementsprechend Elektronen bis 33 eV erfasst. Die magnetische Flussdichte ließe sich mit den vorhandenen Geräten allerdings leicht weiter erhöhen [Fis03].

## Auflösung

Die Impulsauflösung eines Reaktionsmikroskops hängt von verschiedenen Faktoren ab. Sofern Inhomogenitäten der Extraktionsfelder ausgeschlossen oder zumindest vernachlässigt werden können, ist die thermische Bewegung der Gasatome oder -moleküle im Target die Hauptursache für die Verbreiterung. Sie ist bei [Gop10] für Heliumatome folgendermaßen abgeschätzt:

$$(4.9) \quad \Delta p_{\text{therm}}^x = \Delta p_{\text{therm}}^z = 0,12 \text{ a.u.} \quad \text{und} \quad \Delta p_{\text{therm}}^y = 0,26 \text{ a.u.}$$

Zwar ist  $\Delta p$  im Jet zunächst einmal isotrop, mit den Skimmern der differentiellen Pumpstufe werden allerdings hohe  $x$ - und  $z$ -Komponenten entfernt. In Ausbreitungsrichtung des Jets ist das offensichtlich nicht möglich, so dass die Auflösung am Ende in  $y$ -Richtung schlechter ist als in den beiden Raumrichtungen senkrecht dazu.

Darüber hinaus ergibt sich aus den Eigenschaften der Detektoren und der elektronischen Verarbeitung der Signale eine weitere Verbreiterung der Impulsverteilung: Wie bereits erwähnt kann die Flugzeit TOF nur auf etwa 1 ns, Positionen auf dem Detektor auf etwa 0,1 mm genau bestimmt werden. Daraus folgt für die Impulsauflösung des Spektrometers [Fis03]:

$$(4.10) \quad \Delta p_{r\parallel}^2 = \Delta p_{\text{therm},r\parallel}^2 + (8,039 \cdot 10^{-3} \frac{\text{a.u. cm}}{\text{eV ns}} \frac{qU}{a} \Delta t)^2,$$

$$(4.11) \quad \Delta p_{r\perp}^2 = \Delta p_{\text{therm},r\perp}^2 + (11,6 \frac{\text{a.u.}}{\sqrt{\text{amu eV}}} \frac{\sqrt{qU \cdot M}}{2a} \Delta r)^2,$$

womit man leicht folgende Impulsauflösung für Heliumatome bei 15 V Extraktionsspannung berechnen kann:

$$(4.12) \quad \Delta p_x = 0,35 \text{ a.u.}, \quad \Delta p_y = 0,42 \text{ a.u.}, \quad \Delta p_z = 0,12 \text{ a.u.}$$

Bei den im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimenten lag die Extraktionsspannung meist bei 144 V. Diese Spannung wurde gewählt, um auch Ereignisse mit hohen Transversalimpulsen noch aufnehmen zu können. Außerdem wurden die meisten Ergebnisse – nach Ausnutzen der Koinzidenzbedingung und Impulserhaltung – anhand der Elektronenimpulse analysiert. Die für Ionen vergleichsweise mäßige Auflösung ( $\Delta p_x = 1,04$  a.u.,  $\Delta p_y = 1,06$  a.u.,  $\Delta p_z = 0,15$  a.u. bei 144 V Extraktionsspannung) kann man unter den gegebenen Voraussetzungen in Kauf nehmen.

Die Auflösung des Elektronenimpulses hängt im Gegensatz zu dem der Ionen nur unwesentlich von der Targettemperatur ab, weil die übertragenen kinetischen Energien viel größer sind als die thermische Energie des Targets. Die Unsicherheit resultiert lediglich aus der Zeit- und Ortsmessung. Aufgrund der Elektronenbewegung auf Zyklotronbahnen variiert die Impulsauflösung mit dem Auftreffort bzw. der Flugzeit. Unter Vermeidung der Knotenpunkte, an denen alle Elektronenimpulse auf den gleichen Detektorort projiziert werden (vgl. Abbildung 4.4) erreicht man in der Regel Impulsaufösungen  $\Delta p_e < 0,1$  a.u. [Fis03].



## 5 Experimente mit Attosekundenimpulszügen in Edelgasen

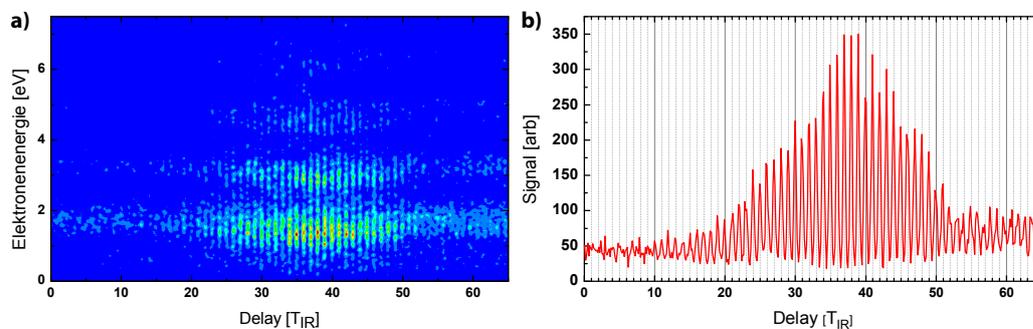
Im Folgenden werden die Ergebnisse verschiedener Experimente an Edelgasen vorgestellt, die nach dem Aufbau der Attosekunden-Beamline am Max-Planck-Institut für Kernphysik durchgeführt wurden. Unmittelbar nach der Inbetriebnahme musste ein großer Teil der Experimente in erster Linie dazu dienen, die experimentellen Möglichkeiten des Aufbaus auszuloten und zu charakterisieren. Besonderes Augenmerk lag dabei auf der Langzeitstabilität des gesamten Aufbaus, da Experimente im Reaktionsmikroskop, wie bereits erwähnt, stets in Einzelereignissen aufgenommen werden. Dementsprechend sind sie zeitaufwändiger als die bisher in der Attosekundenphysik verwendeten Technologien, die allerdings auch entscheidend weniger Möglichkeiten bieten. Deshalb wurden zunächst wichtige Schlüsselexperimente der Attosekundenphysik reproduziert, einige davon zum ersten Mal überhaupt in einem Reaktionsmikroskop. Dies betrifft die Abschnitte 5.3 und 5.7. Darüber hinaus beobachteten wir beim Vergleich der Messungen an verschiedenen Edelgasen Effekte, die offenbar von der Struktur der Elektronenhülle abhängen. Einige dieser Beobachtungen wurden vertieft analysiert (Abschnitt 5.4 und 5.6), mit Simulationsrechnungen verglichen (Abschnitt 5.5) und führten zu neuen Einsichten.

### 5.1 IR-IR-Autokorrelation

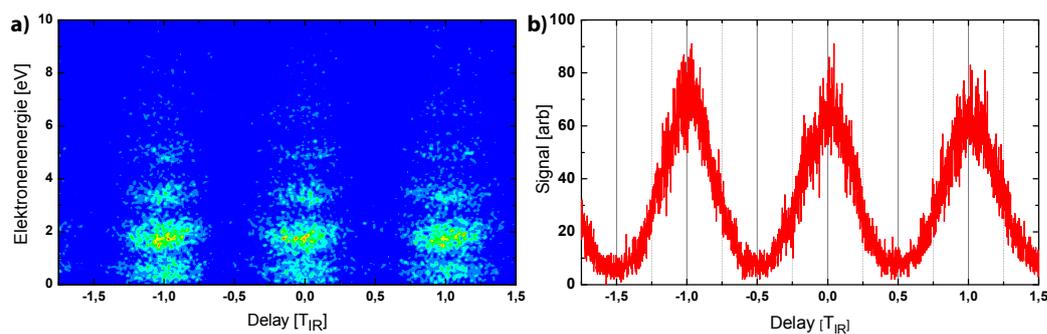
Zur Vorbereitung der Messungen mit hoher harmonischer Strahlung wird zunächst der Gaszufluss im HHG-Target abgeschaltet und der Aluminiumfilter im ultravioletten Interferometerarm entfernt. Entlang beider Teilstrahlen laufen nun die infraroten Impulse der Fundamentalen. Deren zeitlicher und räumlicher Überlapp wird mit einer Autokorrelation<sup>1</sup> [Die85] direkt im Reaktionsmikroskop kontrolliert und optimiert. Als nichtlineares Signal wird hierzu die Multiphotonionisation selbst herangezogen und die Energie emittierter Elektronen als Funktion der Zeitverzögerung (Abbildung 5.1a) aufgetragen. Autokorrelationsmessungen wie diese können auch zur Bestimmung der Laserimpulsdauer direkt im Reaktionsmikroskop verwendet werden, was insbesondere dann interessant ist, wenn mit Impulsen im single-cycle-Limit gearbeitet wird. Dazu ist allerdings eine Messreihe bei verschiedenen Laserintensitäten notwendig (eine solche wurde zum Beispiel in [Zro05] durchgeführt und ausgewertet). Dies liegt daran, dass das Ionisationspotential von Argon die Absorption von mindestens 10 IR-Photonen voraussetzt, wobei mit steigender Intensität auch die Anzahl der absorbierten Photonen zunimmt („above threshold ionisation“ bzw. ATI). Das heißt, die Messung anhand der

---

<sup>1</sup>Strenggenommen handelt es sich aufgrund der unterschiedlichen Fokalbedingungen und Intensitäten bereits um eine Kreuzkorrelation.



**Abbildung 5.1:** Autokorrelation der Infrarot-Impulse, gemessen im Reaktionsmikroskop. **a)** zeigt das Elektronenspektrum in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung, **b)** ist die Projektion der Daten aus **a)** auf die Zeitachse. Für diese Messung wird der Gaszufluss im HHG-Target abgeschaltet. Aufgrund der sehr unterschiedlichen Fokussierung in den beiden Interferometerarmen beobachtet man an den Punkten destruktiver Interferenz keine vollständige Auslöschung; das Kontrastverhältnis ist dennoch sehr gut.



**Abbildung 5.2:** Nachdem die Justage mit einer Infrarot-Autokorrelation überprüft wurde, wird der Verschiebetisch in den Bereich maximalen Kontrasts gefahren, in dem die beiden Teilstrahlen am besten überlagern. Eine kurze Autokorrelation über 3 Schwingungszyklen dient zur zeitlichen Kalibrierung der Verzögerungsstrecke für nachfolgende Experimente mit HHG-Strahlung.

Multiphotonenionisation ist eine Autokorrelation 10. Ordnung ( $\propto I^{10}$ ) oder höher, die bei gleicher Impulsdauer im Vergleich zur Autokorrelation 2. Ordnung deutlich schmaler ausfällt. Das verzögerungsabhängige Signal über alle Elektronenenergien Abbildung 5.1b) weist bei halber Höhe etwa 20 Zyklen auf (FWHM), was bei einer Autokorrelation zweiter Ordnung einer Impulsdauer von rund 30 fs entspräche. Dies deutet darauf hin, dass die IR-Impulse der hier diskutierten Messungen länger sind als den Spezifikationen des Laserherstellers zufolge erwartet. Darüber hinaus ist, wie die energieaufgelöste Messung in Abbildung 5.1a) zeigt, auch die Absorption von mehr als 10 Photonen möglich. Da im vorliegenden Experiment die beiden Teilstrahlen außerdem unterschiedliche Intensitäten und Fokolvolumina aufweisen, tragen sie nicht notwendigerweise mit der gleichen Anzahl Photonen zur Ionisation bei. Bei hohen Intensitäten wirkt sich darüber hinaus der Einfluss der intensitätsabhängigen Wirkungsquerschnitte für die Photoabsorption auf das Autokorrelationssignal aus und schwächt die Proportionalität  $\propto I^N$  (wobei  $N$  die Anzahl absorbierter Photonen ist) weiter ab.

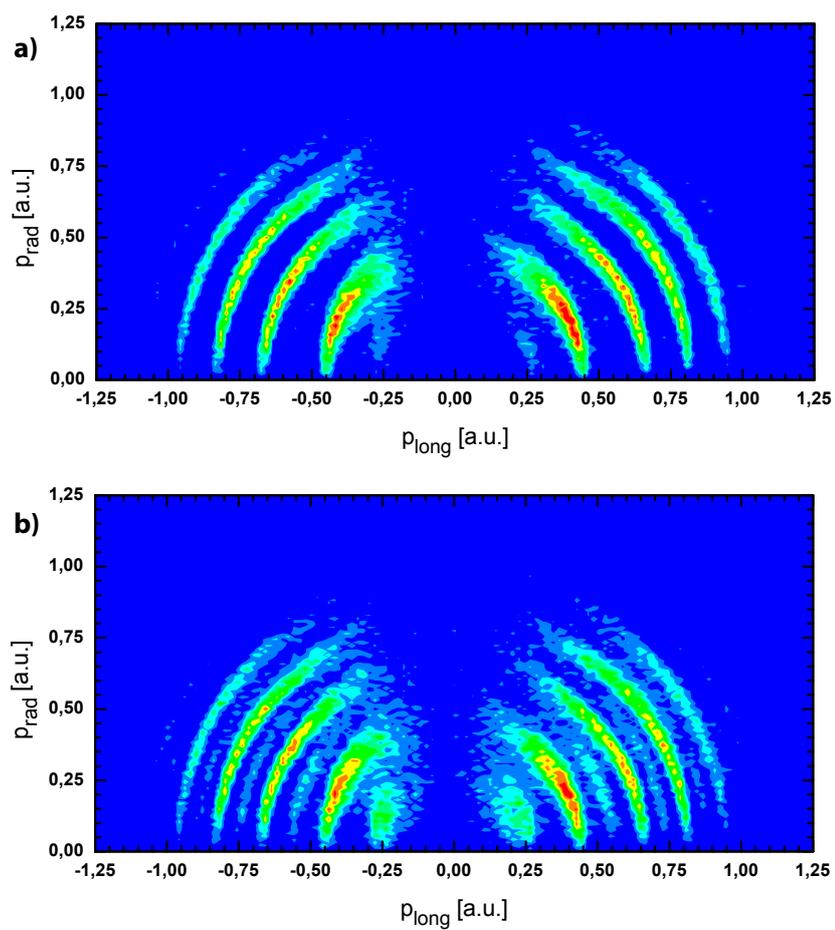
Im Rahmen der hier geschilderten Experimente, die mit vergleichsweise langen IR-Impulsen durchgeführt wurden, dient die Autokorrelation hingegen ausschließlich zur Überprüfung der Stabilität von Laser und Interferometer sowie zur genauen Bestimmung des zeitlichen Überlapps von HHG und IR-Strahl.

Anschließend wird der Verschiebetisch zur Einstellung des zeitlichen Versatzes der beiden Pulse (HHG und IR) in den Bereich maximalen Kontrasts gefahren und die für die nachfolgenden Experimente gewünschte Zeitverzögerung eingestellt. Für RABITT- und Streaking-Experimente (vgl. Abschnitt 5.3 bzw. 5.7) haben sich Verzögerungen von ca. drei IR-Zyklen (entsprechend 7,8 fs) als geeignet erwiesen. Anhand der in Abbildung 5.2 dargestellten Messung lässt sich die Achse der Zeitverzögerung kalibrieren und die Stabilität des Interferometers kurz vor Beginn der Messungen kontrollieren.

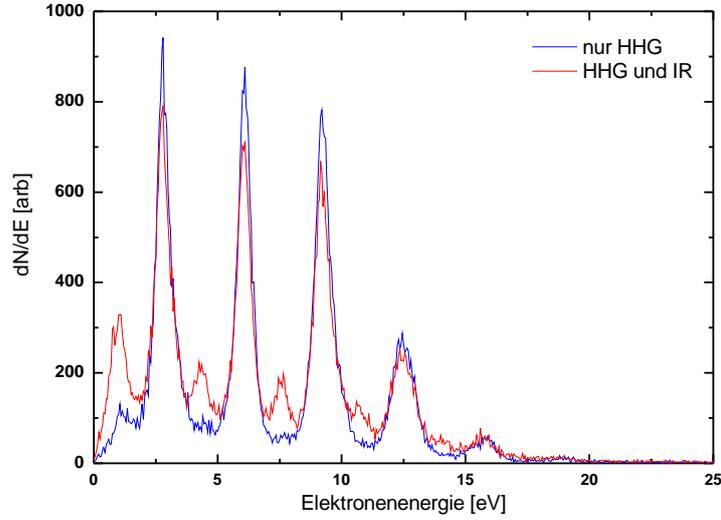
## 5.2 Photoionisation mit hoher harmonischer Strahlung

Abbildung 5.3a) und 5.4 zeigen die Impulsverteilung und die Energie der Photoelektronen bei Ionisation von Heliumatomen mit hoher harmonischer Strahlung, wobei die Harmonischen in Argon erzeugt wurden (vgl. Abbildung 3.6b). Die Energie eines einzelnen Photons aus dem harmonischen Spektrum genügt, um Helium einfach zu ionisieren (sofern die harmonische Ordnung  $q \geq 17$  ist). Deshalb entspricht das Photoelektronenspektrum genau dem um den Betrag des ersten Ionisationspotentials  $I_p$  verschobenen Energiespektrum der hohen Harmonischen:  $E_e = E_{\text{XUV}} - I_p = q \cdot \omega_0 - I_p$  (für ungerade  $q$ ). Benachbarte Photoionisationslinien sind – wie die Harmonischen – um jeweils  $2\hbar\omega_0 = 3,2$  eV separiert; die Intensitäten der Linien entsprechen bis auf den Einfluss des energieabhängigen Wirkungsquerschnitts für die Photoionisation denen der harmonischen Strahlung (vgl. Abschnitt 5.3.1). Die Emission der Photoelektronen geschieht bevorzugt entlang Polarisationsachse der XUV-Strahlung, die entlang der Detektorachse  $z$  ausgerichtet ist (Dipolverteilung)<sup>2</sup>.

<sup>2</sup>Die Daten in Abbildung 5.3 sind nicht raumwinkelkorrigiert, daher nimmt die Intensität zu kleinen Radialimpulsen scheinbar ab.



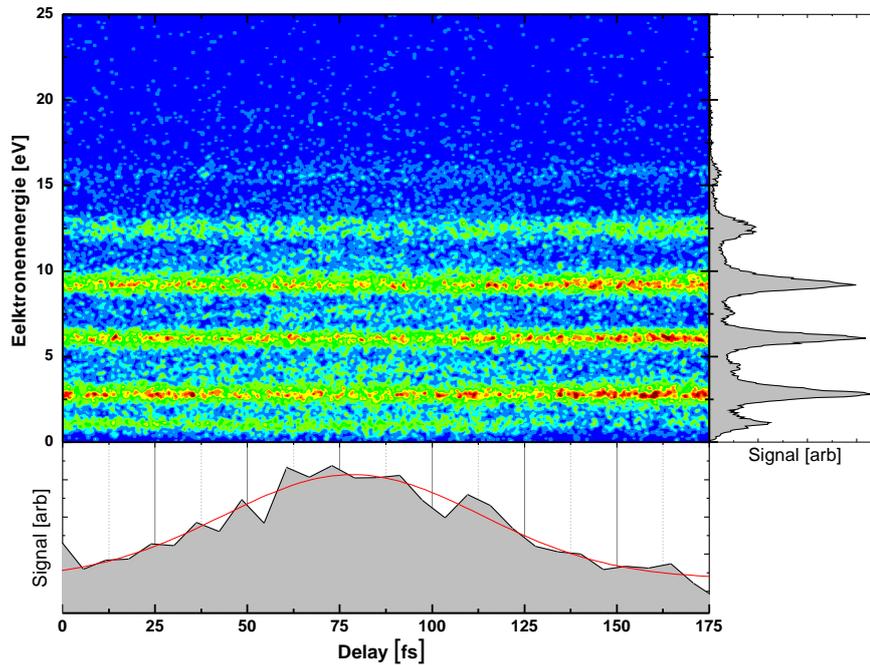
**Abbildung 5.3:** Photoionisation von Helium nur mit HHG-Strahlung **a)** und mit einem zusätzlichen schwachen Infrarotfeld **b)**. Aufgetragen sind jeweils Radialimpuls  $p_{\text{rad}}$  gegen Longitudinalimpuls  $p_{\text{long}}$  der emittierten Elektronen in atomaren Einheiten. Die XUV-Strahlung wurde in Argon erzeugt; das Target im Reaktionsmikroskop ist Helium.



**Abbildung 5.4:** Photoionisation von Helium mit XUV (blau) bzw. XUV- und IR-Strahlung (rot). Das Entstehen von Seitenbändern zwischen den Photoionisationspeaks ist im Energiespektrum der Elektronen deutlich zu sehen. Wie in Abbildung 5.3 wurde die XUV-Strahlung in Argon erzeugt; das Target im Reaktionsmikroskop ist Helium.

In Abbildung 5.3b) wurde die harmonische Strahlung im Reaktionsmikroskop mit einem zusätzlichen schwachen (Intensität im Bereich weniger  $10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>) IR-Feld überlagert. Die Photoelektronen haben nun die Möglichkeit, nach der Absorption eines XUV-Photons ein oder mehrere zusätzliche Photonen aus dem IR-Feld zu absorbieren oder zu emittieren. Dadurch bilden sich Seitenbänder an den Positionen „gerader“ Harmonischer genau zwischen den Peaks der Photoionisation nur mit XUV-Strahlung (vgl. Ausführungen im Theorieteil in Abschnitt 2.5.2 und darin Abbildung 2.13). Diese Seitenbänder und ihre Eigenschaften werden im Folgenden ausführlich behandelt.

Da für das Entstehen eines Seitenbandes jeweils ein Photon aus dem XUV- und dem IR-Zweig des Interferometers notwendig ist, kann mit Hilfe der delayabhängigen Seitenbandintensität die Länge des Attosekundenimpulszugs abgeschätzt werden. Eine entsprechende Messung in Helium ist in Abbildung 5.5 zu sehen. Der Konturplot zeigt die Anzahl registrierter Ereignisse in Abhängigkeit von der Photoelektronenenergie ( $y$ -Achse) und der zeitlichen Verzögerung der Pulse gegeneinander ( $x$ -Achse); die Projektion rechts das Spektrum der Elektronenenergie über alle Verzögerungen summiert. Die Projektion unten zeigt die Summation über die Ereignisse in den Seitenbändern bei den harmonischen Ordnungen  $q = 18$  bis  $q = 24$  in einem engen Energiebereich  $\Delta E = E_{\text{SB}} \pm 0,4$  eV. Aus diesem zeitlichen Verlauf der Intensität der Seitenbänder lässt sich mit Gleichung 2.29 oder 2.30 die Dauer des Attosekundenimpulszugs abschätzen – entweder durch Dekonvolution mit einem IR-Puls bekannter Länge und Form, oder in vereinfachter Form unter Annahme gaußscher Impulse. Die Auswertung des Seitenbandsignals ergibt eine Halbwertsbreite von  $\tau_{\text{TPI}} = 72$  fs. Aus früheren Messungen anderer Forschungsgruppen ist bekannt, dass für Harmonische im Plateau  $\tau_{\text{XUV}} \approx 0,65 \cdot \tau_{\text{IR}}$  ist [LM04b, Glo96]. Damit liefert obige Messung für die zeitlichen Längen der beteiligten Impulse folgende Werte:  $\tau_{\text{IR}} \approx 60$  fs,  $\tau_{\text{XUV}} \approx 39$  fs; jeder Attosekunden-Impulszug

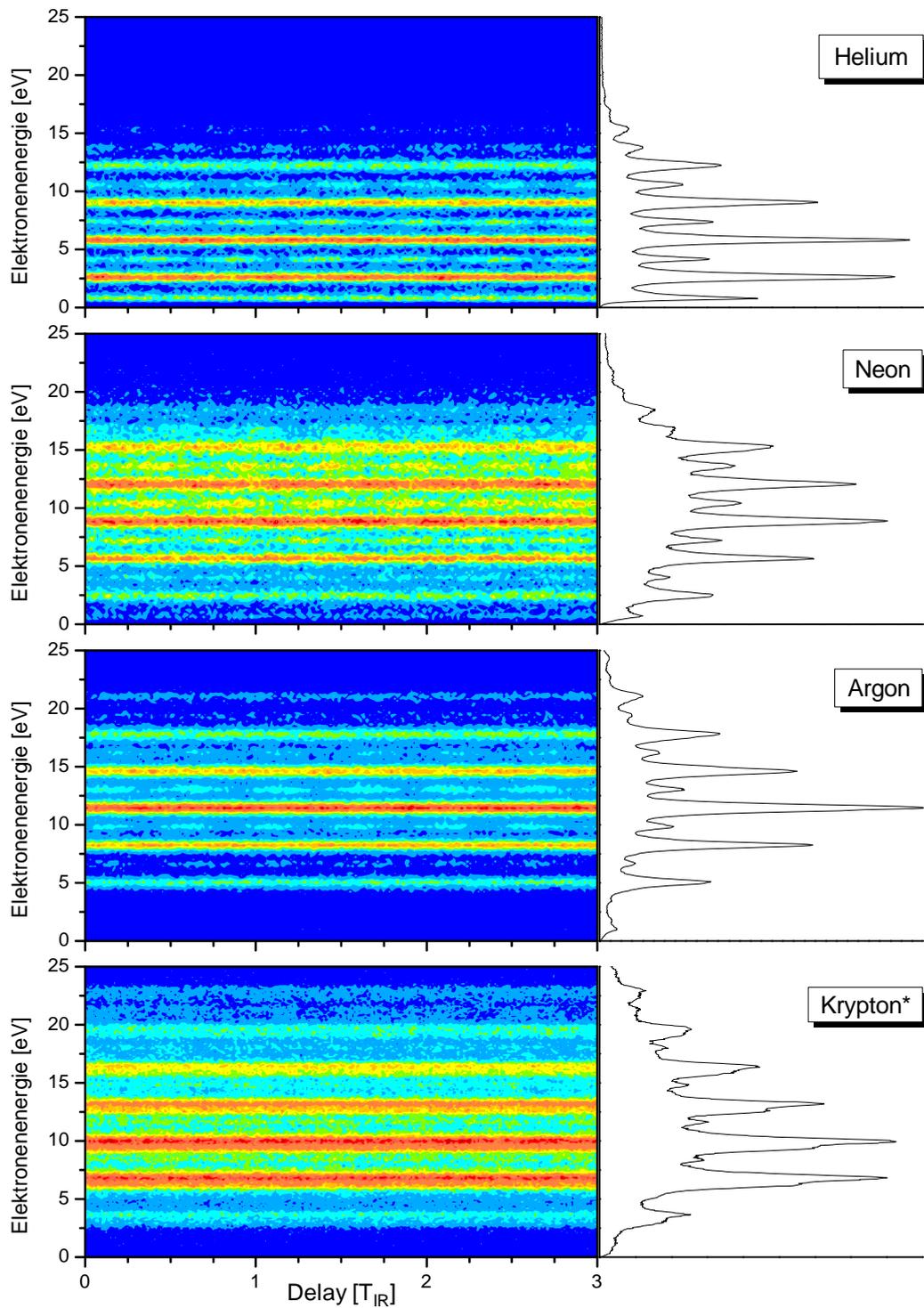


**Abbildung 5.5:** Kreuzkorrelation zwischen XUV- und IR-Puls: Im Bereich des Überlapps entstehen zwischen den Photoionisationslinien des harmonischen Spektrums Seitenbänder. Aus dem zeitlichen Profil der Seitenbandintensität (unten) lässt sich die XUV-Impulsdauer abschätzen.

enthält demzufolge rund 30 Einzelimpulse. Die ermittelten Impulslängen erscheinen angesichts der Spezifikationen des Lasersystems sehr lang, sind allerdings lediglich der Tatsache geschuldet, dass die Impulsdauer der Fundamentalen stets unmittelbar nach dem Verstärker optimiert wurde, also vor Durchlaufen der Strahlführung bis zur Vakuumkammer sowie diverser Fenster und Strahlteiler, die zu einer Verbreiterung des Impulses führen. Zudem ist es denkbar, dass bei den aktuellen Messungen etwa der Kompressor nicht optimal eingestellt war, so dass die Impulse möglicherweise schon mit einer Dauer  $> 35$  fs den Verstärker verließen.

### 5.3 Seitenbandoszillationen

Bei Zeitaufösungen unterhalb eines Halbzyklus des Infrarotfeldes stellt man bei obigem Experiment fest, dass die Intensität der Seitenbänder nicht bei allen Zeitverzögerungen zwischen IR und XUV gleich bleibt. Vielmehr oszillieren die Seitenbänder mit  $2\omega_{\text{IR}}$ , das heißt bei zeitlicher Verschiebung der Pulse gegeneinander um  $T_{\text{IR}}$  beobachtet man zwei ganze Oszillationszyklen der Seitenbandintensität. Die entsprechenden Daten sind in Abbildung 5.6 auf Seite 91 zu sehen: Die vier Messungen wurden an den Edelgasen Helium bis Krypton durchgeführt, der Konturplot links zeigt jeweils die Anzahl Ereignisse in Abhängigkeit von Zeitverzögerung ( $x$ -Achse) und Elektronenenergie ( $y$ -Achse),



**Abbildung 5.6:** Seitenbandoszillationen in Helium, Neon, Argon und Krypton: Konturdiagramme in der linken Spalte zeigen die Anzahl nachgewiesener Photoelektronen in Abhängigkeit von ihrer Energie und der zeitlichen Verzögerung zwischen infrarotem und ultravioletttem Laserfeld; in der rechten Spalte wurde über alle Zeitdifferenzen summiert.

in den Liniendiagrammen in der rechten Spalte wurde über alle Zeitverzögerungen integriert, so dass das Photoelektronenspektrum zu sehen ist.

Diese Oszillationen sind eine Folge der Interferenz zweier möglicher Quantenpfade zu den Positionen „gerader“ Harmonischer. Ihr Zustandekommen wurde im Theorieteil in Abschnitt 2.5.2 erläutert. Messungen wie diese werden gemeinhin RABITT genannt und gehören zu den Schlüsselexperimenten der Attosekundenphysik, da die genaue Analyse des Interferogramms prinzipiell erlaubt den Attosekunden-Impulszug vollständig zu charakterisieren. Sie werden somit im Folgenden dazu dienen, die Zeitstruktur der Impulszüge sowohl am Ort der Interaktion mit den Targetatomen (d.h. in der Mitte des Reaktionsmikroskops) als auch am Ort der Erzeugung in der HHG-Kammer zu rekonstruieren.

Dies geschieht, indem die mathematischen Zusammenhänge zwischen den Phasen der Seitenbandoszillationen und den Phasen der Frequenzkomponenten der Harmonischen Strahlung ausgenutzt werden: Wir bestimmen die relativen Intensitäten  $A_q$  und die relativen Phasen  $\phi_q$  der einzelnen Frequenzkomponenten der harmonischen Strahlung und setzen sie dann – unter Annahme eines unendlich langen Erzeugendenpulses und monochromatischer Harmonischer – mit  $E_{XUV} = \sum_{q_{\text{odd}}} A_q \exp(i(q\omega_0 + \phi_q))$  zu einem Impulszug zusammen (vgl. Abschnitt 2.5.2).

Mit zunehmender Intensität des Infrarotfeldes werden nach und nach Prozesse höherer Ordnung möglich. Dann fallen beispielsweise auch solche Elektronen, die nach Absorption eines XUV-Photons der harmonischen Ordnung  $q$  noch zwei Infrarotphotonen absorbieren, energetisch mit denjenigen Elektronen zusammen, die nur ein XUV-Photon der harmonischen Ordnung  $q + 2$  absorbiert haben. Dies äußert sich im Experiment darin, dass die Oszillationen der Seitenbänder Beiträge von  $4\omega_{\text{IR}}$ ,  $6\omega_{\text{IR}}$ ,  $8\omega_{\text{IR}}$  etc. enthalten [Swo09]. Eine Fouriertransformation der Oszillationen zeigte jedoch, dass solche Effekte höherer Ordnung bei den vorliegenden Messungen nicht merklich auftreten. Die Fourieranalyse fand jeweils nur den Oszillationsterm bei  $2\omega_{\text{IR}}$ . Damit sind die Voraussetzungen für die Rekonstruktion der Attosekunden-Impulszüge aus den Seitenbandoszillationen erfüllt, denn höhere Oszillationsterme verfälschen die Phasenextraktion, so dass die rekonstruierte Impulslänge systematisch unter der tatsächlichen liegt [Swo09].

Die Zeitverzögerung zwischen Attosekunden-Impulszug und infrarotem Impuls variiert in Abbildung 5.6 über einem Bereich von 3 IR-Zyklen, entsprechend  $3 \cdot 2,6 \text{ fs} \approx 7,8 \text{ fs}$ . Die Daten wurden jeweils über 6 bis 12 Stunden bei Zählraten von 1000 bis 2000 Hz aufgenommen. Davon sind rund 80% Einfach-Ionisationsereignisse des Targetgases; die übrigen Ereignisse resultieren aus Restgas- oder Mehrfachionisation sowie gestreuten HHG-Photonen. Lediglich bei den Messungen in Krypton liegt der Anteil der nutzbaren Ereignisse aufgrund der natürlichen Isotopenzusammensetzung bei nur 45%. Die Konturplots Elektronenenergie vs. Delay zeigen jeweils  $1 \cdot 10^6$  bis  $3 \cdot 10^7$  Ereignisse.

Während der Messung verursachen thermische Effekte einen langsamen Drift der Interferometerarme, insbesondere in den ersten Stunden nach Justage des Interferometers in der Vakuumkammer (wie in Abschnitt 3.4.1 besprochen). Bei der mit ungefähr 3 m beträchtlichen Länge der Interferometerarme und den sehr kleinen Zeitverzögerungen im Bereich von ca. 10 fs, also 150  $\mu\text{m}$  Hub, lässt dieser Drift das Signal nach und nach

„auswaschen“; d.h. der Kontrast der Oszillationen wird durch die kumulative Phasenverschiebung schlechter. Deshalb wurden bei den hier gezeigten Daten die Phasen der Seitenbandoszillationen für Datenpakete von jeweils 200 bis 500 MB (entsprechend Messzeiten von jeweils rund 15 Minuten) ermittelt und bezüglich des Delays so gegeneinander verschoben, dass die thermische Drift ausgeglichen wird. Die Anpassungen sind allerdings klein und bewegen sich im Bereich von weniger als einem halben IR-Zyklus. Je länger das Experiment in Betrieb ist, desto kleinere Korrekturen sind notwendig; so konnte bei der Messung der Seitenbandoszillationen in Krypton, die am Ende eines insgesamt viertägigen Betriebs des Experiments aufgenommen wurden, auf die Verschiebung ganz verzichtet werden.

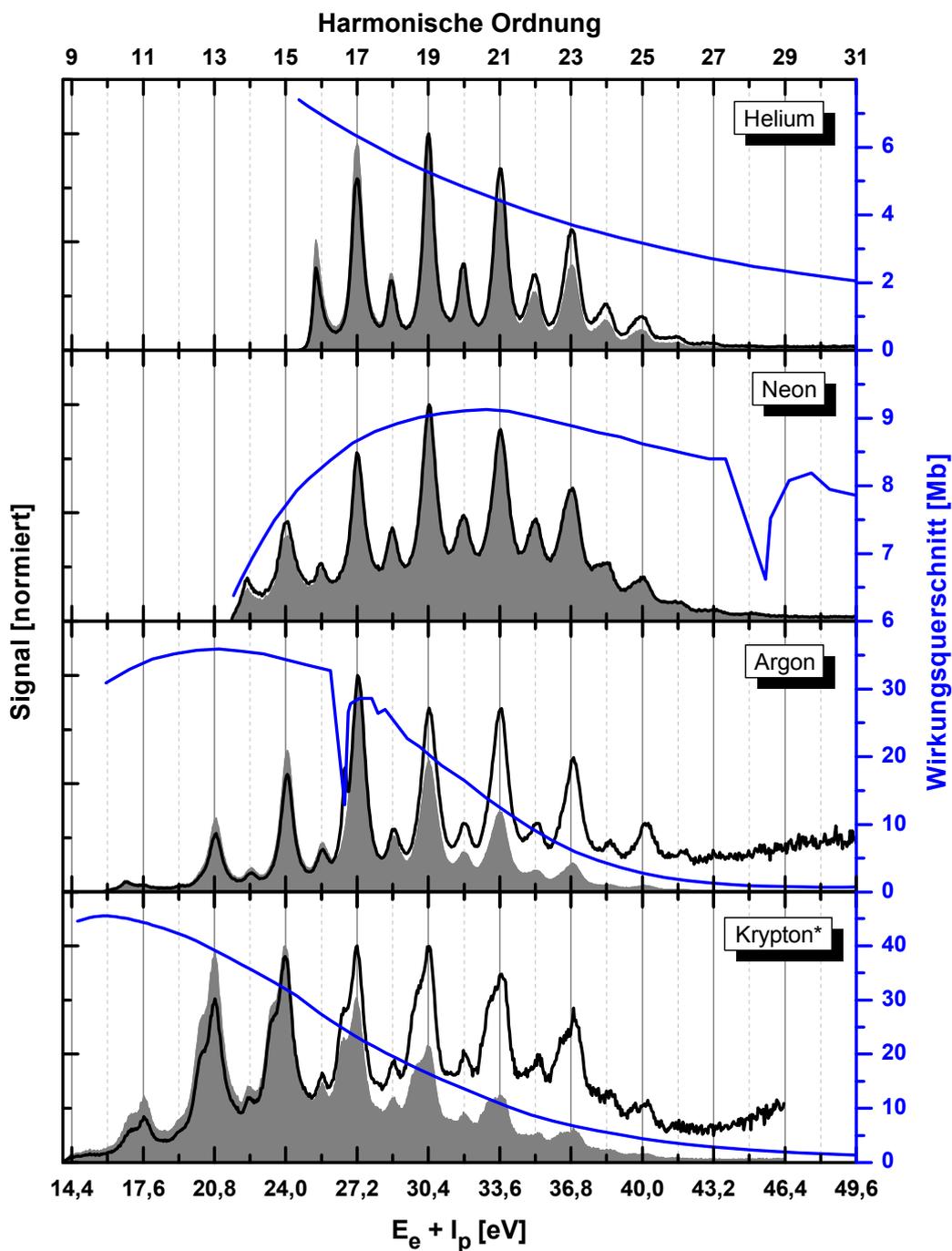
### 5.3.1 Amplituden der Harmonischen

Zur Bestimmung der relativen Amplituden der harmonischen Frequenzkomponenten ziehen wir die Photoionisationsspektren in den vier Targetgasen (über alle Zeitverzögerungen gemittelt) in Abbildung 5.7 heran. Beim Vergleich mit den im Gitterspektrometer gemessenen HHG-Spektren (Abbildung 3.6b) auf Seite 55) fällt sofort auf, dass bei der Photoionisation im Reaktionsmikroskop deutlich niedrigere Photonenenergien auftreten als im optisch analysierten Spektrum. Der Grund dafür liegt, wie in Abschnitt 3.3.1 bereits angeklungen ist, in den Eigenschaften der optischen Elemente, die im HHG-Spektrometer verwendet wurden. Insbesondere die Beugungseffizienz des freistehenden Siliziumgitters und die Reflektivität der Goldspiegel unterhalb von 35 eV lassen die Nachweiseffizienz des optischen Spektrometers bei niedrigen Harmonischen absinken (vgl. Abbildung 3.7).

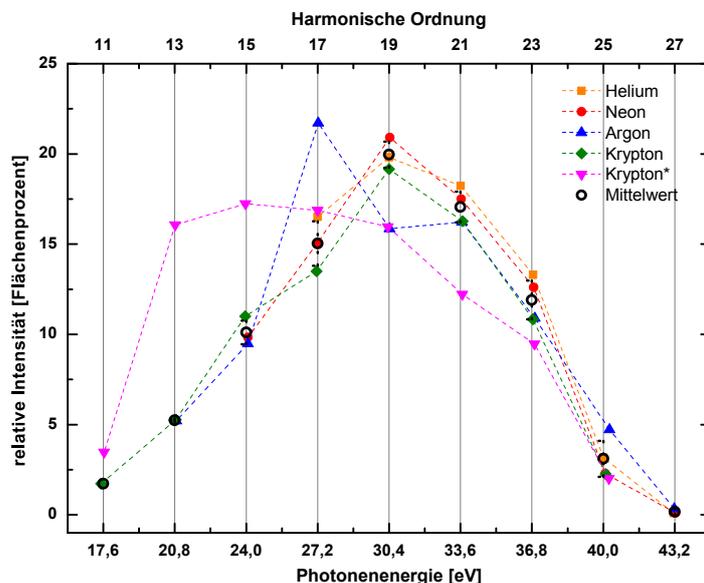
Die relativen Intensitäten der Harmonischen werden deswegen aus den Photoionisationsspektren ermittelt. Dazu wurden die Flächeninhalte der Photoionisationslinien ermittelt und mit dem wellenlängenabhängigen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation (aus [Sam02]) korrigiert. Die Energie der XUV-Photonen ergibt sich aus der Summe aus dem Ionisationspotential des jeweiligen Gases und der Elektronenenergie:  $E_{\text{XUV}} = I_p + E_e$ . Das Ergebnis ist in Abbildung 5.7 zu sehen und in Abbildung 5.8 zusammengefasst.

Aufgrund der unterschiedlichen Ionisationsenergien der Gase „verschwinden“ bei der Messung an Helium die Harmonischen der Ordnungen 11 bis 15 unter der Ionisationsschwelle; bei Neon liegen die Ordnungen 11 und 13 energetisch unterhalb  $I_p$ . Demgegenüber sieht man in Argon und Krypton das HHG-Spektrum bis hinunter zu einer Photonenenergie von 17,6 eV, also bis zur 11. Ordnung, die auch die niedrigste Harmonische ist, die den Aluminiumfilter passiert (vgl. Abbildung 3.11). In Krypton weisen die Seitenbänder ebenso wie die Photoionisationslinien eine deutliche Doppelpeakstruktur auf, die von der Spin-Bahn-Kopplung der 4p-Zustände herrührt: die Bindungsenergien der Zustände mit  $J = 3/2$  und  $J = 1/2$  unterscheiden sich um 0,7 eV; die angegebene Photonenenergie bezieht sich jeweils auf etwas höher liegenden  $J = 3/2$ -Zustand.

Die Krypton-Messung weicht, was die Intensitäten der Harmonischen angeht, auffallend von denen in den übrigen Gasen ab (pinke Dreiecke in Abbildung 5.8). Grund dafür ist mit großer Wahrscheinlichkeit der Aluminiumfilter. Dieser wurde vor Be-



**Abbildung 5.7:** Zwei-Farben-Photoionisation in Helium, Neon, Argon und Krypton: Dargestellt sind die Photoelektronenspektren der vier Gase, wobei die horizontale Achse die aus der Elektronenenergie und dem jeweiligen Ionisationspotential berechnete Photonenenergie repräsentiert. Blaue durchgezogene Linien zeigen den energieabhängigen Photoionisationsquerschnitt (aus [Sam02]); der grau schattierte Bereich ist das Ergebnis der Messung, schwarze durchgezogene Linien stellen das auf den Einfluss des Wirkungsquerschnitts korrigierte Photoelektronenspektrum dar.



**Abbildung 5.8:** Aus den relativen Intensitäten der Photoionisationslinien lässt sich das HHG-Spektrum rekonstruieren, indem die Flächeninhalte der einzelnen Linien mit dem wellenlängenabhängigen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation korrigiert werden.

ginn der Kryptonmessung ausgetauscht, weil der Filter mit dem die Messungen in Helium, Neon und Argon durchgeführt wurden gebrochen war. Nominell haben beide Filter die gleiche Dicke ( $0,4 \mu\text{m}$ ), sie stammen aber aus unterschiedlichen Chargen. Die gemessenen Intensitäten der HHG-Peaks legen den Verdacht nahe, dass der für die Krypton-Messung verwendete Filter von einer dünneren Oxidschicht bedeckt war, was zu intensiveren Harmonischen im Energiebereich 15 bis 22 eV führt (vgl. auch Abschnitt 5.3.4). Der Einfluss des Filters wird besonders deutlich, wenn zum Vergleich die Messung unmittelbar vor dem Bruch des ursprünglich verwendeten Filters hinzu gezogen wird: Die dort – ebenfalls in Krypton – gemessenen Intensitäten sind in Abbildung 5.8 als grüne Rauten eingezeichnet und folgen genau dem aus Daten für Helium, Neon und Argon rekonstruierten Intensitätsverlauf. Dieser Datensatz enthält jedoch nur ca.  $10^5$  Ereignisse und reicht somit nicht für eine Analyse der Seitenbandoszillationen, so dass auf die mit dem zweiten Filter erhobenen Daten nicht verzichtet werden konnte. Zur besseren Unterscheidbarkeit wurden alle mit dem zweiten Filter erhobenen Daten für diese Auswertung mit einem hochgestellten Stern (\*) gekennzeichnet.

Auch in Argon zeigen sich Abweichungen bei Photonenergien von 27,2 und 30,4 eV. Das liegt vermutlich daran, dass in diesem Energiebereich Autoionisationsresonanzen liegen, die aber in den Datentabellen für den Wirkungsquerschnitt in [Sam02] nicht vollständig berücksichtigt werden.

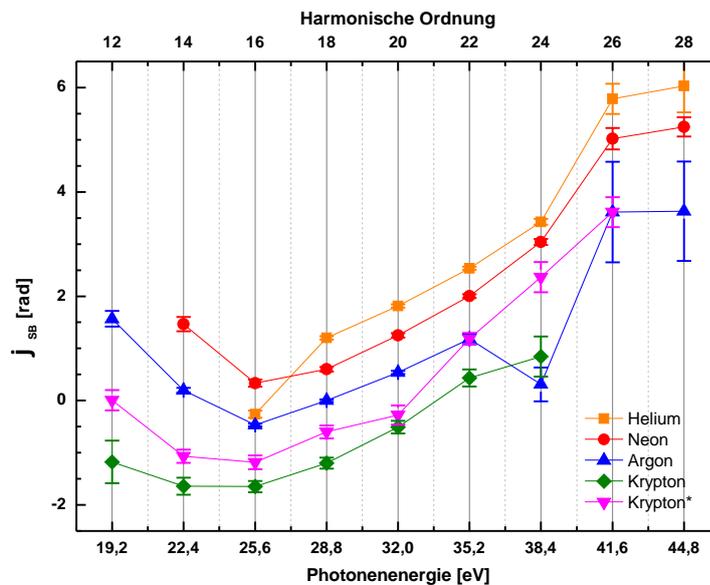
Für die Rekonstruktion des Impulszugs nach dem RABITT-Verfahren wurden die Messwerte an Helium, Neon und Argon gemittelt (schwarze Kreise), wobei die Werte in Argon bei den XUV-Energien 27,2 und 30,4 eV unberücksichtigt blieben. Bei der Messung an Krypton mit dem zweiten Filter \* muss schon aufgrund der veränderten relativen Intensitäten der Harmonischen der Impulszug eine gegenüber den übrigen

Messungen veränderte Zeitstruktur aufweisen. Deshalb wurde bei der folgenden Analyse zwischen beiden Filtern unterschieden.

### 5.3.2 Phasen der Harmonischen

Die Seitenbänder oszillieren in aller Regel nicht gleichphasig, sondern weisen aufgrund des „Attochirps“ (vgl. Abschnitt 2.4) untereinander charakteristische Phasenverschiebungen auf. Umgekehrt kann deshalb eine Messung der Seitenbandoszillationen verwendet werden, um Informationen über die spektrale Phase der harmonischen Strahlung zu erhalten (vgl. Abschnitt 2.5.2).

Dazu ermitteln wir die Phasen der Seitenbandoszillationen aus einem Sinusfit<sup>3</sup> an das Signal in einem engen Energiebereich um den Peak des Seitenbands:  $\Delta E_{SB} = E_{SB} \pm 0,4$  eV. Die Wellenlänge ging als fester Parameter in den Fit ein und betrug die Hälfte eines IR-Zyklus. Der so ermittelte Phasenverlauf ist in Abbildung 5.9 zu sehen.



**Abbildung 5.9:** Relative Phasen der Seitenbandoszillationen in verschiedenen Edelgasen.

Die Phasen der Seitenbänder verlaufen in allen vier Gasen im Wesentlichen parallel. Das war zu erwarten, schließlich wurden die Parameter der Harmonischen-Erzeugung während der Messungen nicht verändert, so dass die Impulszüge in allen Messungen – mit Ausnahme derjenigen in Krypton nach dem Filterwechsel – dieselbe Zeitstruktur aufweisen sollten. Dennoch gibt es auffällige Abweichungen: So sind die jeweils niedrigsten Seitenbänder im Photoionisationsspektrum zum Teil deutlich gegen den allgemeinen Trend verschoben, etwa in der harmonischen Ordnung 16 in Helium und 14 in Neon.

<sup>3</sup>oder aus der Fouriertransformation – die Ergebnisse sind wie erwartet dieselben. Allerdings hat die Kurvenanpassung den Vorteil, direkt eine Fehlerabschätzung für die angefitzten Parameter mitzuliefern.

Bei Argon weichen die Seitenbänder der harmonischen Ordnung 12 ein wenig und 24 signifikant vom Kurvenverlauf ab.

Die Abweichungen bei niedrigen Elektronenenergien können zum Teil auf den Beitrag der atomaren Phase  $\Delta\phi_{\text{at}}$  zurückgeführt werden, dies reicht aber nicht aus, wie ein Vergleich mit den publizierten Werten ergibt (vgl. [Mau05a]). Offensichtlich werden die Phasen der niedrigsten Seitenbänder in Helium und Neon von Resonanzen nahe des Kontinuums beeinflusst, in die Elektronen bei der Absorption eines XUV-Photons mit  $E_{\text{XUV}} < I_p$  aus dem Grundzustand übergehen können. Die beiden interferierenden Quantenpfade beinhalten dann nicht nur ungebundene, sondern auch gebundene Zustände. Für die Abweichung der 24. Harmonischen in Argon haben wir im Moment keine Erklärung. Die theoretischen Untersuchungen sagen für Argon zwar eine Beeinflussung der Phasen durch das Cooper-Minimum voraus, dies läge in unseren Daten allerdings erst bei einer Photonenenergie von 45 eV und wird folglich von der Analyse nicht erfasst.

In Krypton liegt das gesamte HHG-Spektrum, das den Aluminiumfilter passiert, über der Ionisationsschwelle, und im relevanten Energiebereich treten keine Autoionisationsresonanzen auf. Deshalb können die für Helium, Neon und Argon diskutierten Effekte des Atompotentials hier keine Rolle spielen.

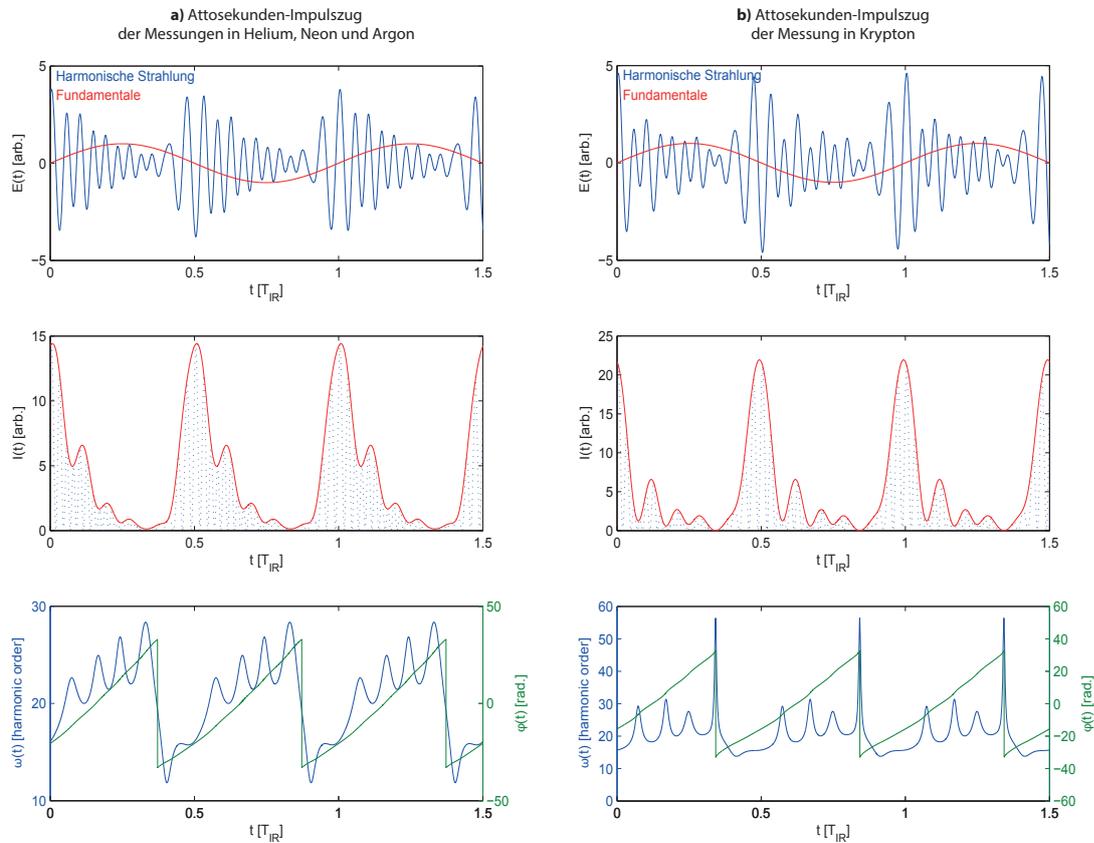
Da zunächst einmal die Zeitstruktur der Attosekundenimpulszüge im Mittelpunkt des Interesses stand, wurden die Phasen der Seitenbänder um einen für jedes Target jeweils konstanten Betrag verschoben, so dass  $\phi_{q=18} = 0$  ist (die absoluten Phasen der Seitenbänder sind nicht bekannt). Eine Kurvenanpassung mit quadratischem Polynom – ohne Berücksichtigung der oben diskutierten Abweichungen – liefert den um die Effekte von Autoionisationsresonanzen und die Abweichungen in Seitenband unmittelbar über der jeweiligen Ionisationsschwelle des Targetgases bereinigten Phasenverlauf<sup>4</sup>.

Die verzögerungsabhängige Intensität der Seitenbänder ergibt sich aus der Interferenz der beteiligten Quantenpfade und hängt von den Phasen der jeweils benachbarten harmonischen Frequenzkomponenten ab (vgl. Abschnitt 2.5.2):

$$(5.1) \quad I_{q+1}^{SB} \propto 1 + \cos(2\omega\Delta\tau + \phi_{q+2} - \phi_q) = 1 + \cos(2\omega\Delta\tau + \Delta\phi_{q+1}),$$

wobei  $q$  die (ungerade) Harmonische Ordnung der Frequenzkomponenten des Attosekundenimpulses bezeichnet. Folglich ist  $\Delta\phi_{q+1} = \phi_{q+2} - \phi_q$  diejenige Phase der Seitenbänder, die wir als Messgröße aus den Oszillationen extrahiert haben. Sie entspricht dem Term  $\frac{d\Phi(\omega)}{d\omega}$  in der Entwicklung der Phase nach Potenzen von  $\omega$ :  $\Phi(\omega) = \Phi_c + \frac{d\Phi(\omega)}{d\omega}\omega + \frac{1}{2}\frac{d^2\Phi(\omega)}{d\omega^2}\omega^2 \dots$  [Die06]. Um aus der Phase der Seitenbänder die Phasen der Harmonischen zu erhalten (die dann bei der Rekonstruktion verwendet werden), muss also noch einmal integriert werden. Analog ergibt eine erneute Ableitung der Phase nach  $\omega$  den  $\omega^2$ -Term, welcher dem Chirp  $C$  des HHG-Impulses entspricht. Die Phasen der Seitenbänder zusammen mit der quadratischen Anpassung sind in Abbildung 5.11a) zu sehen; durch Integration ergeben sich daraus die Phasen der Harmonischen

<sup>4</sup>Grundsätzlich können aus RABITT-Messungen nur die Phasen der gemessenen Elektronenimpulse bzw. -wellenpakete rekonstruiert werden. Die Rekonstruktion des Attosekundenpulses beruht auf der Annahme, dass der Elektronenimpuls eine Replik des Photonenimpulses ist, d.h. geschieht unter Vernachlässigung der Beiträge der atomaren Phase (vgl. Abschnitt 2.5.2).



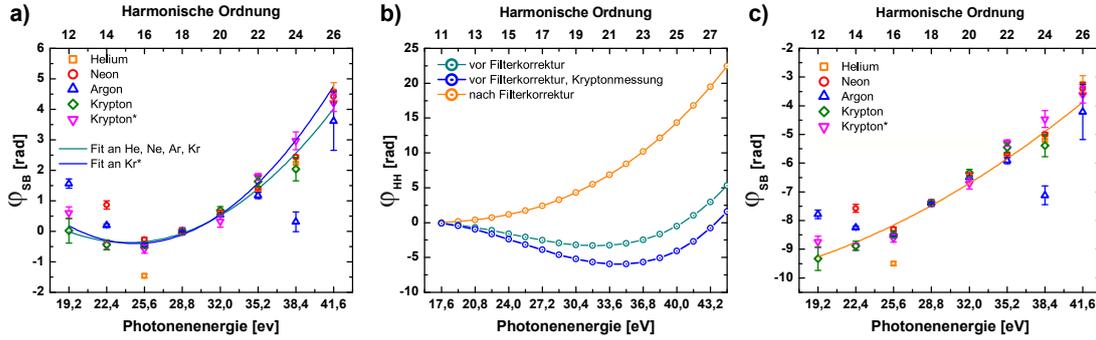
**Abbildung 5.10:** Rekonstruktion der Attosekunden-Impulszüge im Zentrum des Reaktionsmikroskops: links **a)** zu Beginn der Messungen; rechts **b)** der nach dem Wechsel des Aluminiumfilters leicht veränderte Impulszug, der aus der Seitenband-Messung in Krypton rekonstruiert wurde. Die oberen Panele zeigen den Verlauf des elektrischen Feldes der infraroten Fundamentalen und des ultravioletten Impulszugs. Für die Rekonstruktion wurde ein unendlich langer erzeugender IR-Impuls angenommen, der aus monochromatischen Harmonischen besteht. In den mittleren Panele ist der Intensitätsverlauf der Attosekunden-Impulse zu sehen, unten die zeitabhängige Frequenz und Phase.

(Abbildung 5.11b), die wiederum in die Rekonstruktion der Attosekundenimpulszüge eingehen.

### 5.3.3 *In situ*-Rekonstruktion des Attosekundenimpulszugs

Aus den Intensitäten und Phasen der harmonischen Frequenzkomponenten kann der zeitliche Verlauf des Attosekundenimpulszugs durch einfache Summation nach Gleichung 2.31 der Felder am Reaktionsort rekonstruiert werden. Das Ergebnis zeigt Abbildung 5.10.

Dabei wurde wieder zwischen den Messungen in Helium, Neon und Argon einerseits (Abbildung 5.10a) sowie Krypton (Abbildung 5.10b) unterschieden. Die jeweils oberen Panele zeigen den Verlauf der elektrischen Felder von XUV-Impulszug und IR-Feld,



**Abbildung 5.11:** Phasen der Seitenbänder vor **a)** und nach **c)** der Korrektur auf den Einfluss des Aluminiumfilters sowie die an die Messdaten angepassten quadratischen Funktionen (durchgezogene Linien), die zur Intergration verwendet wurden. Das Integral liefert direkt die relativen Phasen der harmonischen Frequenzkomponenten **b)**.

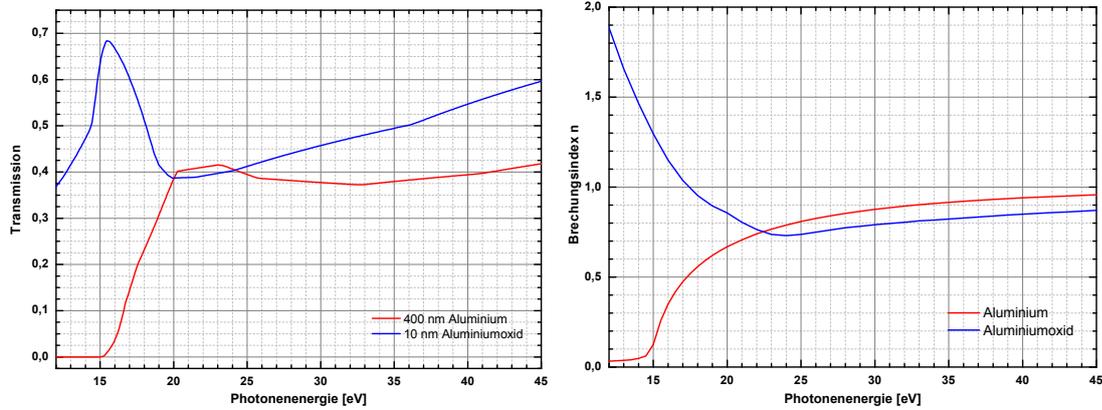
wobei der Phasenversatz zwischen IR und XUV nicht bekannt ist. Aus den Feldern ergibt sich durch Quadratur der Intensitätsverlauf, mit dem eine direkte Abschätzung der zeitlichen Dauer  $\Delta\tau_{XUV}$  eines Attosekundenpulses innerhalb des Impulszugs möglich ist: die Breite bei halber Intensität (FWHM) beträgt im Fall **a)** 10,48% der infrarot-Zykluslänge  $T_{IR}$ , in **b)** 8,87% von  $T_{IR}$ . Mit  $T_{IR} = 2,584$  fs ergeben sich also Impulsdauern von  $\approx 270$  as für **a)** und  $\approx 230$  as für **b)**. In beiden Fällen treten Nebenpulse geringer Intensität ( $< 0,5 \cdot I_{max}$ ) auf.

Des Weiteren zeigen die rekonstruierten elektrischen Felder der Attosekundenimpulse (obere Panels in Abbildung 5.10) jeweils einen Phasensprung um  $\pi$  zwischen aufeinanderfolgenden Pulsen. Dies ist eine direkte Folge der Vorzeichenumkehr des elektrischen Feldes der Fundamentalen nach jedem Halbzyklus [San04].

In den unteren Panels von Abbildung 5.10 sind die Phase  $\phi(t)$  und die Frequenz  $\omega(t)$  in Abhängigkeit von der Zeit aufgetragen. Die Phase ergibt sich dabei direkt aus dem elektrischen Feld,  $\phi(t) = \arg(E_{XUV}(t))$ , die Frequenz, die hier in Vielfachen der Fundamentalen bzw. harmonischen Ordnungen angegeben ist, aus deren Ableitung:  $\omega(t) = \frac{d\phi(t)}{dt}$ . Wie aus den spektralen Charakteristika der verwendeten harmonischen Strahlung erwartet variiert  $\omega(t)$  zwischen der 11. und der 29. Harmonischen, wobei Puls **a)** einen drastischeren Chirp aufweist als **b)**. Dies spiegelt sich auch im Feldverlauf wider. Dass  $\omega(t)$  im Fall **b)** bei den Phasen, zu denen die Intensität Null wird, unrealistisch hohe Werte annimmt ist ein Artefakt der Berechnung.

### 5.3.4 Filterkorrektur

Der Aluminiumfilter, der am Eingang der differentiellen Pumpstufe die harmonische Strahlung von der Fundamentalen trennt, beeinflusst die Zeitstruktur der Attosekundenimpulse, weil Aluminium im fraglichen Wellenlängenbereich sowohl dispersiv als auch unterschiedlich lichtdurchlässig ist. Die dafür ausschlaggebenden Materialeigenschaften lassen sich aus dem wellenlängenabhängigen Brechungsindex  $n$  folgendermaßen



**Abbildung 5.12:** Transmission und Brechungsindizes von Aluminium und Aluminiumoxid der im Experiment verwendeten Schichtdicken, berechnet mit den Werten aus [Smi91, Ger91].

berechnen:

$$(5.2) \quad E(x, t) = A \int_{-\infty}^{\infty} e^{i(\omega t - kx)} d\omega$$

$$(5.3) \quad k = \frac{\omega}{\tilde{c}} \quad \text{mit} \quad \tilde{c} = \frac{c}{n}$$

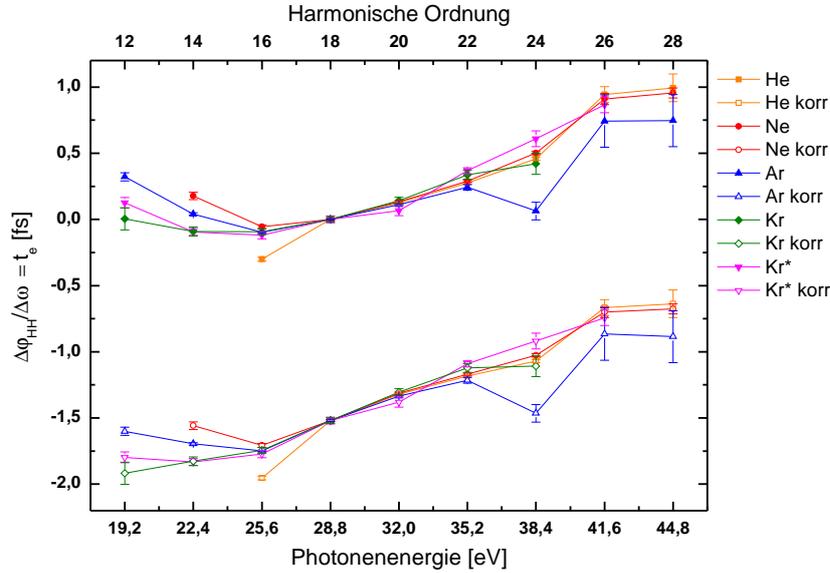
worin  $\tilde{c}$  die Lichtgeschwindigkeit im Medium ist,  $c$  diejenige im Vakuum,  $n$  der Brechungsindex und  $k$  der Wellenvektor. Die Oszillation des elektrischen Feldes wird mit Gleichung 5.2 und 5.3 zu  $e^{i(\omega t - \frac{\omega n}{c}x)}$ , deren Phase  $\phi(\omega) = \frac{\omega n(\omega)}{c}x$ . Daraus ergibt sich das von der Filterdicke  $x$  abhängige Group Delay GD [Die06], das die Dispersion des Filters dem Puls aufprägt:

$$(5.4) \quad \text{GD} = \frac{d\phi}{d\omega} = \frac{n(\omega)}{c}x + \omega \frac{dn}{d\omega} \cdot \frac{x}{c}.$$

Dabei muss sowohl der Aluminiumfilter selbst als auch die unvermeidliche Oxidschicht von einigen zehn Nanometern berücksichtigt werden, die sich unter Atmosphärenbedingungen auf dem Filter bildet. Das vorliegende Experiment wurde mit zwei Aluminiumfiltern von je 200 nm Dicke durchgeführt, die direkt hintereinander durchlaufen werden; die Oxidschicht wurde in Anlehnung an die Arbeiten anderer Forschungsgruppen [LM05] auf insgesamt 40 nm geschätzt. Abbildung 5.12 zeigt Transmission und Brechungsindex von Aluminium und Aluminiumoxid der verwendeten Dicken im relevanten Energiebereich, berechnet aus den in [Smi91, Ger91] publizierten Werten.

Die Dispersion des Filters verändert das Group Delay des Laserpulses, das heißt sie muss von  $d\phi_{\text{HH}}/d\omega$  subtrahiert werden. Abbildung 5.13 zeigt  $d\phi_{\text{HH}}/d\omega$  vor (volle Symbole) und nach (offene Symbole) Subtraktion der Dispersion des Filters. Der parabolische Verlauf der Seitenbandphasen wird durch die Korrektur der Einflüsse des Filters beinahe linear.

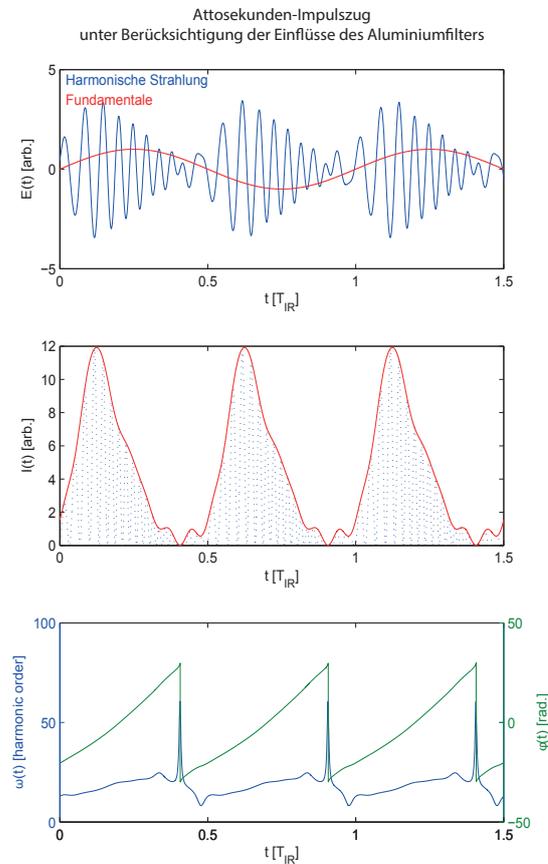
Aufschlussreich ist dies in Zusammenhang mit dem halbklassischen Bild des Attochirps: Dort ist  $d\phi_{\text{HH}}/d\omega$  ein Maß für den Zeitpunkt, zu dem die Elektronen der



**Abbildung 5.13:** Ableitung der Phase der Seitenbänder vor (volle Symbole) und nach (offene Symbole) der Korrektur auf den Einfluss des Aluminiumfilters. Nach der Korrektur verläuft die Phase fast linear. Dies entspricht den Erwartungen, da die Theorie der HHG für Harmonische aus dem Bereich des Plateaus, die bei der Elektronenexkursion entlang kurzer Trajektorien entstehen, einen konstanten, positiven Chirp vorhersagt (vgl. Abschnitt 2.2.1). Im klassischen Bild ist  $\Delta\phi_{q+1}/2\omega$  außerdem die Rückkehrzeit der Elektronen zum Ionenrumpf. Das erlaubt eine grobe Abschätzung der Impulsdauer.

HHG-Targetatome zum Ionenrumpf zurückkehren, mit diesem rekombinieren und dabei das ultraviolette Photon aussenden. Diese Rückkehrzeit oder Rekollisionszeit (vgl. Abschnitt 2.2.1)  $t_e$  ergibt sich aus  $t_e = \Delta\phi_{q+1}/2\omega = \phi_{SB}/2\omega_0$ . Aus der ansteigenden Rückkehrzeit mit zunehmender Energie kann man deshalb direkt herauslesen, dass jeder einzelne Attosekunden-Impuls innerhalb des gesamten Impulszugs positiv gechirpt ist, und dass dieser Chirp nahezu konstant ist – genau wie es für die kurzen Trajektorien zu erwarten ist (vgl. auch Abbildung 2.8). Quantitativ lässt sich aus Abbildung 5.13 der Chirp auf  $\approx \frac{0,5 \text{ fs}}{12,6 \text{ eV}} = 40 \text{ as/eV}$  bestimmen, was gut mit dem theoretisch erwarteten Wert in der Größenordnung  $10 \text{ as/eV}$  übereinstimmt (vgl. Abschnitt 2.2.1).

Darüber hinaus liefert die Variation der Rückkehrzeit über den gesamten für den Impuls notwendigen Spektralbereich eine grobe Abschätzung der Impulsdauer: Die Elektronen kehren beim HHG-Prozess – im semiklassischen Drei-Schritt-Modell betrachtet – mit einer relativen Zeitdifferenz von weniger als einer Femtosekunde zum Ionenrumpf zurück. Die Länge eines Einzelimpulses aus dem Impulszug sollte sich folglich in einer ähnlichen Größenordnung bewegen. Nach Herausrechnen der Dispersion des Filters überspannt  $t_e$  jedoch einen größeren Zeitraum; das heißt, die Dispersion des Aluminiumfilters komprimiert den Attosekundenimpuls zeitlich (vgl. auch [LM05, Kim04]). Wie wir gleich sehen werden, bestätigt die RABITT-Rekonstruktion des elektrischen Feldes



**Abbildung 5.14:** Attosekunden-Impulszug am Entstehungsort bzw. vor dem Durchlaufen des Aluminiumfilters. Dieser wurde unter Berücksichtigung der Absorption und Dispersion im Aluminiumfilter rekonstruiert. Es zeigt sich, dass die Impulse vor Durchlaufen des Filters deutlich länger und stärker gechirpt sind, dafür weist  $\omega(t)$  praktisch keine Oszillationen mehr auf, weil der Phasenverlauf unmittelbar nach der Erzeugung (d.h. unbeeinflusst von optischen Elementen) glatter ist.

und des Intensitätsverlaufs der Attosekundenimpulse vor Durchlaufen des Filters diese Beobachtung<sup>5</sup>.

Analog zur *in situ*-Rekonstruktion der Impulse kann der Verlauf des Impulszugs auch unmittelbar am Ort der Erzeugung charakterisiert werden. Dazu muss der Einfluss des Filters auf die Phasen der Seitenbänder und auf die relativen Intensitäten der Harmonischenwellen berücksichtigt werden. Die um die Dispersion des Filters korrigierten Phasen der Seitenbänder und die daraus durch Integration berechneten Phasen der harmonischen Frequenzkomponenten sind in Abbildung 5.11b) und c) gezeigt; unter Berücksichtigung der Transmission von Aluminium und Aluminiumoxid wurden die relativen Intensitäten korrigiert. Dann ergibt die Summation der monochromatischen

<sup>5</sup>Prinzipiell wirken sich auch die Dispersion des Targetgases und die Reflektion an den fokussierenden Goldspiegeln auf die spektrale Phase des Attosekunden-Impulszugs aus. Diese Effekte wurden in [Din03] untersucht und können als klein verglichen mit dem Einfluss des Filters gelten.

Felder den Impulszug in Abbildung 5.14<sup>6</sup>. Im Vergleich mit den Pulsformen im Zentrum des Reaktionsmikroskops (Abbildung 5.10) ist die deutliche Verbreiterung augenfällig: das FWHM beträgt 17,46% von  $T_{\text{IR}}$  bzw.  $\approx 450$  as. Auch der Chirp von niedrigen hin zu höheren Frequenzen ist deutlicher als *in situ*, was sich auch in dem glatten Verlauf von  $\omega(t)$  widerspiegelt.

## 5.4 Die Winkelverteilung der Photoelektronen

Aufgrund der Vermutung, dass die Abweichungen der Phasen bestimmter Seitenbänder auf Resonanzen zurückzuführen sind, wurden die Winkelverteilungen der emittierten Photoelektronen energieabhängig untersucht. Die Datenpunkte sind in Abbildung 5.15 für Photoionisationslinien, in Abbildung 5.16 für Seitenbänder zusammen mit den im Folgenden diskutierten Fitfunktionen (durchgezogene Linien) zu sehen. Die Winkel  $0^\circ$  und  $180^\circ$  entsprechen Ereignissen, bei denen Photoelektronen entlang der Spektrometerachse  $z$  in Richtung Elektronendetektor ( $0^\circ$ ) oder Ionendetektor ( $180^\circ$ ) emittiert werden. Entlang dieser Achse sind auch die elektrischen Felder von XUV- und IR-Impulsen polarisiert. Eine ortsabhängige Detektoreffizienz hat dazu geführt, dass die Verteilungen in den Halbkugeln  $[0^\circ 90^\circ]$  und  $[90^\circ 180^\circ]$  nicht identisch sind, wie man es aufgrund der Symmetrie des Ionisationsprozesses erwarten würde. Zusätzlich wurde die Analyse der Winkelverteilungen bei den vorliegenden Daten dadurch erschwert, dass der Knoten der Zyklotronbahn der Elektronen bei  $p_z \approx -0,15$  a.u. liegt. Dadurch ist die Impulsauflösung der Elektronen gerade im Bereich großer Transversalimpulse schlecht (vgl. Abschnitt 4.3). Daher wäre es für die Analyse von Vorteil, die Messung bei veränderter Extraktionsspannung zu wiederholen, um so zuverlässigere Daten zu bekommen, was jedoch im Rahmen dieser Arbeit nicht mehr möglich war. Deshalb beschränkt sich die nachfolgende Diskussion auf die Ereignisse bei Emissionswinkeln  $< 90^\circ$ , die weniger stark vom Knoten der Zyklotronbewegung der Elektronen im Magnetfeld beeinflusst sind.

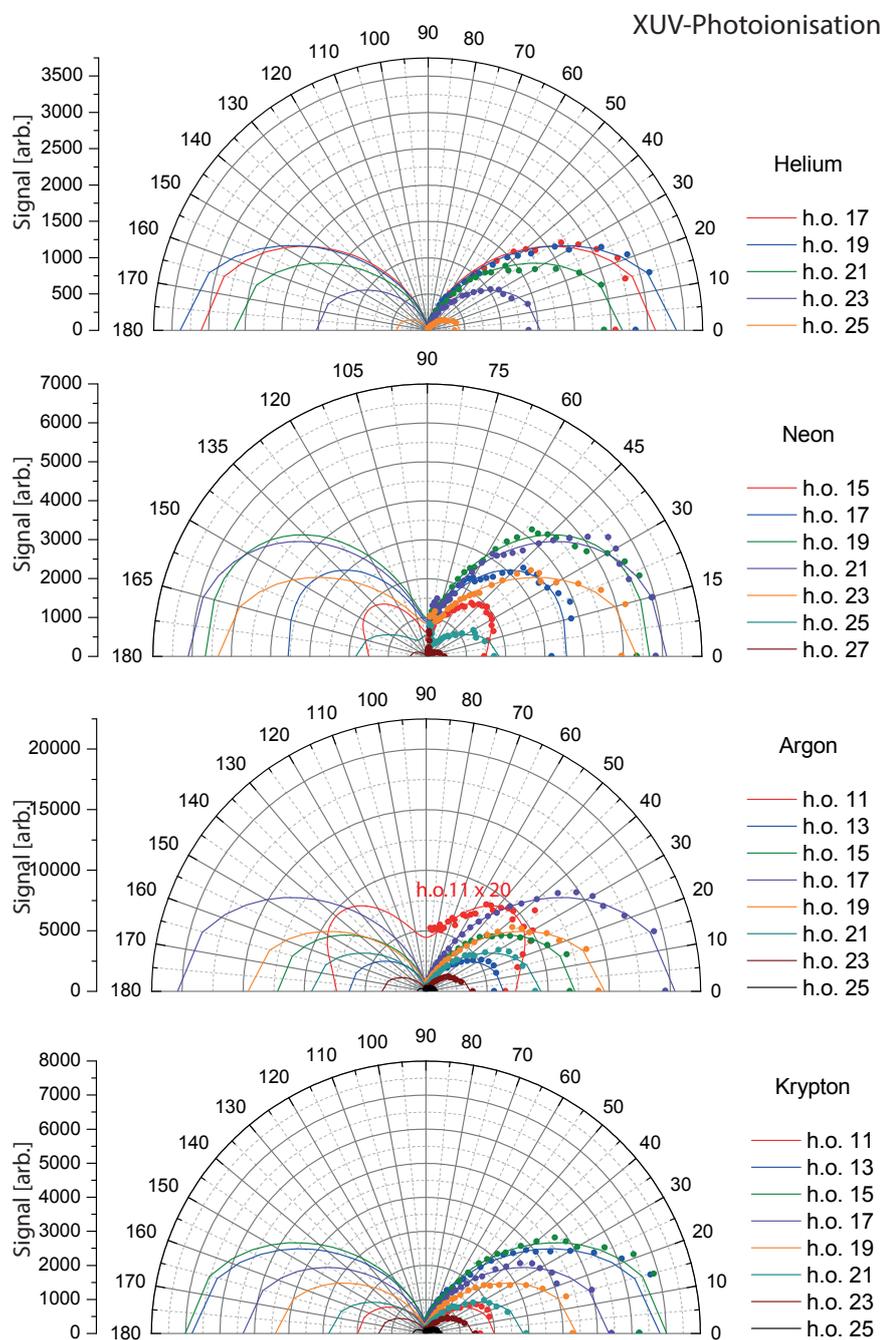
Die Winkelverteilung der Photoelektronen nach Ionisation mit linear polarisierten Photonen wird mit

$$(5.5) \quad I(\theta) \propto 1 + \beta_2 P_2(\cos \theta) + \beta_4 P_4(\cos \theta)$$

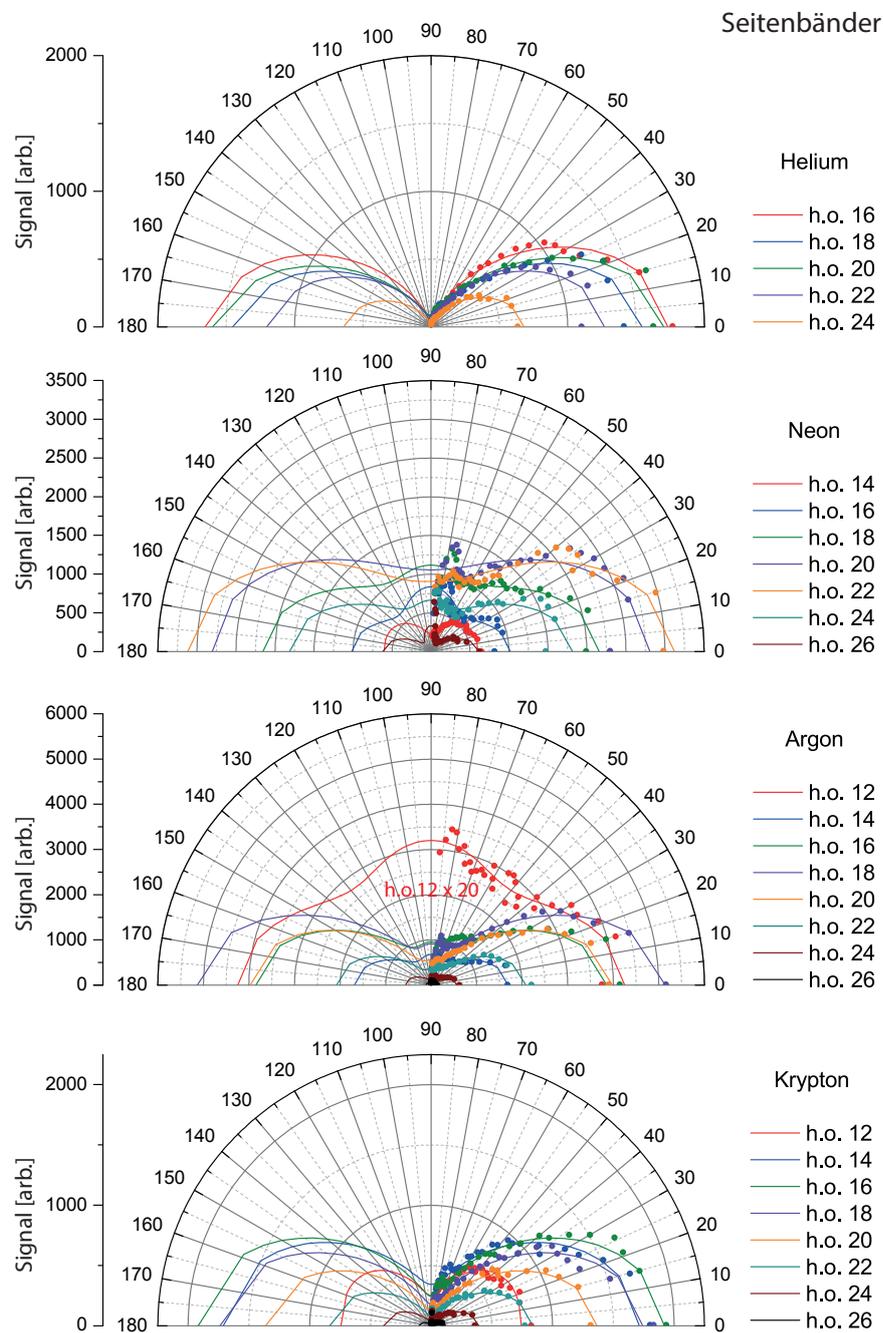
beschrieben, worin  $I(\theta)$  die winkelabhängige Zählrate ist,  $\theta$  der Winkel bezüglich der Polarisationsachse,  $P_L(\cos \theta)$  das Legendrepolynom der Ordnung  $L$  ist und  $\beta_L$  der dem jeweiligen Polynom zugeordnete Asymmetrieparameter [Rei03, Smi88]. Bei der Ionisation mit nur *einem* Photon ist  $\beta_4 = 0$ , und  $\beta_2$  kann Werte zwischen -1 und 2 annehmen [Coo68]. Wird das Elektron durch Absorption von zwei Photonen emittiert ist  $\beta_4$  ungleich Null.

Die experimentellen Winkelverteilungen wurden deshalb mit Legendrepolyomen der Ordnung 2 und 4 angepasst, welche zusammen mit den Daten in Abbildung 5.15 und 5.16 gezeigt sind. Die ermittelten  $\beta$ -Parameter sind im Anhang auf Seite 126 tabellarisch zusammengefasst und in Abbildung 5.17 graphisch dargestellt.

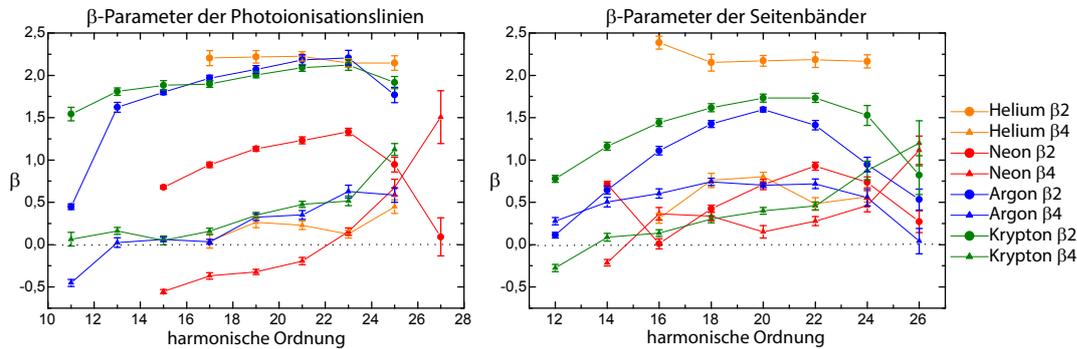
<sup>6</sup>Die Filterkorrektur wurde nur für die Messungen in Helium, Neon und Argon durchgeführt, jedoch nicht für die in Krypton nach Filterwechsel.



**Abbildung 5.15:** Winkelverteilung der Photoelektronen nach Ionisation durch harmonische Strahlung. Bei Ionisation mit linear polarisiertem Licht, wie es hier der Fall ist, erwartet man eine reine Dipolverteilung. Die Beobachtungen weichen zum Teil davon ab, insbesondere haben die niedrigsten Ionisationslinien in Neon, Argon und Krypton ihr Emissionsmaximum bei  $\approx 40^\circ$ .



**Abbildung 5.16:** Winkelverteilung der Photoelektronen nach der Ionisation durch harmonische Strahlung und zusätzliche Absorption oder Emission eines IR-Photons aus dem Feld der Fundamentalen. Aufgrund der Wechselwirkungen mit zwei Photonen geschieht die Emission der Photoelektronen in den Seitenbändern verstärkt bei großen Winkeln. Wie bei den ATI-Linien (Abbildung 5.15) können die größten Abweichungen von der Dipolverteilung bei den Seitenbändern unmittelbar über der Ionisationsschwelle beobachtet werden.



**Abbildung 5.17:**  $\beta$ -Parameter der Winkelverteilung für Photoionisationslinien (links) und für Seitenbänder (rechts).

Aus den gemessenen Winkelverteilungen lassen sich eine Reihe von Beobachtungen ableiten:

- Die Emission der Photoelektronen geschieht im Wesentlichen dipolförmig, d.h. die Maxima der Emission liegen für die meisten Energien bei  $0^\circ$  und  $180^\circ$ . Das gilt insbesondere für die Messungen in Helium und Krypton und entspricht der bei der Ionisation mit linear polarisiertem Licht erwarteten Verteilung [Rei03].
- Die deutlichsten Abweichungen von der Dipolverteilung beobachtet man in den Seitenbändern der Messungen in Neon und Argon, sowie in schwacher Ausprägung in Krypton. Da zum Entstehen eines Seitenbandes zwei Photonen beitragen – ein ultraviolettes und ein infrarotes – und der Endzustand außerdem auf zwei nicht unterscheidbaren Quantenpfaden erreichbar ist war auch dies zu erwarten. In Helium allerdings zeigen die Seitenbänder gar keine Emissionen bei großen Winkeln.
- Auch in der Winkelverteilung weichen gerade diejenigen Seitenbänder, die unmittelbar über der Ionisationsschwelle des jeweiligen Targets liegen und phasenverschoben oszillieren (vgl. Abschnitt 5.3.2), von den übrigen Seitenbändern ab. Insbesondere ist dies in den Seitenbändern der harmonischen Ordnung 12 in Argon und Krypton, der Ordnung 14 in Neon und der Ordnung 16 in Helium der Fall.
- In den Seitenbändern in Argon beobachtet man einen kontinuierlichen Übergang von einer Verteilung bei niedrigen Elektronenenergien, die ein Maximum in Polarisationsrichtung und ein weiteres Maximum nahe  $90^\circ$  zeigt, hin zu einer vorwiegend dipolförmigen Verteilung bei höheren Elektronenenergien. Dieser Übergang ist in den Photoionisationslinien nicht zu sehen.
- Ähnlich wie im Fall der Seitenbänder in Argon zeigt sich in den Photoionisationslinien in Neon eine energieabhängige, kontinuierliche Veränderung der Winkelverteilung: Hier verschiebt sich das Maximum der Emission, das im Fall der niedrigsten Linie bei  $\approx 40^\circ$  liegt, mit zunehmender Elektronenenergie zu kleineren Winkeln. Oberhalb der harmonischen Ordnung 19 ist die Verteilung im Wesentlichen dipolförmig.

- Argon und Krypton zeigen lediglich bei den jeweils niedrigsten Photoionisationslinien ungerader Ordnung (d.h.  $q = 11$ ) deutliche Abweichungen von der Dipolverteilung.

Insgesamt unterstützen die beobachteten Winkelverteilungen die These, dass die Phasenverschiebungen der Oszillationen unmittelbar über der Ionisationsschwelle von hoch liegenden angeregten Zuständen herrühren. Für ein tieferes Verständnis des Zustandekommens der genauen Winkelverteilungen sind allerdings detaillierte Simulationsrechnungen notwendig.

In der Literatur haben die Winkelverteilungen der Seitenbänder im Gegensatz zu deren Phasen bisher wenig Beachtung erfahren. Bislang wurde an einem einzelnen Seitenband beobachtet, dass sowohl Winkelverteilungen als auch die Intensität mit  $2\omega_0\Delta\tau$  abhängig von der Verzögerung  $\Delta\tau$  zwischen Attosekunden-Impulszug und IR-Feld oszillieren [Ase03]. Bei der ersten systematischen Untersuchung der Winkelverteilung von Photoelektronen bei der Ionisation mit XUV- und IR-Strahlung wurden im Experiment Dipolverteilungen  $I(\theta) \propto \cos^2\theta$  für beide Linien gefunden; parallel dazu durchgeführte TDSE-Rechnungen legten jedoch nahe, dass sich die Winkelverteilung von ATI-Elektronen mit zunehmender IR-Intensität zunächst verbreitern, bei noch stärkerem Infrarotfeld schließlich einen Intensitätsabfall bei  $0^\circ$  aufweisen sollten [Guy05]. Im Fall der Seitenbänder sollte die Winkelverteilung der Photoelektronen abhängig von der Phase zwischen harmonischer und fundamentaler Strahlung einen zusätzlichen Peak bei  $90^\circ$  aufweisen. Die vorausgesagte Abflachung der ATI-Peaks, nicht aber die Emissionen bei großen Winkeln in den Seitenbändern wurden in einer Folgestudie experimentell nachgewiesen [Guy08b]. Dazu wurde bei festem  $\Delta\tau$  die Winkelverteilung zweier ATI-Linien und der benachbarten Seitenbänder gemessen und mit TDSE-Rechnungen verglichen. Berechnungen bei verschiedenen Werten von  $\Delta\tau$  zeigten im Rahmen dieser Studie außerdem, dass die Winkelverteilungen empfindlich von der Phasendifferenz der benachbarten Harmonischen abhängen. Deshalb könnten Winkelverteilungen in ähnlicher Weise wie RABITT-Interferogramme zur Überwachung der harmonischen Phasen- und der Phasen Anpassung im Target verwendet werden, so der Vorschlag der Autoren.

Während die oben diskutierten Experimente stets das gesamte Harmonischenspektrum verwenden (auch wenn nur eine oder zwei Linien ausgewertet und mit Simulationsrechnungen verglichen werden), nutzt eine alternative Herangehensweise einen Monochromator, um Messungen mit nur einer harmonischen Ordnung durchführen zu können. Das hat den Vorteil, dass die Messergebnisse leichter mit der sogenannten soft-photon-approximation [Maq07] verglichen werden können, die zwischen den Seitenbändern unterscheidet, die durch Emission bzw. Absorption eines IR-Photons entstehen. Die experimentellen Resultate in Argon [Hab09] und Helium [Hab10, Hab11] zeigten signifikante Abweichungen sowohl beim Vergleich mit der soft-photon-approximation als auch mit Rechnungen mit störungstheoretischen Ansätzen [Tom02], die die Autoren vor allem auf Elektronenkorrelationen zurückführen.

Die hier präsentierten Ergebnisse gehen insofern über die bisherigen Studien hinaus, als sie die Winkelverteilungen von allen (mit verlässlicher Statistik erfassten) Seitenbändern und Photoionisationslinien unter denselben experimentellen Bedingungen in vier Edelgasen versammelt. Zusätzlich sind die verwendeten Attosekunden-

Impulszüge gut charakterisiert, so dass eine Fülle von Informationen für den Vergleich mit Modellrechnungen zur Verfügung steht. Darüber hinaus ist eine delayabhängige Auswertung der Winkelverteilungen denkbar; die Statistik der bereits vorhandenen Daten dürfte dafür ausreichen. Für diese Untersuchung blieb allerdings im Rahmen dieser Arbeit keine Zeit mehr. Die Winkelverteilungen von Photoelektronen haben ihren Ursprung in den Interferenzen zwischen verschiedenen Quantenpfaden, die zum jeweils gleichen Endzustand führen. Daher wirken sich oft auch kleine Veränderungen stark auf die Winkelverteilungen aus, was diese zu einem sensitiven Werkzeug für den Vergleich mit der Theorie macht.

## 5.5 Vergleich mit Simulationsrechnungen

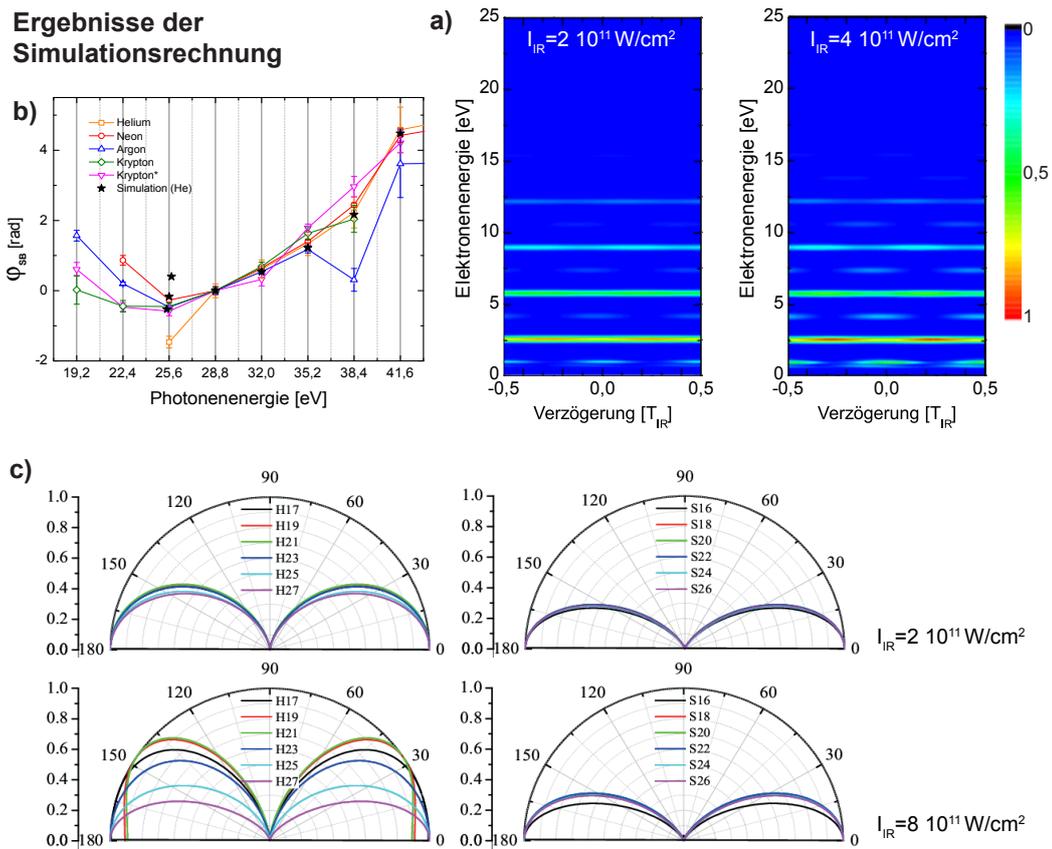
Simulationsrechnungen von Difa Ye<sup>7</sup> ermöglichten einen ersten Vergleich der experimentellen Ergebnisse mit den theoretischen Erwartungen. Die Berechnungen erfolgten dabei durch Lösen der dreidimensionalen Schrödingergleichung mit einem Elektron (3D  $1e$ ), wobei alle relevanten Parameter an die des Experiments angepasst wurden<sup>8</sup>. In Abbildung 5.18 sind die wichtigsten Ergebnisse zusammengefasst.

Zunächst wurden die Seitenbandoszillationen in Helium bei verschiedenen IR-Intensitäten berechnet (Abb. 5.18a). Aus den Simulationen geht hervor, dass die IR-Intensität sich in erster Linie auf die Intensität der Seitenbänder und den Kontrast der Oszillationen auswirkt, und dass die Berechnung mit  $I_{\text{IR, sim.}} = 4 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  die experimentellen Beobachtungen am besten wiedergibt. Hier stimmen Experiment und Rechnung recht gut überein, wurde doch die IR-Intensität anhand experimentell zugänglicher Parameter in Abschnitt 3.6 auf  $I_{\text{IR, exp.}} = 1,5 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  geschätzt. Auch die Phasen der modellierten Seitenbänder zeigen erwartungsgemäß denselben Verlauf wie die experimentellen Daten (Abb. 5.18b), jedoch wird der Phasenversatz im niedrigsten Seitenband zwischen Ionisationsschwelle und dem ersten HHG-Photoionisationspeak von der Simulationsrechnung keineswegs wiedergegeben.

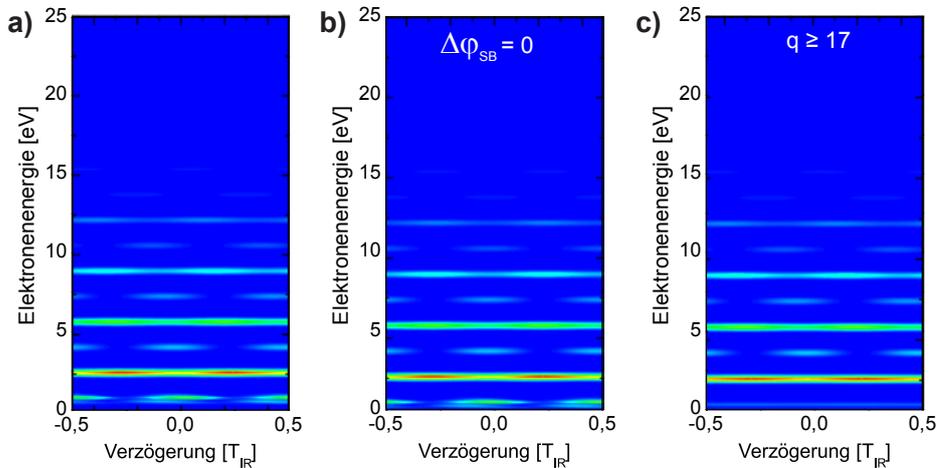
Im nächsten Schritt wurden die Winkelverteilung der Seitenbänder sowie der HHG-Photoionisationslinien mit den experimentellen verglichen. Hier zeigen die Berechnungen, dass die Winkelverteilungen ebenfalls von der IR-Intensität abhängen (Abb. 5.18c). Je intensiver das IR-Feld, desto stärker weicht die Winkelverteilung der Photoelektronen von der Dipolverteilung ab. Hier ist die Übereinstimmung mit den experimentellen Daten weniger gut als im Fall der Seitenbandintensitäten: der Simulation zufolge wäre eine deutlich höhere IR-Intensität als die tatsächlich verwendete notwendig, um die experimentellen Winkelverteilungen in ihrer Tendenz nachzuvollziehen. Die Abweichung im niedrigsten Seitenband und der niedrigsten HHG-Photoionisationslinie, wie sie im Experiment beobachtet wurde, geben die Simulationsrechnungen nicht wieder.

<sup>7</sup>MPI für Kernphysik, Heidelberg, yedifa@gmail.com

<sup>8</sup>Die Simulation ist eine TDSE-Rechnung (Time Dependent Schrödinger Equation) und arbeitet mit einer nicht-äquidistanten Diskretisierung der radialen Koordinate, wobei bis zum Maximalradius von 1000 a.u. 2000 Gitterpunkte verwendet werden. Für die zeitliche Entwicklung wurde die sog. „second-order split-operator“ Methode verwendet; die Zeitschritte sind jeweils 0,1 a.u. lang. Bahndrehmomente werden bis  $l_{\text{max.}} = 32$  berücksichtigt [Ye].



**Abbildung 5.18:** Ergebnisse der Simulationsrechnungen zu Seitenbandoszillationen: Intensität und Kontrast der Seitenbandoszillationen hängen in erster Linie von der IR-Intensität ab **a)**. Aus Simulation rekonstruierte Phasen der Seitenbänder im Vergleich mit den experimentellen Daten in **b)**. **c)** zeigt die Winkelverteilung der Photoelektronen in den Seitenbändern (links) und den HHG-Photoionisationslinien in Abhängigkeit von der IR-Intensität [Ye].

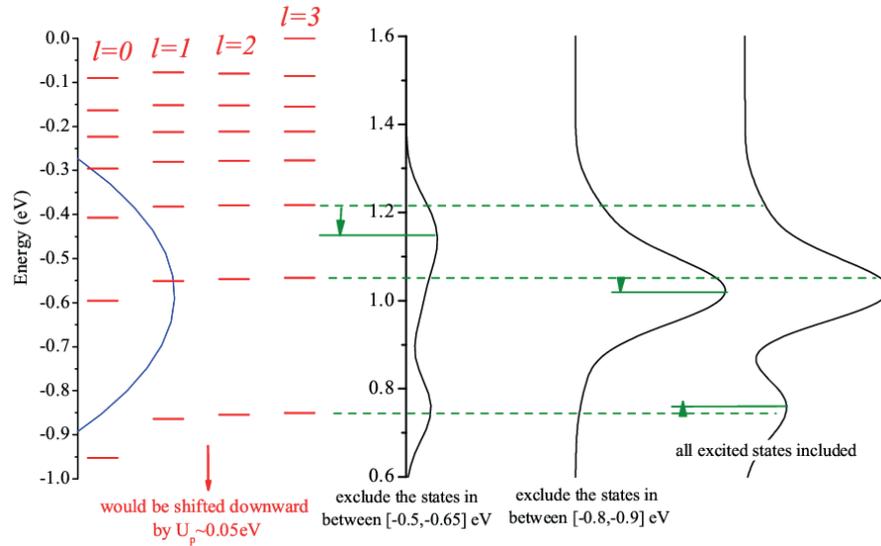


**Abbildung 5.19:** Simulationsrechnungen zur Entstehung der Doppellinie in Helium bei  $q = 16$ : Verschiedene Tests dienen dazu, dem Ursprung der Verdopplung des Seitenbandes mit verschiedenen Oszillationsphasen auf den Grund zu gehen. Während **a)** die Simulation unter den vom Experiment vorgegebenen Bedingungen zeigt (das Interferogramm ist mit dem in Abbildung 5.18b bei  $4 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  identisch), wurden für die Rechnung in **b)** die Phasen aller Harmonischen gleichgesetzt. In **c)** ist die Intensität aller Harmonischenwellen unterhalb der Ionisationsschwelle (entsprechend  $q \geq 15$ ) = 0. Alle Graphen von [Ye].

## 5.6 Einflüsse hoch liegender, gebundener Zustände

Zunächst überraschend war die Beobachtung, dass die simulierten Spektren bei der harmonischen Ordnung  $q = 16$  anstelle *eines* Seitenbandes *zwei* Linien aufweisen, die sich in Energie und Oszillationsphase merklich unterscheiden. Dies hat genauere Nachforschungen sowohl im Experiment als auch bei der Simulation angestoßen. Zunächst wurden zwei Tests durchgeführt: zum Einen wurde die Phasendifferenz aller Seitenbänder  $\Delta\phi_{\text{SB}} = 0$  gesetzt (Abbildung 5.19b), was keinerlei Veränderung der Struktur des Seitenbands mit  $q = 16$  gegenüber der Simulation mit dem experimentell ermittelten Phasenverlauf ergab (Abb. 5.19a). Eine weitere Rechnung wurde mit einem Harmonischenspektrum durchgeführt, das erst bei der Ordnung  $q = 17$  beginnt (Abb. 5.19c). In diesem Fall verschwinden die Oszillationen, statt dessen entsteht bei der harmonischen Ordnung 16 ein delayunabhängiges, sehr schwaches Seitenband. Dies lässt die Schlussfolgerung zu, dass hoch liegende, gebundene Zustände an der Entstehung dieser Struktur beteiligt sein müssen, die von den harmonischen Frequenzkomponenten bevölkert werden, energetisch aber unter Ionisationsschwelle liegen.

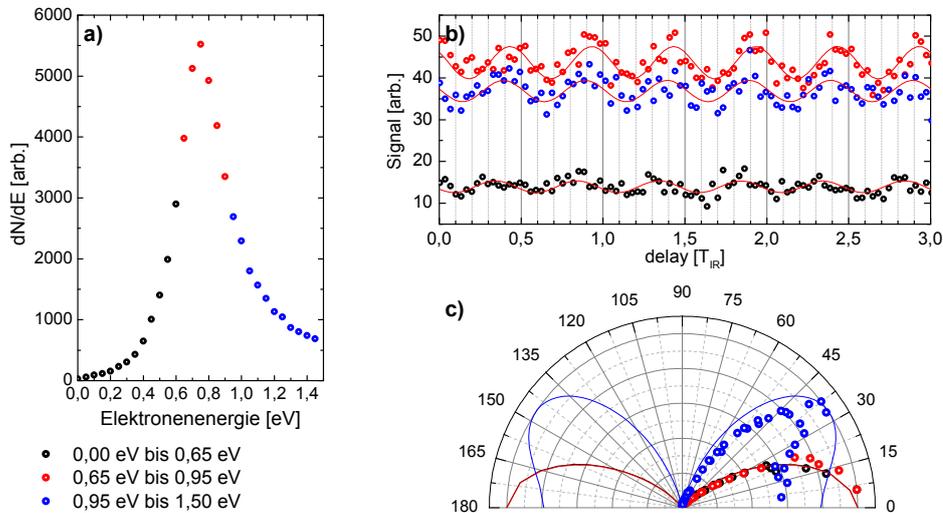
Deshalb wurden kurz vor der Fertigstellung dieser Arbeit weitere Rechnungen durchgeführt, bei denen die infrage kommenden Zustände –  $1s4p$ ,  $1s5p$  und  $1s6p$  – selektiv „ausgeschaltet“ wurden. Vorläufige Ergebnisse dieser Simulationen zeigt Abbildung 5.20. Interessanterweise verschwindet die beobachtete Struktur auch dann nicht, wenn die Besetzung sämtlicher gebundener Zustände (mit Ausnahme des Grundzustandes) im Simulationscode verboten wird. Offenbar spielen nichtsequentielle Ionisationsereignisse hier eine Rolle.



**Abbildung 5.20:** Einfluss verschiedener gebundener Zustände auf die spektrale Charakteristik des Seitenbands bei  $q = 16$ : Durch selektives Entvölkern der infrage kommenden gebundenen Zustände konnten die drei an der Entstehung beteiligten Komponenten identifiziert werden [Ye].

Diese Ergebnisse legen nahe, das entsprechende Seitenband auch in den experimentellen Daten genauer zu untersuchen. Dazu wurde die Ionisationslinie in drei Bänder aufgeteilt und die Ereignisse der verschiedenen Energiebereiche getrennt ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 5.21 zusammengestellt. Tatsächlich oszillieren die drei Energiebereiche nicht gleichphasig; der Unterschied beträgt maximal 0,15 IR-Schwingungszyklen und ist damit kleiner als der in den TDSE-Rechnungen beobachtete Phasenversatz von  $0,296 T_0$  (Letztere ist in Abbildung 5.18b bei der Photonenergie 25,6 eV eingezeichnet, der mittlere der drei Werte ist die Phase die man bei Vernachlässigung der zwei phasenverschobenen Komponenten erhält). Als noch auffälliger erwiesen sich in den experimentellen Daten die Abweichungen in den Winkelverteilungen der einzelnen Energiebänder. Hier sticht das obere Energieband mit einer Verteilung weitab der erwarteten Dipolverteilung heraus, das mittlere und das niedrige Energieband weisen nahezu identische Winkelverteilungen auf.

Insgesamt gibt die Simulationsrechnung nur teilweise die experimentellen Beobachtungen wider; bei den Details der Struktur der Doppellinie bei  $q = 16$  gibt es erhebliche Inkonsistenzen. Der Verdacht, dass gebundene Zustände unmittelbar unter der Ionisationsschwelle die gefundene Struktur wesentlich beeinflussen, wird durch die TDSE-Rechnungen indes weiter erhärtet. Tiefere Nachforschungen müssen nun zeigen, wie sich die zu den einzelnen spektralen Komponenten gehörigen Oszillationsphasen und Winkelverteilungen verhalten; zusätzlich soll die Abhängigkeit der beobachteten Strukturen von der Intensität des IR-Feldes charakterisiert werden.



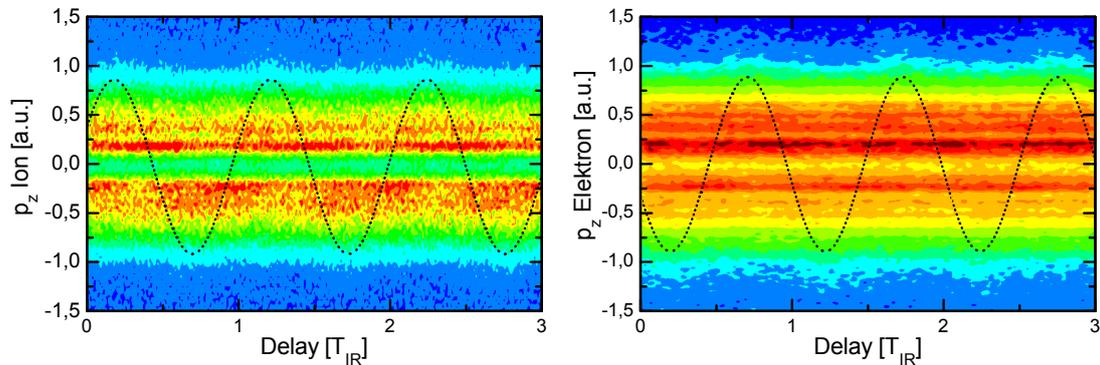
**Abbildung 5.21:** Nachdem Simulationsrechnungen der Seitenbandoszillationen (vgl. Abschnitt 5.5) zwei mit unterschiedlicher Phase oszillierende Komponenten des Seitenbands in Helium unmittelbar über der Ionisationsschwelle gefunden hatten wurde das Verhalten dieser Zweifarben-Photoionisationslinie auch im Experiment näher analysiert: **a)** zeigt die vorgenommenen Energieschnitte, welche die Peakmitte von den energetisch höher bzw. niedriger liegenden Flanken trennt. In **b)** zeigt sich, dass die delayabhängige Oszillation auch im Experiment in den drei Energiebereichen gegeneinander phasenverschoben sind. Darüber hinaus weicht die Winkelverteilung der hochenergetischen Flanke des Peaks von denen der übrigen Photoelektronen im selben Seitenband ab (**c**), Anzahl Ereignisse pro Kanal normiert).

## 5.7 Streaking

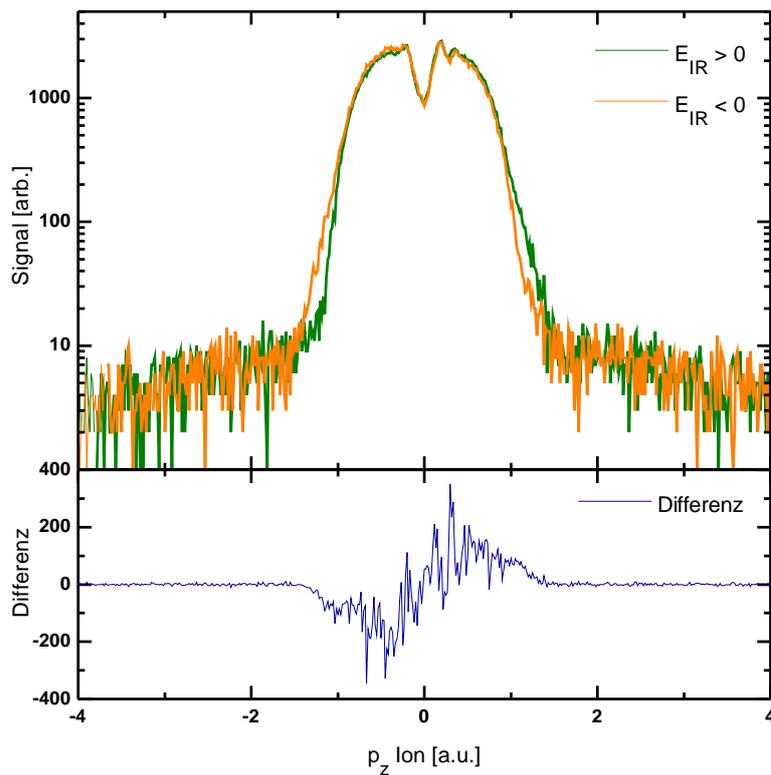
Im Anschluss an die Untersuchungen mit RABITT-Technologie sollten erste Streaking-Experimente (vgl. Abschnitt 2.6.1) mit dem Reaktionsmikroskop durchgeführt werden. Weil zum Zeitpunkt der Messungen jedoch noch keine infraroten Pulse mit nur wenigen optischen Zyklen zur Verfügung standen, wurden die Messungen mit Attosekunden-Impulszügen durchgeführt. Dies ist dann möglich, wenn Impulszüge verwendet werden, deren Einzelimpulse zeitlich um  $T_0$  separiert sind, so dass nur ein Attosekunden-Impuls pro IR-Zyklus vorkommt (vgl. Abschnitt 2.4.1 und 3.3.4). Alle von den XUV-Impulsen initiierten Ionisationsereignisse finden dann bei der jeweils gleichen Phase des IR-Feldes statt.

Die verzögerungsabhängigen Impulsspektren für Ionen und Elektronen der Streaking-Messung in Helium sind in Abbildung 5.22 zu sehen. Bei der Betrachtung fällt sofort auf, dass nur ein kleiner Prozentsatz der geladenen Teilchen einen Impulsübertrag aus dem IR-Feld erfährt. Der größte Teil des Impulsspektrums bleibt dagegen delayunabhängig konstant. Das Streaking-Signal ist dennoch eindeutig zu erkennen, zur Verdeutlichung wurde die Oszillation des Infrarot-Impulses als schwarz gepunktete Linie eingezeichnet.

Der genaue Anteil „gestreakter“ Ionen bzw. Elektronen lässt sich aus der Differenz der Impulsspektren zu den Zeiten maximaler negativer und positiver IR-Feldamplitude ( $\pm 0,5$  fs) bestimmen. Das Ergebnis zeigt Abbildung 5.23. Eine Integration über die



**Abbildung 5.22:** Streaking von Ionen (links) und Elektronen (rechts) in einem starken IR-Feld. die horizontale Achse zeigt jeweils die Zeitverzögerung zwischen IR- und XUV-Impuls, die vertikale Achse den Impuls in der Flugzeitrichtung. Die Spektren entstammen derselben Messung. Zur Veranschaulichung wurde der elektrische Feldverlauf des Infrarot-Impulses mit einer schwarz gestrichelten Linie nachgezeichnet.



**Abbildung 5.23:** Ionenimpuls in time-of-flight-Richtung zu den Phasen maximaler Feldamplitude ( $\pm 0,5$  fs) des IR-Pulses. Offensichtlich erfährt nur ein sehr kleiner Teil der registrierten Ionen eine Impulszunahme im Streaking-Feld. Dieser kann durch Differenzbildung (unten) und Integration quantifiziert werden. Ein analoges Bild ergibt sich bei Betrachtung der Elektronen (nicht gezeigt).

gesamten Impulsspektren sowie das Differenzspektrum ergibt, dass 3,6% der Ionen am Streaking-Prozess teilnehmen. Das ist leider sehr wenig.

Aus den Erfahrungen anderer Forschungsgruppen ist bekannt, dass bei den üblichen Streaking-Experimenten rund 50% der nachgewiesenen Elektronen zum Streaking-Signal beitragen [Pfe]. Darstellungen wie Abbildung 2.15 werden stets so nachbearbeitet, dass die Signale derjenigen Elektronen, die keine Impulsänderung im IR-Feld erfahren haben, unterdrückt werden. Dass unser Ergebnis so weit hinter denen anderer Arbeitsgruppen zurückbleibt, liegt mit großer Wahrscheinlichkeit an einer schlechten Anpassung der beiden Fokalfpunkte aufeinander: Streaking erfordert, dass der zur Impulsverschiebung verwendete IR-Fokus im gesamten Reaktionsvolumen größer als der XUV-Fokus ist. Dies ist im vorliegenden Experiment rein rechnerisch zwar der Fall (siehe Abschnitt 3.4.3), allerdings geschah die Berechnung unter Annahme gaußscher Strahlprofile und eines maximalen IR-Durchmessers von 30 mm am fokussierenden Spiegel. Da die Intensität im IR-Fokus aber mit einer Blende reguliert wird, die bei den Streaking-Experimenten aufgrund der benötigten hohen Intensität weit geöffnet war (30 bis 40 mm), muss hier damit gerechnet werden, dass die Foki nicht optimal überlappen. Dies reicht zur Erklärung der sehr geringen Streaking-Rate allerdings noch nicht aus. Deshalb vermuten wir, dass die zur Fokussierung der XUV-Strahlung verwendeten Spiegel eine zu große Oberflächenrauigkeit aufweisen und durch diffuse Reflexion den XUV-Fokus mit einem Halo ultravioletter Strahlung umgeben (vgl. Abbildung 3.13). Momentan werden aus diesem Grund neue Substrate in die Fokussierkammer eingebaut, eine räumliche Vermessung des XUV-Fokus wird diskutiert.

## 6 Schluss

Die vorliegende Arbeit hat gezeigt, dass der Heidelberger Aufbau aus Attosekunden-beamline und Reaktionsmikroskop die experimentellen Anforderungen erfüllt, die mit den aktuellen Fragen der Attosekundenphysik einhergehen. Diese können nun auf einer höheren Komplexitätsebene angegangen werden. Über den Weg der Reproduktion wichtiger Schlüsselexperimente gelang einerseits eine gute Charakterisierung der Zeitstruktur der verwendeten Impulszüge (Abschnitt 5.3.3); zum anderen belegen die Resultate, dass der gesamte experimentelle Aufbau stabil genug ist, um weitergehende, unter Umständen noch wesentlich längere Messungen in Angriff zu nehmen. Auch Experimente an Molekülen, bei denen mehr als zwei geladene Bruchstücke in Koinzidenz gemessen und verschiedene Reaktionskanäle getrennt werden müssen, erscheinen nun erstmals machbar. Der Benchmark-Test der Apparatur ist damit zufriedenstellend verlaufen.

Auf die vorbereitenden Messungen folgte eine detaillierte, energieaufgelöste Untersuchung der Winkelverteilung der bei der Ionisation mit XUV- und IR-Strahlung emittierten Elektronen in den Edelgasen Helium, Neon, Argon und Krypton (Abschnitt 5.4). Dabei konnten Beobachtungen anderer Forschungsgruppen [Guy05, Guy08b, Hab09, Hab10, Hab11] bestätigt werden. Die hier präsentierten Ergebnisse gehen jedoch insofern weit über alle bisherigen Studien hinaus, als dass sie erstmals Daten für jeweils fünf bis acht Seitenbänder und ebensoviele Photoionisationslinien in vier verschiedenen Gasen unter denselben experimentellen Bedingungen versammeln, während frühere Experimente sich auf die Auswertung einer bis maximal vier Linien in einem Targetgas beschränken. Zusätzlich können die aus den dazugehörigen RABITT-Interferogrammen ermittelten Phaseninformationen über die beteiligten harmonischen Frequenzkomponenten zur Analyse hinzugezogen werden; auch das ist bei vorhergehenden Studien nicht der Fall. Vergleichbar umfassende Daten sind meines Wissens nirgendwo publiziert worden.

Zum tieferen physikalischen Verständnis der Beobachtungen – die über die Extraktion der Phaseninformation zur Impulsrekonstruktion hinaus gehen und insbesondere die Dynamik in gebundenen Zuständen mit erfassen – sind indes detaillierte und entsprechend zeitaufwändige Berechnungen notwendig. Dazu bietet sich in Anlehnung an die bisher publizierten Daten einerseits eine störungstheoretische Behandlung, andererseits die sogenannte „soft photon approximation“ [Maq07] an. Ohne den Vergleich mit eingehenden Simulationsrechnungen, die im Rahmen dieser Arbeit leider nicht mehr zur Verfügung standen, ist aus den experimentellen Resultaten allerdings kein physikalisch schlüssiges, vollständiges Bild der inneratomaren Vorgänge und der Einflüsse der Struktur der jeweiligen Elektronenhülle abzuleiten.

Bei den TDSE-Rechnungen von Difa Ye [Ye], die zum Vergleich der beobachteten Strukturen herangezogen wurden, stach eine interessante Substruktur ins Auge, die le-

diglich im Seitenband unmittelbar über der Ionisationsschwelle auftritt: dieses weist in den Modellrechnungen zwei energetisch voneinander getrennte Komponenten auf, die abhängig von der Zeitverzögerung zwischen XUV- und IR-Impuls auch phasenverschoben oszillieren (Abschnitt 5.6). Dies ist ein starker Hinweis darauf, dass Resonanzen der höchsten harmonischen Ordnung mit einer Photonenenergie  $< I_p$  mit hochliegenden Zuständen dicht unter der Ionisationsschwelle die Charakteristik dieses Seitenbandes beeinflussen. Weitergehende Simulationsrechnungen mit „künstlichen“ Attosekundenpulsen, deren Spektrum für die Berechnung verändert wurde, sowie mit Atompotentialen, bei denen die Bevölkerung einzelner Energieniveaus im Simulationscode „verboten“ wurde haben diese Vermutung bestätigt. Ein vollständiges Bild für das Auftreten der beiden energetisch wie zeitlich getrennten Beiträge zum niedrigsten Seitenband in Helium fehlt indes noch.

Ebenso wenig ist bislang eine offensichtliche Korrelation zwischen den autoionisierenden Zuständen des jeweiligen Targetgases und Abweichungen in der Oszillationsphase bzw. der Winkelverteilung aus den Daten abzulesen. Als aufschlussreich könnte sich hier eine genauere Analyse derjenigen Photoionisationslinien und Seitenbänder erweisen, die, wie bei der Ordnung  $q = 16$  in Helium, auffällige Abweichungen in den Winkelverteilungen der Photoelektronen oder der Oszillationsphase (oder beidem) zeigen. Untersuchungen wie diese bieten einen experimentellen Zugang zu einer der zur Zeit in der Attosekundenphysik intensiv diskutierten Fragen, nämlich inwieweit die Vorstellung von der „instantanen“ Ionisation der Realität entspricht [Gal12]. Dabei bieten die Messungen im Reaktionsmikroskop mit den Informationen zur Energie- und vollständigen Winkelverteilung, gepaart mit den Zeitinformationen aus RABITT-Interferogrammen, eine Fülle von Daten zum Vergleich mit verschiedenen theoretischen Berechnungen.

Von den vielfältigen Anwendungen der Attosekundenphysik wurden einige bereits in Abschnitt 2.6.2 vorgestellt; einen tieferen Einblick bieten die einschlägigen Übersichtsartikel, etwa [Lev06, Kli08b, Nis09, Kra09, Sal12, Gal12]. Nicht für alle Konzepte ist die Impulsspektroskopie mit dem Reaktionsmikroskop geeignet, beispielsweise die Tomographie von Molekülorbitalen [Ita04] und die Techniken der transienten Spektroskopie [Gou10, Hol11]. Auch Vorgänge in Festkörpersystemen [Cav07] können nicht ohne Weiteres im Reaktionsmikroskop untersucht werden. Dafür ist die hier mögliche  $4\pi$ -Koinzidenzspektroskopie für sämtliche geladene Reaktionsbruchstücke für die Untersuchung von Isomerisierungsreaktionen in Molekülen, Ladungstransfer-Phänomenen und der Elektronen-Lokalisierung ideal. Zusätzlich zu den Möglichkeiten der energie- und winkelaufgelösten Messung eröffnet die Kombination eines Reaktionsmikroskops mit einer Attosekundenquelle einen Zugang zur Zeitskala der Elektronendynamik in Atom- und Molekülorbitalen. Das zeigen die aktuellen Diskussionen über die Extraktion von Zeitinformationen aus Streaking- und RABITT-Experimenten [Dah12].

An die hier dargestellten Messungen und Beobachtungen anschließend bieten sich eine Reihe von weiterführenden Experimenten an, die mit der Apparatur am Heidelberger MPIK zum Teil unmittelbar umgesetzt werden könnten. Einige konkrete Vorschläge sollen an dieser Stelle – in der Reihenfolge zunehmender Komplexität – kurz umrissen werden.

### Emissionswinkelabhängige Seitenbandoszillationen

Simulationsrechnungen in [Kim10] besagen, dass sich die Phase der Seitenbandoszillation bei großen Emissionswinkeln um einen Halbzyklus verschiebt. Insbesondere geschieht dieser Phasensprung nicht für alle Seitenbänder gleichzeitig, sondern zunächst bei einem Emissionswinkel von ca.  $70^\circ$  im untersten Seitenband. Bei Emissionswinkeln größer als  $85^\circ$  ist das gesamte Spektrum um  $\pi$  gegenüber den Oszillationen bei kleinen Emissionswinkeln phasenverschoben. Diese Modellrechnungen wurden für Helium durchgeführt.

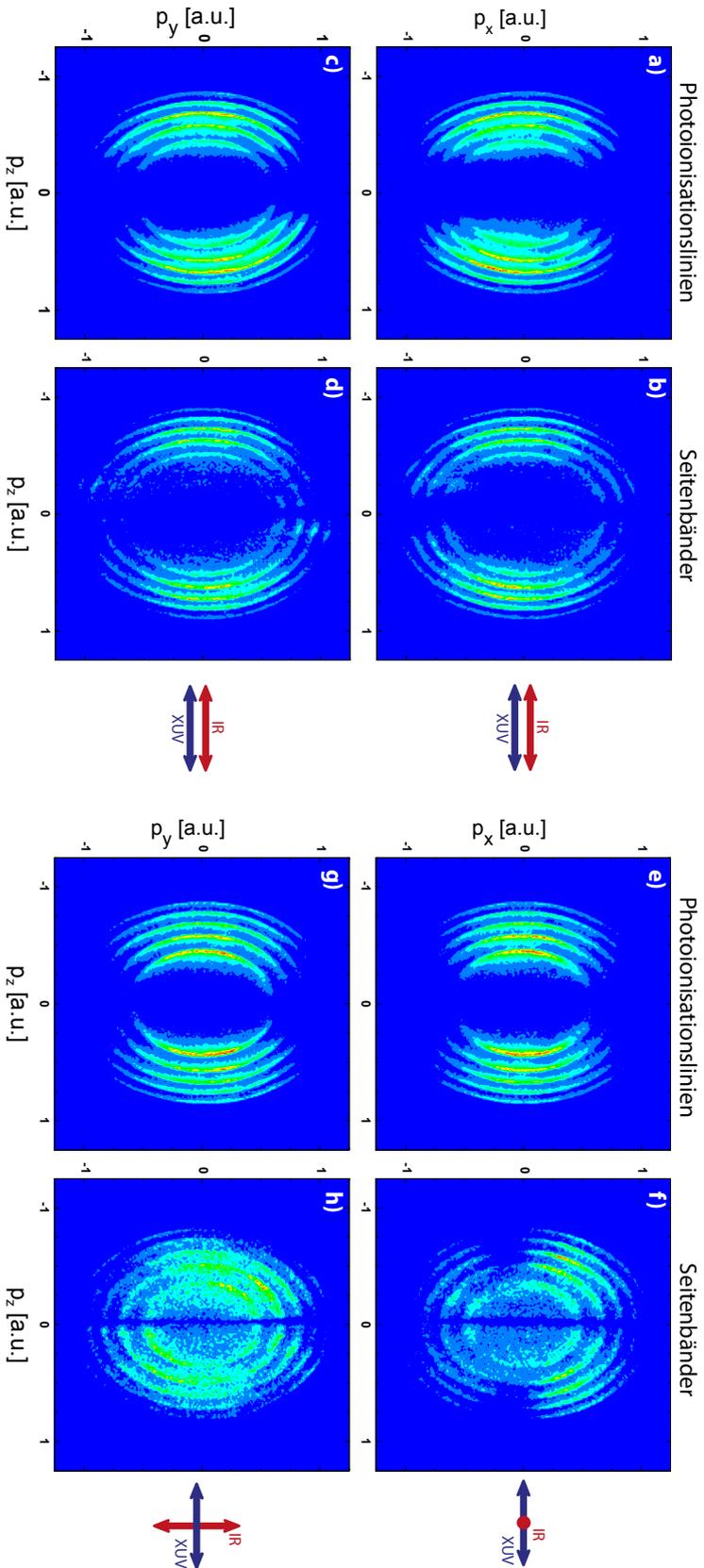
Für dieses Experiment ist das Reaktionsmikroskop mit den Möglichkeiten, Reaktionskanäle präzise winkel- und energieaufgelöst zu trennen prädestiniert. Anhand der bisher vorliegenden Daten kann dies jedoch noch nicht bestätigt werden. Die beobachteten Seitenbandoszillationen verlieren – gasartunabhängig – mit zunehmendem Emissionswinkel zwar an Kontrast. Dies kann aber auch auf die verschlechterte Impulsauflösung zurückzuführen sein, da der Knoten der Zyklotronbewegung der Elektronen bei den hier gezeigten Seitenbandmessungen bei  $p_z = -0,15$  a.u. lag. Gerade im Bereich großer Emissionswinkel, die zum Nachweis dieses Effekts notwendig sind, ist die Impulsauflösung für Elektronen bei den für die Datenaufnahme gewählten Einstellungen deshalb schlecht (vgl. Abschnitt 4.4). Insofern bietet sich eine erneute Messung bei veränderter Magnetfeldstärke und/oder Absaugspannung an, die den Knoten der Zyklotronbewegung an eine weniger empfindliche Stelle der Impulsverteilung verschiebt.

### Polarisationswinkelabhängige Seitenbandoszillationen

Bei der Photoionisation von Argon mit hohen Harmonischen und einem schwachen Infrarot-Laserfeld zeigte sich bereits in [oKe04], dass die relative Intensität der Seitenbänder mit dem Winkel zwischen den Polarisationsachsen von XUV- und IR-Strahlung variiert. Die Seitenbänder sind jeweils bei paralleler Polarisation beider Strahlen am intensivsten. Das Minimum wird erreicht, wenn die Polarisationsachsen von XUV und IR senkrecht zueinander stehen; der Verlauf dazwischen ist  $\propto \sin^2$ . Dieselbe Beobachtung ergaben vergleichbare Experimente in Helium am Freie-Elektronen-Laser FLASH in Hamburg [Mey08, Mey10a, Mey10b]. Im Rahmen der soft-photon-approximation [Maq07] konnten sowohl die Ergebnisse der Messung mit hohen Harmonischen als auch die mit dem Freie-Elektronen-Laser gut mit der Theorie in Einklang gebracht werden.

Mit dem Reaktionsmikroskop lässt sich bei diesem Experiment zusätzlich die Winkelverteilung der Seitenbänder analysieren. Auch eine delayabhängige Messung wie bei den Seitenbandoszillationen ist denkbar. Die Ergebnisse einer vorläufigen Analyse von Experimenten mit gekreuzter Polarisation – das heißt die Polarisationsachsen von XUV- und IR-Strahlung sind senkrecht zueinander ausgerichtet – im Vergleich zu parallelen Polarisationsvektoren zeigt Abbildung 6.1.

Die Graphen in Abbildung 6.1 zeigen jeweils eine Projektion der Elektronenimpulse auf die  $p_x$ - $p_z$ - (**a**, **b**, **e**, **f**) bzw. die  $p_y$ - $p_z$ -Ebene (**c**, **d**, **g**, **h**), wobei  $p_z$  stets entlang der horizontalen Achse aufgetragen ist (wie man auch an den von den Zyklotronbewegung



**Abbildung 6.1:** Winkelverteilung von Photoionisationslinien und Seitenbändern in unterschiedlich polarisierten probe-Feldern bei der Ionisation von Argonatomen mit ebenfalls in Argon erzeugten hohen Harmonischen und einem zusätzlichen, schwachen IR-Feld. Der linke Block (a bis d) zeigt die Daten der Messung bei parallelen Polarisationsvektoren, der rechte (e bis h) die Situation bei senkrecht zueinander orientierten Polarisationen. Gezeigt sind jeweils Projektionen auf die  $p_x$ - $p_z$ -Ebene (a, b, e, f) bzw. auf die  $p_y$ - $p_z$ -Ebene (c, d, g, h). In der jeweils linken Spalte eines Blocks (a, c, e, g) wurden die Photoionisationslinien durch entsprechende Schnitte in der Energieverteilung der Photoelektronen selektiert, rechts davon (b, d, f, h) nach demselben Verfahren die Seitenbänder. Die XUV-Strahlung ist in allen gezeigten Graphen entlang der  $z$ -Achse polarisiert; diese fällt auch mit der TORF-Achse des Reaktionsmikroskops zusammen.

der Elektronen verursachten Knoten bei  $p_z = 0,15$  a.u. erkennen kann). In **a)**, **c)**, **e)** und **g)** wurden die Photoionisationslinien durch entsprechende Schnitte in der Energieverteilung selektiert; in den übrigen Graphen auf demselben Weg die Seitenbänder. **a)** bis **d)** entstanden bei parallelen Polarisationsvektoren, **e)** bis **h)** bei gekreuzter Polarisation. Die Messungen wurden in Argon durchgeführt, die harmonische Strahlung ebenfalls in Argon erzeugt.

Deutlich erkennbar werden die Photoelektronen bei der Messung mit parallelen Polarisationsvektoren sowohl in den Photoionisationslinien als auch bei den Seitenbändern rotationssymmetrisch um die  $p_z$ -Achse emittiert. Die Verteilung entspricht den in Abschnitt 5.4 analysierten Strukturen mit starkem Dipolcharakter. Hingegen ist bei der Messung mit gekreuzter Polarisation die Rotationssymmetrie offensichtlich gebrochen – allerdings nur in den Seitenbändern. Während die Photoionisationslinien entsprechend der Theorie zur Ionisation mit einem Photon (vgl. Abschnitt 5.4) weiterhin hauptsächlich entlang der Polarisationsrichtung des XUV emittiert werden, beobachtet man bei den Seitenbändern in der  $p_x$ - $p_z$ -Ebene eine Quadrupolverteilung, in der  $p_y$ - $p_z$ -Ebene eine stark asymmetrische Verteilung mit mehreren Emissionsmaxima.

Hier bietet sich eine detailliertere Analyse bei verschiedenen Polarisationsrichtungen des IR-Strahls an, die im Rahmen dieser Arbeit allerdings nicht mehr durchgeführt werden konnten. Die Asymmetrien in  $p_x$  und  $p_y$  sind mit großer Wahrscheinlichkeit auf einen schlechten räumlichen Überlapp der beiden Foki zurückzuführen, und müssten dahingehend untersucht werden. Darüber hinaus können die Winkelverteilungen noch in Abhängigkeit von der Zeitverzögerung zwischen XUV- und IR-Impuls gemessen werden. Ein entsprechendes Experiment [Ase03] hat bereits gezeigt, dass die Winkelverteilung der Seitenbänder auf derselben Zeitskala oszilliert wie deren Intensität.

### **Zeitaufgelöste Doppelionisation**

Die hohen Photonenenergien harmonischer Strahlung genügen in vielen Fällen, um atomare Targets nicht nur einfach, sondern auch doppelt zu ionisieren. Auch in diesem Zusammenhang haben Attosekundenimpulse auf Basis von HHG bereits viel Aufmerksamkeit auf sich gezogen, da die Doppelionisation als modellhaft für die Untersuchung von Elektronenkorrelationen gilt. Man unterscheidet die direkte Doppelionisation, bei der ein einzelnes Photon der Elektronenhülle beide Ladungsträger entreißt, von der Mehrphotonen-Doppelionisation. Letztere geschieht mittels Absorption mehrerer Photonen, wobei wiederum sequentielle (das heißt schrittweise) und nicht-sequentielle (also instantane, gleichzeitige) Pfade unterschieden werden. Insbesondere die nicht-sequentiellen Ereignisse, bei denen keine Relaxation der angeregten Elektronen zwischen aufeinanderfolgenden Absorptionsschritten möglich ist, stellen ein konzeptionell wie theoretisch schwer zugängliches Szenario dar, von dessen Untersuchung man sich ein tieferes Verständnis für die wechselseitige Beeinflussung gebundener Elektronen verspricht (siehe z.B. [Web00]).

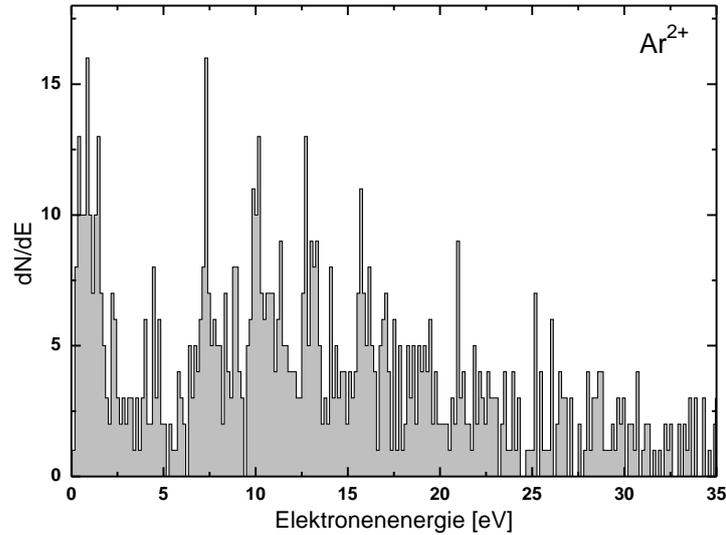
Dementsprechend liegen bereits eine Reihe von theoretischen und experimentellen Untersuchungen zur Doppelionisation mit harmonischer Strahlung vor, von denen hier nur die wichtigsten erwähnt werden sollen: die Doppelionisation von Helium durch se-

quentielle Absorption zweier HHG-Photonen aus einer intensiven Quelle [Pap03] wurde schon früh experimentell umgesetzt. Hinweise auf nichtsequentielle Doppelionisation lieferten wenig später Beobachtungen der Doppelionisation an Argon und Krypton [Ben06]. Nahezu zeitgleich gelangen bis in die jüngste Zeit eine Vielzahl von Experimenten zur sequentiellen und nicht-sequentuellen Zwei-Photonen-Doppelionisation an verschiedenen Targets zunächst am FLASH und dann am japanischen Freie-Elektronen-Laser SCSS (siehe z.B. [Mos07, Rud08]). Darunter befinden sich auch kinematisch vollständige Experimente bei denen es gelang Energie und Emissionswinkel beider Elektronen im Reaktionsmikroskop zu bestimmen [Kur09]. Theoretische Untersuchungen [Mor07] schließlich zeigten auf, wie Attosekundenimpulse genutzt werden können, um Elektronenkorrelationen direkt im Zeitbereich, also mit den Methoden analog der im infraroten und sichtbaren Spektralbereich gängigen Pump-Probe-Spektroskopie, zu verfolgen. Die Autoren dieser Publikation weisen außerdem explizit auf die Eignung von Reaktionsmikroskopen für eine derartige Messung hin. Ein entsprechendes Experiment an Xenon konnte jedoch keine Hinweise auf die erwünschten nicht-sequentuellen Ereignisse finden [Guy08a, Rot08].

Prinzipiell enthält das Harmonischenspektrum der in dieser Arbeit beschriebenen Attosekunden-Beamline Photonen ausreichend hoher Energie, die eine Doppelionisation von Argon oder Krypton herbeiführen können. Diese Ereignisse wurden bei den RABITT-Messungen auch beobachtet, wenngleich die statistische Signifikanz bisher bei weitem nicht für eine eingehende Analyse ausreicht: in 6 bis 10 Stunden Messung wurden nur 1200  $\text{Ar}^{++}$  bzw. 5400  $\text{Kr}^{++}$ -Ionen registriert. Mit der in dieser Arbeit erreichten Stabilität und Performance des Gesamtaufbaus lassen sich nun jedoch deutlich längere Experimentierzeiten realisieren, so dass eine Messung der relativen Emissionszeit der beiden Elektronen aus der Doppelionisation erstmals in den Bereich des Möglichen rückt. Ein kinematisch vollständiges Experiment mit guter Statistik scheint machbar.

In Abbildung 6.2 ist das Energiespektrum der koinzident mit doppelt geladenen Argon-Ionen emittierten Elektronen zu sehen. Der Datensatz wurde als Nebenprodukt der RABITT-Messung in Argon aufgenommen (vgl. Abbildung 5.6). Die für die RABITT-Interferogramme gewählte Auswerterroutine berücksichtigt pro Ionisationsereignis jeweils nur dasjenige Elektron, das zuerst den Detektor erreicht (und in der Regel die größere Energie davontragen hat), eine Auswertung bei der beide Elektronen verarbeitet werden ist aber ebenso möglich. Dies würde allerdings die Anzahl brauchbarer Ereignisse noch weiter reduzieren.

Angesichts der Messmöglichkeiten stellt sich die spannende Frage, ob diese ATI-Linien der doppelt geladenen Ionen dieselbe, von der relativen Phase zwischen XUV- und IR-Feld abhängige Intensitätsoszillation zeigen. Optimistische Gruppenmitglieder erkennen in den für doppelt geladene Kryptonionen vorliegenden Daten bereits eine Andeutung einer solchen Oszillation. Sollte sich dies bestätigen, dann böte die in den RABITT-Interferogrammen codierte Zeitinformation der Photoelektronen aus einfach bzw. doppelt ionisierten Targetatomen erstmals einen direkten Zugang zur Abschätzung der Korrelationszeit zwischen beiden emittierten Elektronen. Mit einem sehr ähnlichen experimentellen Konzept wurden unlängst die atomaren Phasen – und damit einherge-



**Abbildung 6.2:** Spektrum der Elektronenenergie bei Doppelionisation von Argon mit XUV- und IR-Strahlung. Wie bei der Einfachionisation zeigen sich äquidistante ATI-Peaks, deren Energieabstand dem der harmonischen Frequenzkomponenten entspricht, dazwischen zeichnen sich die durch Absorption oder Emission eines zusätzlichen IR-Photons entstandenen Seitenbänder ab.

hend die zeitliche Verzögerung – bei der Ionisation von Elektronen aus verschiedenen Energieniveaus in Argon verglichen [Klü11].

Bei der direkten Doppelionisation durch ein einzelnes Photon, die in dem beschriebenen Experiment der vorherrschende Prozess wäre (Prozesse die mehrere HHG-Photonen benötigen können aufgrund der niedrigen Intensität der verwendeten XUV-Impulse ausgeschlossen werden), ist die Verteilung der überschüssigen Energie  $E_{\text{sum}} = E_{\text{XUV}} - I_p^{++}$  auf die beiden emittierten Elektronen abhängig von deren Betrag: bei hohen Werten von  $E_{\text{sum}}$  trägt eines der Elektronen praktisch die gesamte überschüssige Energie davon, während das zweite in einem shake-off-Prozess mit sehr geringer kinetischer Energie ins Kontinuum gelangt. Je kleiner  $E_{\text{sum}}$ , desto stärker gleichen sich die kinetischen Energien der beiden Photoelektronen an; die Effekte der Elektronenkorrelation treten deutlicher hervor. Bei der Ionisation mit hoher harmonischer Strahlung führt man das Experiment in gewisser Weise mit vielen Photonenenergien – die den unterschiedlichen HHG-Frequenzen entsprechen – gleichzeitig durch. Insofern ließe sich aus dem Interferogramm der doppelt geladenen Ionen, sofern es gelingt ein solches aufzunehmen, zugleich auch die Energieabhängigkeit des Prozesses analysieren.

Die für ein solches Experiment benötigte Messzeit wäre allerdings erheblich. Anhand der bisher vorhandenen Daten kann man mit Raten von rund 4000 Doppelionisationsereignissen pro Tag in Argon bzw. 12 000 in Krypton rechnen. Für eine Statistik von mindestens 100 000 Ereignissen sind folglich eine bis drei Wochen ununterbrochener, stabiler Messbetrieb notwendig. Allerdings gibt es eine Reihe von Möglichkeiten, die benötigte Messzeit zu verringern, etwa durch die Verwendung von Xenon als Targetgas, für dessen Doppelionisation aufgrund der niedrigeren Ionisationspotentiale in-

tensivere Harmonische zur Verfügung stünden. Darüber hinaus könnte der abgetastete Bereich der Zeitverzögerung auf zwei oder eineinhalb IR-Zyklen eingeschränkt werden, so dass insgesamt sehr gute Chancen bestehen ein solches Experiment in absehbarer Zeit durchführen zu können.

### **Streaking-Experimente**

Die in Abschnitt 5.7 beschriebenen, sogenannten Streaking-Experimente haben gezeigt, dass der Fokus des Infrarot-Zweigs des Interferometers bei Messungen mit hoher IR-Intensität deutlich kleiner als der Fokus der harmonischen Strahlung wird, was auf den Umstand zurückzuführen ist, dass die Infrarot-Intensität beim gegenwärtigen Aufbau über eine Blende reguliert wird (vgl. Abschnitt 3.4.3). Deshalb konnte nur ein sehr kleiner Teil der von der harmonischen Strahlung erzeugten Photoelektronen in Infrarot-Feld abgelenkt werden. Geringfügige konstruktive Veränderungen am Infrarot-Zweig des Interferometers können dies aber beheben, so dass die Apparatur dann auch für Streaking-Experimente sowohl mit Attosekunden-Impulszügen als auch mit isolierten Attosekunden-Impulsen zur Verfügung stünde. Damit wäre das ursprüngliche Ziel erreicht, nämlich durch die Kombination von Attosekundenquelle und Reaktionsmikroskop eine Apparatur für präzise Pump-Probe-Experimente auf Attosekundenskala zur Verfügung zu stellen.

### **Zusammenfassung**

Indes zeigen sowohl Experimente als auch theoretische Betrachtungen aus jüngster Zeit, dass die direkte Messung von Zeitverzögerungen mit Hilfe von Attosekundenimpulsen – sei es im Impulszug oder bei isolierten Impulsen – mit Artefakten behaftet sind [Dah12]. Das erschwert die Erhebung gerade derjenigen Informationen, welche die Entwicklungen in der Attosekundenphysik im Kern im letzten Jahrzehnt angetrieben haben. Zugleich rühren Überlegungen wie diese an die fundamentale Frage nach der Rolle der Zeit in der Quantenmechanik, die sich ja nicht als Operator darstellen lässt und damit, wie vielfach angemerkt, eine Sonderstellung einnimmt. Möglicherweise können zukünftige Experimente mit Attosekunden-Zeitauflösung dazu beitragen, der Antwort auf diese Frage näher zu kommen.

Darüber hinaus machen die hier aufgezeigten Möglichkeiten mit starken IR-Feldern diese Experimente zu einem idealen Testfeld für die theoretische Beschreibung der Wechselwirkung von Licht mit Materie, insbesondere dann wenn – wie im Fall der Streaking-Experimente – die externen elektrischen Felder so stark werden, dass störungstheoretische Ansätze nicht mehr greifen.

Die im Rahmen dieser Arbeit gewonnen Erkenntnisse zeigen, dass Reaktionsmikroskope in der Attosekundenphysik der zeitaufwändigen Messungen und vielen technischen Schwierigkeiten zum Trotz ein großes Potential haben. Für die simultane Erfassung der dreidimensionalen Impulsverteilungen in Kombination mit den in der Attosekundenphysik entwickelten Methoden zur Extraktion von Zeitinformationen ist derzeit keine vergleichbare Technologie verfügbar.

# Anhang

## Berechnung von Strömungsleitwerten

Bei der Auslegung einer differentiellen Pumpstufe ist die Abschätzung der erwarteten Drücke in den verschiedenen Rezipienten unabdingbar. Dazu müssen die Saugvermögen der angeschlossenen Pumpen und die *Leitwerte* der Bauteile, die jeweils benachbarte Rezipienten verbinden, bekannt sein. Der Leitwert eines Bauteils gibt analog zum elektrischen Leitwert an, welcher Volumenstrom bei einer gegebenen Druckdifferenz zu erwarten ist; bzw. lässt sich umgekehrt herausfinden, welche Druckdifferenz sich bei gegebenem Leitwert einstellt [Wut00].

Es gilt

$$(A.1) \quad p_2 = \frac{L}{S} \cdot p_1,$$

wobei  $p_2 - p_1$  die Druckdifferenz zwischen den Rezipienten ist,  $S$  das Saugvermögen der Pumpe und  $L$  der Leitwert der Rohrverbindung zwischen den Rezipienten.

Im Bereich molekularer Strömung lassen sich Leitwerte über die Durchgangswahrscheinlichkeit berechnen, mit der ein Gasteilchen das fragliche Bauteil durchläuft:

$$(A.2) \quad L = \frac{\bar{c}A}{4} \cdot P,$$

wobei  $\bar{c}$  die mittlere Teilchengeschwindigkeit bei gegebener Temperatur und Gasart und  $A$  die Fläche des Verbindungsteils ist.  $\bar{c}$  ergibt sich aus Temperatur  $T$  und Molekulargewicht  $M$  des Gases:

$$(A.3) \quad \bar{c} = \sqrt{\frac{8RT}{\pi M}}.$$

$R$  bezeichnet darin die allgemeine Gaskonstante ( $R = N_A \cdot k_B$ ). Für Gase bei Raumtemperatur (290 K) ergeben sich Teilchengeschwindigkeiten von 463 m/s für Luft, 394 m/s für Argon, und 554 m/s für Neon.

$P$  bezeichnet die Durchgangswahrscheinlichkeit durch das Bauteil und ist abhängig von dessen Form. In dieser Arbeit wurden folgende Formeln für die Durchgangswahrscheinlichkeit  $P$  verwendet:

Bei einer **dünnen Blende** ist die Durchgangswahrscheinlichkeit trivialerweise

$$(A.4) \quad P_{Blende} = 1$$

Bei einem **langen Rohr** hängt die Durchgangswahrscheinlichkeit von dessen Durchmesser  $d$  und der Länge  $l$  ab

$$(A.5) \quad P_{Rohr} = \frac{4d}{3l},$$

wobei  $l \gg d$  angenommen wird. Für ein **konisches Rohr** ist die Durchgangswahrscheinlichkeit von der Richtung der Strömung abhängig, es gilt

$$(A.6) \quad \frac{1}{P_{Konus}} = \frac{r_2^2}{r_1^2} + \frac{r_1 + r_2}{4r_1^2} \cdot l.$$

Hier ist  $r_2$  der größere und  $r_1$  der kleinere der beiden Rohrdurchmesser an den Enden,  $l$  die Länge. Die Formel gilt für Gasfluss vom dickeren zum dünneren Rohrende. Die Durchgangswahrscheinlichkeit durch einen **engen Spalt** erhält man schließlich mit

$$(A.7) \quad P_{Spalt} = \frac{1 + \ln(0,433 \cdot l/b + 1)}{l/b + 1},$$

wobei angenommen wird, dass die Breite  $b$  des Spalts klein gegenüber seiner Ausdehnung  $a$  ist. In die Formel gehen dann nur die Länge  $l$  und die Breite  $b$  ein.

Bei parallel geschalteten Rohröffnungen addieren sich die Leitwerte:

$$(A.8) \quad L_{Serie} = L_1 + L_2 + L_3 + \dots$$

während hintereinander, also in Serie geschaltete Leitwerte invers addiert werden müssen:

$$(A.9) \quad \frac{1}{L_{Parallel}} = \frac{1}{L_1} + \frac{1}{L_2} + \frac{1}{L_3} + \dots$$

Für die Berechnung des in der Fokussierkammer (Abschnitt 3.4.2) zu erwartenden Enddrucks sind, weil die Übergangswahrscheinlichkeit aus der umgebenden Vakuumkammer klein ist, die verschiedenen Oberflächen des Rezipienten ausschlaggebend. Auf ihnen sind durch Absorption und Adsorption Moleküle, vor allem Wasser, gebunden. Diese desorbieren bei niedrigen Drücken nach und nach. Aus Kunststoffoberflächen treten Gase aus, die zuvor im Material gebunden waren und erst an die Oberfläche diffundieren müssen. Man spricht in diesem Zusammenhang auch vom „Ausgasen“ von Bauteilen aus Kunststoff. Die Desorptionsraten für Metalloberflächen und die entsprechenden Diffusionsraten für Kunststoffoberflächen werden folgendermaßen berechnet [Ber10]:

$$(A.10) \quad Q_{des} = q_{des} \cdot A \cdot \frac{t_0}{t} \text{ für Metalle und}$$

$$(A.11) \quad Q_{diff} = q_{diff} \cdot A \cdot \sqrt{\frac{t_0}{t}} \text{ für Kunststoffe.}$$

Darin sind  $Q_{des}$  und  $Q_{diff}$  die bei einer Fläche  $A$  zu erwartenden Desorptions- bzw. Diffusionsraten des jeweiligen Bauteils,  $q_{des}$  und  $q_{diff}$  sind materialabhängige Konstanten.

Der Quotient  $\frac{t_0}{t}$  beschreibt die Abnahme der Desorption bzw. Diffusion mit zunehmender Pumpzeit; die Materialkonstanten  $q$  beziehen sich in der Regel auf ein  $t_0$  von einer Stunde.

Für sandgestrahlte Edelstahloberflächen ist  $q_{\text{des}} = 8,3 \cdot 10^{-9} \frac{\text{mbar} \cdot \text{l}}{\text{s} \cdot \text{cm}^2}$ , Kunststoffe liegen üblicherweise bei  $q_{\text{diff}} \approx 3 \cdot 10^{-6} \frac{\text{mbar} \cdot \text{l}}{\text{s} \cdot \text{cm}^2}$ . Die Innenfläche der Fokussierkammer ist etwa  $3200 \text{ cm}^2$  groß, die Flächen des Pellicles, verschiedener Dichtungsringe und des Bauteils auf dem das Filtrerrad für die Metallfolien anliegt kann grob auf ca.  $50 \text{ cm}^2$  geschätzt werden. Dann ergibt sich der zu erwartende Basisdruck  $p_B$  nach

$$(A.12) \quad p_B = \frac{Q_{\text{Leck}}}{S} + \frac{Q_{\text{des}}}{S} + \frac{Q_{\text{diff}}}{S}.$$

Darin ist  $S$  wieder die Saugleistung der angeschlossenen Pumpe,  $Q_{\text{Leck}}$  berücksichtigt eventuell vorhandene Lecks. Mit den oben angeführten Zahlenwerten und unter der Annahme, dass die Leckrate klein gegenüber den Einflüssen von Desorption und Diffusion ist erhält man einen Basisdruck von  $5,87 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ .

## $\beta$ -Parameter der Anpassung der Elektronen-Winkelverteilungen mit Legendrepoly-nomen

In Abschnitt 5.4 wurde die Winkelverteilung verschiedener ATI-Linien und Seitenbänder bei RABITT-Messungen in vier Edelgasen untersucht. Die Resultate sind graphisch in den Abbildungen 5.15, 5.16 und 5.17 dargestellt. Weil der Vergleich mit verschiedenen Theorien oft die genaue Kenntnis der für die Messwerte ermittelten  $\beta$ -Parameter erfordert, sind sie hier nochmals in Tabellenform aufgeführt.

ATI-Peaks	11	13	15	17	19	21	23	25
$\beta_2$ He	—	—	—	2,20372	2,2184	2,22472	2,14547	2,14497
	—	—	—	$\pm 0,0892$	$\pm 0,07238$	$\pm 0,05413$	$\pm 0,05132$	$\pm 0,08611$
$\beta_4$	—	—	—	0,04116	0,2661	0,22949	0,12585	0,44877
	—	—	—	$\pm 0,08233$	$\pm 0,0664$	$\pm 0,04959$	$\pm 0,0479$	$\pm 0,08043$
$\beta_2$ Ne	—	—	0,6785	0,94249	1,13195	1,23269	1,33243	0,94546
	—	—	$\pm 0,02029$	$\pm 0,03332$	$\pm 0,02802$	$\pm 0,04038$	$\pm 0,04246$	$\pm 0,08722$
$\beta_4$	—	—	-0,55553	-0,36895	-0,32091	-0,19484	0,1556	0,67463
	—	—	$\pm 0,0246$	$\pm 0,03793$	$\pm 0,0306$	$\pm 0,04287$	$\pm 0,04369$	$\pm 0,09863$
$\beta_2$ Ar	0,44895	1,62285	1,80084	1,9682	2,06961	2,18162	2,20685	1,76793
	$\pm 0,03276$	$\pm 0,05787$	$\pm 0,02789$	$\pm 0,03297$	$\pm 0,04432$	$\pm 0,06078$	$\pm 0,08694$	$\pm 0,09044$
$\beta_4$	-0,45122	0,02434	0,06244	0,03414	0,32666	0,35083	0,62792	0,58572
	$\pm 0,04084$	$\pm 0,05593$	$\pm 0,02588$	$\pm 0,02947$	$\pm 0,03868$	$\pm 0,05175$	$\pm 0,07432$	$\pm 0,0852$
$\beta_2$ Kr	1,54184	1,80854	1,88359	1,89745	2,00606	2,09017	2,122	1,91494
	$\pm 0,07957$	$\pm 0,04427$	$\pm 0,05537$	$\pm 0,04093$	$\pm 0,03439$	$\pm 0,4128$	$\pm 0,0625$	$\pm 0,07088$
$\beta_4$	0,06429	0,16251	0,05056	0,15703	0,34911	0,47572	0,51727	1,12287
	$\pm 0,08031$	$\pm 0,04211$	$\pm 0,05174$	$\pm 0,3816$	$\pm 0,03142$	$\pm 0,0372$	$\pm 0,05605$	$\pm 0,07027$
Seitenbänder	12	14	16	18	20	22	24	26
$\beta_2$ He	—	—	2,38694	2,15006	2,17134	2,18414	2,16373	—
	—	—	$\pm 0,07598$	$\pm 0,10041$	$\pm 0,0619$	$\pm 0,09103$	$\pm 0,078$	—
$\beta_4$	—	—	0,3109	0,75914	0,80297	0,48118	0,56635	—
	—	—	$\pm 0,05857$	$\pm 0,08429$	$\pm 0,05194$	$\pm 0,07413$	$\pm 0,0642$	—
$\beta_2$ Ne	—	0,71371	0,01027	0,42521	0,71126	0,92698	0,73592	0,27206
	—	$\pm 0,3333$	$\pm 0,05883$	$\pm 0,04258$	$\pm 0,06234$	$\pm 0,04824$	$\pm 0,0647$	$\pm 0,12885$
$\beta_4$	—	-0,21385	0,36487	0,33641	0,15134	0,27781	0,46223	1,11394
	—	$\pm 0,03923$	$\pm 0,07505$	$\pm 0,05197$	$\pm 0,07265$	$\pm 0,05403$	$\pm 0,07538$	$\pm 0,16823$
$\beta_2$ Ar	0,11309	0,64538	1,10983	1,42576	1,59405	1,41281	0,94737	0,53267
	$\pm 0,03322$	$\pm 0,0483$	$\pm 0,05097$	$\pm 0,04153$	$\pm 0,02702$	$\pm 0,05497$	$\pm 0,0856$	$\pm 0,12431$
$\beta_4$	0,27734	0,50256	0,6042	0,74256	0,70209	0,71787	0,55452	0,0409
	$\pm 0,04198$	$\pm 0,05724$	$\pm 0,055554$	$\pm 0,04261$	$\pm 0,2664$	$\pm 0,05648$	$\pm 0,09618$	$\pm 0,14942$
$\beta_2$ Kr	0,77749	1,16198	1,44243	1,61722	1,73122	1,73411	1,52625	0,82101
	$\pm 0,04058$	$\pm 0,04747$	$\pm 0,0452$	$\pm 0,04696$	$\pm 0,04681$	$\pm 0,05314$	$\pm 0,11641$	$\pm 0,22852$
$\beta_4$	-0,27614	0,08818	0,13692	0,30024	0,40052	0,45852	0,87597	1,19797
	$\pm 0,04202$	$\pm 0,04554$	$\pm 0,0408$	$\pm 0,04108$	$\pm 0,04018$	$\pm 0,04581$	$\pm 0,1106$	$\pm 0,26575$

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Die historische Entwicklung kurzer und ultrakurzer Laserimpulse . . . .	10
2.2	Träger-Einhüllenden-Phase . . . . .	14
2.3	Fouriersynthese von ultrakurzen Lichtimpulsen . . . . .	15
2.4	Frühe HHG-Messung . . . . .	16
2.5	Schematische Darstellung von Paul Corkums „Drei-Schritt-Modell“ . . .	18
2.6	Trajektorien nach Kramers-Henneberger . . . . .	20
2.7	Kinetische Energie der Elektronen bei Rekollision . . . . .	22
2.8	Chirp der harmonischen Strahlung . . . . .	23
2.9	Attosekundenimpulszüge mit asymmetrischer Fundamentele . . . . .	29
2.10	Harmonischenerzeugung mit single-cycle-Impulsen . . . . .	30
2.11	Polarisationsgating . . . . .	31
2.12	Verlauf der Elliptizität beim Polarisationsgating . . . . .	32
2.13	Entstehung von Seitenbändern . . . . .	34
2.14	Attosekunden Streak-Kamera . . . . .	40
2.15	Rekonstruktion des Laserfelds mittels Streaking . . . . .	41
3.1	Das Lasersystem . . . . .	47
3.2	Schwingungsisolierung des optischen Aufbaus . . . . .	49
3.3	Targetkammer für die HHG . . . . .	50
3.4	Targetröhrchen für die HHG . . . . .	51
3.5	Das HHG-Spektrometer . . . . .	53
3.6	Spektren harmonischer Strahlung . . . . .	55
3.7	Parameter zur Berechnung der Photonenzahlen . . . . .	57
3.8	Erzeugung gerader und ungerader Harmonischer . . . . .	59
3.9	Vakuumkammer mit Interferometer und Zwei-Farben-Beamline . . . . .	61
3.10	Stabilitätskontrolle des Delays . . . . .	62
3.11	Filtertransmission im XUV . . . . .	63
3.12	Fokussierungseinheit für hohe Harmonische . . . . .	64
3.13	Räumliche Überlagerung der Foki von IR- und XUV-Strahlung . . . . .	65
3.14	Abbildungssystem zur Justage . . . . .	66
3.15	Differentielles Pumpen der Beamline . . . . .	68
3.16	Bestimmung der IR-Intensität im Fokus . . . . .	70
4.1	Schematischer Aufbau eines Reaktionsmikroskops . . . . .	75
4.2	Überschall-Gasjet . . . . .	76
4.3	Detektoren . . . . .	78
4.4	Elektronenimpuls in Abhängigkeit von der Flugzeit . . . . .	81
5.1	Infrarot-Autokorrelation . . . . .	86

5.2	Kurze Infrarot-Autokorrelation über drei Schwingungszyklen . . . . .	86
5.3	Photoionisation von Helium: Impulsverteilung . . . . .	88
5.4	Photoionisation von Helium: Energien . . . . .	89
5.5	Kreuzkorrelation zwischen XUV- und IR-Puls . . . . .	90
5.6	Seitenbandoszillationen in Helium, Neon, Argon und Krypton . . . . .	91
5.7	Photoionisation in Helium, Neon, Argon und Krypton . . . . .	94
5.8	HHG-Spektrum rekonstruiert aus Photoelektronenspektren . . . . .	95
5.9	Relative Phasen der Seitenbandoszillationen . . . . .	96
5.10	Rekonstruktion der Attosekunden-Impulszüge im Reaktionsmikroskop . . . . .	98
5.11	Berechnung der Harmonischenphasen . . . . .	99
5.12	Transmission und Brechungsindizes von Aluminium und Aluminiumoxid . . . . .	100
5.13	Attochirp und Korrektur der Aluminiumdispersion . . . . .	101
5.14	Rekonstruktion der Attosekunden-Impulszüge am Entstehungsort . . . . .	102
5.15	Winkelverteilung der Photoelektronen: Photoionisationslinien . . . . .	104
5.16	Winkelverteilung der Photoelektronen: Seitenbänder . . . . .	105
5.17	$\beta$ -Parameter der Winkelverteilungen . . . . .	106
5.18	Vergleich mit Simulationsrechnungen . . . . .	109
5.19	Simulationsrechnungen zur Doppellinie in Helium bei $q = 16$ . . . . .	110
5.20	Einfluss verschiedener gebundener Zustände auf die spektrale Charakteristik des $q = 16$ -Seitenbands in Helium . . . . .	111
5.21	Niedrigstes Seitenband (H.O. 16) in Helium . . . . .	112
5.22	Streaking von Elektronen und Ionen im starken IR-Feld . . . . .	113
5.23	Ionenimpuls-Veränderung beim Streaking . . . . .	113
6.1	Winkelverteilungen bei veränderter Polarisationssebene . . . . .	118
6.2	Spektrum der Elektronenenergie bei Doppelionisation von Argon . . . . .	121

## Literaturverzeichnis

- [Abe09] M. Abel, T. Pfeifer, P. Nagel, W. Boutu, M. Bell, C. Steiner, D. Neumark, S. Leone, *Isolated attosecond pulses from ionization gating of high-harmonic emission*, *Chemical Physics* **366**(1), 9–14 (2009).
- [Ago04] P. Agostini, L. DiMauro, *The physics of attosecond light pulses*, *Reports on Progress in Physics* **67**, 813 (2004).
- [Alt99] C. Altucci, R. Bruzzese, C. De Lisio, M. Nisoli, S. Stagira, S. De Silvestri, O. Svelto, A. Boscolo, P. Ceccherini, L. Poletto, *et al.*, *Tunable soft-x-ray radiation by high-order harmonic generation*, *Physical Review A* **61**(2), 021801 (1999).
- [Amm86] M. Ammosov, N. Delone, V. Kraĭnov, *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*, *Soviet Physics JETP* **64**(6), 1191–1194 (1986).
- [Ase03] S. Aseyev, Y. Ni, L. Frasiniski, H. Muller, M. Vrakking, *Attosecond angle-resolved photoelectron spectroscopy*, *Physical Review Letters* **91**(22), 223902 (2003).
- [Ass98] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle, G. Gerber, *Control of chemical reactions by feedback-optimized phase-shaped femtosecond laser pulses*, *Science* **282**(5390), 919–922 (1998).
- [Bac97] S. Backus, C. Durfee III, G. Mourou, H. Kapteyn, M. Murnane, *0.2-TW laser system at 1kHz*, *Optics Letters* **22**(16), 1256–1258 (1997).
- [Bal03] A. Baltuška, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Hänsch, *et al.*, *Attosecond control of electronic processes by intense light fields*, *Nature* **421**, 611–616 (2003).
- [Bar03] W. Barnes, A. Dereux, T. Ebbesen, *et al.*, *Surface plasmon subwavelength optics*, *Nature* **424**(6950), 824–830 (2003).
- [Ben06] E. Benis, D. Charalambidis, T. Kitsopoulos, G. Tsakiris, P. Tzallas, *Two-photon double ionization of rare gases by a superposition of harmonics*, *Physical Review A* **74**(5), 051402 (2006).
- [Ber10] K.-H. Bernhardt, *Vacuum Technology Compendium* (Pfeiffer Vacuum GmbH, 2010).

- [Ber12] B. Bergues, M. Kübel, N. Johnson, B. Fischer, N. Camus, K. Betsch, O. Herrwerth, A. Senftleben, A. Sayler, T. Rathje, *et al.*, *Attosecond tracing of correlated electron-emission in non-sequential double ionization*, *Nature Communications* **3**, 813 (2012).
- [Blo99] N. Bloembergen, *From nanosecond to femtosecond science*, *Reviews of Modern Physics* **71**(2), 283–287 (1999).
- [Boy03] R. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, 2003).
- [Bre05] J. Breidbach, L. Cederbaum, *Universal attosecond response to the removal of an electron*, *Physical Review Letters* **94**(3), 33901 (2005).
- [Böt05] M. Böttcher, H. Rottke, N. Zhavoronkov, W. Sandner, P. Agostini, M. Gisselbrecht, A. Huetz, *Reaction microscope study of near-threshold photo double ionization of xenon using high harmonics*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **38**, L389 (2005).
- [Cam12] N. Camus, B. Fischer, M. Kremer, V. Sharma, A. Rudenko, B. Bergues, M. Kübel, N. Johnson, M. Kling, T. Pfeifer, *et al.*, *Attosecond Correlated Dynamics of Two Electrons Passing through a Transition State*, *Physical Review Letters* **108**(7), 73003 (2012).
- [Cav07] A. Cavalieri, N. Müller, T. Uphues, V. Yakovlev, A. Baltuška, B. Horvath, B. Schmidt, L. Blümel, R. Holzwarth, S. Hendel, *et al.*, *Attosecond spectroscopy in condensed matter*, *Nature* **449**(7165), 1029–1032 (2007).
- [Cha11] Z. Chang, *Fundamentals of Attosecond Optics* (CRC Press, 2011).
- [Chr97] I. Christov, M. Murnane, H. Kapteyn, *High-harmonic generation of attosecond pulses in the “single-cycle” regime*, *Physical Review Letters* **78**(7), 1251–1254 (1997).
- [Con99] E. Constant, D. Garzella, P. Breger, E. Mevel, C. Dorrer, C. LeBlanc, F. Salin, P. Agostini, *Optimizing high harmonic generation in absorbing gases: model and experiment*, *Physical Review Letters* **82**(8), 1668–1671 (1999).
- [Coo68] J. Cooper, R. Zare, *Angular distribution of photoelectrons*, *The Journal of Chemical Physics* **48**(2), 942–943 (1968).
- [Cor93] P. Corkum, *Plasma perspective on strong field multiphoton ionization*, *Physical Review Letters* **71**(13), 1994–1997 (1993).
- [Cor94] P. Corkum, N. Burnett, M. Ivanov, *Subfemtosecond pulses*, *Optics Letters* **19**(22), 1870–1872 (1994).
- [Dah12] J. Dahlström, A. L’Huillier, A. Maquet, *Introduction to attosecond delays in photoionization*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **45**(18), 183001 (2012).

- [Del98] N. Delone, V. Kraĭnov, *Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field*, Physics-Uspekhi **41**(5), 469–485 (1998).
- [DeM66] A. DeMaria, D. Stetser, H. Heynau, *Self mode-locking of Lasers with Saturable Absorbers*, Applied Physics Letters **8**(7), 174–176 (1966).
- [Dew06] S. Dewald, *Erzeugung intensiver Lichtfelder mit einem Laseroszillator und deren Wechselwirkung mit Atomen*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2006).
- [Die85] J. Diels, J. Fontaine, I. McMichael, F. Simoni, *Control and measurement of ultrashort pulse shapes (in amplitude and phase) with femtosecond accuracy*, Applied Optics **24**(9), 1270–1282 (1985).
- [Die06] J. Diels, W. Rudolph, *Ultrashort laser pulse phenomena* (Academic press, 2006).
- [Din03] L. Dinu, H. Muller, S. Kazamias, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, P. Paul, M. Kovačev, P. Breger, P. Agostini, *Measurement of the subcycle timing of attosecond XUV bursts in high-harmonic generation*, Physical Review Letters **91**(6), 063901 (2003).
- [Dör00] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, H. Schmidt-Böcking, *Cold target recoil ion momentum spectroscopy: a “momentum microscope“ to view atomic collision dynamics*, Physics Reports **330**(2), 95–192 (2000).
- [Dre02] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, F. Krausz, *Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy*, Nature **419**(6909), 803–807 (2002).
- [Eck08] P. Eckle, A. Pfeiffer, C. Cirelli, A. Staudte, R. Dörner, H. Muller, M. Büttiker, U. Keller, *Attosecond Ionization and Tunneling Delay Time Measurements in Helium*, Science **322**(5907), 1525 (2008).
- [Erg06a] T. Ergler, *Zeitaufgelöste Untersuchungen zur Fragmentationsdynamik von  $H_2$  ( $D_2$ ) in ultra-kurzen Laserpulsen*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2006).
- [Erg06b] T. Ergler, A. Rudenko, B. Feuerstein, K. Zrost, C. Schröter, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Spatiotemporal Imaging of Ultrafast Molecular Motion: Collapse and Revival of the  $D_2^+$  Nuclear Wave Packet*, Physical Review Letters **97**(19), 193001 (2006).
- [Far92] G. Farkas, C. Toth, *Proposal for attosecond light pulse generation using laser induced multiple-harmonic conversion processes in rare gases*, Physics Letters A **168**(5), 447–450 (1992).

- [Far09] J. Farrell, B. McFarland, P. Bucksbaum, M. Gühr, *Calibration of a high harmonic spectrometer by laser induced plasma emission*, Optics Express **17**(17), 15134–15144 (2009).
- [Fen09] X. Feng, S. Gilbertson, H. Mashiko, H. Wang, S. Khan, M. Chini, Y. Wu, K. Zhao, Z. Chang, *Generation of isolated attosecond pulses with 20 to 28 femtosecond lasers*, Physical Review Letters **103**(18), 183901 (2009).
- [Fer88] M. Ferray, A. L’Huillier, X. Li, L. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, *Multiple-harmonic conversion of 1064 nm radiation in rare gases*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **21**, L31 (1988).
- [Fer10] F. Ferrari, F. Calegari, M. Lucchini, C. Vozzi, S. Stagira, G. Sansone, M. Nisoli, *High-energy isolated attosecond pulses generated by above-saturation few-cycle fields*, Nature Photonics **4**(12), 875–879 (2010).
- [Fey60] R. Feynman, *There’s Plenty of Room at the Bottom*, Caltech Engineering and Science **23**(5), 22–36 (1960).
- [Fis03] D. Fischer, *Mehr-Teilchen-Dynamik in der Einfach- und Doppelionisation von Helium durch geladene Projektile*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2003).
- [Fis10] A. Fischer, *Erzeugung und Dispersionskontrolle von Femtosekundenlaserimpulsen*, Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2010).
- [For87] R. Fork, C. Cruz, P. Becker, C. Shank, *Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation*, Optics Letters **12**(7), 483–485 (1987).
- [Gad07] G. Gademann, *Komprimierung ultrakurzer Lichtimpulse mit Hilfe der Filamentation und eines adaptiven Impulskompressors*, Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2007).
- [Gag07] E. Gagnon, P. Ranitovic, X. Tong, C. Cocke, M. Murnane, H. Kapteyn, A. Sandhu, *Soft X-ray-driven femtosecond molecular dynamics*, Science **317**(5843), 1374–1378 (2007).
- [Gal12] L. Gallmann, C. Cirelli, U. Keller, *Attosecond Science: Recent Highlights and Future Trends*, Physical Chemistry **63**(1), 447 (2012).
- [GB11] A. Gazibegović-Busuladžić, E. Hasović, M. Busuladžić, D. Milošević, F. Kelkensberg, W. Siu, M. Vrakking, F. Lépine, G. Sansone, M. Nisoli, *et al.*, *Above-threshold ionization of diatomic molecules by few-cycle laser pulses*, Physical Review A **84**(4), 043426 (2011).
- [Ger91] F. Gervais, *Handbook of Optical Constants of Solids*, Band 2, Kapitel The Optical Properties of Aluminum Oxide, 761 – 775 (Academic press, 1991).

- [Gib03] E. Gibson, A. Paul, N. Wagner, D. Gaudiosi, S. Backus, I. Christov, A. Aquila, E. Gullikson, D. Attwood, M. Murnane, *et al.*, *Coherent soft x-ray generation in the water window with quasi-phase matching*, *Science* **302**(5642), 95–98 (2003).
- [Gim06] H. Gimpel, *Erzeugung und Anwendung intensiver ultrakurzer Lichtpulse mit stabiler Träger-Einhüllenden-Phase*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, Heidelberg (2006).
- [Glo96] T. Glover, R. Schoenlein, A. Chin, C. Shank, *Observation of laser assisted photoelectric effect and femtosecond high order harmonic radiation*, *Physical Review Letters* **76**(14), 2468–2471 (1996).
- [Gop10] R. Gopal, *Electron Wave Packet Interferences in Ionization with Few-Cycle Laser Pulses and the Dissociative Photoionization of D2 with Ultrashort Extreme Ultraviolet Pulses*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2010).
- [Gou04] E. Goulielmakis, M. Uiberacker, R. Kienberger, A. Baltuška, V. Yakovlev, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, M. Drescher, *et al.*, *Direct measurement of light waves*, *Science* **305**(5688), 1267 (2004).
- [Gou08] E. Goulielmakis, M. Schultze, M. Hofstetter, V. Yakovlev, J. Gagnon, M. Uiberacker, A. Aquila, E. Gullikson, D. Attwood, R. Kienberger, *et al.*, *Single-cycle nonlinear optics*, *Science* **320**(5883), 1614–1617 (2008).
- [Gou10] E. Goulielmakis, Z. Loh, A. Wirth, R. Santra, N. Rohringer, V. Yakovlev, S. Zherebtsov, T. Pfeifer, A. Azzeer, M. Kling, *et al.*, *Real-time observation of valence electron motion*, *Nature* **466**(7307), 739–743 (2010).
- [Guy05] O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, R. Taïeb, V. Véliard, A. Maquet, L. Antonucci, O. Boyko, C. Valentin, *et al.*, *Multicolour above-threshold ionization of helium: quantum interference effects in angular distributions*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **38**, L357 (2005).
- [Guy08a] O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, B. Carré, P. Breger, O. Gobert, D. Garzella, J. Hergott, O. Tcherbakoff, *et al.*, *Complete momentum analysis of multi-photon photo-double ionization of xenon by XUV and infrared photons*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **41**, 065601 (2008).
- [Guy08b] O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, R. Taïeb, A. Maquet, B. Carré, P. Breger, O. Gobert, D. Garzella, *et al.*, *Evolution of angular distributions in two-colour, few-photon ionization of helium*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **41**, 051002 (2008).
- [Hab09] L. Haber, B. Doughty, S. Leone, *Photoelectron Angular Distributions and Cross Section Ratios of Two-Color Two-Photon Above Threshold Ionization of Argon*, *The Journal of Physical Chemistry A* **113**(47), 13152–13158 (2009).

- [Hab10] L. Haber, B. Doughty, S. Leone, *Time-resolved photoelectron angular distributions and cross-section ratios of two-colour two-photon above threshold ionization of helium*, *Molecular Physics* **108**(7-9), 1241–1251 (2010).
- [Hab11] L. Haber, B. Doughty, S. Leone, *Energy-dependent photoelectron angular distributions of two-color two-photon above threshold ionization of atomic helium*, *Physical Review A* **84**(1), 013416 (2011).
- [Hän90] T. Hänsch, *A proposed sub-femtosecond pulse synthesizer using separate phase-locked laser oscillators*, *Optics Communications* **80**(1), 71–75 (1990).
- [Har64] L. Hargrove, R. Fork, M. Pollack, *Locking of He-Ne Laser Modes Induced by Synchronous Intracavity Modulation*, *Applied Physics Letters* **5**(1), 4–5 (1964).
- [Hel61a] R. Hellwarth, *Theory of the pulsation of fluorescent light from ruby*, *Physical Review Letters* **6**(1), 9–12 (1961).
- [Hel61b] R. W. Hellwarth, *Advances in quantum electronics*, Band 1, 334 (Columbia University Press, New York, 1961).
- [Hen01] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, F. Krausz, *Attosecond metrology*, *Nature* **414**(6863), 509–513 (2001).
- [Hol11] M. Holler, F. Schapper, L. Gallmann, U. Keller, *Attosecond electron wavepacket interference observed by transient absorption*, *Physical Review Letters* **106**(12), 123601 (2011).
- [Hu06] S. Hu, L. Collins, *Attosecond pump probe: exploring ultrafast electron motion inside an atom*, *Physical Review Letters* **96**(7), 73004 (2006).
- [Iac98] C. Iaconis, I. Walmsley, *Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses*, *Optics Letters* **23**(10), 792–794 (1998).
- [Ita04] J. Itatani, J. Levesque, D. Zeidler, H. Niikura, H. Pepin, J. Kieffer, P. Corkum, D. Villeneuve, *Tomographic imaging of molecular orbitals*, *Nature* **432**(7019), 867–871 (2004).
- [Jes04] V. Jesus, B. Feuerstein, K. Zrost, D. Fischer, A. Rudenko, F. Afaneh, C. Schröter, R. Moshhammer, J. Ullrich, *Atomic structure dependence of non-sequential double ionization of He, Ne and Ar in strong laser pulses*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **37**, L161 (2004).
- [Jia10] Y. Jiang, A. Rudenko, O. Herrwerth, L. Foucar, M. Kurka, K. Kühnel, M. Lezius, M. Kling, J. van Tilborg, A. Belkacem, *et al.*, *Ultrafast extreme ultraviolet induced isomerization of acetylene cations*, *Physical Review Letters* **105**(26), 263002 (2010).

- [Jin11] C. Jin, H. Wörner, V. Tosa, A. Le, J. Bertrand, R. Lucchese, P. Corkum, D. Villeneuve, C. Lin, *Separation of target structure and medium propagation effects in high-harmonic generation*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **44**(9), 095601 (2011).
- [Jud92] R. Judson, H. Rabitz, *Teaching lasers to control molecules*, Physical Review Letters **68**(10), 1500–1503 (1992).
- [Kap94] A. Kaplan, *Subfemtosecond pulses in mode-locked  $2\pi$  solitons of the cascade stimulated Raman scattering*, Physical Review Letters **73**(9), 1243–1246 (1994).
- [Kap05] H. Kapteyn, M. Murnane, I. Christov, *Extreme Nonlinear Optics: Coherent X Rays from Lasers*, Physics Today **39-46** (2005).
- [Kie04] R. Kienberger, E. Goulielmakis, M. Uiberacker, A. Baltuska, V. Yakovlev, F. Bammer, A. Scrinzi, T. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, *et al.*, *Atomic Transient Recorder*, Nature **427**(6977), 817–821 (2004).
- [Kim04] K. Kim, C. Kim, M. Baik, G. Umesh, C. Nam, *Single sub-50-attosecond pulse generation from chirp-compensated harmonic radiation using material dispersion*, Physical Review A **69**(5), 051805 (2004).
- [Kim10] K. Kim, D. Ko, J. Park, V. Tosa, C. Nam, *Complete temporal reconstruction of attosecond high-harmonic pulse trains*, New Journal of Physics **12**, 083019 (2010).
- [Kli08a] M. Kling, C. Siedschlag, I. Znakovskaya, A. Verhoef, S. Zherebtsov, F. Krausz, M. Lezius, M. Vrakking, *Strong-field control of electron localization during molecular dissociation*, Molecular Physics **106**(2-4), 455–465 (2008).
- [Kli08b] M. Kling, M. Vrakking, *Attosecond electron dynamics*, Annual Review of Physical Chemistry **59**, 463–492 (2008).
- [Klü11] K. Klünder, J. Dahlström, M. Gisselbrecht, T. Fordell, M. Swoboda, D. Guénot, P. Johnsson, J. Caillat, J. Mauritsson, A. Maquet, *et al.*, *Probing single-photon ionization on the attosecond time scale*, Physical Review Letters **106**(14), 143002 (2011).
- [Koh11] M. C. Kohler, *Frontiers of High-Harmonic Generation*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2011).
- [Kra09] F. Krausz, M. Ivanov, *Attosecond physics*, Reviews of Modern Physics **81**(1), 163 (2009).
- [Kre09] M. Kremer, *Einfluß der Träger-Einhüllenden-Phase auf die Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit Molekülen*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2009).
- [Kuc87] M. Kuchiev, *Atomic antenna*, Soviet Physics JETP **45**(7) (1987).

- [Kur09] M. Kurka, A. Rudenko, L. Foucar, K. Kühnel, Y. Jiang, T. Ergler, T. Havermeier, M. Smolarski, S. Schössler, K. Cole, *et al.*, *Two-photon double ionization of Ne by free-electron laser radiation: a kinematically complete experiment*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **42**(14), 141002 (2009).
- [Lev06] J. Levesque, P. Corkum, *Attosecond science and technology*, *Canadian Journal of Physics* **84**(1), 1–18 (2006).
- [Lew94] M. Lewenstein, P. Balcou, M. Ivanov, A. L’Huillier, P. Corkum, *Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields*, *Physical Review A* **49**(3), 2117 (1994).
- [L’H93a] A. L’Huillier, P. Balcou, *High-order harmonic generation in rare gases with a 1 ps 1053 nm laser*, *Physical Review Letters* **70**(6), 774–777 (1993).
- [L’H93b] A. L’Huillier, M. Lewenstein, P. Salieres, P. Balcou, M. Ivanov, J. Larsson, C. Wahlström, *High-order harmonic-generation cutoff*, *Physical Review A* **48**(5), 3433–3436 (1993).
- [Lin05] F. Lindner, M. Schätzel, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, F. Krausz, D. Milošević, D. Bauer, W. Becker, G. Paulus, *Attosecond double-slit experiment*, *Physical Review Letters* **95**(4), 40401 (2005).
- [Lin06] C. Lin, X. Tong, T. Morishita, *Direct experimental visualization of atomic and electron dynamics with attosecond pulses*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **39**, S419 (2006).
- [LM04a] R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, A. L’Huillier, O. Tcherbakoff, A. Zaïr, E. Mével, E. Constant, *Time-resolved ellipticity gating of high-order harmonic emission*, *Physical Review A* **69**(5), 053811 (2004).
- [LM04b] R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, P. Johnsson, K. Varju, A. L’Huillier, W. Kornelis, J. Biegert, U. Keller, M. Gaarde, K. Schafer, *Characterization of high-order harmonic radiation on femtosecond and attosecond time scales*, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **78**(7), 835–840 (2004).
- [LM05] R. L’opez-Martens, K. Varjù, P. Johnsson, J. Mauritsson, Y. Mairesse, P. Salieres, M. Gaarde, K. Schafer, A. Persson, S. Svanberg, *et al.*, *Amplitude and phase control of attosecond light pulses*, *Physical Review Letters* **94**(3), 33001 (2005).
- [Loh08] Z. Loh, C. Greene, S. Leone, *Femtosecond induced transparency and absorption in the extreme ultraviolet by coherent coupling of the He 2s2p ( $^1P^0$ ) and 2p<sup>2</sup> ( $^1s^e$ ) double excitation states with 800nm light*, *Chemical Physics* **350**(1), 7–13 (2008).
- [Lug87] L. Lugansky, *Optimal coils for producing uniform magnetic fields*, *Journal of Physics E: Scientific Instruments* **20**(3), 277 – 285 (1987).

- [Mac93] J. Macklin, J. Kmetec, C. Gordon III, *High-order harmonic generation using intense femtosecond pulses*, Physical Review Letters **70**(6), 766–769 (1993).
- [Mai60a] T. Maiman, *Optical and microwave-optical experiments in ruby*, Physical Review Letters **4**(11), 564–566 (1960).
- [Mai60b] T. Maiman, *Stimulated Optical Radiation in Ruby*, Nature **187**(4736), 493–494 (1960).
- [Mai03] Y. Mairesse, A. DeBohan, L. Frasninski, H. Merdji, L. Dinu, P. Monchicourt, P. Breger, M. Kovačev, R. Taïeb, B. Carre, *et al.*, *Attosecond synchronization of high-harmonic soft x-rays*, Science **302**(5650), 1540 (2003).
- [Mai05] Y. Mairesse, F. Quéré, *Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts*, Physical Review A **71**(1), 011401 (2005).
- [Maq07] A. Maquet, R. Taïeb, *Two-colour IR+ XUV spectroscopies: the “soft-photon approximation”*, Journal of Modern Optics **54**(13-15), 1847–1857 (2007).
- [Mau04] J. Mauritsson, P. Johnsson, R. Lopez-Martens, K. Varjú, W. Kornelis, J. Biegert, U. Keller, M. Gaarde, K. Schafer, A. L’Huillier, *Measurement and control of the frequency chirp rate of high-order harmonic pulses*, Physical Review A **70**(2), 021801 (2004).
- [Mau05a] J. Mauritsson, M. Gaarde, K. Schafer, *Accessing properties of electron wave packets generated by attosecond pulse trains through time-dependent calculations*, Physical Review A **72**(1), 013401 (2005).
- [Mau05b] J. Mauritsson, P. Johnsson, R. López-Martens, K. Varjú, A. L’Huillier, M. Gaarde, K. Schafer, *Probing temporal aspects of high-order harmonic pulses via multi-colour, multi-photon ionization processes*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **38**, 2265 (2005).
- [Mau06] J. Mauritsson, P. Johnsson, E. Gustafsson, A. L’Huillier, K. Schafer, M. Gaarde, *Attosecond pulse trains generated using two color laser fields*, Physical Review Letters **97**(1), 13001 (2006).
- [McP87] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T. Luk, I. McIntyre, K. Boyer, C. Rhodes, *Studies of multiphoton production of vacuum-ultraviolet radiation in the rare gases*, Journal of the Optical Society of America B **4**(4), 595–601 (1987).
- [Mey08] M. Meyer, D. Cubaynes, D. Glijer, J. Dardis, P. Hayden, P. Hough, V. Richardson, E. Kennedy, J. Costello, P. Radcliffe, *et al.*, *Polarization control in two-color above-threshold ionization of atomic helium*, Physical Review Letters **101**(19), 193002 (2008).
- [Mey10a] M. Meyer, J. Costello, S. Düsterer, W. Li, P. Radcliffe, *Two-colour experiments in the gas phase*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **43**, 194006 (2010).

- [Mey10b] M. Meyer, D. Cubaynes, J. Dardis, P. Hayden, P. Hough, V. Richardson, E. Kennedy, J. Costello, S. Düsterer, W. Li, *et al.*, *Two-color experiments in the gas phase at FLASH*, *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **181**(2), 111–115 (2010).
- [Mor07] T. Morishita, S. Watanabe, C. Lin, *Attosecond light pulses for probing two-electron dynamics of helium in the time domain*, *Physical Review Letters* **98**(8), 83003 (2007).
- [Mos96] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, H. Schmidt-Böcking, *A  $4\pi$  recoil-ion electron momentum analyzer: a high-resolution*, *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms* **108**(4), 425–445 (1996).
- [Mos07] R. Moshhammer, Y. Jiang, L. Foucar, A. Rudenko, T. Ergler, C. Schröter, S. Lüdemann, K. Zrost, D. Fischer, J. Titze, *et al.*, *Few-photon multiple ionization of Ne and Ar by strong free-electron-laser pulses*, *Physical Review Letters* **98**(20), 203001 (2007).
- [Mul02] H. Müller, *Reconstruction of attosecond harmonic beating by interference of two-photon transitions*, *Applied Physics B: Lasers and Optics* **74**, 17–21 (2002).
- [Nis07] M. Nisoli, *Nanoplasmonics: Brave new attoworld*, *Nature Photonics* **1**(9), 499–500 (2007).
- [Nis09] M. Nisoli, G. Sansone, *New frontiers in attosecond science*, *Progress in Quantum Electronics* **33**(1), 17–59 (2009).
- [oKe04] P. oKeeffe, R. Lopez-Martens, J. Mauritsson, A. Johansson, A. L’Huillier, V. Véniard, R. Taïeb, A. Maquet, M. Meyer, *Polarization effects in two-photon nonresonant ionization of argon with extreme-ultraviolet and infrared femtosecond pulses*, *Physical Review A* **69**(5), 051401 (2004).
- [Ott12] C. Ott, A. Kaldun, P. Raith, K. Meyer, M. Laux, Y. Zhang, S. Hagstötz, T. Ding, R. Heck, T. Pfeifer, *Quantum Interferometry and Correlated Two-Electron Wave-Packet Observation in Helium*, arXiv:1205.0519 (2012).
- [Pap03] N. Papadogiannis, L. Nikolopoulos, D. Charalambidis, G. Tsakiris, P. Tzallas, K. Witte, *Two-photon ionization of He through a superposition of higher harmonics*, *Physical Review Letters* **90**(13), 133902 (2003).
- [Pau94] G. Paulus, W. Nicklich, H. Xu, P. Lambropoulos, H. Walther, *Plateau in above threshold ionization spectra*, *Physical Review Letters* **72**(18), 2851–2854 (1994).
- [Pau01] P. Paul, E. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Augé, P. Balcou, H. Müller, P. Agostini, *Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation*, *Science* **292**(5522), 1689 (2001).

- [Pau03] A. Paul, R. Bartels, R. Tobey, H. Green, S. Weiman, I. Christov, M. Murnane, H. Kapteyn, S. Backus, *Quasi-phase-matched generation of coherent extreme-ultraviolet light*, *Nature* **421**(6918), 51–54 (2003).
- [Pfe] T. Pfeifer, private Mitteilung.
- [Pfe06] T. Pfeifer, L. Gallmann, M. Abel, D. Neumark, S. Leone, *Single attosecond pulse generation in the multicycle-driver regime by adding a weak second-harmonic field*, *Optics Letters* **31**(7), 975–977 (2006).
- [Pfe08] T. Pfeifer, M. Abel, P. Nagel, A. Jullien, Z. Loh, M. Justine Bell, D. Neumark, S. Leone, *Time-resolved spectroscopy of attosecond quantum dynamics*, *Chemical Physics Letters* **463**(1-3), 11–24 (2008).
- [Pis04] S. Pisharody, R. Jones, *Probing two-electron dynamics of an atom*, *Science* **303**(5659), 813–815 (2004).
- [Pol07] L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, F. Ferrari, S. Stagira, G. Sansone, M. Nisoli, *Intense femtosecond extreme ultraviolet pulses by using a time-delay-compensated monochromator*, *Optics Letters* **32**(19), 2897–2899 (2007).
- [Pol08] L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, F. Ferrari, S. Stagira, G. Sansone, M. Nisoli, *Intense femtosecond extreme ultraviolet pulses by using a time-delay-compensated monochromator: erratum*, *Optics Letters* **33**(2), 140–140 (2008).
- [Pop12] T. Popmintchev, M. Chen, D. Popmintchev, P. Arpin, S. Brown, S. Ališauskas, G. Andriukaitis, T. Balčiunas, O. Mücke, A. Pugzlys, *et al.*, *Bright coherent ultrahigh harmonics in the keV x-ray regime from mid-infrared femtosecond lasers*, *Science* **336**(6086), 1287–1291 (2012).
- [Qué05] F. Quéré, Y. Mairesse, J. Itatani, *Temporal characterization of attosecond XUV fields*, *Journal of Modern Optics* **52**(2-3), 339–360 (2005).
- [Rab00] H. Rabitz, R. de Vivie-Riedle, M. Motzkus, K. Kompa, *Whither the future of controlling quantum phenomena?*, *Science* **288**(5467), 824–828 (2000).
- [Rai11] P. Raith, C. Ott, T. Pfeifer, *Attosecond twin-pulse control by generalized kinetic heterodyne mixing*, *Optics Letters* **36**(2), 283–285 (2011).
- [Rai12] P. Raith, C. Ott, C. Anderson, A. Kaldun, K. Meyer, M. Laux, Y. Zhang, T. Pfeifer, *Fractional high-order harmonic combs and energy tuning by attosecond-precision split-spectrum pulse control*, *Applied Physics Letters* **100**(12), 121104–121104 (2012).
- [Rei80] H. Reiss, *Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system*, *Physical Review A* **22**(5), 1786 (1980).
- [Rei03] K. Reid, *Photoelectron angular distributions*, *Annual Review of Physical Chemistry* **54**(1), 397–424 (2003).

- [Rei04] D. Reitze, S. Kazamias, F. Weihe, G. Mullot, D. Douillet, F. Aug, O. Albert, V. Ramanathan, J. Chambaret, D. Hulin, *et al.*, *Enhancement of high-order harmonic generation at tuned wavelengths through adaptive control*, *Optics Letters* **29**(1), 86–88 (2004).
- [Rem06] F. Remacle, R. Levine, *An electronic time scale in chemistry*, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **103**(18), 6793–6798 (2006).
- [Rie07] H. Rietz, *Aufbau und Inbetriebnahme einer Apparatur zur Erzeugung hoher harmonischer Strahlung und deren Charakterisierung*, Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2007).
- [Roe] *RoentDek Handels GmbH*, Im Vogelshaag 8 D-65779 Kelkheim, Germany, <http://www.roentdek.com/>.
- [Rot08] H. Rottke, O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, B. Carré, P. Breger, O. Gobert, D. Garzella, J. Hergott, *et al.*, *Photoionization in combined ultra short XUV and infrared laser pulses*, in *Journal of Physics: Conference Series*, Band 141, 012015, IOP Publishing (2008).
- [Rud08] A. Rudenko, L. Foucar, M. Kurka, T. Ergler, K. Kühnel, Y. Jiang, A. Voitkiv, B. Najjari, A. Kheifets, S. Lüdemann, *et al.*, *Recoil-ion momentum distributions for two-photon double ionization of He and Ne by 44 eV free-electron laser radiation*, *Physical Review Letters* **101**(7), 73003 (2008).
- [Sal95] P. Salières, A. L’Huillier, M. Lewenstein, *Coherence control of high-order harmonics*, *Physical Review Letters* **74**(19), 3776–3779 (1995).
- [Sal01a] P. Salières, B. Carré, L. Le Déroff, F. Grasbon, G. Paulus, H. Walther, R. Koppold, W. Becker, D. Milošević, A. Sanpera, *et al.*, *Feynman’s path-integral approach for intense-laser-atom interactions*, *Science* **292**(5518), 902–905 (2001).
- [Sal01b] P. Salières, M. Lewenstein, *Generation of ultrashort coherent XUV pulses by harmonic conversion of intense laser pulses in gases: towards attosecond pulses*, *Measurement Science and Technology* **12**, 1818 (2001).
- [Sal12] P. Salières, A. Maquet, S. Haessler, J. Caillat, R. Taïeb, *Imaging orbitals with attosecond and Ångström resolutions: toward attochemistry?*, *Reports on Progress in Physics* **75**(6), 062401 (2012).
- [Sam02] J. Samson, W. Stolte, *Precision measurements of the total photoionization cross-sections of He, Ne, Ar, Kr, and Xe*, *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **123**(2), 265–276 (2002).
- [San04] G. Sansone, C. Vozzi, S. Stagira, M. Nisoli, *Nonadiabatic quantum path analysis of high-order harmonic generation: Role of the carrier-envelope phase on short and long paths*, *Physical Review A* **70**(1), 013411 (2004).

- [San06] G. Sansone, E. Benedetti, F. Calegari, C. Vozzi, L. Avaldi, R. Flammini, L. Poletto, P. Villoresi, C. Altucci, R. Velotta, *et al.*, *Isolated single-cycle attosecond pulses*, *Science* **314**(5798), 443–446 (2006).
- [San08] A. Sandhu, E. Gagnon, R. Santra, V. Sharma, W. Li, P. Ho, P. Ranitovic, C. Cocke, M. Murnane, H. Kapteyn, *Observing the Creation of Electronic Feshbach Resonances in Soft X-ray-Induced O<sub>2</sub> Dissociation*, *Science* **322**(5904), 1081–1085 (2008).
- [San10] G. Sansone, F. Kelkensberg, J. Pèrez-Torres, F. Morales, M. Kling, W. Siu, O. Ghafur, P. Johnsson, M. Swoboda, E. Benedetti, *et al.*, *Electron localization following attosecond molecular photoionization*, *Nature* **465**(7299), 763–766 (2010).
- [San12] G. Sansone, F. Calegari, M. Nisoli, *Attosecond Technology and Science*, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **18**(99), 507–519 (2012).
- [Sch81] F. Schuh (Hg.), *Enzyklopädie Naturwissenschaft und Technik* (Verlag moderne Industrie, München, 1981).
- [Sch94] J. Schins, P. Breger, P. Agostini, R. Constantinescu, H. Muller, G. Grillon, A. Antonetti, A. Mysyrowicz, *Observation of laser-assisted auger decay in argon*, *Physical Review Letters* **73**(16), 2180–2183 (1994).
- [Sch97] K. Schafer, K. Kulander, *High harmonic generation from ultrafast pump lasers*, *Physical Review Letters* **78**(4), 638–641 (1997).
- [Sch10] M. Schultze, M. Fieß, N. Karpowicz, J. Gagnon, M. Korbman, M. Hofstetter, S. Neppl, A. Cavalieri, Y. Komninos, T. Mercouris, *et al.*, *Delay in photoemission*, *Science* **328**(5986), 1658–1662 (2010).
- [Sch13] M. Schönwald, N.N., Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2013), in Vorbereitung.
- [Scr06] A. Scrinzi, M. Ivanov, R. Kienberger, D. Villeneuve, *Attosecond physics*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **39**, R1 (2006).
- [Sen] A. Senftleben, private Mitteilung.
- [Ser04] E. Seres, J. Seres, F. Krausz, C. Spielmann, *Generation of coherent soft-x-ray radiation extending far beyond the titanium L edge*, *Physical Review Letters* **92**(16), 163002 (2004).
- [Sha74] C. Shank, E. Ippen, *Subpicosecond kilowatt pulses from a mode-locked cw dye laser*, *Applied Physics Letters* **24**(8), 373–375 (1974).
- [Sha05] B. Shan, S. Ghimire, Z. Chang, *Generation of the attosecond extreme ultraviolet supercontinuum by a polarization gating*, *Journal of Modern Optics* **52**(2-3), 277–283 (2005).

- [Shi12] N. Shivaram, H. Timmers, X. Tong, A. Sandhu, *Measurement of the absolute timing of attosecond XUV bursts with respect to the driving field*, Physical Review A **85**(5), 051802 (2012).
- [Sil00] W. T. Silfvast, *Laser Fundamentals* (Cambridge University Press, Cambridge, 2000).
- [Sil09] Y. Silberberg, *Quantum coherent control for nonlinear spectroscopy and microscopy*, Annual Review of Physical Chemistry **60**, 277–292 (2009).
- [Smi88] S. Smith, G. Leuchs, *Angular correlation in multiphoton ionization of atoms*, Advances in Atomic and Molecular Physics **24**, 157–221 (1988).
- [Smi91] D. Smith, *Handbook of Optical Constants of Solids*, Band 1, Kapitel The Optical Properties of Metallic Aluminum, 369 – 406 (Academic press, 1991).
- [Sol06] I. Sola, E. Mével, L. Elouga, E. Constant, V. Strelkov, L. Poletto, P. Villoresi, E. Benedetti, J. Caumes, S. Stagira, *et al.*, *Controlling attosecond electron dynamics by phase-stabilized polarization gating*, Nature Physics **2**(5), 319–322 (2006).
- [Spe09] A. Sperl, *Erzeugung und Charakterisierung ultrakurzer Lichtimpulse für die Generation Hoher Harmonischer Strahlung*, Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2009).
- [Spe13] A. Sperl, *N.N.*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2013), in Vorbereitung.
- [Spi97] C. Spielmann, N. Burnett, S. Sartania, R. Koppitsch, M. Schnürer, C. Kan, M. Lenzner, P. Wobrauschek, F. Krausz, *Generation of coherent X-rays in the water window using 5-femtosecond laser pulses*, Science **278**(5338), 661 (1997).
- [Sto07] M. Stockman, M. Kling, U. Kleineberg, F. Krausz, *Attosecond nanoplasmonic-field microscope*, Nature Photonics **1**(9), 539–544 (2007).
- [Str85] D. Strickland, G. Mourou, *Compression of amplified chirped optical pulses*, Optics Communications **55**(6), 447–449 (1985).
- [Swo09] M. Swoboda, J. Dahlström, T. Ruchon, P. Johnsson, J. Mauritsson, A. L’Huillier, K. Schafer, *Intensity dependence of laser-assisted attosecond photoionization spectra*, Laser Physics **19**(8), 1591–1599 (2009).
- [Swo10] M. Swoboda, T. Fordell, K. Klünder, J. Dahlström, M. Miranda, C. Buth, K. Schafer, J. Mauritsson, A. L’Huillier, M. Gisselbrecht, *Phase measurement of resonant two-photon ionization in helium*, Physical Review Letters **104**(10), 103003 (2010).
- [Tar07] P. Tarantilis, *Aufbau und Inbetriebnahme einer Apparatur zur Charakterisierung der spektralen Phase und des zeitlichen Profils von ultrakurzen Lichtimpulsen*, ZAP-SPIDER, Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2007).

- [Tch03] O. Tcherbakoff, E. Mével, D. Descamps, J. Plumridge, E. Constant, *Time-gated high-order harmonic generation*, *Physical Review A* **68**(4), 043804 (2003).
- [Tom02] E. Toma, H. Muller, *Calculation of matrix elements for mixed extreme-ultraviolet–infrared two-photon above-threshold ionization of argon*, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **35**(16), 3435 (2002).
- [Ton79] G. Tondello, *The use of a toroidal mirror as a focusing element for a stigmatic grazing incidence spectrometer*, *Journal of Modern Optics* **26**(3), 357–371 (1979).
- [Tre97] R. Trebino, K. DeLong, D. Fittinghoff, J. Sweetser, M. Krumbügel, B. Richman, D. Kane, *Measuring ultrashort laser pulses in the time-frequency domain using frequency-resolved optical gating*, *Review of Scientific Instruments* **68**, 3277 (1997).
- [Tza11] P. Tzallas, E. Skantzakis, L. Nikolopoulos, G. Tsakiris, D. Charalambidis, *Extreme-ultraviolet pump-probe studies of one-femtosecond-scale electron dynamics*, *Nature Physics* **7**(10), 781–784 (2011).
- [Ude99] T. Udem, J. Reichert, R. Holzwarth, T. W. Hänsch, *Absolute Optical Frequency Measurement of the Cesium  $D_1$  Line with a Mode-Locked Laser*, *Physical Review Letters* **82**, 3568–3571 (May 1999).
- [Uib07] M. Uiberacker, T. Uphues, M. Schultze, A. Verhoef, V. Yakovlev, M. Kling, J. Rauschenberger, N. Kabachnik, H. Schroder, M. Lezius, *et al.*, *Attosecond real-time observation of electron tunnelling in atoms*, *Nature* **446**(7136), 627 (2007).
- [Ull03] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. Schmidt, H. Schmidt-Böcking, *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*, *Reports on Progress in Physics* **66**, 1463 (2003).
- [Ull12] J. Ullrich, *Free Electron Laser: Molecular Studies*, *Annual Review of Physical Chemistry* **63**(1) (2012).
- [Var05a] K. Varjú, P. Johnsson, R. Lopez-Martens, T. Remetter, E. Gustafsson, J. Mauritsson, M. Gaarde, K. Schafer, C. Erny, I. Sola, *et al.*, *Experimental studies of attosecond pulse trains*, *Laser Physics* **15**(6), 888–898 (2005).
- [Var05b] K. Varjú, Y. Mairesse, P. Agostini, P. Breger, B. Carré, L. Frasiniski, E. Gustafsson, P. Johnsson, J. Mauritsson, H. Merdji, *et al.*, *Reconstruction of attosecond pulse trains using an adiabatic phase expansion*, *Physical Review Letters* **95**(24), 243901 (2005).
- [Vén96] V. Véniard, R. Taïeb, A. Maquet, *Phase dependence of  $(N+1)$ -color ( $N > 1$ ) IR-UV-photoionization of atoms with higher harmonics*, *Physical Review A* **54**(1), 721 (1996).

- [Web00] T. Weber, H. Giessen, M. Weckenbrock, G. Urbasch, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Vollmer, R. Dorner, *Correlated electron emission in multiphoton double ionization*, *Nature* **405**(6787), 658–661 (2000).
- [Wig55] E. Wigner, *Lower limit for the energy derivative of the scattering phase shift*, *Physical Review* **98**(1), 145–147 (1955).
- [Wut00] M. Wutz, H. Adam, W. Walcher, K. Jousten, *Handbuch Vakuumtechnik* (Vieweg Wiesbaden, 2000).
- [xra] *X-Ray-tools, Center of X-Ray Optics (CXRO) at Lawrence Berkeley National Laboratory (LBNL)*. [henke.lbl.gov/optical\\_constants](http://henke.lbl.gov/optical_constants).
- [Ye] D. Ye, private Mitteilung.
- [Zew00] A. Zewail, *Femtochemistry: Atomic-scale dynamics of the chemical bond*, *The Journal of Physical Chemistry A* **104**(24), 5660–5694 (2000).
- [Zro05] K. Zrost, *Wechselwirkung von Atomen und kleinen Molekülen mit intensiven, ultra-kurzen Laserpulsen*, Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg (2005).

# Dank

*Alle Zeiten haben ihr Gutes, auch  
die des vermeintlich sinnlosen  
Ruderns gegen den Strom.*

---

In diesem Sinne ist auch die Zeit, die ich mit dieser Arbeit zugebracht habe, eine gute gewesen. Dass diese Arbeit allen Erschwernissen zum Trotz fertig geworden ist, verdanke ich vor allen anderen Prof. Joachim Ullrich. Ohne seine Erlaubnis, die Arbeit am MPI zu unterbrechen, ohne sein Einverständnis, nach neunmonatigem Exkurs in den Journalismus die Fäden neu aufzunehmen und nicht zuletzt ohne sein Engagement in den letzten Monaten wäre diese Arbeit nicht denkbar gewesen.

Darüber hinaus gilt mein Dank

Thomas Pfeiffer, Arne Senftleben und Robert Moshhammer für die großartige Unterstützung, die mir von ihrer Seite zuteil wurde, sowie Difa Ye für die Simulationsrechnungen.

Allen Attosekundenkriegern, die zahllose Nächte im Labor, viele kleine Erfolge und ebenso viele Rückschläge mit mir durchgehalten haben. Die den Katzenjammer um das ausgebrannte Spektrometer, aber immer auch Hoffnung und Begeisterung mit mir geteilt haben: Alexander Sperl, Andreas Fischer, Ram Gopal und Vandana Sharma.

Den Technikern und den Angestellten aus den Werkstätten, die bei der Planung und dem Aufbau der Beamline eine so große, unverzichtbare Hilfe waren: Bernd Knape, Uwe Zeiske, Theo Apfel, Stephan Flicker, Volker Mallinger und Markus Töpfer.

Den Freunden und Kollegen am Institut, die mich immer wieder motiviert und inspiriert, abgelenkt und zu neuem Tatendrang angestachelt haben: Siva Rama Krishnan, Andreas Kaldun, Renate Hubele, Peter Caradonna, Bennaceur Najjari, Christian Ott, Katharina Schneider, Veerle Sterken, Michael Schuricke, Selim Jochim, Lutz Fechner, Nicolas Camus, Thomas Pflüger, Thomas Baumann, Sara Tegami, Kirsten Schnorr, Manuel Kremer, Bettina Fischer, Katharina Kubicek, Volkhard Mäckel, Philipp Raith, Martin Laux, Philipp Cörlin und Michael Schönwald. Giuseppe Sansone und Francesca Calegari, sowie Mauro Nisoli für die Gastfreundschaft in Mailand.

Helga Krieger, die für alles so viel Verständnis und für jedes Problem eine Lösung hat; und Bernold Feuerstein für das Stück blauen Himmels, das seine Gesellschaft an so vielen grauen Tagen war.

Den Journalisten, die mich in der kurzen Zeit, die ich mit ihnen zusammengearbeitet habe, in jeweils eigener Weise geprägt, fabelhaft gefördert und nachhaltig inspiriert haben: Christian Speicher, Stefan Schmitt, Uli Blumenthal und Ulf von Rauchhaupt.

Holger Hettwer, Franco Zotta und der Initiative Wissenschaftsjournalismus für neun wundervolle Monate, eine tolle Ausbildung und die rosige Zukunft. Meinen lieben Mit-Mentees, vor allem Inga Ludwig, Anna Martinsohn und Frederike Buhse.

Allen Freunden, die mich je nach Notwendigkeit in höhere Umlaufbahnen oder zurück auf den Teppich gebracht haben: Falk Loewner, Johanna Berndt und Rolf Sinkovec. Stephanie und Matthew Angle. Tobias Kluge, Karin Schott, Harald Niederstraße, Anne-gret Adam, Xiaoya Luo und Johanna Dunkl. Den Sängern des Heidelberger Bachchors, ganz besonders Friederike Tomi, für den Trost und die Musik.

Und meiner Familie: Marion und Falk Uebernicker. Nancy und Helmut Rietz.

**Erklärung:**

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg, den 1. Oktober 2012,

.....  
Helga Rietz

