

Ankunftszeitbestimmung ultrakurzer XUV Pulse von FLASH durch Kreuzkorrelation mit ultrakurzen NIR Pulsen

Dissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Fakultät für Physik
der Universität Bielefeld

vorgelegt von
Stefan Cunovic
aus Bielefeld

August 2008

Gutachter: Prof. Dr. M. Drescher
Prof. Dr. A. Hütten

Teile dieser Arbeit sind veröffentlicht in:

Time-to-space mapping in a gas medium for the temporal characterization of vacuum-ultraviolet pulses, S. Cunovic, N. Müller, R. Kalms, M. Krikunova, M. Wieland, M. Drescher, Th. Maltezopoulos, U. Frühling, H. Redlin, E. Plönjes-Palm and J. Feldhaus, APPLIED PHYSICS LETTERS, **90**(12) 121112/1-3 (2007)

Single-shot timing measurement of extreme-ultraviolet free-electron laser pulses, Th. Maltezopoulos, S. Cunovic, M. Wieland, M. Beye, A. Azima, H. Redlin, M. Krikunova, R. Kalms, U. Frühling, F. Budzyn, W. Wurth, A. Föhlisch and M. Drescher, NEW JOURNAL OF PHYSICS, **10**(3) 033026/1-9 (2008)

Inhaltsverzeichnis

1	Abstract	1
2	Problemstellung	3
3	Physikalische Grundlagen	11
3.1	Der Freie-Elektronen-Laser (FEL)	11
3.1.1	Die Strahlerzeugung in einem SASE FEL	11
3.1.2	FEL im Vergleich zu anderen XUV - Quellen	13
3.1.3	Der Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH)	16
3.2	Das NIR Lasersystem	26
3.3	Dokumentierte Messmethoden des zeitlichen Jitters einer XUV Quelle . . .	30
3.3.1	Die Streakkamera	30
3.3.2	Timing Electro-Optical Sampling	33
3.3.3	Röntgenreflektion an nicht-thermisch schmelzenden Festkörpern . .	35
3.3.4	Induzierte Änderung der optischen Reflektivität an GaAs Oberflächen	37
3.4	Edelgase in intensiven Laserfeldern	41
3.4.1	Anregung und einfache Ionisation von Edelgasatomen in einem li- nearen Prozess	41
3.4.2	Nicht-lineare Ionisation von Edelgasatomen	42
3.4.3	Nicht-lineare Ionisation von Edelgasatomen in intensiven Laserfel- dern bei kleinen Photonenenergien	45
3.4.4	Nicht-lineare Ionisation von Edelgasatomen durch VUV/XUV Strahlung	47
3.4.5	Above Threshold Ionization (ATI)	48

3.4.6	Laserunterstützte Photoionisation	49
3.4.7	Abbildungssysteme mit geladenen Teilchen	52
3.4.7.1	Prinzip der Erzeugung einer Abbildung	52
3.4.7.2	Einfluss von Coulombkräften und externen Feldern auf die Abbildung	55
4	Experimenteller Aufbau des XUV-NIR Kreuzkorrelators	59
4.1	Gesamtaufbau und Komponenten des XUV-NIR Kreuzkorrelators	60
4.2	Die Wechselwirkungskammer	63
4.3	NIR Optik Aufbau des XUV-NIR Kreuzkorrelators	65
4.3.1	Zeitliche Charakterisierung der NIR Pulse	67
4.3.2	Bestimmung von Strahlprofil und Intensität der NIR Strahlung . . .	68
4.4	Das elektronenoptische System	72
4.5	Die Gasdüse	75
4.6	Das Detektionssystem	76
4.6.1	Komponenten des Detektionssystems	76
4.6.2	Aufnahme von orts aufgelösten Signalen mit dem Detektor	79
4.7	Das Flugzeitspektrometer	82
4.8	Aufbau zur Messung einer XUV induzierten Reflektivitätsänderung	84
4.9	Die Charakterisierungs- und Justagewerkzeuge	85
4.9.1	Das Multifunktionstool (MFT)	85
4.9.2	GaAs Kristall zur Bestimmung des XUV Strahlprofils	93
4.9.3	Die Online Normierung	94
5	Kreuzkorrelation durch NIR induzierte Erzeugung mehrfach geladener Ionen	99
5.1	Das Prinzip einer Kreuzkorrelationsmessung	99
5.2	Grundlagen der Auswertung von Flugzeitspektren	101
5.3	NIR induzierte Flugzeitspektren	102
5.4	XUV induzierte Flugzeitspektren	104
5.5	XUV-NIR Kreuzkorrelationsmessungen mit dem Flugzeitspektrometer . . .	112

5.6	Zusammenfassung der Messergebnisse und Ausblick	118
6	Kreuzkorrelation durch laserunterstützte Seitenbänderzeugung an freien Atomen	119
6.1	Das Messprinzip	119
6.2	Charakterisierende Vormessungen	124
6.2.1	Bestimmung der Vergrößerung der E-Optik	124
6.2.2	Optimierung der E-Optik und Bestimmung der örtlichen Auflösung .	125
6.2.3	Test des Energiefilters	128
6.3	Kreuzkorrelationsmessungen mit unfokussierter XUV Strahlung	130
6.3.1	Parameter der unfokussierten XUV Strahlung	130
6.3.2	Detektion des Kreuzkorrelationssignals bei mehreren Mikropulsen pro Makropuls	131
6.3.3	Abschätzung der Effizienz der Seitenbänderzeugung	136
6.3.4	Abschätzung der absoluten Zahl der Elektronen im Wechselwirkungsvolumen	137
6.3.5	Die Aufnahme eines orts aufgelösten Signals mit mehreren Mikropulsen pro Makropuls	138
6.3.6	Detektion des Kreuzkorrelationssignals im Einzelschuss	140
6.4	Messungen mit fokussierter nicht-monochromatischer XUV Strahlung . . .	140
6.4.1	Parameter der fokussierten nicht-monochromatischen XUV Strahlung	142
6.4.2	Effekte hoher lokaler Ladungsdichten	142
6.4.3	Detektion des Kreuzkorrelationssignals im Einzelschuss	145
6.5	Messungen mit fokussierter monochromatischer XUV Strahlung	146
6.5.1	Pulsdauer und Intensität der fokussierten monochromatischen XUV Strahlung	146
6.5.2	Test des Energiefilters mit fokussierter monochromatischer XUV Strahlung	146
6.5.3	Detektion des Kreuzkorrelationssignals im Einzelschuss	147
6.5.4	Abschätzung der Effizienz der Seitenbänderzeugung	149
6.5.5	Abschätzung der absoluten Zahl der Elektronen im Wechselwirkungsvolumen	150

6.5.6	Die Aufnahme eines orts aufgelösten Signals	151
6.6	Zusammenfassung der Messergebnisse und Ausblick	152
7	Kreuzkorrelation durch laserinduzierte Reflektivitätsänderung an HL-Oberflächen	153
7.1	Das Prinzip einer Kreuzkorrelationsmessung	153
7.2	Kreuzkorrelationsmessungen mit XUV induzierter Reflektivitätsänderung .	155
7.3	Zusammenfassung der Ergebnisse und Ausblick	162
8	Zusammenfassung und Ausblick	163
9	Anhang	165
9.1	Tabellen	165
9.2	Berechnung wichtiger Parameter ultrakurzer Pulse	166
9.3	Physikalische Eigenschaften ausgewählter Edelgase	167
	Danksagung	187

1 Abstract

The high-gain, single-pass free-electron laser in Hamburg (FLASH) is operated in the self amplified spontaneous emission (SASE) mode. It delivers ultrashort (a few tens of fs) extreme-ultraviolet (XUV) pulses with photon energies up to 200 eV, peak powers at the gigawatt level, unprecedented average and peak brilliance and a high degree of transverse coherence. In combination with an electronically synchronized fs NIR laser, pump-probe experiments can be performed. Currently, the ultimate time resolution given by the pulse duration of both pulses is not achievable due to unpredictable shot-to-shot arrival time fluctuations of the FLASH pulses. The temporal resolution will be significantly improved, if the random delay fluctuations are measured for individual pulses and the data from a simultaneously operated pump-probe experiment are sorted accordingly. For this purpose three different cross-correlation approaches are presented in this thesis:

The first cross-correlation experiment is based on ion time-of-flight spectra of rare gases. The NIR radiation is capable of further ionizing rare gas ions produced by the XUV radiation of FLASH. A delay dependent NIR-induced enhancement of the ion yield should become apparent. Using both pulses, a NIR-induced signal enhancement is indeed obtained, however, unambiguous delay dependence was not found. Thus, no short-lived ion state is produced by the XUV radiation. By tuning the radiation wavelength to an appropriate value concerning the rare gas in use, the setup carries the potential for single-shot arrival-time measurements at the end-station.

Laser assisted photoionization of rare gases can be used to measure the relative arrival time of the XUV pulses: Characteristic sidebands appear in the photoelectron spectra at temporal and spatial overlap of both pulses. An energy-dispersive electron optical system can image the cross-correlation volume and separate the energetically modulated from the unmodulated photoelectrons. From the spatial position of the cross-correlation signal the relative timing of both pulses can be deduced. In the current setup, the signal level requires averaging over several pulses. An upper limit for the temporal jitter at the end-station has been measured to be ~ 750 fs (FWHM). Working at higher FLASH intensities does not enhance the cross-correlation signal due to space charge effects. However, with a stronger NIR laser, which is available in the future, this setup carries the potential for single-shot arrival time measurements.

Another approach to measure arrival time fluctuations is based on the XUV-induced change of the optical reflectivity of a GaAs crystal. The temporal delay between the two pulses is directly encoded in the spatial position of the reflectivity change, which is captured with a CCD camera. With this setup shot-to-shot FEL arrival times can be measured at the end-station with a resolution of approximately 40 fs (rms). During 5 min a maximum delay of ± 600 fs and an overall rms jitter of ± 250 fs have been observed. Further, a correlation between the XUV/laser delay, measured at the end-station, and the electron-

bunch/laser delay, measured with electro-optical sampling in front of the undulator, has been found.

2 Problemstellung

Der Wunsch des Menschen, in seiner Umwelt auf einer schnellen Zeitskala ablaufende Prozesse zeitaufgelöst zu untersuchen und damit einen Einblick in die fundamentalen Abläufe der Natur zu erhalten, besteht schon seit vielen Jahrhunderten. So beschäftigte viele Wissenschaftler im 19. Jahrhundert die Frage, ob ein galoppierendes Pferd "fliegt" oder zu jeder Zeit mit mindestens einem Fuß den Kontakt zum Boden behält. Eine Beantwortung dieser Frage gelang dem englischen Fotografen Eadweard Muybridge im Jahre 1872. Indem er mehrere Fotoapparate hintereinander stellte, die entlang des Laufwegs eines Pferdes ausgelöst wurden, gelang ihm die Aufnahme einer Fotoserie [Abbildung 2.1]. Mit dieser konnte gezeigt werden, dass an manchen Zeitpunkten alle vier Füße des Pferdes vom Erdboden losgelöst waren.

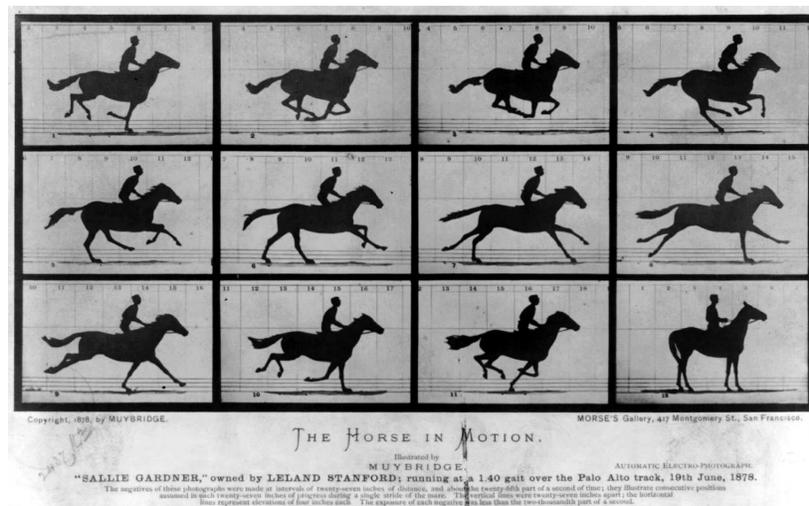


Abbildung 2.1: Fotoserie aus dem Jahre 1872 zu der Fragestellung, ob ein galoppierendes Pferd "fliegt" (aus [1]).

Die Voraussetzung für aussagekräftige Aufnahmen ist, dass die Belichtungszeit der Kamera kleiner ist als die Zeitskala für den zu untersuchenden Prozess, ansonsten "verschmiert" die Aufnahme. Der Prozess des laufenden Pferdes findet auf einer Zeitskala von Sekunden bis Millisekunden statt und kann mit heutzutage zur Verfügung stehenden Detektoren leicht zeitlich aufgelöst werden. Die Dynamik vieler anderer Vorgänge in der Natur, gerade auf mikroskopischer Ebene, läuft üblicherweise auf deutlich kürzeren Zeitskalen ab, wie Abbildung 2.2 zeigt. Im Rahmen dieser Arbeit wird häufig auf den Zeitbereich der Femtosekunde ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) Bezug genommen. In einer fs legt Licht einen Weg von $\sim 300 \text{ nm}$, der Wellenlänge einer Lichtwelle im UV Spektralbereich, zurück.

Typischerweise finden elektronische Übergänge in atomaren Systemen auf einer fs Zeitskala statt. Detektoren bieten typischerweise Zeitaufösungen von $\geq 100 \text{ ps}$ ($1 \text{ ps} = 1 \text{ Pikosekunde}$).

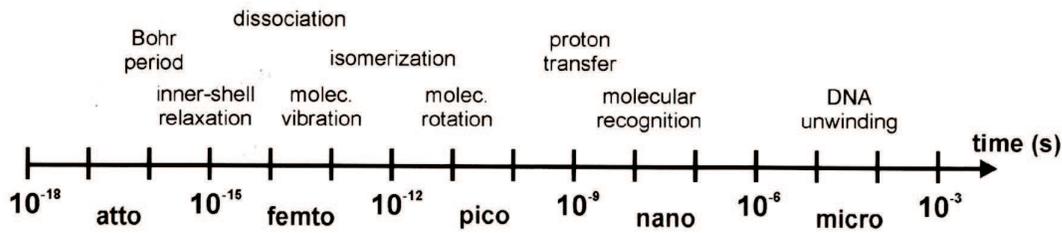


Abbildung 2.2: Typische Zeitskalen für chemische und atomare Prozesse (aus [2]).

de = 10^{-12} s) (Halbleiterdetektoren, wie z.B. Photodioden [3]) bis in den sub-ps Bereich (Streakkamera [4]) und sind damit nicht schnell genug um solche Prozesse zeitlich zu charakterisieren. Dies gelingt jedoch in einem **zeitaufgelösten Pump-Probe** Experiment. Die Grundidee ist in Abbildung 2.3 zu sehen: durch einen kurzen Pumpuls der Dauer τ_{pump} wird ein dynamischer Prozess in einem zu untersuchenden System angeregt. Durch einen Abfragepuls (Pulsdauer τ_{probe}) mit variabler Zeitverzögerung Δt gegenüber dem Pumpuls wird die Dynamik des Prozesses abgefragt. Der Detektor nimmt den Zustand des Systems auf. Wird die Messung mehrfach mit variiertem Δt wiederholt, so erhält man eine zeitaufgelöste Messung der Dynamik des Systems. Die Zeitauflösung des Experiments ist nicht durch die Zeitauflösung des Detektors begrenzt, sondern vorgegeben durch die Pulsdauern τ_{pump} , τ_{probe} und die genaue Kenntnis des Ankunftszeitunterschieds Δt .

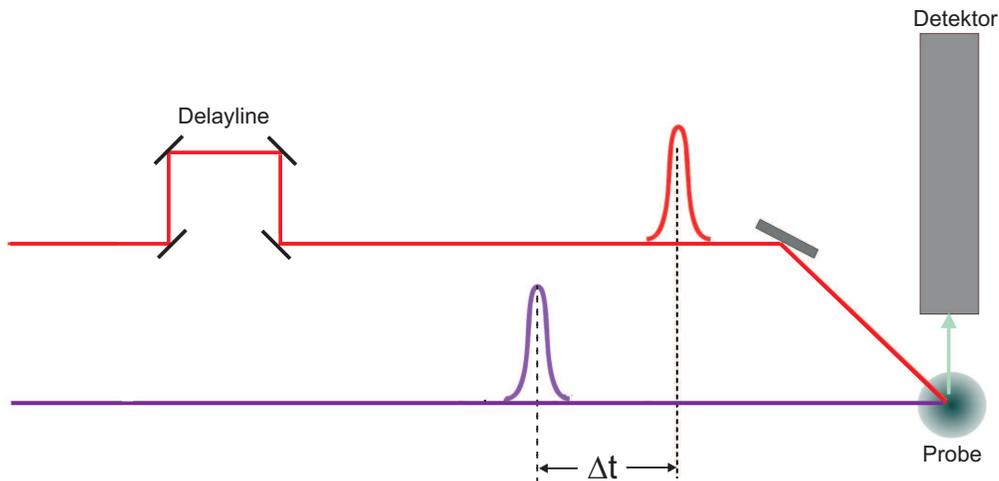


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung eines zeitaufgelösten Pump-Probe Experiments. Nach der Anregung eines Prozesses in einer Probe durch einen Pumpuls wird der Zustand der Probe durch einen zeitlich um Δt verzögerten Probepuls abgefragt. Wird das zeitliche Delay zwischen den beiden Pulsen kontinuierlich variiert, so kann die Dynamik des Prozesses zeitaufgelöst untersucht werden.

Pump- und Probepuls können derselben Strahlungsquelle entstammen. Dabei wird ein Puls mit Hilfe eines Strahlteilers in zwei Teilstrahlen aufgespalten und das zeitliche Delay

Δt wird durch unterschiedliche optische Weglängen für beide Teilpulse bis zum Erreichen des Detektors eingestellt.

Mit einem **Zwei-Farben** Experiment kann untersucht werden, wie die zu charakterisierende Probe auf das um Δt verzögerte Einstrahlen von Photonen unterschiedlicher Energie reagiert. Solch ein Schema kann realisiert werden, indem der eine Puls frequenzkonvertiert wird oder indem die beiden Pulse zwei verschiedenen Strahlungsquellen entstammen. Beim letztgenannten Schema können Pump- und Probepuls ganz verschiedene Wellenlängen haben, was mit einfacher Frequenzkonversion nicht möglich ist. Außerdem ist dann auch ein Schema realisierbar, in welchem der Pumpuls spektral durchstimmbar ist. Dann erhält man neben der zeitlichen Information auch eine Information über die Abhängigkeit des untersuchten Prozesses von der Anregungsenergie. Da Pump- und Probepuls hier von zwei voneinander unabhängigen Quellen stammen, ist eine zeitliche Synchronisation beider Quellen erforderlich. Beide Strahlungsquellen sind nämlich bei der Strahlerzeugung üblicherweise statistischen Schwankungen unterworfen (ausgelöst beispielsweise durch thermische Effekte), aufgrund derer die Ankunftszeit der beiden Pulse am Ort der Probe in unkalkulierbarer Weise schwankt. Dies führt dazu, dass die beiden Pulse den Ort der Probe nicht wie gewünscht um Δt zeitversetzt erreichen, sondern in einem zeitlichen Abstand $\Delta t \pm \Delta t_j$. Das wird als **zeitlicher Jitter** bezeichnet. Im Normalfall kann der zeitliche Jitter nicht rechnerisch vorhergesagt werden und der Ankunftszeitunterschied Δt_j muss Schuss für Schuss experimentell bestimmt werden. Geschieht dies in einer parallel zum eigentlichen Pump-Probe Experiment durchgeführten Messung, so können die gemessenen Daten des durch den zeitlichen Jitter beeinflussten Pump-Probe Experiments nachträglich sortiert werden.

Üblicherweise werden für zeitaufgelöste Pump-Probe Experimente ultrakurze **Laserpulse** (**L**ight **A**mplification by **S**timulated **E**mission of **R**adiation) benutzt. Heutzutage stehen ultrakurze Lichtimpulse mit Pulsdauern < 10 fs zur Verfügung [5]. Konventionelle Lasersysteme arbeiten dabei vorwiegend im Infraroten (IR), Optischen oder Ultravioletten (UV), nicht aber im Vakuum- Ultravioletten (VUV), Extrem-Ultravioletten (XUV) oder Röntgenspektralbereich. Die zeitliche Synchronisation zweier unabhängiger modengekoppelter Lasersysteme gelingt mit fs [6] oder sogar sub - fs [7] Präzision. Damit können ultraschnelle chemische Prozesse, bei denen die am schwächsten gebundenen Valenzelektronen (typische Bindungsenergie ≤ 10 eV) angeregt oder emittiert werden, zeitaufgelöst untersucht werden. Dies bildet die Grundlage der so genannten **Femtochemie** [8]. Solche Experimente liefern wertvolle Informationen über die Natur und Dynamik der chemischen Bindung. Insbesondere erhält man Auskunft darüber, wie chemische Bindungen brechen und sich wieder formen, in welche Freiheitsgrade die Anregungsenergie abgegeben wird und auf welchen Zeitskalen dies passiert. Die Valenzelektronen befinden sich aber in den äußeren Schalen der Atome und Moleküle, so dass deren Anregung oder Freisetzung aus dem Verbund keinerlei molekülspezifische Informationen liefert. Dagegen hängt die Bindungsenergie der stärker gebundenen Elektronen in den inneren Schalen von der chemischen Umgebung ab. Die Freisetzung dieser Elektronen erfordert allerdings VUV/XUV- oder Röntgenphotonen. Die energetische Lage und Verteilung der Elektronen aus den in-

neren Schalen im Photoelektronenspektrum sind charakteristisch für das Element, dem sie entstammen. Damit kann die elementare Zusammensetzung einer Probe untersucht werden - das ist die Grundidee der Electron Spectroscopy for Chemical Analysis (**ESCA**) [9]. Eine weitere Anwendung der Methode ist die chemische Analyse einer Probe, da das Photoelektronenspektrum abhängig von der chemischen Umgebung ist [10]. Dann kann beantwortet werden wie ein bestimmtes Element chemisch an andere Elemente gebunden ist oder was mit der Elektronendichteverteilung innerhalb eines Atoms oder Moleküls bei Ionisationsprozessen geschieht. Abbildung 2.4 zeigt schematisch das Konzept des zeitaufgelösten ESCA am Beispiel der Dissoziation eines Moleküls.

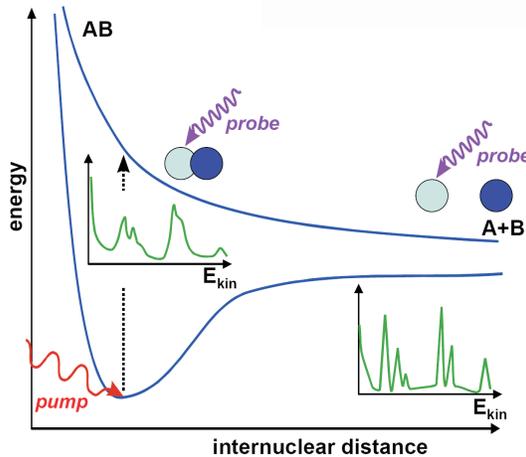


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung des zeitaufgelösten ESCA. Durch einen ultrakurzen UV, optischen oder IR Pumpimpuls (rot) wird ein nicht-bindender Zustand eines Moleküls angeregt. Durch einen zeitlich um Δt verzögerten XUV Probestrahlungspuls (blau) wird das Molekül ionisiert. Trifft der XUV Puls unmittelbar nach dem Pumpimpuls ein, so besitzt das Molekül noch seinen molekularen Charakter (links). Für größeres Δt hat das Molekül bereits atomaren Charakter (rechts). Dies spiegelt sich in den jeweils gemessenen Photoelektronenspektren (grün) wider (aus [2]).

In der Vergangenheit sind ESCA Experimente mit Synchrotronstrahlung durchgeführt worden, bei denen bedingt durch die Pulsdauer eine ps Zeitauflösung erzielt wurde [11]. Durch den Einsatz von Höheren Harmonischen eines NIR Lasersystems konnte Dynamik auf einer fs Zeitskala zeitaufgelöst untersucht werden ([12],[13]). Man war jedoch bei diesen Messungen in dem erreichbaren Wellenlängenbereich bzw. der Intensität der Strahlung eingeschränkt. Für weitergehende Untersuchungen wird daher eine Quelle benötigt, welche einen größeren Spektralbereich abdeckt und dabei kurze Pulse mit hoher Intensität, idealerweise einem hohen Grad an räumlicher Kohärenz und vielen Photonen pro Puls liefert. Der "**Freie-Elektronen-Laser**" (**FEL**) ist eine solche XUV Quelle. Die Verstärkung der Strahlung ähnelt prinzipiell derjenigen bei konventionellen Lasern, wobei das aktive Medium aus freien Elektronen besteht. Durch ultrakurze Laserpulse werden kurze Elektronenpakete aus einer Photokathode ausgelöst und anschließend in einem Linearbeschleuniger auf relativistische Geschwindigkeiten gebracht (Abbildung 2.5). Nach der Pulskompression werden sie durch Permanentmagneten in einem so genannten **Undulator** auf sinusförmige Bahnen gezwungen. Bei einem FEL, der nach dem **SASE** (**S**elf **A**mplified **S**pontaneous **E**mission) - Prinzip [14] arbeitet, kommt es zu einer Wechselwirkung der Elektronen mit dieser spontanen Emission und zur Erzeugung kohärenter XUV Strahlung. In Kombination mit einem zeitlich synchronisierten Lasersystem besteht somit erstmalig die Möglichkeit, zeitaufgelöste ESCA Experimente durchzuführen.

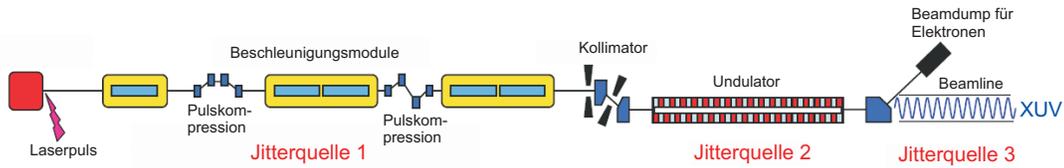


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung der Strahlerzeugung bei einem SASE - FEL. Aus einer Photokathode ausgelöste, auf relativistische Energien beschleunigte und zeitlich komprimierte Elektronenpulse treten in einen Undulator. Hier wird die XUV Strahlung erzeugt, die über eine Beamline zum Experiment geführt wird. Die den Undulator verlassenden Elektronen werden über Dipolmagnete in den Beamdump gelenkt. Bei der Strahlerzeugung tritt ein zeitlicher Jitter auf, dessen Quellen angedeutet sind (aus [15]).

Die einzigartigen Eigenschaften der Strahlung eines SASE-FEL werden allerdings erkauft mit dem Auftreten eines zeitlichen Jitters, der ein Vielfaches seiner Pulslänge ausmachen kann. Dieser zeitliche Jitter hat drei Quellen:

- Der wesentliche Beitrag zum zeitlichen Jitter tritt beim Beschleunigungsprozess auf: es kommt von Puls zu Puls zu einer Fluktuation der Ankunftszeit der Elektronenpakete am Eingang des Undulators [16].
- Beim SASE Prozess findet Lichtverstärkung aus anfänglichem Rauschen statt. Aufgrund der statistischen Natur dieses Prozesses ist eine zusätzliche zeitliche Fluktuation wahrscheinlich.
- Die Beamlines haben typischerweise Längen von mehreren zehn bis hundert Metern. Bei der Strahlerzeugung kann es zu Fluktuationen der Weglänge der XUV Pulse auf einer μm Skala kommen.

Es ist daher erforderlich parallel zur ESCA Messung die Ankunftszeitdifferenz zwischen Pump- und Probepulsen Schuss für Schuss zu messen. Dies kann mit Hilfe eines **Kreuzkorrelationsexperiments** geschehen. In solch einem Experiment wird das zeitliche Zusammenfallen zweier Strahlungspulse durch einen Messeffekt erfasst, der das Zusammenwirken beider Pulse erfordert. Die Pulse mit den Intensitätsprofilen $I_1(t)$ und $I_2(t)$ erzeugen die Signale $x_1(t)$ und $x_2(t)$. Die Kreuzkorrelationsfunktion beschreibt die Korrelation der beiden Signale bei zeitlicher Verschiebung τ . Es gilt folgende Integraloperation [17]:

$$A(\tau) = \int_{-\infty}^{\infty} x_1(t) \cdot x_2(t - \tau) dt. \quad (2.1)$$

Werden die Pulse eines FEL und eines zeitlich dazu synchronisierten Lasersystems für ein zeitaufgelöstes Pump-Probe Experiment benutzt, so weisen die Pulse am Ort der Messung einen Unterschied der Ankunftszeiten von $\tau = \Delta t + \Delta t_j$ auf [Abbildung 2.6].

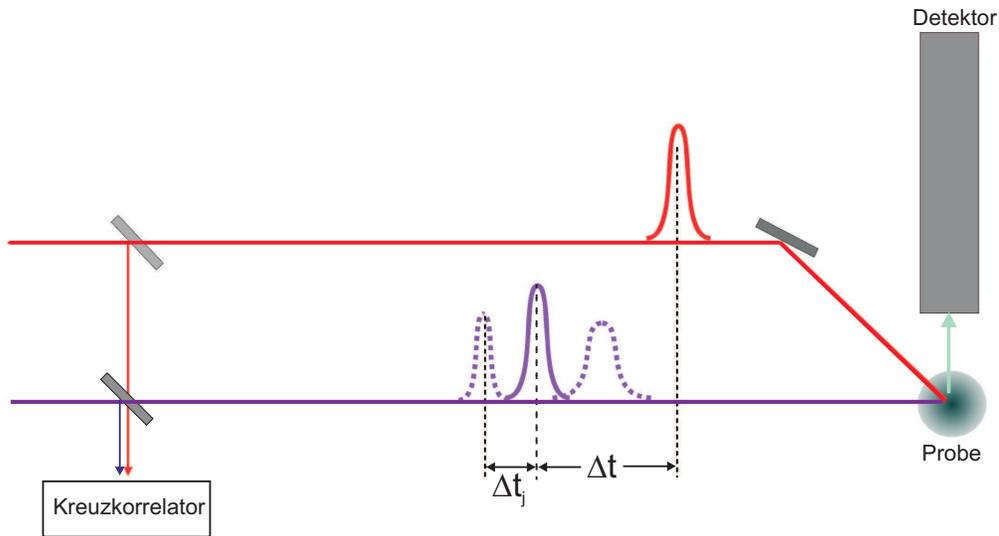


Abbildung 2.6: Schematische Darstellung eines Pump-Probe Aufbaus mit FEL Pulsen (lila) und den Pulsen eines zeitlich dazu synchronisierten Lasers (rot). Durch einen parallel zu den eigentlichen Pump-Probe Messungen eingesetzten Kreuzkorrelator wird der Ankunftszeitunterschied Δt_j von Puls zu Puls bestimmt.

Aus der gemessenen Funktion $A(\tau)$ kann bei ausreichender Signalintensität, ausreichend schneller Datenaufnahme und bekanntem Δt von Schuss zu Schuss die Größe Δt_j bestimmt werden. Die Pump-Probe Spektren können nachträglich mit diesen Daten auf den zeitlichen Jitter korrigiert werden [Abbildung 2.7]. Die entsprechende Apparatur wird als **Kreuzkorrelator** bezeichnet.

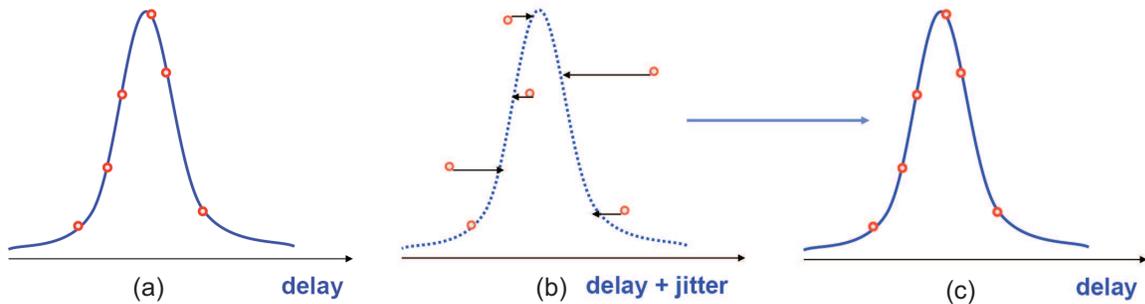


Abbildung 2.7: Schematische Darstellung der Korrektur eines Pump-Probe Spektrums bezüglich des zeitlichen Jitters. (a) Pump-Probe Signal als Funktion des Delays Δt in einem idealen Experiment ohne zeitlichen Jitter. (b) Pump-Probe Signal als Funktion von $\Delta t \pm \Delta t_j$ in einem realen Experiment. (c) Nachträglich korrigiertes Pump-Probe Signal (aus [18]).

Das Ziel dieser Arbeit ist es, Messmethoden zur Bestimmung von Δt_j für die XUV Pulse des Freie-Elektronen-Lasers in Hamburg (**FLASH**) am Deutsches Elektronen Synchrotron (**DESY**) zu demonstrieren. Dazu ist ein Kreuzkorrelator konzipiert worden, mit welchem drei voneinander unabhängige Kreuzkorrelationsexperimente durchgeführt werden können.

Die vorliegende Arbeit gliedert sich wie folgt:

In Kapitel 3.1 wird die Strahlerzeugung bei einem SASE FEL beschrieben. Insbesondere wird gezeigt, welche Vorteile ein FEL gegenüber anderen heutzutage zur Verfügung stehenden XUV Quellen bietet. Anschließend wird FLASH vorgestellt. In Kapitel 3.2 wird ein zu FLASH zeitlich synchronisiertes Lasersystem beschrieben. Dessen ultrakurze NIR Pulse werden benutzt, um mit dem Kreuzkorrelator die Ankunftszeitdifferenz Δt_j der XUV Pulse von FLASH zu bestimmen. In Kapitel 3.3 werden bereits benutzte Methoden zur Bestimmung von Δt_j mit ihren Vor- und Nachteilen vorgestellt. Kapitel 3.4 beschreibt das physikalische Verhalten von Edelgasatomen in intensiven Laserfeldern. Dies ist zum Verständnis von zwei der drei Korrelationsexperimenten notwendige Voraussetzung.

Kapitel 4 beschäftigt sich mit dem experimentellen Aufbau des XUV-NIR Kreuzkorrelators und der Beschreibung seiner Komponenten. Für die Aufnahme und Interpretation von Kreuzkorrelationssignalen sind diverse Vormessungen notwendig, beispielsweise die Sicherstellung des örtlichen Überlapps der zu charakterisierenden XUV Pulse und der NIR Referenzpulse oder die zeitliche Charakterisierung der Referenzpulse. Solche Vormessungen werden in diesem Kapitel gezeigt.

Die Kreuzkorrelationsmessungen, welche in Kapitel 5 vorgestellt werden, basieren auf Ionen-Flugzeitspektren von Edelgasen. Es wird untersucht, inwieweit NIR induzierte Änderungen in XUV Flugzeitspektren - konkret die Erzeugung von Ionen höherer Ladungsstufen - genutzt werden können, um die relative Ankunftszeit der XUV Pulse zu bestimmen.

Durch leichte Variation des Aufbaus lassen sich mit einem abbildenden System für Elektronen ortsaufgelöste Aufnahmen der Wechselwirkungszone über die von dort aus einem Edelgas emittierten Photoelektronen aufnehmen. Über laserunterstützte Photoionisation wird eine Kreuzkorrelationsmessung durchgeführt, die sich nach Energiefilterung in einer detektierbaren Veränderung des ortsaufgelösten Bildes bei zusätzlichem Einstrahlen der NIR Pulse äußert. Aus der relativen Position dieses Signals wird auf die Ankunftszeitdifferenz der XUV Pulse geschlossen. Damit beschäftigt sich Kapitel 6.

Kapitel 7 befasst sich mit Kreuzkorrelationsmessungen unter Benutzung der XUV induzierten Änderung der optischen Reflektivität. Dabei wird ausgenutzt, dass sich die Reflektivität eines NIR Pulses an einem GaAs Kristall bei zusätzlichem Einstrahlen eines XUV Pulses in Abhängigkeit vom zeitlichen Delay der beiden Pulse ändert.

3 Physikalische Grundlagen

Für zeitaufgelöste ESCA Messungen wird eine kohärente Strahlungsquelle intensiver ultrakurzer XUV Pulse benötigt [Kapitel 2]. Der Freie-Elektronen-Laser (FEL) ist eine solche Strahlungsquelle. Neben der Beschreibung der Strahlerzeugung in einem FEL und allgemeinen Eigenschaften der Strahlung wird in Kapitel 3.1 insbesondere FLASH am DESY in Hamburg vorgestellt. Zusammen mit einem verstärkten Ti:Sa Lasersystem, dessen ultrakurze NIR Pulse zu den XUV Pulsen von FLASH zeitlich synchronisiert sind, sind zeitaufgelöste ESCA Messungen möglich. Dieses Lasersystem wird in Kapitel 3.2 vorgestellt.

Die kurzen intensiven XUV Pulse eines FEL sind aber durch das Auftreten eines zeitlichen Jitters beeinflusst. Um bei Pump-Probe Experimenten die intrinsische Zeitauflösung gegeben durch die Pulsdauern der beteiligten Pulse zu erreichen, ist es daher nötig, die statistische Ankunftszeitdifferenz Δt_j der XUV Pulse von Schuss zu Schuss zu messen. In Kapitel 3.3 werden mehrere Methoden zur Messung von Δt_j mit ihren Vor- und Nachteilen vorgestellt. Im Rahmen dieser Arbeit werden drei weitere Kreuzkorrelationsexperimente zur Bestimmung von Δt_j am Messplatz vorgestellt. Bei zwei dieser drei Experimente ist ein Edelgas das Medium, in welchem der benötigte Kreuzkorrelationseffekt erzielt wird. Daher wird im Kapitel 3.4 auf die Wechselwirkung von Edelgasatomen mit intensiver Strahlung eingegangen. Außerdem wird hier das Prinzip eines abbildenden Systems für Elektronen diskutiert, mit welchem ortsauflöste Emissionsbilder aufgenommen werden können.

3.1 Der Freie-Elektronen-Laser (FEL)

SASE FEL werden in Kapitel (3.1.1) vorgestellt. Im Kapitel (3.1.2) werden die Vorteile des FEL gegenüber anderen laser- und beschleunigerbasierten XUV Quellen hervorgehoben. Kapitel (3.1.3) beschäftigt sich speziell mit dem Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (**FLASH**). Insbesondere werden einige Parameter der Strahlung von FLASH, wie die spektrale Verteilung, Bandbreite, Pulsenergie und Intensität von FLASH diskutiert.

3.1.1 Die Strahlerzeugung in einem SASE FEL

Beim Freie-Elektronen-Laser handelt es sich um eine beschleunigerbasierte Strahlungsquelle. In bis zu mehreren km langen Linearbeschleunigern wird ein Elektronenstrahl extrem kleiner örtlicher Divergenz erzeugt, der aus ultrakurzen Elektronenpulsen hoher Ladungsdichten und schmaler Energieverteilung besteht. Ein solcher Elektronenstrahl tritt in einen Undulator ein, welcher ein System von in Ausbreitungsrichtung der geladenen Teilchen periodisch angeordneten und alternierend gepolten Permanentmagneten ist. Es kommt zu

einer spontanen Emission der durch die Lorentzkraft auf sinusförmige Bahnen gezwungenen Elektronen bei folgender Wellenlänge [19]:

$$\lambda_s = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2}\right). \quad (3.1)$$

Dabei ist λ_u die Undulatorperiode, $\gamma = 1/\sqrt{1 - v^2/c^2}$ der Lorentzfaktor, v die Geschwindigkeit des Elektronenpakets, c die Lichtgeschwindigkeit und $K = eB_u\lambda_u/2\pi m_e c$ (mit $B_u =$ maximales Magnetfeld und $m_e =$ Ruhemasse des Elektrons) der sogenannte Undulator-Parameter. Durch Wahl von λ_u , B_u und γ kann die gewünschte Emissionswellenlänge eingestellt werden.

Bei genügend großer Elektronendichte in den Elektronenpaketen und der damit verbundenen intensiven spontanen Emission im Undulator kommt es zu einer longitudinalen Veränderung der Elektronendichte innerhalb der Elektronenpulse [20]. Diese beruht auf der Wechselwirkung der Elektronen mit der von ihnen emittierten Strahlung. Die Elektronen in den Elektronenpaketen werden in Scheiben angeordnet, die einen Abstand von λ_s voneinander haben (Abbildung 3.1). Man spricht von **Micro-Bunching**. Die Elektronen in den Scheiben haben eine feste Phasenbeziehung und die emittierte spontane Emission überlagert sich kohärent [14]. Aufgrund dessen steigt die Strahlungsleistung $P(z)$ exponentiell mit der Koordinate z entlang des Undulators an [21].

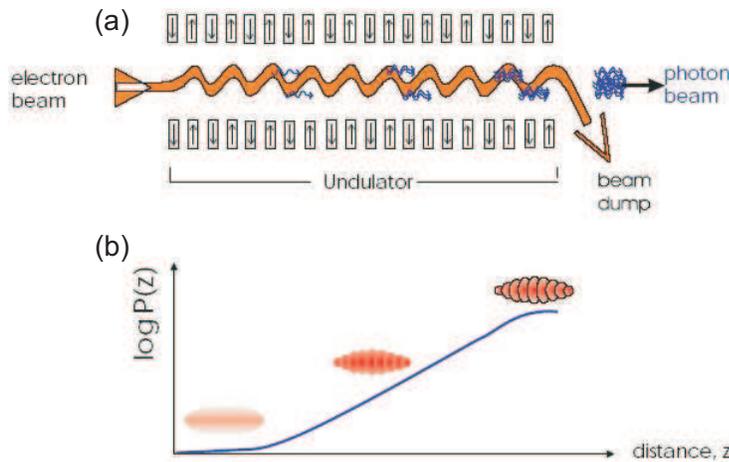


Abbildung 3.1: (a) Schematische Darstellung der Strahlerzeugung bei einem SASE FEL. Die Elektronen wechselwirken im Undulator mit dem von ihnen selbst aufgrund von spontaner Emission abgestrahlten Feld. (b) Micro-Bunching entlang der Ausbreitungsrichtung der Elektronen. Am Eintritt in den Undulator sind die Elektronen noch rein statistisch verteilt. Innerhalb des Undulators setzt eine Variation der Dichteverteilung ein. Am Austritt aus dem Undulator hat sich vollständig eine scheibenförmige Substruktur ausgebildet. Das Micro-Bunching sorgt für einen exponentiellen Anstieg der Strahlungsleistung mit zunehmendem z (aus [22]).

Die Strahlungsleistung als Funktion von z kann folgendermaßen geschrieben werden [22]:

$$P(z) = P_0 A \exp(z/L_g). \quad (3.2)$$

Dabei ist P_0 die effektive Eingangsleistung, L_g die Leistungsverstärkungslänge und A der sogenannte Eingangskoeffizient [23]. Die Verstärkung kann so lange stattfinden, bis sich die Elektronen innerhalb des Elektronenpaketes vollständig in Scheiben angeordnet haben. Ab dann tritt Sättigung ein und eine weitere Verstärkung ist nicht mehr möglich. Da im XUV keine Materialien für Resonatorspiegel vorhanden sind, muss eine ausreichende Verstärkung bei einem einzigen Durchgang der Elektronen durch den Undulator geschehen. Dementsprechend haben SASE Undulatoren Längen von mehreren 10 Metern.

Im Jahre 1977 wurde der erste FEL, der zur Rückkopplung noch Resonatorspiegel verwendete und nicht im SASE-Betrieb arbeitete, mit einer Emissionswellenlänge von $\lambda = 3,4 \mu\text{m}$ in Betrieb genommen [24]. Die modernen FEL arbeiten in ganz verschiedenen spektralen Bereichen, nämlich vom IR Spektralbereich ("KAERI compact far-infrared free-electron laser") [25], über den sichtbaren Spektralbereich (APS LEUTL = Advanced Photon Source Low-Energy Undulator Testline) [26], den VUV bzw. XUV Spektralbereich (SCSS = Spring-8 Compact SASE Source) [27], den Bereich weicher Röntgenstrahlung (SPPS = Sub-Picosecond Pulse Source) [28] bis zukünftig in der Bereich harter Röntgenstrahlung mit LCLS (Linac Coherent Light Source) [29] und XFEL [30].

3.1.2 FEL im Vergleich zu anderen XUV - Quellen

Synchrotronstrahlungsquellen

Die **Synchrotronstrahlung** basiert wie die Strahlung eines SASE FEL auf der Abstrahlung elektromagnetischer Wellen durch beschleunigte geladene Elementarteilchen (meistens Elektronen). Bei Quellen der **dritten Generation** [19] werden die Elektronen in grossen Speicherringen auf hohe Geschwindigkeiten beschleunigt und in Undulatoren wird XUV oder sogar harte Röntgenstrahlung erzeugt. Ein Beispiel für eine solche Strahlungsquelle ist **PETRA III** [31], welcher durch den Umbau des PETRA (Positron-Electron Tandem Ring Accelerator)-Speicherringes am DESY in Hamburg in den nächsten Jahren entstehen und 2009 seinen Betrieb aufnehmen soll.

Obwohl der Mechanismus der Strahlerzeugung in einem SASE FEL und einer Synchrotronstrahlungsquelle der dritten Generation ähnlich ist, unterscheidet sich die ausgekoppelte Strahlung aufgrund verschiedener Eigenschaften der beschleunigten Elektronenpakete bedeutend. Im Gegensatz zum FEL kommt es bei der Synchrotronstrahlung nicht zu einer kohärenten Überlagerung der emittierten Strahlung, da die Elektronen elektromagnetische Wellen ohne feste Phasenbeziehung abstrahlen. Damit ist keine exponentielle Verstärkung wie beim FEL möglich. Da die Elektronenpulse zeitlich bedeutend länger sind als bei einem FEL, hat die emittierte Strahlung Pulsdauern von typischerweise mehreren 10 bis 100 ps

[32]. Eine Verkürzung der Pulslänge kann mit Hilfe des sogenannten "Femtosing" erzielt werden [33]. Dabei wird ein ultrakurzer Puls mit Pulsdauer τ_L und Wellenlänge λ_L kollinear zum Elektronenpuls eingestrahlt. Ist λ_L identisch mit der Emissionswellenlänge λ_s , so wird auf dem langen Elektronenpuls eine Femtosekundenzeitstruktur imprägniert. Als Ergebnis kann man aus der emittierten Strahlung Röntgenpulse mit Pulsdauern von typischerweise einigen hundert fs extrahieren [34]. Inzwischen konnten mit diesem Verfahren am **BESSY II** (Berliner Elektronenspeicherring-Gesellschaft für Synchrotronstrahlung) Speicherring in Berlin Röntgenpulse mit $\tau \sim 100$ fs erzeugt werden [35]. Jedoch wird bei diesem Verfahren dem gesamten Puls ein einzelner Subpuls entnommen. Da die Zahl der Photonen pro ausgekoppeltem Synchrotronpuls trotz hoher Lichtflüsse aufgrund von hohen Repetitionsraten von typischerweise mehreren 100 MHz ohnehin relativ gering ist [32], ist die Intensität der mit dem Femtoslicing erzeugten ultrakurzen Pulse um Größenordnungen kleiner als bei einem SASE FEL.

Eine weitere wichtige Charakterisierungsgröße für eine XUV Quelle ist die **Brillanz**, welche definiert ist als

$$\frac{\text{Zahl der Photonen}}{\text{s mm}^2 \text{ mrad}^2 0,1\% \text{ Bandbreite}}. \quad (3.3)$$

Sie macht gleichzeitig Aussagen über Intensität, Strahlungsdichte, Divergenz und Monochromasie der Strahlung. Die Strahlung eines SASE FEL weist gegenüber der eines dritte Generation Synchrotrons eine um mehrere Größenordnungen höhere Spitzenbrillanz auf (Abbildung 3.2).

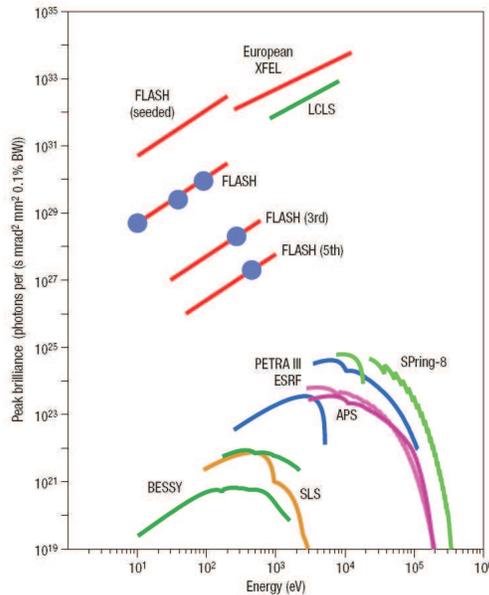
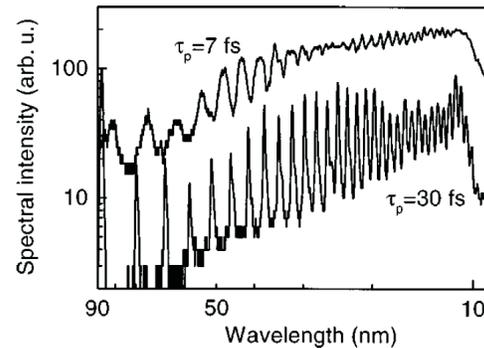


Abbildung 3.2: Experimentell ermittelte Spitzenbrillanz von FLASH (blaue Punkte) bzw. erwartete Spitzenbrillanz des XFEL [16] und von LCLS [29] im Vergleich zu Synchrotronstrahlungsquellen der dritten Generation (aus [36]).

Höhere Harmonische Quellen (HHG)

Die Erzeugung Höherer Harmonischer basiert auf der nicht-linearen Wechselwirkung zwischen einem ultrakurzen, linear polarisierten Laserpuls der Frequenz ν_p mit einem Edelgas. Das Edelgas emittiert nach der Wechselwirkung mit dem Laserfeld Strahlung höherer Photonenenergie bis typischerweise in den VUV/XUV Spektralbereich. Das Spektrum besteht dabei aus ungeraden Vielfachen der Fundamentalwellenlänge ν_p [37]. Die Konversionseffizienz ist umso größer, je kürzer und intensiver der einfallende Laserpuls ist [38] und je besser die Qualität der Wellenfront ist, weshalb man phasenstabilisierte Laserpulse [39] einsetzt. Abbildung 3.3 zeigt HHG Spektren von Neon, erzeugt durch die NIR Pulse eines Ti:Sa Lasersystems bei zwei verschiedenen Pulsdauern τ_p .

Abbildung 3.3: HHG Spektren von Neon erzeugt durch die linear polarisierte Strahlung eines Ti:Sa Lasersystems ($\lambda_p \approx 800$ nm) bei einer Pulsdauer von $\tau_p = 7$ fs bzw. $\tau_p = 30$ fs (FWHM). Die Intensität der Laserstrahlung beträgt in beiden Fällen $3 \cdot 10^{14}$ W/cm². (aus [40]).



Die HHG Erzeugung ist ein kohärenter Prozess, weshalb die Höheren Harmonischen einen hohen Grad an räumlicher Kohärenz und eine geringe Strahldivergenz aufweisen. Durch Mo/Si Multilayerspiegel kann nur ein Teil des HHG Spektrums herausgefiltert werden, wodurch sich isolierte ultrakurze XUV Pulse erzeugen lassen [41]. Durch ein Kreuzkorrelationsexperiment zwischen dem erzeugten XUV Puls und der Fundamentalen bei 750 nm kann die Pulsdauer τ_{xuv} bestimmt werden [42]. Es ergibt sich $\tau_{\text{xuv}} = 650 \pm 150$ as [43]. Theoretische Arbeiten sagen mögliche Pulsdauern bis hinunter zu 100 as voraus [44].

Da optische Lasersysteme mit Pulsdauern < 10 fs kommerziell erhältlich sind und der gesamte Aufbau nur wenig Platz beansprucht, ist die XUV Erzeugung über HHG eine häufig angewandte Technik. Allerdings ist die Konversionseffizienz typischerweise gering ($< 10^{-7}$), was zu einer deutlichen Einschränkung der erreichbaren XUV Intensität führt. Außerdem sind nicht beliebig hohe Photonenenergien erzeugbar. Oberhalb einer gewissen Nummer der Harmonischen bricht das Spektrum im sogenannten **Cut-Off** ein. Die bisher erreichte maximale Photonenenergie mit einem He Gastarget liegt in der Größenordnung von ~ 700 eV [45].

Die Erzeugung Höherer Harmonischer kann auch auf Festkörpern beobachtet werden, indem ein ultrakurzer Puls hoher Intensität ($> 10^{13}$ W/cm²) auf ein geeignetes Festkörpertarget fokussiert wird [46]. Das wird erklärt über das sogenannte "Moving Mirror Modell" [47]. Danach wird durch die intensive Strahlung auf der Festkörperoberfläche ein Plasma mit großem Dichtegradienten erzeugt, an welchem die Strahlung reflektiert

werden kann. Der Festkörper wirkt dann wie ein Spiegel, welcher mit der Laserfrequenz ν_p oszilliert. Die Spiegelbewegung führt zu einer Phasenmodulation und zur Ausbildung von Nebenmaxima bei Vielfachen von ν_p im Spektrum der reflektierten Strahlung. Nach Simulation sollte mit dieser Methode die Erzeugung von isolierten as Pulsen [48] bei einer Konversionseffizienz bis in den Prozentbereich [49] möglich sein.

Die besonderen Strahleigenschaften, die den FEL gegenüber anderen XUV Strahlungsquellen besonders attraktiv machen, sind in der folgenden Auflistung zusammengefasst:

- Energie der emittierten Strahlung durchstimmbar (bei HHG nur begrenzt möglich).
- Hoher Grad an räumlicher Kohärenz (im Gegensatz zur Synchrotronstrahlung).
- Pulsdauern bis hinunter zu einige zehn fs (im Gegensatz zur Synchrotronstrahlung).
- Photonenenergien bis in den Bereich harter Röntgenstrahlung (im Gegensatz zu HHG).
- Um Größenordnungen höhere Durchschnitts- und Spitzenbrillanz, sowie Photonenflüsse und Zahl der Photonen pro Puls im Vergleich zu allen anderen VUV/XUV Strahlungsquellen.

3.1.3 Der Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH)

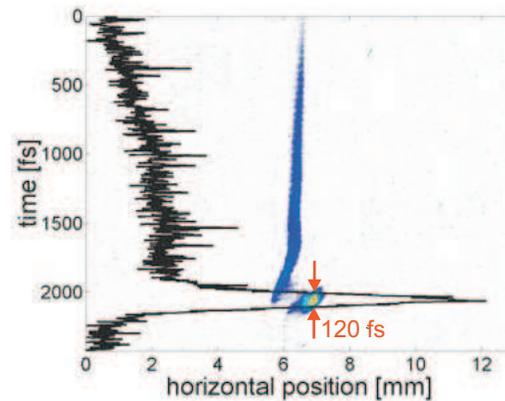
Der SASE FEL **FLASH** [50] befindet sich auf dem Gelände des Deutschen Elektronen Synchrotron (DESY) in Hamburg. Die Großanlage besteht aus einem Linearbeschleuniger für Elektronen, einem langen Undulator und einer Experimentierhalle, in welcher die XUV Strahlung den Nutzern zur Verfügung gestellt wird.

Erzeugung der XUV Strahlung

Die für die Strahlerzeugung notwendigen ultrakurzen Elektronenpulse werden mit kurzen UV Pulsen ($\tau_{uv} = 11 \pm 1$ ps, [51]) über den Photoeffekt aus einer Cs_2Te - Photokathode ausgelöst. Nach ihrer Emission werden die Photoelektronen über ein gepulstes, intensives Radiofrequenzfeld mit einer Frequenz von 1,3 GHz beschleunigt. Gegenüber der Beschleunigung mit Gleichspannungsfeldern lassen sich deutlich höhere Feldgradienten bis zu 40 MV/m erzielen [52]. Die Pulslänge τ_{xuv} der ausgekoppelten XUV Strahlung hängt von der Pulslänge τ_{el} der sie erzeugenden Elektronenpakete ab. Daher werden die beschleunigten Elektronenpakete mit Hilfe zweier Kompressoren, bestehend aus mehrere Meter langen magnetischen Schikanen, zeitlich gestaucht [53]. Die Endbeschleunigung der Elektronenpakete findet mit fünf 12,2 m langen, supraleitenden Linearbeschleunigungsmodulen statt [54]. Jedes dieser Module enthält acht mit suprafluidem Helium gekühlte 9-Zellen Hohlräume aus Niob. Als Ergebnis erhält man kurze Elektronenpakete mit Energien von einigen hundert MeV, Ladungen in der Größenordnung von 1 nC und elektrischen Strömen in der Größenordnung von 1-2 kA. Die longitudinale Elektronenverteilung innerhalb der Elektronenpakete ist nicht homogen, sondern besteht aus einem scharfen Peak von ~ 120 fs

(FWHM), gefolgt von einem langen Schwanz (Abbildung 3.4). Die XUV Strahlung wird hauptsächlich durch den scharfen Peak erzeugt, während der hintere Teil kaum einen Beitrag zur Strahlerzeugung leistet [15]. Ein Kollimator sorgt für eine zusätzliche Verbesserung der Elektronenverteilung innerhalb der Elektronenpakete.

Abbildung 3.4: Die Stromstärke eines Elektronenpaketes nach der Beschleunigung als Funktion der Zeit. Die longitudinale Verteilung der Elektronen innerhalb der Elektronenpakete ist nicht homogen, sondern besteht aus einem scharfen vorderen Peak und einem langen Schwanz (aus [15]).



Der so präparierte Strahl aus den kurzen, hochenergetischen Elektronenpaketen tritt in den Undulator ein. Die Elektronenpakete erfahren dabei das Micro-Bunching (Abbildung 3.1) und erzeugen die XUV Pulse. Die den Undulator anschliessend verlassenden Elektronen werden über Dipolmagnete in den Beamdump umgelenkt. Die dabei emittierte Dipolstrahlung wird zur zeitlichen Synchronisation genutzt [siehe Kapitel 3.3.1].

Der Undulator hat eine Länge von 30 m und besteht aus NdFeB Permanentmagneten [55]. Die Undulatorperiode ist $\lambda_u = 27,3$ mm und das maximale Magnetfeld $B_u = 0,46$ T. Damit lässt sich nach Gleichung (3.1) die gewünschte Photonenenergie der emittierten FEL Strahlung durch Vorgabe der kinetischen Energie der beschleunigten Elektronen wählen. Inzwischen lässt sich die gewünschte Emissionswellenlänge zwischen 13 nm und 48 nm routinemässig innerhalb von weniger als acht Stunden einstellen [56].

Infrastruktur am FLASH

Abbildung 3.5 zeigt eine Zeichnung der **Experimentierhalle** am FLASH. Die Experimentierfläche hat eine Grösse von 20 x 30 m und beherbergt insgesamt fünf evakuierte XUV Beamlines.

XUV Beamlines

Kurz vor dem Eintritt in die FEL Halle kann mit Hilfe eines Planspiegels die XUV Strahlung von FLASH in zwei Äste verteilt werden. Der eine Ast besteht aus drei Beamlines (BL1-BL3), in welchen die XUV Strahlung mit der intrinsischen spektralen Breite geführt wird. Während bei den Beamlines BL1 und BL2 die XUV Strahlung fokussiert wird, steht an der Beamline BL3 die unfokussierte XUV Strahlung zur Verfügung [56]. Ein Teil der Messungen der vorliegenden Arbeit wurden an der Beamline BL3 durchgeführt.

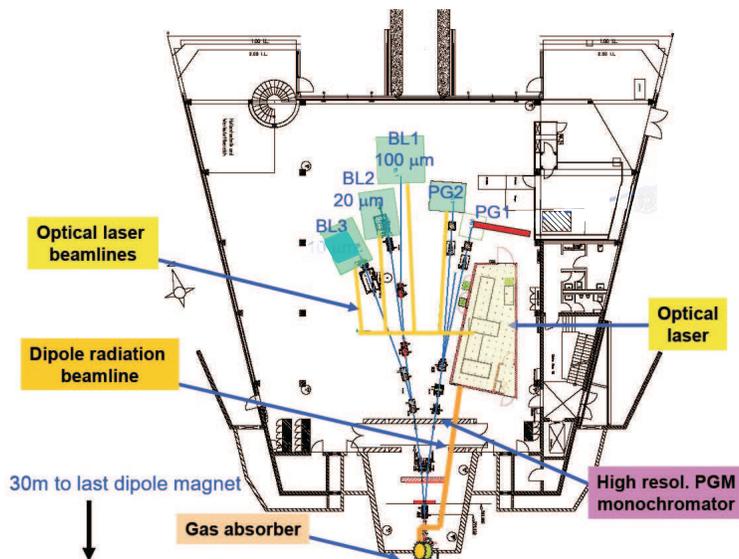


Abbildung 3.5: Zeichnung der FLASH Halle. Der XUV Strahl von FLASH kommt in dieser Ansicht von unten. Die insgesamt fünf XUV Beamlines sind als blaue Linien dargestellt. Die optischen Beamlines (gelbe Linien) führen die NIR Pulse des Ti:Sa Lasersystem (hier als "optischer Laser" bezeichnet) zu den Messplätzen. Die Dipolstrahlung, welche bei der Umlenkung der Elektronen in den Beamdump emittiert wird, wird in einer separaten Beamline (dicke orange Linie) geführt (aus [57]).

Für Experimente, die einen hohen Grad an Monochromasie erfordern, stehen in einem zweiten Ast zwei Beamlines (PG1 und PG2) zur Verfügung, die mit einem hochauflösenden Monochromator ausgestattet sind. Die Beamline PG1 befindet sich noch im Aufbau [56]. Ein weiterer Teil der Messungen der vorliegenden Arbeit wurde an der Beamline PG2 durchgeführt.

Die optischen Beamlines

Neben den XUV Pulsen steht den Experimentatoren an den einzelnen Messplätzen die NIR Strahlung des zu FLASH zeitlich synchronisierten Ti:Sa Lasersystems zur Verfügung. Der Aufbau dieses Lasersystems wird in Kapitel 3.2 beschrieben. Die Strahlung wird in grob evakuierten Beamlines aus dem Laserlabor zu den Messplätzen gebracht. Diese optischen Beamlines enden jeweils mit einem Fensterflansch.

Die Pulsstruktur der FEL Pulse

Die XUV Strahlung wird in Impulszügen emittiert, deren Einhüllende (Makropuls) sich mit einer Repetitionsrate von ν_{makro} wiederholt. Innerhalb dieser Makropulse befinden sich n_{mikro} ultrakurze Mikropulse, die sich mit der Repetitionsrate ν_{mikro} wiederholen. Ist $n_{\text{mikro}} = 1$, so spricht man von **Einzelschussbetrieb**. Abbildung 3.6 zeigt beispielhaft eine mögliche Pulsstruktur.

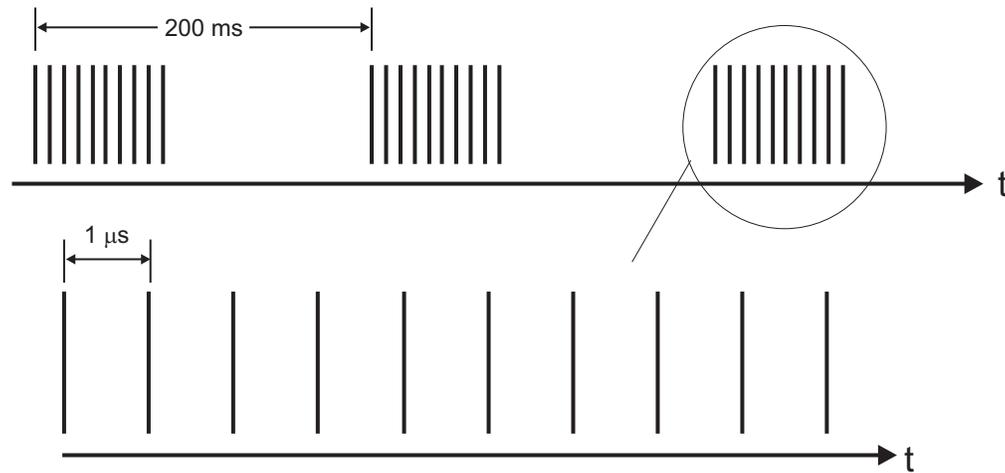


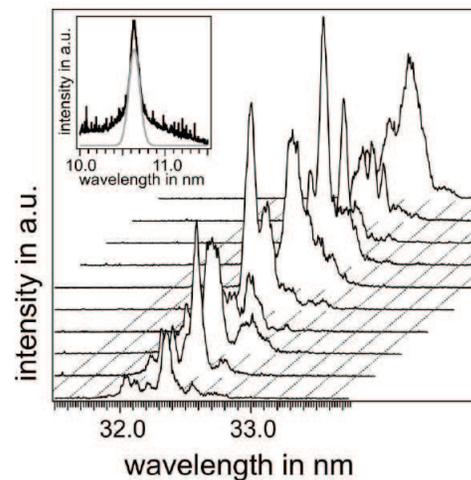
Abbildung 3.6: Beispiel für eine Pulsstruktur der XUV Strahlung von FLASH. Jeder Strich stellt einen Mikropuls dar. In diesem Fall ist $n_{\text{mikro}} = 10$, $\nu_{\text{makro}} = 5 \text{ Hz}$ und $\nu_{\text{mikro}} = 1 \text{ MHz}$.

Routinemäßig lassen sich bei jeder Emissionswellenlänge im Intervall zwischen 13-48 nm Pulsenergien der Mikropulse von $E_{\text{XUV}} \geq 10 \mu\text{J}$ einstellen. Im Langzeitbetrieb bei fester Wellenlänge werden durchschnittliche Pulsenergien von $30 \mu\text{J}$ und Spitzenpulsenergien bis $100 \mu\text{J}$ vorhergesagt [56].

Das Spektrum der FEL Pulse

Zur Aufnahme der spektralen Verteilung der XUV Pulse von FLASH ist ein Gitterspektrometer in die Experimentierhalle integriert [58]. Abbildung 3.7 zeigt das XUV Spektrum für zehn hintereinander folgende Einzelschüsse von FLASH bei $\lambda_{\text{XUV}} \approx 32 \text{ nm}$.

Abbildung 3.7: Gemessene Spektren für zehn hintereinander folgende Einzelschüsse von FLASH. Man sieht die verschiedene Anzahl von optischen Moden. Als Inset ist das Spektrum der 3. Harmonischen der Strahlung gezeigt. Es wird erhalten durch Mittelung über 2500 Einzelschüsse (aus [59]).



Das Spektrum zeigt eine Anzahl M von Peaks, welche aufgefasst werden können als longitudinale optische Moden, die anschwingen können. Es kommt von Schuss zu Schuss zu

einer statistischen Fluktuation der spektralen Verteilung der Strahlung sowie der Anzahl der Moden. Die gemessenen Spektren stehen in guter Übereinstimmung mit theoretisch vorhergesagten Spektren, wenn man die Statistik aufgrund der beim SASE Prozeß auftretenden Verstärkung aus anfänglichem Rauschen zugrunde legt [60]. Die gemessene Bandbreite beträgt $\Delta\lambda/\lambda = 0,5 \%$, was ebenfalls in guter Übereinstimmung mit der Theorie steht [61].

Höhere Harmonische der FEL Strahlung

Im Spektrum der Strahlung von FLASH finden sich neben der Fundamentalen auch zu einem geringen Prozentsatz Höhere Harmonische. Deren Erzeugung beruht auf einer nicht-linearen Transformation [36]. Mit Hilfe von Photoionisationsspektren an Xenon erzeugt durch die XUV Pulse von FLASH bei $h\nu_{\text{xuv}} = 38,5 \text{ eV}$ ist die Intensität der 2. und 3. Harmonischen zu jeweils etwa 0,5 % bestimmt worden [59]. Ein experimentell gemessenes Spektrum der 3. Harmonischen ist als Inset in Abbildung 3.7 zu sehen. Die Intensität der 2. Harmonischen hängt stark vom Verhältnis zwischen der FEL Verstärkungslänge und der Rayleigh Länge der Strahlung ab [62]. Aus diesem Grund ist bei $\lambda_{\text{xuv}} = 13 \text{ nm}$ eine deutliche Verringerung der Intensität der 2. Harmonischen gegenüber der 3. Harmonischen beobachtet worden [36].

Die Pulsdauer der FEL Pulse

Eine weitere Kenngröße der XUV Strahlung von FLASH ist die Pulsdauer τ_{xuv} der Mikropulse. Im XUV Spektralbereich sind viele etablierte Methoden zur zeitlichen Pulscharakterisierung, welche im NIR und optischen Spektralbereich funktionieren, nicht anwendbar. Daher ist es bis heute nicht gelungen, die Pulsdauer τ_{xuv} im Experiment direkt zu vermessen. Aus dem aufgenommenen Spektrum aber lässt sich mit Hilfe des Bandbreiteproduktes [Gleichung (9.1)] unter Annahme eines beugungsbegrenzten Pulses für $\lambda_{\text{xuv}} = 32 \text{ nm}$ eine Pulsdauer von $\tau_{\text{xuv}} \approx 25 \text{ fs}$ abschätzen [15]. Bei $\lambda_{\text{xuv}} = 13 \text{ nm}$ ist die abgeschätzte Pulsdauer $\tau_{\text{xuv}} \approx 10 \text{ fs}$ [36].

Die Pulsenergie der FEL Pulse

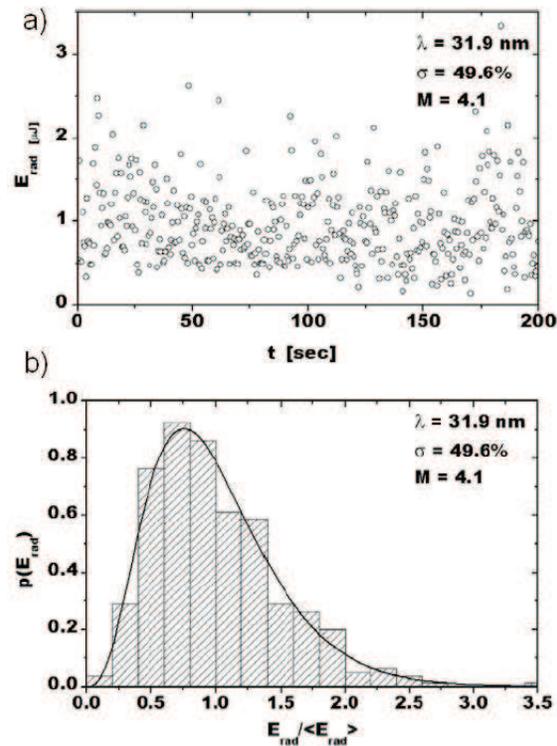
Eine zweite Strahleigenschaft, die aufgrund der statistischen Natur der Strahlerzeugung eine Fluktuation von Schuss zu Schuss zeigt, ist die Pulsenergie E_{xuv} der Mikropulse. Abbildung 3.8 a) zeigt Pulsenergien gemessen über 200 s. Nach theoretischen Vorhersagen sollte bei einem FEL mit exponentieller Verstärkung der Strahlungsleistung die Pulsenergie gemäss einer Gammaverteilung fluktuieren, die folgendermassen definiert werden kann [60]:

$$p(E) = \frac{M^M}{\Gamma(M)} \left(\frac{E}{\langle E \rangle} \right)^{M-1} \frac{1}{\langle E \rangle} \exp\left(-M \frac{E}{\langle E \rangle}\right). \quad (3.4)$$

Dabei ist $\Gamma(M) = \int_0^{\infty} t^{M-1} e^{-t} dt$ die Gammafunktion, E die Pulsenergie, $\langle E \rangle$ die mittlere Pulsenergie und M die Zahl anschwingbarer optischer Moden. Gleichzeitig ist M die Inverse der normierten Varianz der Pulsenergie E , also $M = \langle E \rangle^2 / \langle (E - \langle E \rangle)^2 \rangle$.

Abbildung 3.8 b) zeigt den Vergleich der gemessenen Wahrscheinlichkeitsverteilung der Pulsenergie mit einer nach Gleichung (3.4) berechneten Gammaverteilung. Die gute Übereinstimmung ist eine Bestätigung für die exponentielle Verstärkung der Strahlungsleistung.

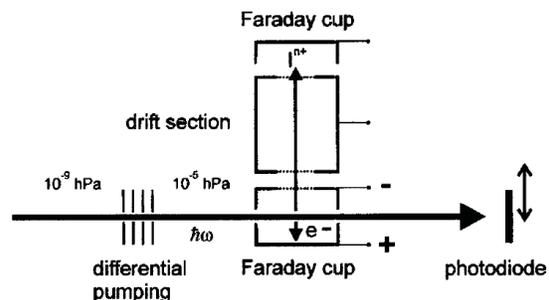
Abbildung 3.8: a) Gemessene Pulsenergie der Mikropulse vieler aufeinander folgender Einzelschüsse von FLASH bei $\lambda_{\text{XUV}} = 31,9 \text{ nm}$. b) Die gemessene Wahrscheinlichkeitsverteilung für die Pulsenergie aus Messreihe a) dargestellt als Balkendiagramm. Die durchgezogene Linie beschreibt die nach Gleichung (3.4) berechnete Gammaverteilung $p(E)$. Man beobachtet eine gute Übereinstimmung der Messwerte mit $p(E)$ (aus [15]).



Messung der Pulsenergie der FEL Pulse

Um aufgenommene Spektren nachträglich auf die Intensität der XUV Strahlung von FLASH normieren zu können, muss die zeitlich fluktuierende Pulsenergie E_{XUV} parallel zum eigentlichen Experiment für jeden einzelnen Schuss gemessen werden. Das kann mit einem sogenannten **Gas Monitor Detektor (GMD)** [63] gemacht werden. Abbildung 3.9 zeigt schematisch den Aufbau des GMD.

Abbildung 3.9: Schematische Darstellung des Gas Monitor Detektors. Hinter einer differentiellen Druckstufe befinden sich Faradaysche Becher zum Nachweis der durch die XUV Pulse freigesetzten Elektronen bzw. Ionen (aus [63]).



Die XUV Pulse von FLASH durchlaufen eine Vakuumanlage, welche mit einem Edelgas I gefüllt ist, wobei eine geringe Teilchendichte an Edelgasatomen (ca. 10^{-11} cm^{-3}) aus-

reicht. Die durch Ionisation erzeugten positiv geladenen Edelgas-Ionen I^{n+} und Elektronen e^- werden durch homogene elektrische Felder in entgegengesetzte Richtungen beschleunigt und in Faradayschen Bechern nachgewiesen. Für die Ionen ist eine Driftstrecke implementiert, um aus der Flugzeit eine Trennung der Ionen nach der Ladungsstufe vornehmen zu können. Die Zahl der nachgewiesenen Ionen/Elektronen ist proportional zur Zahl der einfallenden XUV Photonen. Nach Kalibrierung des GMD und Normierung der Signale auf die Teilchendichte der Edelgasatome kann bei bekanntem totalen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation für das gewählte Edelgas I die absolute Pulsenergie E_{xuv} bei jeder Wellenlänge λ_{xuv} der ionisierenden Strahlung angegeben werden. Damit steht ein nicht-invasiver Intensitätsmonitor für die XUV Strahlung zur Verfügung, der sich aufgrund der geringen Teilchendichte über mehrere Größenordnungen der Intensität linear verhält [63]. Die einzelnen Schüsse von FLASH werden mit einem Zeitstempel versehen und somit eindeutig gekennzeichnet [64]. Somit können gemessene Spektren nachträglich auf die XUV Intensität normiert werden.

Abschwächung der FEL Pulse

Bei vielen Experimenten ist es nötig die Pulsenergie E_{xuv} abzuschwächen, beispielsweise um eine Probe nicht durch zu hohe XUV Flüsse zu zerstören. Daher ist in den FLASH Aufbau ein **Gasabsorber** integriert, durch den die Pulsenergie auf den gewünschten Wert reduziert werden kann. Er befindet sich unmittelbar vor dem Eintritt der XUV Strahlung in die Experimentierhalle von FLASH [Abbildung 3.5], und besteht aus einer 15 m langen Gaszelle, die zu beiden Enden jeweils mit einer differentiell gepumpten Druckstufe abschließt [65]. Durch geeignete Wahl des Absorbergases für die Emissionswellenlänge der Strahlung von FLASH lässt sich eine Abschwächung über mehrere Größenordnungen erreichen. Der gewünschte Gasdruck im Gasabsorber kann am Messplatz eingestellt werden, die Größe der Abschwächung wird überwacht mit einem GMD vor und einem hinter dem Gasabschwächer.

Das örtliche Strahlprofil der FEL Strahlung

Zur Vermessung des Strahlprofils werden Ce:YAG [Cerium(III)-dotiertes Yttrium Aluminium Garnet ($Y_3Al_5O_{12}$)] Schirme in den Strahlengang der XUV Strahlung von FLASH gefahren [66]. Nach der Absorption der XUV Strahlung und anschließender Relaxation findet Fluoreszenz im optischen Spektralbereich statt. Die örtliche Verteilung dieser XUV induzierten Fluoreszenz wird mit einer CCD Kamera aufgenommen. Die XUV Beamlines sind an mehreren Stellen mit solchen Ce:YAG Schirmen zur Überwachung von Strahlprofil und Strahlage ausgestattet. Abbildung 3.10 zeigt das Fluoreszenzsignal erzeugt durch die unfokussierte Strahlung von FLASH an der Beamline BL3 bei $\lambda_{\text{xuv}} = 13$ nm auf einem Ce:YAG Schirm. Das Strahlprofil ist gaußförmig mit $\Delta_{\text{s}_{\text{xuv}}} = 2,1$ mm (FWHM) [36]. Bei bekanntem Abstand zwischen Undulatorausgang und Ce:YAG Schirm kann zusätzlich die Winkeldivergenz der Strahlung bestimmt werden. Sie ergibt sich zu 90 ± 10 μrad (FWHM) [36].

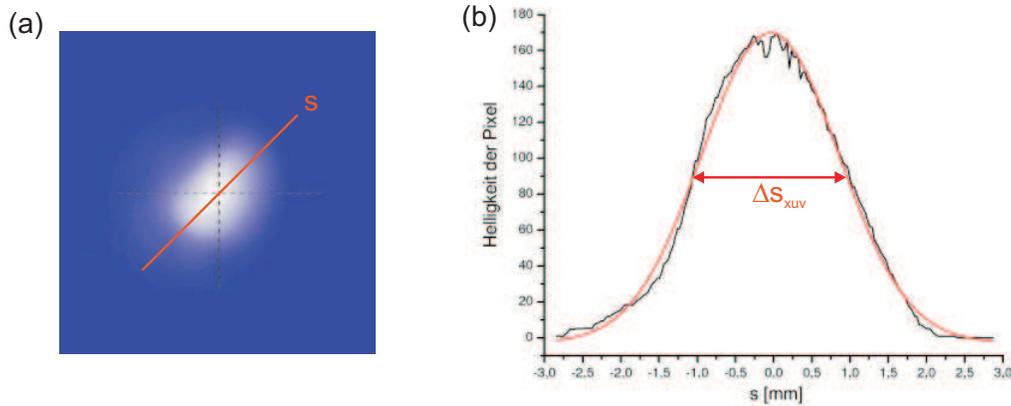


Abbildung 3.10: (a) Fluoreszenzsignal erzeugt durch die unfokussierte Strahlung von FLASH bei $\lambda_{xuv} = 13$ nm auf einem Ce:YAG Schirm (aus [36]). (b) Intensitätsplot entlang der Schnittlinie s des Fluoreszenzsignals aus (a). Das Profil ist gaußförmig, der Gaußfit an die Messwerte ist in rot eingezeichnet.

Die Monochromator Beamline PG2

Mit einem Monochromator kann mit hoher Präzision die gewünschte Photonenenergie innerhalb der Bandbreite der Strahlung von FLASH (ca. 0,5 % der Photonenenergie) eingestellt werden.

Der Aufbau der Beamline

Abbildung 3.11 zeigt schematisch den Aufbau der Monochromator Beamline PG2. Mit dem Planspiegel M0 findet die Verteilung der XUV Strahlung auf die beiden Hauptäste (BL/PG Beamlines, Abbildung 3.5) statt. Er hat einen Abstand von 45 m vom Austritt aus dem Undulator. Der Spiegel M1 ist ein Toroidspiegel, der in der Horizontalen einen Zwischenfokus in der Ebene Z 2 m vor dem Austrittsspalt S erzeugt und in der Vertikalen eine Kollimierung des Strahls verursacht. Der Monochromator arbeitet nämlich mit einem ebenen Beugungsgitter (Plane Grating) unter Benutzung von kollimiertem Licht [67]. Hinter dem Planspiegel M2 befindet sich der Monochromator G, welcher mit zwei verschiedenen Gittern (1200 Linien/mm und 200 Linien/mm) ausgestattet ist [68].

Während für die Strahlung der 0. Beugungsordnung die Beamline PG0 aufgebaut wurde, ist für die Strahlung der 1. und auch höherer Ordnungen die Beamline PG2 vorgesehen. Der zylindrische Spiegel M3 fokussiert die dispergierte FEL Strahlung auf den Austrittsspalt S. Der Toroidspiegel M4 schließlich fokussiert den reellen Zwischenfokus Z sowie den Austrittsspalt S in die Ebene, in welcher das Experiment durchgeführt wird. Für die 0. Ordnung der Strahlung an der PG2 sagen Simulationen einen vertikal stehenden Linienfokus mit $60 \times 100 \mu\text{m}^2$ vorher [68]. Die Simulationen gehen allerdings von optimaler Strahlführung aus, die im täglichen Betrieb im Normalfall nicht realisierbar ist. Daher muss die Fokusgröße experimentell bestimmt werden.

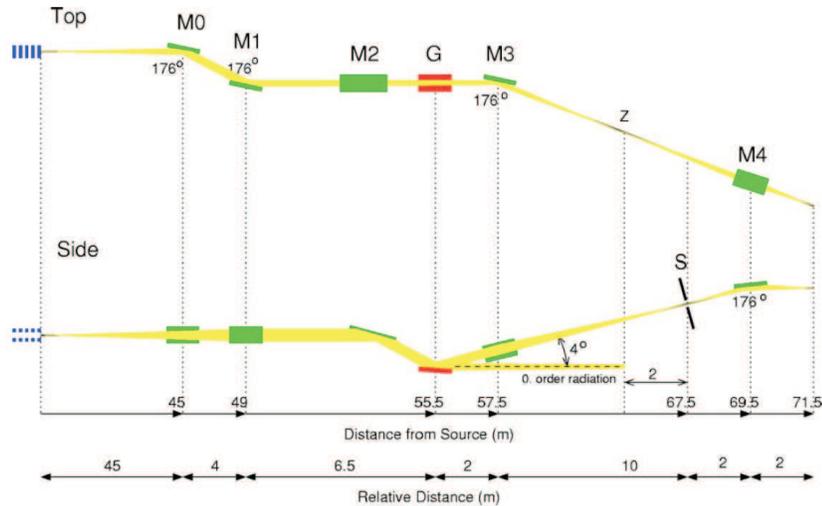


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung der Monochromator Beamline PG2 am FLASH. Der obere Teil des Bildes zeigt den Aufbau aus der Vogelperspektive, der untere Teil von der Seite. Die Abstände der Komponenten untereinander sind eingezeichnet (aus [68]).

Fokuslage und Fokusgröße

Die Fokuslage der PG2 Beamline kann bestimmt werden mit einem Flugzeitspektrometer, welches in Ausbreitungsrichtung der XUV Strahlung verschiebbar ist [69]. Im Fokus kommt es zu einer Sättigung des Signals der nachgewiesenen positiv geladenen Ionen nach Ionisierung eines Edelgases durch die FLASH Pulse, die auf der Abnahme der Zahl der Targetatome mit zunehmendem XUV Fluss basiert. Aus der Sättigungskurve kann bei bekanntem Gasdruck, totalem Wirkungsquerschnitt der Photoionisation und Zahl der einfallenden XUV Photonen, welche über einen hinter dem Flugzeitspektrometer positionierten GMD bestimmt wird, die Fokusgröße bestimmt werden. An der Beamline PG0 bei 38 eV ist mit dieser Methode die Fokusgröße erfolgreich vermessen worden [70].

Im täglichen Betrieb kann die Fokusgröße am Experiment auch durch das Fluoreszenzsignal auf einem Leuchtschirm bestimmt werden. Aufgrund der hohen XUV Flussdichte im Fokus ist üblicherweise eine Abschwächung notwendig, um eine lokale Zerstörung des Schirms zu verhindern. Mit diesem Verfahren ist für 90 eV an der Beamline PG2 eine Fokusgröße von $\sim 275 \times 400 \mu\text{m}^2$ gemessen worden [71].

Energieauflösung

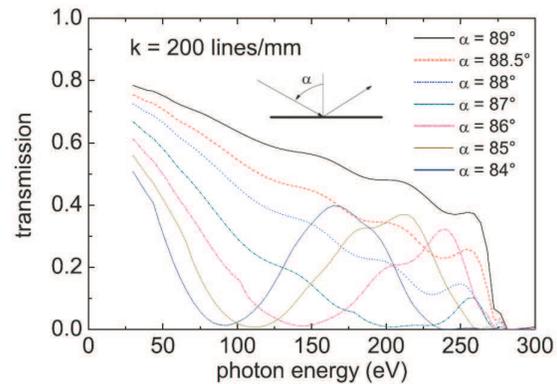
Das Auflösungsvermögen $E/\Delta E$ des Monochromators hängt von der Photonenenergie $h\nu_{\text{XUV}}$, der Wahl des Beugungsgitters (200 Linien/mm oder 1200 Linien/mm) und vom **constant fixed focus** (cff) Wert ($c_{\text{ff}} = \sin \beta / \sin \alpha$, wobei $\alpha =$ Einfallswinkel auf das Beugungsgitter und $\beta =$ Beugungswinkel) ab. Eine Simulation sagt beispielsweise für Pho-

tonenenergien 25-100 eV und ein $\text{eff}=2$ eine Energieauflösung von $E/\Delta E$ 10000 bis 18000 voraus [68]. Die Energieauflösung der PG Beamline kann auch experimentell bestimmt werden, indem der Monochromator durch Absorptionsmessungen mit einem geeigneten Absorbergas geeicht wird [70]. Bei 48 eV Photonenenergie und Neon als Targetgas wird eine Energieauflösung von 1500 ermittelt, die deutlich unter dem vorhergesagten Wert von 10000 liegt [71]. Das wird apparativen Einflüssen (wie z.B. Fluktuationen in der örtlichen Position der XUV Pulse) zugeschrieben.

Transmission der Beamline

Wie die Energieauflösung ist auch die Transmission der Beamline PG2 eine Funktion der Photonenenergie $h\nu_{\text{XUV}}$ und des Einfallswinkels α . Theoretisch ermittelte Transmissionskurven in Abhängigkeit von der Photonenenergie für verschiedene Einfallswinkel α beim 200 Linien/mm Beugungsgitter finden sich in Abbildung 3.12.

Abbildung 3.12: Theoretisch ermittelte Transmissionskurven für die 0. Ordnung der Strahlung an der Beamline PG2 als Funktion der Photonenenergie für verschiedene Einfallswinkel α unter Benutzung des 200 Linien/mm Beugungsgitters (aus [71]).



Die Transmission kann auch experimentell bestimmt werden, indem mit Hilfe von zwei geeichten GMD der Photonenfluß der XUV Strahlung vor und hinter der Beamline bestimmt wird. Für $h\nu_{\text{XUV}} = 90$ eV ist in der 0. Ordnung der PG2 für das 200 Linien/mm Gitter die Transmission bestimmt worden zu $\sim 5\%$ (bei $\alpha = 84^\circ$), $\sim 17\%$ (bei $\alpha = 86^\circ$) und $\sim 24\%$ (bei $\alpha = 87^\circ$) [71]. Bis auf wenige Ausnahmen ist die berechnete Transmission systematisch größer als die gemessene. Dies kann einem in der Simulation nicht zu berücksichtigen, partiellen Verlust des Strahls in dem Monochromator zugeschrieben werden.

Für höhere Beugungsordnungen nimmt die Transmission der Beamline deutlich ab, wie Abbildung 3.13 zeigt. Hier ist die simulierte Transmission für das Beugungsgitter mit 200 Linien/mm für zwei verschiedene Einfallswinkel α als Funktion der Beugungsordnung n aufgetragen. Die simulierten Werte zeigen in guter Näherung eine $1/n^2$ Abhängigkeit, nur die Beugungsordnung $n=2$ ist gegenüber dieser Näherung stark unterdrückt. Diese Tatsache ist auch experimentell bestätigt worden [71].

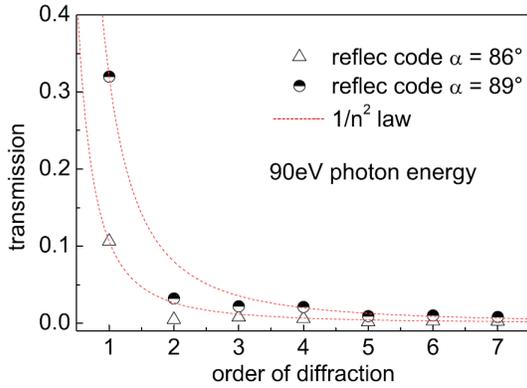


Abbildung 3.13: Transmission der Beamline PG2 als Funktion der Beugungsordnung n beim Beugungsgitter mit 200 Linien/mm für zwei verschiedene Einfallswinkel α . Die Dreiecke und Punkte geben simulierte Werte an, die gestrichelte rote Linie zeigt für beide Einfallswinkel ein $1/n^2$ Gesetz (aus [71]).

3.2 Das NIR Lasersystem

Zur Durchführung von zeitaufgelösten Zwei-Farben Pump-Probe Experimenten wird eine Strahlungsquelle benötigt, deren ultrakurze Pulse zeitlich zu den XUV Pulsen von FLASH synchronisiert sind. Zu diesem Zweck befindet sich ein Lasersystem in einem klimatisierten Laserlabor in der Experimentierhalle von FLASH [Abbildung 3.5]. Seine ultrakurzen NIR Pulse werden in optischen Beamlines aus dem Laserlabor an die verschiedenen Messplätze geführt. In der vorliegenden Arbeit werden die NIR Pulse für die Erzeugung von Kreuzkorrelationssignalen zur Bestimmung der relativen Ankunftszeit der FLASH Pulse eingesetzt. Daher wird das NIR Lasersystem im Folgenden genauer beschrieben.

Aufbau und Strahlerzeugung

Abbildung 3.14 zeigt schematisch den Aufbau des NIR Lasersystems. Zur Erzeugung der NIR Pulse ($\lambda_{\text{nir}} = 800 \text{ nm}$) wird ein Ti:Sa Oszillator benutzt. Er wird optisch gepumpt bei 532 nm und mit einer Leistung von $\geq 10 \text{ W}$ (Verdi-V10, Coherent). Ti:Al₂O₃ (Titan-Saphir) weist ein breites Verstärkungsprofil auf. In diesem Lasermedium ist daher eine effektive Form der Modenkopplung, die **Kerr-Linsen-Modenkopplung**, möglich [72]. Damit können Pulse mit Pulsdauern bis hinunter zu 10 fs erzeugt werden [73].

Im konkreten Fall haben die NIR Pulse aus dem Oszillator eine Pulsdauer von $\leq 100 \text{ fs}$, aber nur moderate Pulsenergie von $< 3 \text{ nJ/Puls}$. Diese Pulse werden nach dem OPCPA (Optical Parametric Chirped Pulse Amplification) Verfahren [75] verstärkt. Das Verfahren beruht auf der **optisch parametrischen Verstärkung** (OPA)[76], d.h. der Verstärkung einer Signalwelle durch eine zusätzlich eingestrahlte Pumpwelle kürzerer Wellenlänge in einen optisch nichtlinearen Kristall. Der nichtlineare Prozess führt zu einem exponentiellen Wachstum der Signalwelle entlang des Kristalls [77]. Üblicherweise ist die Verstärkungsbandbreite für einen OPA Prozess deutlich größer als bei regenerativer Verstärkung [78], so dass der Prozess deutlich weniger durch das sogenannte "gain narrowing" (d.h. Reduzierung der Bandbreite des ultrakurzen Laserpulses während der Verstärkung) beeinflusst ist [79]. Die optisch parametrische Verstärkung zeichnet sich außerdem dadurch aus, dass keine Energie im Kristall gespeichert wird und das Verfahren somit keinen störenden Temperatureinflüssen unterworfen ist.

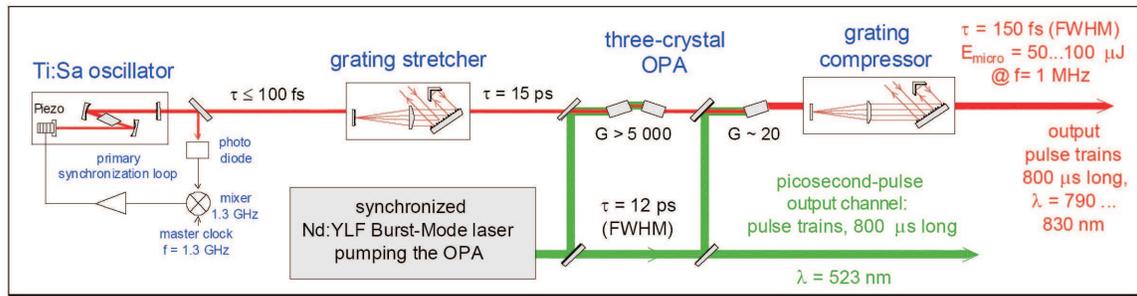


Abbildung 3.14: Schematische Darstellung des NIR Lasersystemaufbaus. Ein Ti:Sa Oszillator erzeugt ultrakurze aber schwache NIR Pulse. Nach dem OPCPA Verfahren werden diese Pulse zunächst zeitlich verlängert und anschliessend verstärkt. Die für die Verstärkung notwendigen Pump photons stammen von einem zeitlich synchronisierten Nd:YLF Lasersystem. Nach dem Verstärkung werden die NIR Pulse wieder zeitlich komprimiert und zum Messplatz geleitet (aus [74]).

Die Pump photons für die optisch parametrische Verstärkung stammen von einem Nd:YLF (Neodym-dotiertes Yttrium-Lithium Fluorid) Lasersystem [51]. Nd:YLF wird als aktives Lasermaterial gewählt, weil es sich effizient mit Photodioden optisch pumpen lässt, eine große Verstärkung pro Umlauf besitzt und nur ein schwaches sogenanntes "thermal lensing" zeigt [80], so dass das zeitliche Profil der Pulse über den Pulszug konstant bleibt. Die kurzen Pump pulses ($\tau_p = 12$ ps (FWHM), $E_p \approx 600 \mu\text{J}/\text{Puls}$, $\lambda_p = 532$ nm) werden zeitlich zu den NIR Pulsen des Ti:Sa Oszillators synchronisiert. Für eine effiziente Energieextraktion bei der optisch parametrischen Verstärkung müssen die Pulslängen von Signal- und Pump pulse ähnlich groß sein [79]. Daher werden die Signalpulse bei $\lambda_{\text{nir}} = 800$ nm durch einen Stretcher, bestehend aus einer Linse und einem Gitter mit 1200 Linien/mm, auf 10 ps verlängert.

Die optisch parametrische Verstärkung findet in drei nichtlinearen LBO (Lithium Triborat, LiB_3O_5) Kristallen statt. Zwei der Kristalle dienen als Vorverstärker und haben eine hohe Verstärkung von ≥ 5000 . Der dritte LBO Kristall dient als Power-Verstärker. Er liefert zwar nur eine relativ geringe Verstärkung von ~ 20 , dafür aber eine hohe Energieextraktionseffizienz. Nach erfolgter Verstärkung werden die Pulse mit Hilfe eines Kompressors, der von der Bauart identisch mit dem Stretcher ist, auf eine Pulslänge von $\tau_{\text{nir}} \approx 120$ fs komprimiert.

Die ausgekoppelten Pulse haben die selbe Pulsstruktur wie die XUV Strahlung von FLASH [Abbildung 3.6]. Die Pulsenergie eines Mikropulses beträgt typischerweise $E_{\text{nir}} \geq 15 \mu\text{J}$.

Spektrum der Strahlung

Bedingt durch die Charakteristik der Signalpulse des Ti:Sa-Oszillators ist die Strahlung durchstimmbare von $\lambda = 790 - 830$ nm (Abbildung 3.15). Die Spektrum hat eine gaußförmiges Profil mit einer spektralen Breite von typischerweise 10-15 nm.

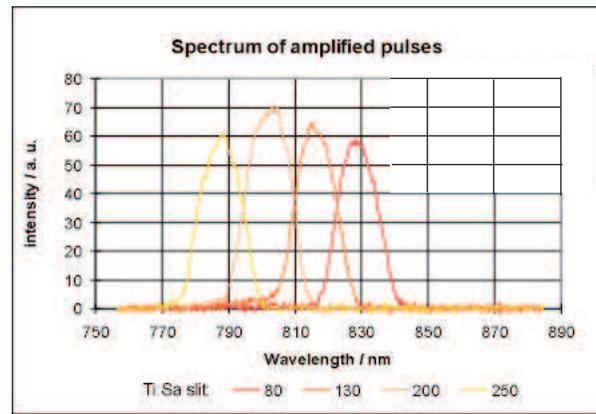


Abbildung 3.15: Spektren der verstärkten ultrakurzen Pulse des NIR Lasersystems (aus [81]).

Räumliches Profil

Wie das Spektrum ist auch das räumliche Strahlprofil näherungsweise gaußförmig (Abbildung 3.16). Beim Austritt aus dem Fensterflansch der optischen Beamline hat das Strahlprofil eine Halbwertsbreite von typischerweise 10 bis 20 mm.

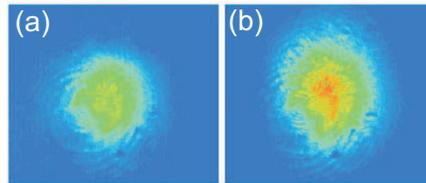


Abbildung 3.16: Strahlprofil eines Signalpulses aus dem Ti:Sa-Oszillator (a) und eines verstärkten OPA Pulses (b) (aus [81]).

Dispersion und Selbstphasenmodulation

Man nehme an, ein ultrakurzer Puls sei bandbreitebegrenzt und habe die Pulsdauer τ . Dieser Puls durchlaufe ein dispersives Medium mit dem komplexen Brechungsindex $n_1(\omega) = n'_1(\omega) - i\gamma_1(\omega)$. Der Imaginärteil $\gamma_1(\omega)$ gibt die Absorption der einfallenden elektromagnetischen Welle an. Dagegen bewirkt der Realteil $n'_1(\omega)$, dass die Kreiswellenzahl $k(\omega) = |\vec{k}| = n_1(\omega) \cdot \omega / c$ ($c = \text{Lichtgeschwindigkeit}$), die Phasengeschwindigkeit $v_p = (\omega / k)$ und die Gruppengeschwindigkeit $v_g = (d\omega / dk)$ Funktionen der Frequenz ω sind. Es kommt zu einer Dispersion der Gruppengeschwindigkeit ("Group Velocity Dispersion- **GVD**). Die verschiedenen Frequenzanteile innerhalb der Bandbreite des kurzen Pulses bewegen sich dann mit verschiedenen Geschwindigkeiten durch das Medium. Qualitativ kann bei einem Durchlaufen des ultrakurzen Pulses durch ein Medium mit Brechungsindex $n_1(\omega)$ und der Länge L die Dispersion definiert werden als Pulsverbreiterung/Einheitsbandbreite [82]:

$$\frac{\Delta\tau}{\Delta\omega} = L \frac{d^2k}{d\omega^2}. \quad (3.5)$$

Dabei spricht man für $d^2k/d\omega^2 > 0$ von **normaler** und für $d^2k/d\omega^2 < 0$ von **anomaler** Dispersion. Während die GVD keinen Einfluss auf das spektrale Profil des Pulses hat, führt es zu einer Verbreiterung des zeitlichen Profils. Der Puls ist folglich nicht mehr bandbreitebegrenzt. Konkret hat ein Puls nach Durchqueren des Mediums der Länge L eine Pulsdauer von [83]

$$\tau' = \tau \sqrt{1 + (\tau_c/\tau)^4} \quad (3.6)$$

mit der kritischen Pulsbreite $\tau_c = (2)^{5/4} \sqrt{(L/v_g^2)(\partial v_g/\partial\omega)}$. Nach Gleichung (3.6) ist die Pulsverbreiterung bedeutend für sehr kurze Pulse mit $\tau \ll \tau_c$. Die Dispersion wird ausgenutzt bei der Pulskomprimierung mit Hilfe von Beugungsgittern [84].

Wird Strahlung hoher Intensität $I(t)$ auf ein dispersives Medium eingestrahlt, so spielt neben dem üblichen linearen Anteil $n_1(\omega)$ des Brechungsindex auch ein nichtlinearer Anteil eine Rolle (optischer Kerr-Effekt):

$$n(\omega, I) = n_1(\omega) + n_2(\omega) \cdot I(t). \quad (3.7)$$

Aufgrund der intensitätsabhängigen Variation des Brechungsindex kommt es zu einer Phasenmodulation der eingestrahnten Lichtwellen in dem Medium [85]; man spricht von **Selbstphasenmodulation**. Aufgrund dessen erhält ein kurzer Puls bei Durchlaufen des Medium der Länge L ein zeitabhängiges Phasenprofil, was zu einer lokalen Änderung der Frequenz führt [82]:

$$\frac{d}{dt} \Delta\phi(t) = -n_2 \frac{2\pi}{\lambda} L \frac{dI(t)}{dt} = \delta\omega(t). \quad (3.8)$$

Folglich werden einige Frequenzanteile des ultrakurzen Pulses zu neuen Frequenzen verschoben, wodurch die spektrale Verteilung verbreitert wird. Dagegen tritt für den Fall der reinen Selbstphasenmodulation ohne Berücksichtigung der vom linearen Anteil des Brechungsindex herrührenden GVD keine Änderung des zeitlichen Pulsprofils auf.

Zeitliche Synchronisation der XUV Pulse von FLASH und der NIR Pulse

Voraussetzung für zeitaufgelöste Pump-Probe Experimente mit den XUV Pulsen von FLASH und den NIR Pulsen des verstärkten Ti:Sa Lasersystems ist eine zeitliche Synchronisation der beiden unabhängigen Strahlungsquellen und die Möglichkeit einer kontrollierten Variation des zeitlichen Delays Δt der beiden Pulse auf der Probe. Für Letzteres ist eine **optische Delayline** im Laserlabor integriert [18]. Mit einer Schrittgeschwindigkeit bis hinunter zu 0,05 ps/s kann mit ihr die Ankunftszeit der NIR Pulse variiert werden.

Zusätzlich ist die Delayline mit einem Polarisator und einer $\lambda/4$ Platte ausgestattet. Damit kann die gewünschte Polarisation der ausgekoppelten NIR Strahlung eingestellt werden.

Für die zeitliche Synchronisation stellt ein Kristalloszillator stabile Frequenzen bei 27 MHz, 81 MHz, 108 MHz und 1,3 GHz zur Verfügung. Die Referenzfrequenz von 1,3 GHz steuert den Photoinjektor zur Erzeugung der Strahlung von FLASH. Die Referenzfrequenzen werden über ein 300 m langes, temperaturstabilisiertes Kabel vom Kristalloszillator in das Laserlabor zum Ti:Sa Oszillator und zum Nd:YLF Pumplaser geliefert. Die Frequenz von 108 MHz entspricht der Repetitionsrate des Ti:Sa Oszillators. Mit einer schnellen Photodiode wird diese Repetitionsrate gemessen und ständig mit der entsprechenden Referenzfrequenz verglichen. Das geschieht mit einem Frequenzmischer, der die Phasendifferenz $\Delta\phi$ der beiden Signale misst und bei Abweichung von der Synchronisation ein elektronisches Signal an ein Piezoelement im Resonator des Ti:Sa Oszillators weitergibt [86]. Über die Referenzfrequenzen werden auch die Lichtmodulatoren im Oszillator des Nd:YLF Pumplaser für den OPA Prozess und des Nd:YLF Photokathodenlasers gesteuert. Insgesamt gelingt damit auf elektronischem Wege eine zeitliche Synchronisation der drei Lasersysteme [87]. Der verbleibende zeitliche Jitter liegt in der Größenordnung von nur noch ~ 20 fs [88].

Jedoch tritt ein zeitlicher Jitter für die XUV Strahlung von FLASH auf [Kapitel 2]. Die daraus resultierenden Ankunftszeitfluktuationen Δt_j der XUV Pulse relativ zu den NIR Pulsen verhindern eine absolute Synchronisation der beiden Strahlungsquellen!

3.3 Dokumentierte Messmethoden des zeitlichen Jitters einer XUV Quelle

Die Auswertung zeitaufgelöster Zwei-Farben Pump-Probe Messungen mit der XUV Strahlung eines FEL erfordert die Messung der relativen Ankunftszeit der Pulse relativ zu den Pulsen der zeitlich zum FEL synchronisierten Strahlungsquelle. In diesem Kapitel werden mehrere dafür einsetzbare Verfahren mit ihren Vor- und Nachteilen vorgestellt.

3.3.1 Die Streackkamera

Bei einer Streackkamera erhält man die zeitliche Information über einen einfallenden ultrakurzen Lichtpuls durch die räumliche Verteilung eines durch diesen Puls erzeugten 2D Photoelektronenbildes [89]. Das allgemeine Wirkprinzip einer Streackkamera kann Abbildung 3.17 a) entnommen werden: der sich in y -Richtung ausbreitende, zeitlich zu charakterisierende Puls mit dem Intensitätsprofil $I(t)$ tritt durch einen waagerechten Spalt. Durch ein optisches System wird auf einer Photokathode ein Abbild dieses Spaltes erzeugt. Der Puls löst über den Photoeffekt Elektronen aus der Kathode aus, und seine zeitliche Struktur spiegelt sich in dem emittierten Photoelektronenpuls $N_E(t)$ wider. Die Elektronen werden unmittelbar nach ihrer Erzeugung durch ein elektrisches Feld in y -Richtung auf

hohe Geschwindigkeiten beschleunigt. Mit einem abbildenden System für Elektronen wird nach Signalverstärkung eine orts aufgelöste Abbildung auf einem Leuchtschirm erzielt.

Vor ihrem Auftreffen auf den Leuchtschirm können die Photoelektronen durch einen Kondensator senkrecht zu ihrer Ausbreitungsrichtung entlang der z Achse abgelenkt werden. Wird an die Kondensatorplatten eine Sägezahnspannung angelegt, die durch ein Triggersignal gestartet wird [Abbildung 3.17 b)], so hängt die Komponente $z_s(t)$ des Auftreffpunktes auf dem Schirm vom Zeitpunkt t des Eintretens in den Kondensator ab. Daher gibt die räumliche Verteilung des Signals auf dem Leuchtschirm die Intensitätsverteilung $I(t)$ des einfallenden Lichtpulses wider. Zum anderen kann die relative Ankunftszeitdifferenz zweier Pulse bestimmt werden. Treffen nämlich zwei aufeinanderfolgende Lichtpulse gegenüber dem Triggersignal bzw. den Pulsen einer Referenzquelle in einem relativen Zeitabstand von $\Delta t'$ auf die Streackkamera, so wandert das Fluoreszenzsignal entlang z auf dem Schirm. Aus dem Abstand Δz_s der Signalschwerpunkte lässt sich $\Delta t'$ bestimmen.

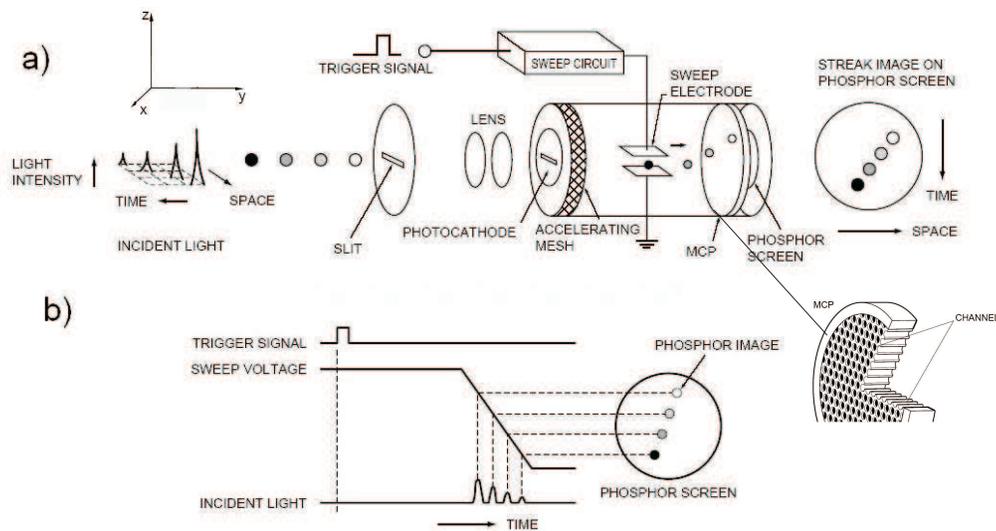


Abbildung 3.17: a) Wirkungsprinzip der Streackkamera. Vier Pulse unterschiedlicher Intensität (dargestellt durch verschiedene Graustufen), die örtlich und zeitlich voneinander getrennt sind, erzeugen an verschiedenen Stellen des Leuchtschirmes ein Signal. Eine Mikrokanalplatte (MCP) wird zur Signalverstärkung eingesetzt. b) Durch die an die Ablenkplatten angelegte Sägezahnspannung kann eine zeitliche Charakterisierung der ultrakurzen Lichtpulse vorgenommen werden, da die vertikale Lage des Auftreffpunktes auf dem Leuchtschirm ein Maß für den Zeitpunkt des Eintretens des Elektronenpulses in den Ablenkkondensator ist (aus [4]).

Die Zeitauflösung der Streackkamera ist bestimmt durch die Halbwertsbreite des Fluoreszenzsignals auf dem Leuchtschirm. Bei fester Pulsform und Pulsdauer des einfallenden Pulses ist diese Größe bestimmt durch die örtliche Auflösung des abbildenden Systems für die Elektronen und die Breite der Energieverteilung ΔE_{kin} . Diese Größe wiederum hängt entscheidend vom Zeitintervall Δt_m ab, in welchem sich die Elektronen zwischen Photokathode und beschleunigendem Netz befinden, da es zu Coulomb-Wechselwirkungen

zwischen den hier noch langsamen Photoelektronen und damit einer Verbreiterung von ΔE_{kin} kommt [90]. Damit die Zeit Δt_m möglichst klein wird, muss $E_0 \gg \Delta E_{\text{kin}}$ gelten, wobei E_0 für die kinetische Energie der Elektronen steht. Mit einer gepulsten Photokathode und dem damit verbundenen höheren Extraktionsfeld kann eine Zeitauflösung unter 1 ps realisiert werden [91]. Heutzutage sind Streakkameras mit einer Zeitauflösung von ~ 200 fs kommerziell erhältlich [4]. Aufgrund der in diesem Fall nur geringen Zahl an Photoelektronen ist eine solch hohe Zeitauflösung aber mit einem nur sehr eingeschränkten dynamischen Bereich verbunden.

Streakkamera am FLASH

Eine kommerzielle Streakkamera (Model C5680, Hamamatsu) [4], welche sensitiv im NIR und im gesamten optischen Spektralbereich ist, wird routinemäßig zur Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH bezogen auf die NIR Pulse des Ti:Sa Lasersystems verwendet. Etwa 0,1 % der NIR Strahlung wird zur Streakkamera transportiert. Als Zeitmarker für die Strahlung von FLASH wird die Dipolstrahlung verwendet, welche bei der Umlenkung der beschleunigten Elektronen nach der Strahlerzeugung in den Beamdump emittiert wird. Diese Dipolstrahlung wird über eine 55 m lange separate Beamlinie zur Streakkamera transportiert [Abbildung 3.5] und dort auf deren Eintrittsspalt fokussiert. Beim Transport der Strahlung tritt Dispersion auf und verursacht eine zeitliche Verbreiterung der ursprünglich etwa 100 fs langen Pulses auf etwa 10 ps. Abbildung 3.18 a) zeigt die Photoelektronensignale erzeugt durch die NIR Laserpulse bzw. die Dipolpulse.

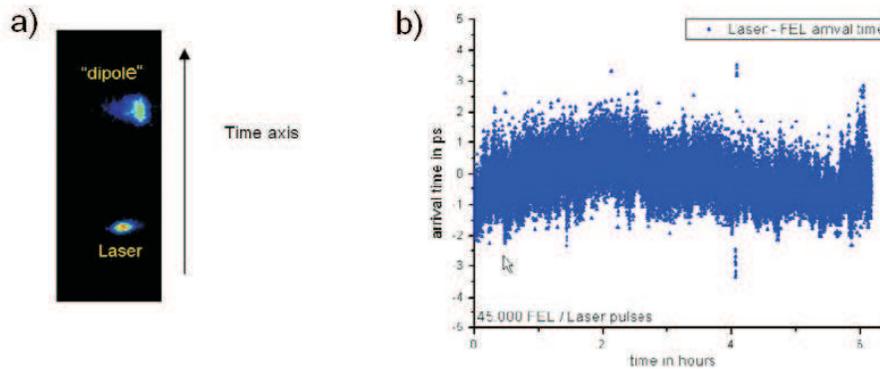


Abbildung 3.18: a) Photoelektronensignal erzeugt durch NIR Laserpulse (oben) und Dipolstrahlungspulse (unten) detektiert mit einer Streakkamera. Die Dipolstrahlung stellt einen Zeitmarker für die Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH dar. Die Zeitachse verläuft vertikal, das Zeitfenster ist ~ 150 ps. b) Abweichung der Ankunftszeit der Dipolpulse bezüglich der NIR Laserpulse gemessen über 6 Stunden. Jeder einzelne Punkt ist ermittelt worden über die Auswertung einer Messung aus a); der Nullpunkt der Skala wird willkürlich gewählt (aus [92]).

Die Information über die relative Ankunftszeit der beiden Pulse ist in dem örtlichen Abstand der Schwerpunkte beider Signale entlang der vertikalen Zeitachse enthalten. An die gemessenen Daten wird eine Gaußfunktion angefitet und für beide Pulse die Peakposition

bestimmt. Die Genauigkeit dieser Bestimmung liegt bei ~ 300 fs, was der Zeitauflösung der Methode entspricht [92]. Die auf diese Weise von Makropuls zu Makropuls bestimmte Differenz in der Ankunftszeit beider Pulse gemessen über mehrere Stunden ist in Abbildung 3.18 b) dargestellt.

Inzwischen ist eine Röntgen Streakkamera, wie sie zukünftig beispielsweise für den XFEL benötigt wird, erfolgreich getestet worden [93]. Obwohl Modelle mit Repetitionsraten von ≥ 100 MHz kommerziell erhältlich sind [4], ist im aktuellen Aufbau am FLASH die Detektionsrate limitiert durch die Ausleserate der Kamera, die den Leuchtschirm überwacht. Daher gibt die Streakkamera keinerlei Auskunft über die relative Ankunftszeit der einzelnen Mikropulse innerhalb der Makropulse von FLASH.

3.3.2 Timing Electro-Optical Sampling

Das **Electro-Optical Sampling** (EOS) [94] beruht auf der Induzierung einer vorübergehenden Doppelbrechung in einem optisch nichtlinearen Kristall durch das elektrische Feld eines relativistischen Elektronenpaketes.

Das Prinzip des EOS kann Abbildung 3.19 entnommen werden: auf relativistische Energie beschleunigte Elektronenpakete passieren einen optisch nichtlinearen Kristall. Im Laborsystem besitzt das Coulombfeld der Ladungen nur eine Komponente transversal zur Ausbreitungsrichtung der Elektronenpakete. Diese Transversalkomponente verursacht in dem nahegelegenen Kristall eine vorübergehende Doppelbrechung für die Zeit, in der sich das Elektronenpaket in unmittelbarer Nähe zum Kristall befindet [95]. Für einfallendes linear polarisiertes Licht, welches während dieser vorübergehenden Doppelbrechung den Kristall durchläuft, wird die Polarisationsrichtung gedreht (**Pockels Effekt**). Durchläuft der ultrakurze Laserpuls den Kristall unter einem Winkel θ bezüglich der Ausbreitungsrichtung der Elektronenpakete, so erfahren verschiedene Punkte entlang des transversalen Pulsprofils je nach relativer Lage des Elektronenpulses verschieden starke Doppelbrechung. Lässt man nur den Anteil der Strahlung mit gedrehter Polarisation einen Polarisator passieren, so erhält man auf einem Detektor ein orts aufgelöstes Bild, in welchem die zeitliche Struktur des Elektronenpulses imprägniert ist [Abbildung 3.19 c)]. Da die Stärke der vorübergehenden Doppelbrechung proportional zur Dichteverteilung im Elektronenpuls ist, kann die Methode zur Charakterisierung des Elektronenpulses benutzt werden [96]. Andererseits ist die Lage des Signalschwerpunkts davon abhängig, zu welcher Zeit sich der Elektronenpuls und der Laserpuls relativ zueinander in unmittelbarer Nähe zum Kristall aufgehalten haben. Die gemessene Ortskoordinate x kann daher in eine Zeitkoordinate t umgerechnet werden nach der Formel [97]:

$$t = x \tan \theta / c. \quad (3.9)$$

Eine Verschiebung des Signalschwerpunkts um Δx gegenüber einem willkürlich gewählten Referenzpunkt x_0 resultiert aus einer Differenz der Ankunftszeiten von Elektronen- und

Laserpuls von Δt am Kristall. Mit diesem Verfahren ist die relative Ankunftszeit der Pulse von SLAC mit einer Genauigkeit von ~ 60 fs bestimmt worden [98].

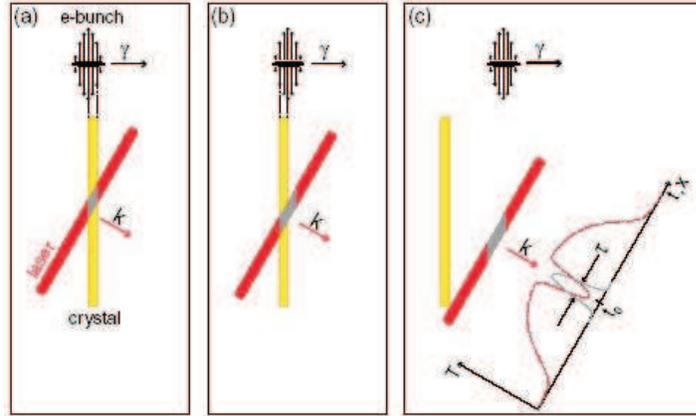


Abbildung 3.19: Schematische Darstellung des Electro-Optical Samplings: ein ultrakurzer Laserpuls (rot) durchläuft einen optisch nichtlinearen Kristall (gelb) unter einem Winkel θ bezüglich der Flächennormalen. Ein senkrecht zur Ausbreitungsrichtung kontrahierter relativistischer Elektronenpuls (schwarze Ellipse) passiert den Kristall in unmittelbarer Nähe und sorgt für eine temporäre Doppelbrechung. a) Die Vorderseite des Elektronenpulses wechselwirkt mit dem Laserpuls im Kristall. b) Die Rückseite des Elektronenpulses wechselwirkt mit dem Laserpuls im Kristall. c) Der Elektronenpuls hat den Kristall passiert und seine zeitliche Struktur ist imprägniert auf das gemessene Polarisationsprofil. Nur der Anteil gedrehter Polarisation wird durch den Polarisationsfilter durchgelassen (grauer Peak). Der Schwerpunkt des Signals liegt bei t_0 und seine Lage ist abhängig von der relativen Ankunftszeit von Laser- und Elektronenpuls am Kristall. Die zeitliche Breite τ stellt eine Faltung aus der Pulsdauer des Elektronenpulses, der Antwortfunktion des Kristalls und der Pulsdauer des abtastenden ultrakurzen Laserpulses dar (aus [98]).

Electro-Optical Sampling am FLASH

Der Aufbau zur Messung der relativen Ankunftszeit der Elektronenpakete von FLASH wird als **Timing Electro-Optical Sampling** (TEO) bezeichnet und befindet sich im Beschleunigungstunnel [99]. Die NIR Pulse werden mit einer 160 m langen "single mode" Glasfaser aus dem Laserlabor zum TEO Aufbau gebracht. Bei diesem Transport wird die Polarisation der NIR Strahlung nicht beeinflusst. Die in der Glasfaser auftretende Pulsverlängerung aufgrund der GVD kann mit einem Gitterkompressor und einem Glasstab aus geeignetem Material kompensiert werden [100]. Zusätzlich wird ein genetischer Lernalgorithmus eingesetzt [101]. Nach der gesamten Dispersionskompensation haben die NIR Pulse eine Pulsdauer von $\tau_{\text{nir}} \sim 140$ fs (FWHM) [99]. Als TEO Kristall verwendet man Galliumphosphid (GaP). Abbildung 3.20 a) zeigt eine typische Messung. Entlang der x-Achse wird ein Intensitätsplot aufgenommen. Als Marker für den Ort wird die ansteigende Flanke des Signal benutzt. Nach Gleichung (3.9) entspricht diese Orts- einer Zeitkoordinate. Die Zeitaufösung dieser Messmethode wird zu ~ 50 fs bestimmt [99]. Abbildung 3.20

b) zeigt eine Messung der relativen Ankunftszeit der Elektronenpakete im Vergleich zu den NIR Pulsen am GaP Kristall über 1 Stunde. Der RMS Wert des zeitlichen Jitters beträgt ~ 400 fs.

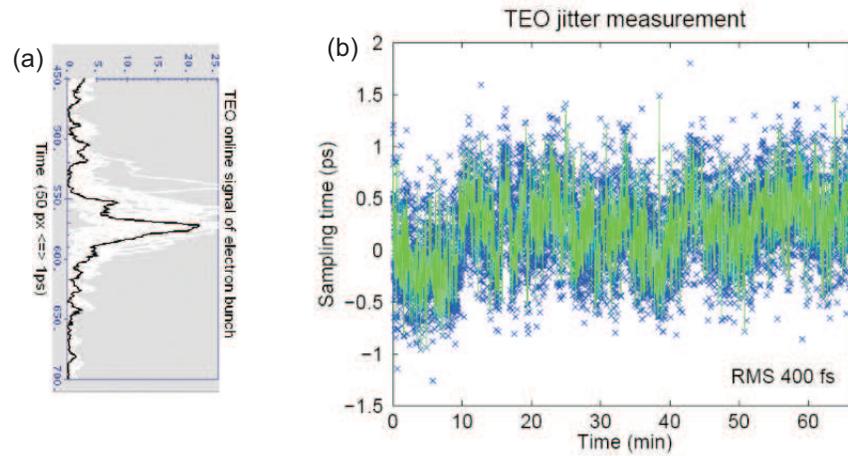


Abbildung 3.20: a) Typisches TEO Signal im Einzelschuss. Gezeigt ist ein Intensitätsplot entlang der Zeitachse. Der Zeitmarker wird erhalten durch einen Fit an die ansteigende Flanke des Signals (aus [102]). b) Langzeitmessung der relativen Ankunftszeit der Elektronenpakete von FLASH im Vergleich zu den NIR Pulsen am GaP Kristall. Der Nullpunkt der Skala wird willkürlich gewählt. Die blauen Kreuze stellen Schuss für Schuss die relative Ankunftszeit des ersten Pulses im Makropuls dar, erhalten aus dem Fit an Signale wie in a). Die grüne Kurve ist eine geglättete Kurve der Messpunkte (aus [99]).

Das TEO Verfahren zur Bestimmung der relativen Ankunftszeit der Elektronenpakete ist eine nicht invasive Methode mit hoher Zeitauflösung. Die Bewegung der Elektronen, die die XUV Strahlung erzeugen, wird trotz der Nähe zum TEO Kristall nicht beeinflusst und für die NIR Laserpulse reicht die Auskopplung eines geringen Teils der Strahlung aus. Außerdem ist die Methode bereits erfolgreich im Rahmen eines realen Pump-Probe Experiments unter Verwendung der ultrakurzen Röntgenpulse von SPPS am SLAC eingesetzt worden [103]. Der Nachteil des Verfahrens ist, dass die Jittermessung nicht am Ort des eigentlichen Pump-Probe Experimentes, sondern in deutlichem Abstand dazu im Beschleunigungstunnel stattfindet. Daher liefert die Methode keinerlei Aussagen über die Beiträge der eigentlichen Strahlerzeugung im Undulator und der Beamline zum zeitlichen Jitter (Jitterquellen 2 und 3 in Abbildung 2.5).

3.3.3 Röntgenreflektion an nicht-thermisch schmelzenden Festkörpern

Die Methode der Röntgenreflektion an nicht-thermisch schmelzenden Festkörpern basiert auf einer Änderung der Intensität der Bragg-Reflexionen für einen XUV oder Röntgenpuls durch einen zeitlich verzögert eingestrahlt, ultrakurzen, intensiven Laserpuls. Durch

diesen werden die Atome in einem Halbleiterkristall in Bewegung versetzt und es kommt zu einer Änderung der interatomaren Potentiale [104]. Dadurch wird ein ultraschnelles Schmelzen des Halbleitermaterials verursacht, welches auf einer Zeitskala von mehreren hundert fs stattfindet [105]. Diese Zeit für das Schmelzen ist deutlich kürzer als die Gleichgewichtszeit, die bis zur Einstellung des thermischen Gleichgewichts vergeht und in der Größenordnung von ein paar ps liegt [106]. Daher spricht man von **nicht-thermischem Schmelzen** (non-thermal melting).

Ein Röntgenpuls wird unter einem Bragg-Winkel θ_B [107] auf einen Halbleiterkristall eingestrahlt. Trifft er zeitlich kurz nach einem NIR Laserpuls ($\tau_{\text{nir}} = 120$ fs) auf den Kristall, so nimmt die Beugungsintensität aufgrund der induzierten Konformationsänderung auf einer schnellen Zeitskala (< 1 ps) ab [105]. Eine solche zeitaufgelöste Röntgenreflektivitätsmessung kann einerseits dazu dienen, Zeitskalen für die laserinduzierte atomare Umordnung zu bestimmen. Das ist in der Vergangenheit für InSb Kristalle [108], dünne organische Filme [109] und dünne Germanium Filme auf Silizium-Substraten [110] geschehen. Die zweite Anwendungsmöglichkeit des Experiments ist die Bestimmung der relativen Ankunftszeit des Röntgenpulses im Vergleich zum NIR Puls. Experimentell wird der NIR Puls (Pumpimpuls) dazu üblicherweise unter einem steileren Einfallswinkel als θ_B eingestrahlt [Abbildung 3.21 (b)]. Dann ist für verschiedene Punkte auf der Probe die Ankunftszeitdifferenz Δt der beiden Pulse relativ zueinander verschieden. Die zeitliche Information für Δt ist enthalten in der örtlichen Koordinate x entlang der Probe. Abbildung 3.21 (a) zeigt Einzelschussaufnahmen der gebeugten Röntgenintensität [111].

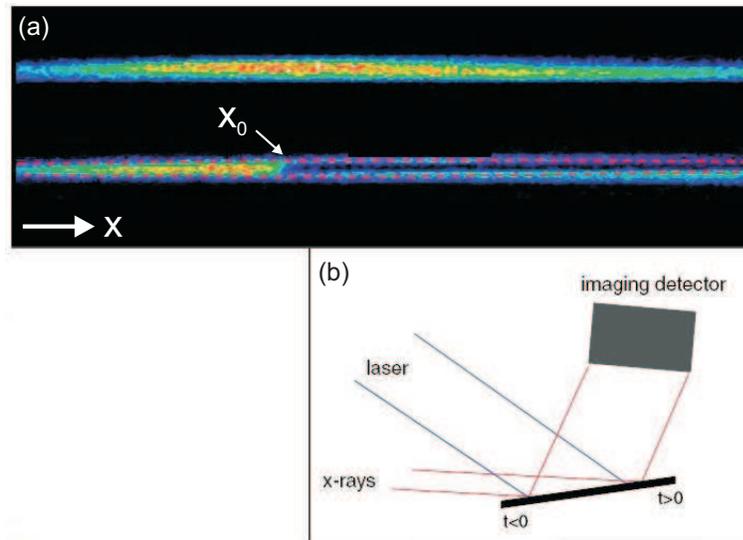


Abbildung 3.21: (a) Einzelschussaufnahmen von reflektierten Röntgenstrahlen an einer InSb Probe. Das obere der beiden Bilder zeigt die ungestörte Bragg-Reflexion; das untere Bild zeigt dieselbe Messung, wenn zusätzlich ein NIR Laserpuls eingestrahlt wird. An dem Ort mit gleichzeitigem zeitlichen Überlapp (x_0) tritt ein scharfer Abfall in der reflektierten Intensität auf. (b) Geometrie des Experiments (aus [111]).

Als Probe wird ein InSb Kristall verwendet, der ultrakurze Röntgenpuls stammt vom SPPS. Das obere der beiden Bilder zeigt die Bragg-Reflexion der Röntgenstrahlung ohne Störung. Im unteren Bild wurde zusätzlich ein NIR Puls eingestrahlt. Entlang der Ortskoordinate x beobachtet man an einem bestimmten Ort x_0 eine Änderung der Intensität der reflektierten Röntgenstrahlung. Hier liegt zeitlicher Überlapp ($\Delta t = 0$) vor. Für Koordinaten $x < x_0$ (links von der Kante) trifft der Röntgenpuls vor dem NIR Laserpuls ein und man sieht die ungestörte Bragg-Reflexion. Für $x > x_0$ tritt das durch den NIR Puls induzierte nicht-thermische Schmelzen auf und die reflektierte Intensität ist geringer. Die Zeitauflösung des Verfahrens ist vorgegeben durch die Pulslänge des Röntgenpulses und das Auflösungsvermögen des abbildenden Systems und wird für Reflexion an der (111) Ebene zu ≤ 130 fs abgeschätzt [111].

Prinzipiell ist die beschriebene Messmethode dazu geeignet, die relative Ankunftszeit der Pulse einer XUV Quelle relativ zu den NIR Pulsen zu messen. Jedoch findet durch die in dem Festkörper auftretende Konformationsänderung eine dauerhafte lokale Zerstörung der Probe statt. Daher ist die Methode für eine Schuss zu Schuss Diagnostik nicht geeignet. Außerdem ist die Methode invasiv für beide Pulse.

3.3.4 Induzierte Änderung der optischen Reflektivität an GaAs Oberflächen

Das hier vorgestellte Verfahren zur Messung der Ankunftszeit der Pulse einer XUV Quelle ähnelt der Röntgenreflexion an nicht-thermisch schmelzenden Festkörpern [Kapitel 3.3.3]. Auch hier wird die Überlagerung eines XUV und eines Laserpulses auf einem Festkörper vorgenommen. Jedoch ist nicht die Intensität der reflektierten Röntgenstrahlung die Messgröße, sondern die durch den XUV Puls induzierte Änderung der Reflektivität für den Laserpuls. Damit ist in diesem Fall der XUV Puls der Pumpimpuls und der Laserpuls der Probepuls.

Als Target für die Kreuzkorrelation wird undotiertes Gallium Arsenid (**GaAs**) verwendet. Die Absorption von einfallender Strahlung durch den Kristall ist über den Imaginärteil des komplexen Brechungsindex $n_1(\omega) = n'_1(\omega) - i\gamma_1(\omega)$ bestimmt, während in die Reflektivität sowohl Imaginär- als auch Realteil eingehen. Die Reflektivität ist durch folgende Formel gegeben [112]:

$$R(\lambda) = \frac{(n'_1 - 1)^2 + \gamma_1^2}{(n'_1 + 1)^2 + \gamma_1^2}. \quad (3.10)$$

Die physikalische Größe, die die Antwort einer Kristallstruktur auf ein elektrisches Feld beschreibt, ist die **dielektrische Funktion** $\epsilon = \epsilon_1 + i\epsilon_2$. Sie ist mit dem Brechungsindex verknüpft über [107]:

$$\sqrt{\epsilon} = n_1. \quad (3.11)$$

Für Real- und Imaginärteil der dielektrischen Funktion gilt dann:

$$\epsilon_1 = n_1'^2 - \gamma_1^2 \quad , \quad \epsilon_2 = 2n_1'\gamma_1. \quad (3.12)$$

Durch einfallendes Licht im optischen oder NIR Spektralbereich können in Metallen und Halbleitern longitudinale Eigenschwingungen des Elektronengases (Plasmonen) angeregt werden. Dagegen wird das dielektrische Verhalten der Materialien meist durch Interband-Übergänge dominiert [112]. Bei Halbleitern sind das Übergänge vom Valenz- in das Leitungsband, die voneinander durch die Bandlücke E_g getrennt sind.

Abbildung 3.22 (a) zeigt die Bandstruktur von GaAs. Offensichtlich handelt es sich bei GaAs um einen direkten Halbleiter. Die Bandlücke für GaAs ist temperaturabhängig [113] und beträgt bei Zimmertemperatur $E_g \approx 1,4$ eV [114]. Demnach befindet sich bei Raumtemperatur bei $\lambda_{\text{xuv}} = 880$ eine Absorptionskante und im FIR Spektralbereich ist GaAs transparent. Reflektionsmessungen an GaAs Kristallen für Licht im optischen und UV Spektralbereich zeigen [115], dass die Reflektivität $R(\lambda)$ mehrere Maxima besitzt [Abbildung 3.22 (b)]. Diese basieren auf direkten Übergängen aus dem Valenzband in spezielle Energiezustände im Leitungsband.

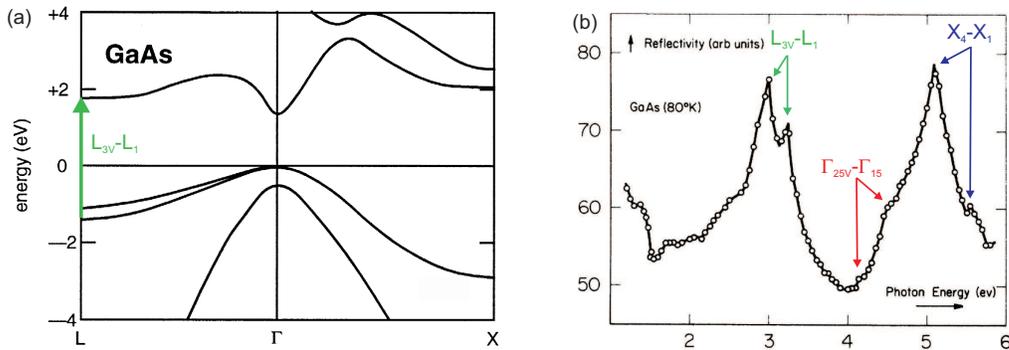


Abbildung 3.22: (a) Bandstruktur von GaAs bei Raumtemperatur. Mit eingezeichnet ist die Anregung $L_{3V} - L_1$ (aus [116]). (b) Reflektivität von GaAs bei 80°K als Funktion der Photonenenergie der einfallenden Strahlung. Die Peaks in der Reflektivität resultieren aus direkten Übergängen vom Valenzband in spezielle Energiezustände im Leitungsband. Die Übergänge sind den verschiedenen Signalpeaks zugeordnet (aus [115]).

In der Vergangenheit ist die zeitliche Entwicklung der dielektrischen Funktion nach der Wechselwirkung einer GaAs Oberfläche mit einem ultrakurzen Puls, welcher sowohl eine Elektronen- wie auch eine Gitterdynamik auslöst, untersucht worden [116]. Im Folgenden wird diskutiert, wie sich die dielektrische Funktion und somit die Reflektivität für einen NIR/optischen Puls zeitabhängig verhält, wenn zusätzlich ein um Δt verzögert einfallender XUV Puls die GaAs Oberfläche anregt. Dazu sind Reflexionsexperimente an GaAs durchgeführt worden, bei denen der XUV Pumpuls von FLASH ($h\nu_{\text{xuv}} \approx 40$ eV) und der reflektierte Probepuls von dem in Kapitel 3.2 vorgestellten Lasersystem stammt [117]. Für

800 nm Strahlung sind nur Interband-Übergänge in der Nähe des Γ -Punktes [Abbildung 3.22 (a)] möglich. Dagegen können bei 400 nm Übergänge mit verschiedenen $|\vec{k}|$ -Werten zwischen den L- und Γ -Punkten auftreten. Insbesondere liegt in der Nähe dieser Photonenenergie aufgrund des Übergangs $L_{3V} - L_1$ ein Maximum vor.

Der Versuchsaufbau des Kreuzkorrelationsexperiments ist schematisch in Abbildung 3.23 zu sehen. Der ultrakurze optische/NIR Puls (400 nm/800 nm) trifft auf eine GaAs(100) Oberfläche und wird unter einem Winkel von 53° reflektiert. Die Intensität der reflektierten Welle wird mit einer schnellen Fotodiode gemessen. Der XUV Puls von FLASH fällt unter einem Winkel von $41,5^\circ$ um Δt zeitverzögert auf die Festkörperoberfläche.

Abbildung 3.23: Versuchsaufbau zur Messung des Einflusses eines XUV Pulses auf das Reflektionsverhalten eines optischen/NIR Laserpulses an einer GaAs Oberfläche (aus [117]).

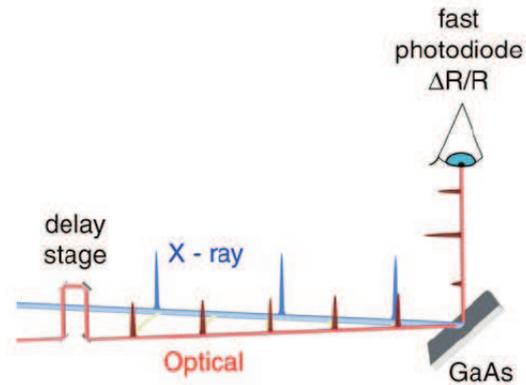


Abbildung 3.24 zeigt die relative Änderung $\Delta R/R = R_{\text{xuv}} - R/R$ der Reflektivität als Funktion von Δt . Dabei ist R die Reflektivität ohne XUV Puls und R_{xuv} die Reflektivität mit XUV Puls. Nach der Absorption der XUV Strahlung nimmt die Reflektivität für die 800 nm Strahlung zunächst schnell ab, worauf es anschließend mit zunehmendem Delay zu einem Anstieg mit $\Delta R/R > 0$ kommt. Danach relaxiert das System und auf einer Zeitskala von mehreren 100 ps, wobei sich die Reflektivität langsam dem Wert $\Delta R/R = 0$ nähert [Abbildung 3.24 a)]. Abbildung 3.24 b) zeigt, dass für 400 nm Strahlung anfänglich ebenfalls eine Abnahme der Reflektivität auftritt, anschliessend aber der Wert $\Delta R/R = 0$ innerhalb von ~ 10 ps erreicht wird, ohne dass es zu $\Delta R/R > 0$ kommt. Der Effekt der XUV induzierten Reflektivitätsänderung ist für 400 nm Strahlung kleiner, wie auch Abbildung 3.25 zeigt. Die Zeitskala für den anfänglichen Abfall der Reflektivität kann anhand von Abbildung 3.24 c) bestimmt werden. Die Messdaten sind hier mit Hilfe des Timing Electro-Optical Sampling [Kapitel 3.3.2] auf den zeitlichen Jitter der XUV Strahlung von FLASH korrigiert worden. Ein Fit (bestehend aus der Faltung zwischen einer exponentiell abfallenden Funktion und einer Gaußfunktion [117]) an die Messdaten liefert eine Halbwertbreite von 160 ± 44 fs. Da $\Delta R/R$ eine Funktion des zeitlichen Delays Δt zwischen Pump- und Probepuls ist und die Änderung auf einer fs Zeitskala stattfindet, kann dieser Effekt zum Aufbau eines Kreuzkorrelators zur Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH benutzt werden.

Dieses Schema hat gegenüber dem nicht-thermischen Schelzen den Vorteil, dass die induzierte dynamische Umordnung in dem Halbleiter vollständig reversibel ist, so lange die

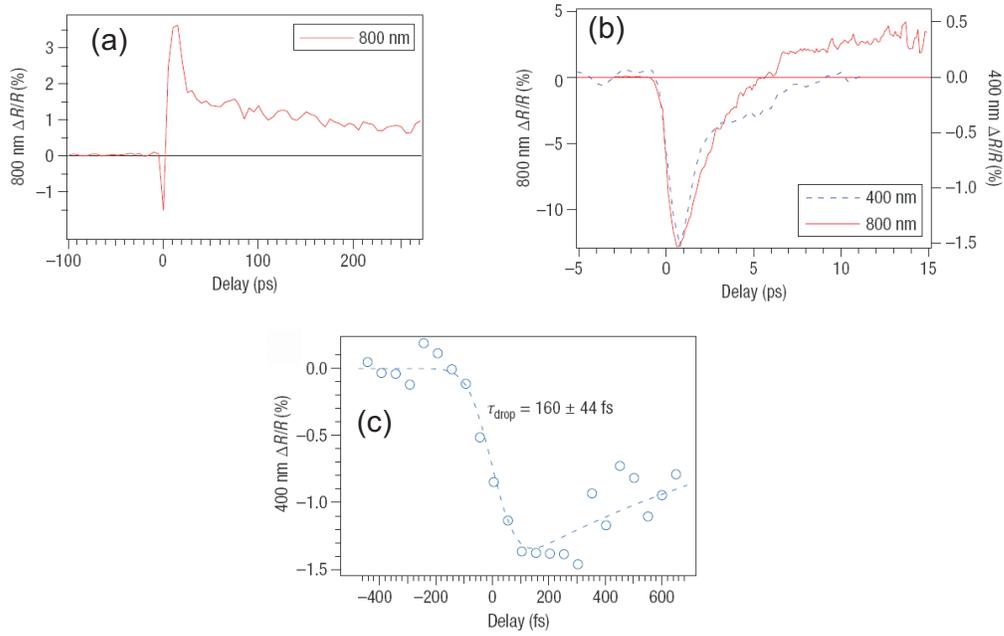


Abbildung 3.24: Durch XUV Pulse induzierte Änderung $\Delta R/R$ der Reflektivität für optische/NIR Strahlung an einer GaAs Oberfläche als Funktion des zeitlichen Delays Δt zwischen beiden Pulsen. Für Delays $\Delta t < 0$ trifft der NIR Puls vor, für $\Delta t > 0$ nach dem XUV Puls auf die Probe. a) Die Funktion $\Delta R/R(\Delta t)$ zeigt einen steilen Abfall mit anschließendem Anstieg auf $\Delta R/R > 0$. Danach kommt es auf einer Zeitskala von mehreren 100 ps zu einer Relaxation des Systems auf $\Delta R/R = 0$. b) Auf einer feineren Zeitskala ist der anfängliche Abfall von $\Delta R/R$ mit anschließender Relaxation des Systems deutlicher zu sehen. Im Vergleich zu 800 nm ist der Effekt bei der 400 nm Strahlung kleiner und die Reflektivität nähert sich innerhalb von ein paar ps dem Wert ohne XUV Strahlung, wobei $\Delta R/R \leq 0$. c) Auf einer noch feineren Zeitskala kann die Breite der abfallenden Flanke von $\Delta R/R$ bestimmt werden. Die Messdaten sind mit Hilfe des Timing Electro-Optical Sampling [Kapitel 3.3.2] auf den zeitlichen Jitter bereinigt worden. Die ermittelte Breite von ~ 160 fs entspricht in etwa der Pulsdauer τ_{nir} (aus [117]).

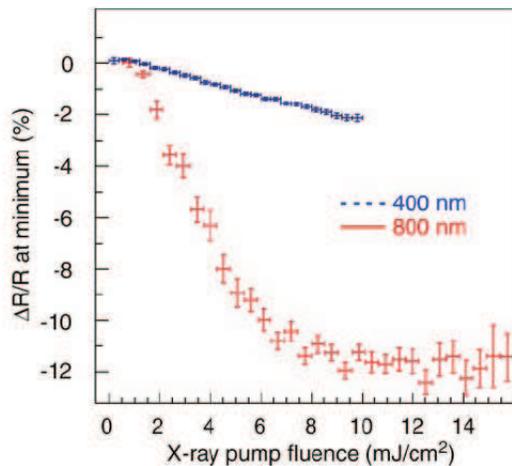


Abbildung 3.25: Minimum von $\Delta R/R$ als Funktion des XUV Flusses. Für die 800 nm Pulse ergibt sich bis 6 mJ/cm^2 ein linearer Zusammenhang, für höhere Flüsse geht die Größe der Reflektivitätsänderung in Sättigung. Für die 400 nm Pulse verhält sich das Signal bis 10 mJ/cm^2 näherungsweise linear, der Effekt ist aber kleiner (aus [117]).

Intensität des XUV Pulses unterhalb der Zerstörschwelle des Kristalls bleibt [118]. Diese liegt für GaAs bei $\sim 50 \text{ mJ/cm}^2$ [119]. Außerdem findet die Relaxation des GaAs Kristalls nach der Störung durch den NIR Puls auf einer ps Zeitskala statt [116]. Somit kann diese Kreuzkorrelationsmethode, vorausgesetzt das Aufnahmesystem ist schnell genug, bei der vollen Repetitionsrate (MHz) der XUV Pulse von FLASH arbeiten und hat das Potential, die relative Ankunftszeit jedes einzelnen Mikropulses innerhalb der Makropulse zu vermessen. Abschätzungen zufolge sollte die Methode anwendbar sein für Photonenenergien bis zu 10 keV [117], so dass sie zukünftig auch am XFEL [30] anwendbar wäre. Ein Nachteil der Methode ist allerdings, dass sie invasiv für beide Pulse ist.

3.4 Edelgase in intensiven Laserfeldern

3.4.1 Anregung und einfache Ionisation von Edelgasatomen in einem linearen Prozess

Unter **Photoanregung** versteht man die resonante Anregung eines Atoms vom Zustand a in einen energetisch höheren Zustand b durch Absorption eines Photon mit $h\nu = E_b - E_a$. Eine Voraussetzung für diesen resonanten Prozess ist die Erfüllung der jeweiligen Auswahlregeln [120]. Die anfängliche Besetzungsdichte $N_{b,0}$ des angeregten Zustands b wird durch spontane Emission im Laufe der Zeit abgebaut gemäß der Formel [121]:

$$N_b(t) = N_{b,0} \cdot e^{-tA_b}. \quad (3.13)$$

Es gilt $A_b = \sum_l A_{bl}$, wobei A_{bl} der Einstein-Koeffizient der spontanen Emission ist und l die Zustände mit Energieeigenwerten E_l angibt, in welchen sich das Atom nach dem Prozess befinden kann. Nach der **mittleren spontanen Lebensdauer** τ_b ist die Besetzungsdichte des Zustands auf $1/e$ des Anfangswertes abgesunken.

Ist $h\nu > IP_1$ (wobei $IP_1 = 1 \cdot \text{Ionisierungspotential}$), so kann die Anregung eines Elektrons in einen freien Zustand positiver Energie im Kontinuum stattfinden. Man spricht von **Photoionisation**. Wird bei diesem Prozess eines der am schwächsten gebundenen Valenzelektronen emittiert, so hat es die kinetische Energie $E_{\text{kin}} = h\nu - IP_1$. Die Wahrscheinlichkeit für einen Ionisationsprozess wird durch den **partiellen Wirkungsquerschnitt** $\sigma^{(1)}$ angegeben. Dieser gibt die Wahrscheinlichkeit für eine Wechselwirkung zwischen dem anfänglich im Zustand a befindlichen Atom (häufig ist das der Grundzustand) und der einfallenden Strahlung an. Der Index kennzeichnet dabei, dass es sich um die Absorption nur eines Photons handelt. Der partielle Wirkungsquerschnitt kann geschrieben werden als [122]:

$$\sigma^{(1)}(a) = \frac{4\pi^2 \alpha a_0^2}{3} \frac{h\nu}{g_a} |M_{ac}|^2, \quad (3.14)$$

wobei α die Feinstrukturkonstante, a_0 den Bohrschen Atomradius und g_a das statistische Gewicht des diskreten Anfangszustands beschreibt. Der partielle Wirkungsquerschnitt wird in der Einheit **Megabarn (Mb)** angegeben, wobei $1 \text{ Mb} = 10^{-22} \text{ m}^2$. Das Matrixelement M_{ac} charakterisiert den Dipolübergang von einem gebundenen Anfangszustand a in einen freien Endzustand c und ist durch folgende Formel gegeben [122]:

$$|M_{ac}|^2 = \sum_a \sum_c \left| \int \psi_a^* \sum_{\mu} r_{\mu} \psi_c d\nu \right|^2. \quad (3.15)$$

Für winkelaufgelöste Photoemissionsexperimente ist auch der **Asymmetrieparameter** β wichtig. Diese von der Frequenz ν der ionisierenden Strahlung abhängige Größe trägt der Tatsache Rechnung, dass die örtliche Verteilung der Photoelektronen in Atomen anisotrop ist. Er tritt in der Formel für den differentiellen partiellen Wirkungsquerschnitt auf [123]:

$$\frac{d\sigma^{(1)}(a)}{d\Omega}(\Theta) = \frac{\sigma^{(1)}(a)}{4\pi} [1 + \beta(ac)P_2(\cos\Theta)]. \quad (3.16)$$

Dabei ist Θ der Winkel zwischen dem elektrischen Feldvektor der einfallenden Strahlung und der Emissionsrichtung der Elektronen und $P_2(\cos\Theta)$ das Legendre Polynom zweiter Ordnung.

Für die Winkelabhängigkeit der Emission der Photoelektronen aus einem Targetgas gilt die folgende Proportionalität [124]:

$$I(\Theta) \propto 1 + \frac{1}{2}\beta\left(\frac{3}{2}\sin^2\Theta - 1\right). \quad (3.17)$$

Im Anhang sind für die Edelgase Neon, Krypton und Xenon experimentell ermittelte Werte für $\sigma^{(1)}$ und β als Funktion der Photonenenergie zu finden.

Während im IR und sichtbaren Spektralbereich nur die am schwächsten gebundenen Valenzelektronen angeregt werden, ist durch VUV/XUV Strahlung auch die Anregung von Elektronen in inneren Schalen möglich. Liegt der angeregte Zustand energetisch über dem Grundzustand des Ions A^+ , so ist neben der spontanen Emission auch ein strahlungsloser Übergang in einen Zustand des einfach geladenen Ions unter Freisetzung eines Elektrons möglich. Man spricht dann von **Autoionisation**. Der Ionisationsprozess hinterlässt eine Lücke in einer inneren Schale des Atoms, die durch ein Elektron aus einer höheren Schale gefüllt werden muss. Dabei kann es statt der Emission eines Lichtquants auch zur Emission eines weiteren Elektrons aus einer äußeren Schale kommen. Man spricht dann von einem **Auger-Prozess**.

3.4.2 Nicht-lineare Ionisation von Edelgasatomen

Tritt Photoionisation eines Atoms A auf obwohl $h\nu < IP_1$, so müssen für den Ionisationsprozess mindestens zwei Photonen absorbiert worden sein. Man spricht in diesem Falle

von einem **nicht-linearen** Ionisationsprozess. Die Rate für einen solchen Prozess wird festgelegt durch den **adiabatischen Parameter** [125]:

$$\gamma = 2\pi\nu \frac{\sqrt{2E_b}}{|\vec{E}|}. \quad (3.18)$$

Dabei ist $|\vec{E}|$ der Betrag der elektrischen Feldstärke der Strahlung und E_b die Bindungsenergie des Elektrons. Für variable ν und $|\vec{E}|$ ist der Bereich mit $\gamma^2 \sim 1$ klein. Interessanter sind daher die Extremfälle $\gamma^2 \gg 1$ und $\gamma^2 \ll 1$.

$\gamma^2 \ll 1$

Dieser Grenzfall liegt vor für Strahlung hoher Intensität I und kleiner Photonenenergie $h\nu$. Durch das elektrische Feld eines intensiven Laserpulses wird das Coulombpotential des Atomkerns modifiziert und das Ionisierungspotential des Atoms gegenüber dem feldfreien Fall abgesenkt. Dadurch wird die Wahrscheinlichkeit für einen Tunnelprozess des Elektrons erhöht. Man spricht von **Tunnelionisation** [126]. Dieser Ionisationsmechanismus dominiert für Intensitäten $10^{14} \text{ W/cm}^2 < I < 10^{15} \text{ W/cm}^2$ [127].

$\gamma^2 \gg 1$

In diesem Grenzfall hat das Elektron nicht genügend Zeit um einen Tunnelprozess auszuführen oder die Intensität des Laserfeldes reicht nicht aus, um das Coulombpotential für einen Tunnelprozess des Elektrons ausreichend abzusenken. Daher findet die nichtlineare Ionisation in diesem Fall über **Multiphotonenionisation** (MPI) statt. Für Intensitäten $I < 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ist die MPI der dominierende Ionisationsmechanismus [127]. Es wurde schon im Jahr 1931 vorhergesagt, dass die Energien mehrerer Photonen kombiniert werden können um ein Atom zu ionisieren, wenn die Energie eines einzelnen Photons zur Ionisation nicht ausreicht [128]. Ist mindestens einer der Zwischenzustände vor dem Erreichen der Ionisationsschwelle in Resonanz mit der einfallenden Strahlung, so spricht man von **resonanter Multiphotonenionisation** (REMPI = Resonant Multiphoton Ionization) [129]. Sind alle Zwischenzustände rein virtuell, so liegt **nicht-resonante Multiphotonenionisation** (NRMPI = Non Resonant Multiphoton Ionization) [130] vor. Für die NRMPI kann die nicht-lineare Ionisationsrate W (Zahl der pro Sekunde und Volumeneinheit durch die Strahlung erzeugten Photoionen) geschrieben werden als [131]:

$$W_n = \sigma^{(n)}(\nu, \rho)(I/h\nu)^n. \quad (3.19)$$

Dabei ist $\sigma^{(n)}$ der Wirkungsquerschnitt des Ionisationsprozesses bei Absorption von n Photonen und ρ die Ellipzität der Strahlung. Die Gleichung wird aus der Störungsrechnung gewonnen und ist gültig für Intensitäten $I < 10^{15} \text{ W/cm}^2$ [127]. Für den Spezialfall $n = 1$ erhält man die lineare Ionisation mit dem durch Gleichung (3.14) beschriebenen Ein-Photon Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}$.

Multiphotonenionisation kann nicht nur in der einfachen Ionisation eines Atoms münden, sondern es können auch höher geladene Ionen produziert werden. In Abbildung 3.26 sind mögliche Wechselwirkungsprozesse zwischen einem Atom und Strahlung der Frequenz $h\nu$ dargestellt. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit geht man davon aus, das Atom A sei ein Edelgas. Außerdem sollen nur Prozesse betrachtet werden, die zur Erzeugung von einfach oder doppelt geladenen Ionen führen. Die dargestellten Ionisationsprozesse sind in Referenz [131] zusammengefasst.

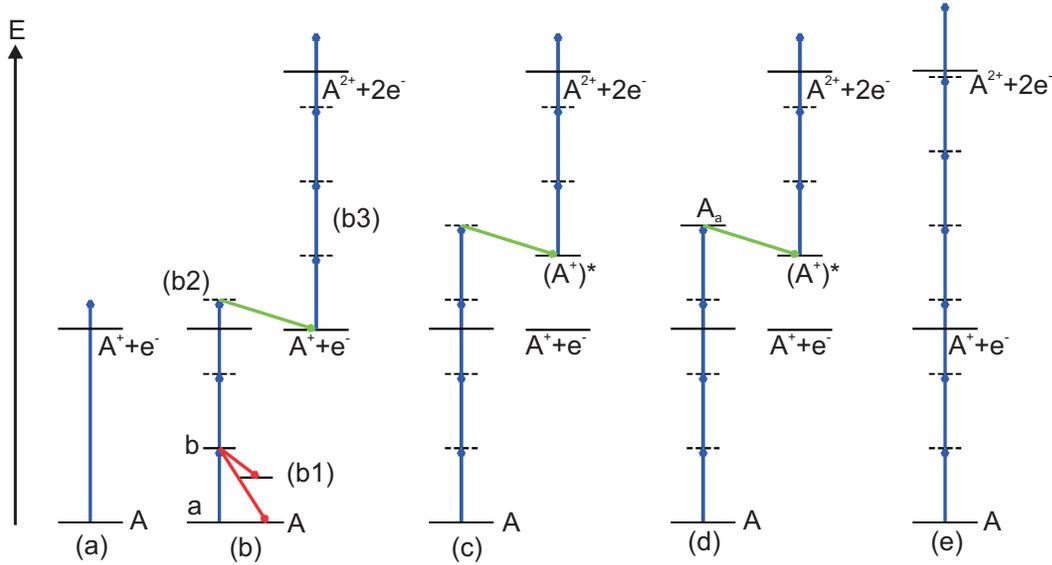
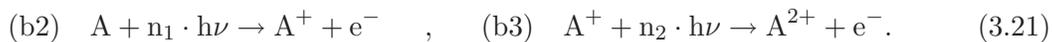


Abbildung 3.26: Schematische Darstellung möglicher Wechselwirkungsprozesse zwischen einem Edelgasatom A und einem Strahlungsfeld mit der Photonenenergie $h\nu$. Die Energie der einfallenden Photonen wird durch blaue Pfeile dargestellt. Strahlende Übergänge aus angeregten Zuständen werden durch rote Pfeile, nicht-strahlende durch grüne Pfeile dargestellt. (a) Einfache Ionisation des Atoms durch Absorption eines Photons mit $h\nu > IP_1$. (b) Anregung durch ein Photon mit $h\nu < IP_1$ mit nachfolgender Depopulierung des Zustands durch spontane Emission. (b2) Multiphotonenionisation (MPI). Beispielhaft ist hier die resonante MPI (REMPI) gezeigt. (b3) Sequentielle doppelte Ionisation durch Absorption weiterer Photonen aus dem selben Puls. Hier geschieht dies über den Grundzustand des A^+ Ions. (c) Sequentielle doppelte Ionisation über einen angeregten Zustand $(A^+)^*$ des Ions. Dieser Prozess wird begleitet von einem ATI Prozess. (d) Sequentielle doppelte Ionisation über einen Autoionisationszustand A_a des Atoms. (e) Direkte doppelte Ionisation mit gleichzeitiger Emission von zwei Elektronen.

(a) Einfache Ionisation des Atoms durch Absorption eines Photons.

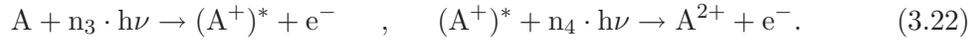


(b) Stufenweise doppelte Ionisation des Atoms.



Man spricht in diesem Fall von **sequentieller Photoionisation**. Obwohl die Ionisation stufenweise erfolgt, werden beide Elektronen durch den selben Laserpuls freigesetzt.

(c) Sequentielle doppelte Ionisation des Atoms über einen angeregten Zustand $(A^+)^*$ des einfach geladenen Ions.



Im ersten Ionisationsschritt werden mehr Photonen (nämlich n_3) als die Mindestzahl n_1 absorbiert. Man spricht in diesem Fall von einem **Above-Threshold Ionization (ATI)** Prozess [Kapitel 3.4.5].

(d) Sequentielle doppelte Ionisation des Atoms über einen resonanten Autoionisationszustand A_a des Atoms.



(e) Nicht-sequentielle doppelte Ionisation des Atoms.



Man spricht in diesem Fall von **direkter Photoionisation**. Die beiden emittierten Photoelektronen werden gleichzeitig freigesetzt.

3.4.3 Nicht-lineare Ionisation von Edelgasatomen in intensiven Laserfeldern bei kleinen Photonenenergien

Experimente zeigen, dass mit ultrakurzen intensiven NIR Pulsen die Ionisation von Edelgasatomen wie Helium [132] und Argon [133] möglich ist, obwohl $h\nu_{\text{nir}} \ll IP_1$. Für die vorliegende Arbeit ist besonders das Verhalten von Neon, Krypton und Xenon in solchen intensiven Feldern wichtig. Abbildung 3.27 (a) zeigt das Photoionensignal nach Ionisation von Krypton Atomen durch NIR Strahlung mit $\lambda_{\text{nir}} = 800$ nm als Funktion der Intensität I_{nir} . Es fällt insbesondere auf, dass nicht nur einfach, sondern auch mehrfach geladene Kr^{n+} Ionen ($n=1\dots4$) nachgewiesen werden.

Abbildung 3.27 (b) zeigt eine ähnliche Messung bei Xenon als Targetgas und etwas längeren NIR Pulsen [$\tau_{\text{nir}} = 200$ fs]. Es sind Ionen bis Xe^{6+} detektiert worden. Mit dem selben Lasersystem sind auch Photoionisationsspektren von Neon aufgenommen worden [Abbildung 3.27 (c)]. Das gemessene Ne^{2+} Signal zeigt eine ausgeprägte "Kniestruktur". Das Signal der einfach geladenen Ionen kann für alle Edelgase der Multiphotonenionisation zugeschrieben werden. Dabei dominiert die direkte MPI im NIR Spektralbereich deutlich gegenüber der sequentiellen MPI [136].

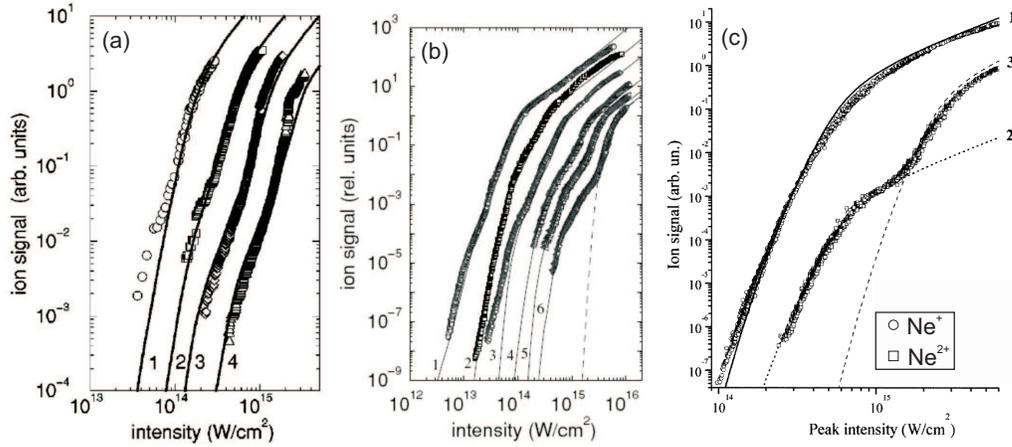


Abbildung 3.27: (a) Ionensignal für Kr^{n+} ($n=1-4$) nach der Ionisation von Kr Atomen durch fokussierte NIR Strahlung ($\lambda_{\text{nir}} = 800 \text{ nm}$, $\tau_{\text{nir}} = 135 \text{ fs}$) als Funktion der einfallenden Laserintensität. Die durchgezogene Linie stellt eine berechnete Verteilung dar (aus [134]). (b) Ionensignal für Xe^{n+} ($n=1-6$) nach der Ionisation von Xe Atomen durch fokussierte NIR Strahlung ($\lambda_{\text{nir}} = 800 \text{ nm}$, $\tau_{\text{nir}} = 200 \text{ fs}$) als Funktion der einfallenden Laserintensität (aus [135]). (c) Messung mit demselben Lasersystem wie in (b) nur mit Ne als Targetgas. Die Kurven 1 und 3 geben theoretische Ioneyields an, während Kurve 2 sich durch Verschieben von Kurve 1 ergibt (aus [136]).

Um das Auftreten von Ionen höherer Ladungsstufen zu erklären, wurden mehrere Modelle entwickelt. Das **Shake-Off Modell** [137] geht davon aus, dass das Entfernen des ersten Elektrons so schnell erfolgt, dass sich die übrigen Elektronen des Systems in dieser kurzen Zeit nicht adiabatisch an die neuen Energiezustände anpassen können und es dadurch zu einer weiteren Ionisation kommen kann. Eine deutlich bessere Übereinstimmung mit den Messdaten liefert das **Rescattering Modell** [138]. Danach wird das durch Ionisation freigesetzte Elektron durch das schnell oszillierende intensive Laserfeld wieder in Richtung des Ions, dem es entstammt, zurückbeschleunigt. Durch den inelastischen Stoß von Elektron und Ion kann es zu weiterer Ionisation kommen. In diesem Modell ist die experimentell beobachtete, starke Unterdrückung der Erzeugung von Ionen höherer Ladungsstufen für zirkular polarisiertes Licht erklärbar [139], da das zurückbeschleunigte Elektron das Ion in diesem Fall verfehlt.

Mit dem Rescattering Modell lässt sich auch das HHG Spektrum [Abbildung 3.3] anschaulich erläutern: die Energie, die dem Elektron durch das ionisierende Laserfeld zugeführt wurde, kann bei der Rekombination von Ion und Elektron in Form von Photonen freigesetzt werden. Dieser Erklärungsansatz ist als **Drei-Stufen-Modell** bekannt [138].

3.4.4 Nicht-lineare Ionisation von Edelgasatomen durch VUV/XUV Strahlung

Der dominierende Mechanismus der nichtlinearen Ionisation von Edelgasatomen durch VUV/XUV Photonen ist die Multiphotonenionisation, insbesondere bei nicht zu hohen Intensitäten von $I \leq 10^{13} \text{ W/cm}^2$ [140]. Im Gegensatz zum NIR Spektralbereich dominiert aber im UV/VUV/XUV Spektralbereich die sequentielle Ionisierung deutlich gegenüber der direkten [135]. Die direkte mehrfache Ionisation ist nur dann effizienter, wenn für den sequentiellen Prozess bei gleicher Ladungsstufe der erzeugten Ionen mehr VUV/XUV Photonen absorbiert werden müssten [141]. Generell gilt nämlich $\sigma^{(n)} \ll \sigma^{(n+1)}$ [142].

Mit der Strahlung von FLASH sind Flugzeitspektren von Edelgasen aufgenommen worden. Bei $\lambda_{\text{vuv}} = 98 \text{ nm}$ und $I_{\text{vuv}} \leq 1,3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ sind mehrfach geladene Xe Ionen (bis Xe^{6+}) und Argon Ionen (bis Ar^{4+}) nachgewiesen worden [143]. Abbildung 3.28 zeigt entsprechende Flugzeitspektren von Xenon. Ähnliche Experimente sind bei $\lambda_{\text{xuv}} = 32 \text{ nm}$ für molekulares N_2 [144] und Ne bzw. Ar [140] durchgeführt worden. Bei beiden Edelgasen wurden für $I_{\text{xuv}} \geq 10^{12} \text{ W/cm}^2$ nichtlineare Effekte in der Ionisation beobachtet. Bei Neon wurde zusätzlich festgestellt, dass die Ne^{2+} Ionen, die nicht einem linearen Prozess durch Absorption eines Photons der Fundamentalen entstammen können, hauptsächlich durch sequentielle doppelte Ionisation nach Absorption von zwei Photonen der Fundamentalen und nicht durch Höhere Harmonische der Strahlung erzeugt wurden [145].

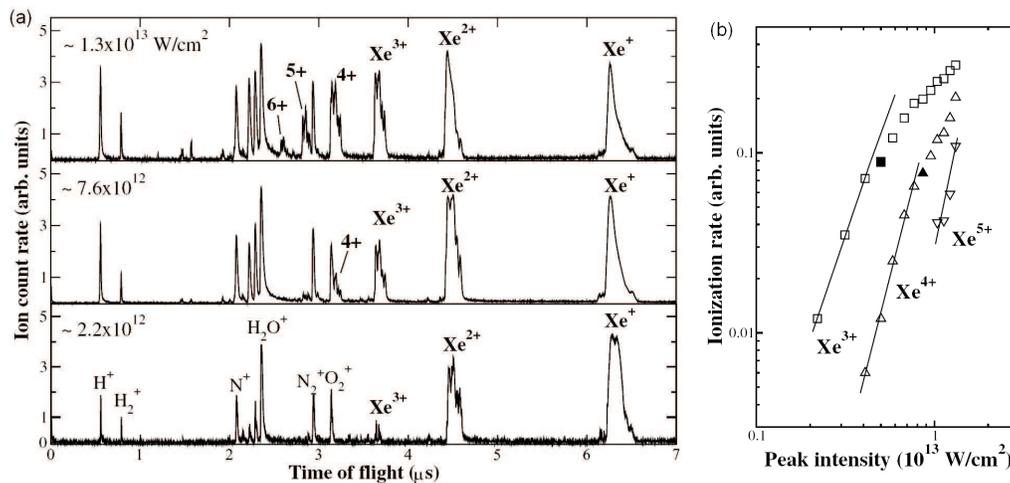


Abbildung 3.28: (a) Flugzeitspektren von Xenon erzeugt durch die VUV Pulse von FLASH ($\tau_{\text{vuv}} \sim 100 \text{ fs}$, $\lambda_{\text{vuv}} = 98 \text{ nm}$) bei drei verschiedenen Intensitäten. Bei allen Intensitäten ist das Xe^+ Signal aufgrund des hohen Wirkungsquerschnitts für $5p$ Elektronen bei 98 nm gesättigt. Neben den Xe^{n+} Signalen finden sich im Flugzeitspektrum noch diverse Restgas Peaks. (b) Abhängigkeit der Ionensignale im Xenon Flugzeitspektrum von der Intensität I_{vuv} . Das Signal ist doppelt logarithmisch aufgetragen, die durchgezogenen Linien symbolisieren lineare Fits zur Bestimmung der Nichtlinearität der vorliegenden Ionisationsprozesse. Bei hohen Intensitäten treten Sättigungseffekte auf (aus [143]).

3.4.5 Above Threshold Ionization (ATI)

Bei der Multiphotonenionisation wird ein Edelgasatom A in einem nicht-linearen Prozess durch die Absorption von mehreren Photonen ionisiert [Kapitel 3.4.2]. Wird bei diesem Prozess genau die Mindestanzahl n_{\min} an Photonen absorbiert, die zur Ionisation nötig ist, so spricht man von einem **Schwellenprozess**. Das resultierende Photoelektronenspektrum besteht dann aus einem Peak mit Maximum bei der kinetischen Energie $E_0 = n_{\min} \cdot h\nu - E_{\text{bind}}$, wobei E_{bind} die Bindungsenergie des ausgelösten Elektrons im Atom ist. Häufig (insbesondere bei hoher Laserintensität) beobachtet man statt eines einzelnen mehrere voneinander um $h\nu$ getrennte Peaks im Photoelektronenspektrum [Abbildung 3.29]. Das Atom absorbiert also $n_{\min} + s$ ($s=1,2,3$) Photonen [146]. Dieser Prozess wird als **Above-Threshold Ionization (ATI)** bezeichnet.

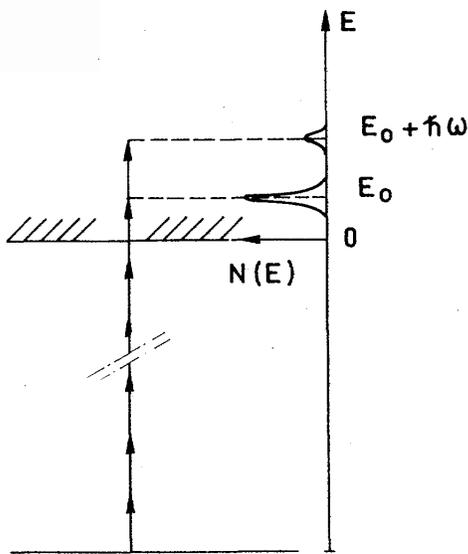


Abbildung 3.29: Schematische Darstellung eines Schwellenprozesses der Multiphotonenionisation und eines ATI Prozesses. Auf der rechten Seite ist das resultierende Photoelektronenspektrum angedeutet (aus [146]).

ATI Spektren zeigen eine starke Abhängigkeit von der Intensität I und der Pulsdauer τ [147] sowie der Polarisation der ionisierenden Strahlung [148]. Es findet ein Energieaustausch zwischen dem Laserfeld und den bei der Ionisation freigesetzten Photoelektronen statt. Im klassischen Bild üben die \vec{E} und \vec{B} Felder des elektromagnetischen Feldes Kräfte auf die Elektronen aus. Die klassische Energie - das **ponderomotive Potential** - eines Elektrons in einem Laserfeld mit dem Maximalwert $|\vec{E}_0|$ des elektrischen Feldes kann geschrieben werden als [149]:

$$U_p = \frac{e^2 |\vec{E}_0|^2}{4m_e \omega^2}, \quad (3.25)$$

wobei e die Elementarladung, m_e die Elektronenmasse und ω die Kreisfrequenz der einfallenden Strahlung sind.

Die Gesamtenergie E_{ges} eines Elektrons ist die Summe aus der kinetischen Energie E_{kin} der linearen Bewegung und dem ponderomotiven Potential U_p [150]. Die maximale Energie, die das Elektron in dem Laserfeld aufnehmen kann, ist gegeben durch [38]:

$$E_{\text{ges}} = IP_1(A) + 3,17 \cdot U_p. \quad (3.26)$$

Die gemessenen ATI Spektren zeigen aber, dass ein quantisierter Energieaustausch stattfindet. Dieser Austausch wird über die stimulierte Streuung der Elektronen an den Photonen der einfallenden Strahlung erklärt [149].

Typischerweise gilt für alle Edelgase im VUV/XUV Spektralbereich $h\nu > IP_1$. Dann führt die Absorption des ersten Photons zu einer Photoionisation und bereits ein zweites Photon wird im Kontinuum absorbiert. Der differentielle Wirkungsquerschnitt pro Frequenzintervall für einen Kontinuum-Kontinuum-Übergang in einem Coulombfeld unter Absorption von zwei Photonen kann allgemein geschrieben werden als [151]:

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = \frac{|\vec{p}_f|}{|\vec{p}_i|} |f(\theta)|^2, \quad (3.27)$$

wobei \vec{p}_i und \vec{p}_f die Impulse zu den Anfangs- und Endzuständen, θ der Winkel zwischen ihren Richtungen und $f(\theta)$ das entsprechende Matrixelement sind. Man erhält folgende Proportionalität zwischen diesem Matrixelement und der Frequenz ω der einfallenden Strahlung [152]:

$$f(\theta) \propto 1/\omega^4. \quad (3.28)$$

Damit nimmt die Wahrscheinlichkeit für einen ATI Prozess unter Beteiligung von zwei Photonen mit zunehmender Photonenenergie $h\nu$ deutlich ab. Dennoch sind auch VUV induzierte ATI Prozesse bei He, Ar und Xe beobachtet worden [153]. Typischerweise gilt im VUV/XUV Spektralbereich $\sigma_{\text{ATI}}^{(2)} > \sigma_{\text{dir}}^{(2)}$, bei $h\nu_{\text{xuv}} \approx 45$ eV gilt beispielsweise für Helium $\sigma_{\text{ATI}}^{(2)} \approx 10 \cdot \sigma_{\text{dir}}^{(2)}$ [154].

3.4.6 Laserunterstützte Photoionisation

Ein Edelgastarget werde durch Absorption von XUV - Photonen mit $h\nu_{\text{xuv}} > IP_1(A)$ ionisiert. Durch das zusätzliche Einstrahlen von intensiver Laserstrahlung der Frequenz ω_L wird das Photoelektronenspektrum modifiziert: die ursprünglich einfache Photolinie wird verbreitert und es treten diverse Nebenmaxima, die sogenannten **Seitenbänder**, auf. Diese haben von der Hauptlinie einen Abstand ΔE_{SB} von [155]:

$$\Delta E_{\text{SB}} = n_s \cdot h\nu_L; \quad n_s = \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots \quad (3.29)$$

Dieser Effekt ist als laser assisted photoelectric effect (LAPE) bekannt und wird im weiteren als **laserunterstützte Photoionisation** oder **laserunterstützte Seitenbanderzeugung** bezeichnet. Er kann sowohl in den Photoelektronenspektren von Edelgasen wie Helium [155] oder Argon [156] als auch in den Photoelektronenspektren von Festkörpern [157] beobachtet werden. Der Effekt beruht auf der Absorption und Emission von Photonen durch die während des Ionisationsprozesses befreiten Elektronen, also auf Kontinuumsübergängen [158]. Das gemessene Seitenbandsignal ist stark vom Grad des zeitlichen Überlapps zwischen Ionisationspuls und Abfragepuls abhängig. Außerdem wird eine Abhängigkeit dieses Seitenbandsignals von der Intensität des Laserfeldes [156] und dem Polarisationszustand beider Pulse [159] beobachtet.

Die Ausbildung von Seitenbändern ist am Beispiel des Kryptons in Abbildung 3.30 simuliert. Die Photoelektronen entstammen in diesem Fall der 4p Schale des Krypton und werden freigesetzt durch Strahlung mit $h\nu_{\text{xuv}} = 32$ eV bzw. $h\nu_{\text{xuv}} = 102$ eV. Das zusätzlich eingestrahlte Laserfeld bei $\lambda = 800$ nm hat in beiden Fällen eine Intensität von 10^{12} W/cm². Sowohl die relative Intensität des Seitenbands als auch die Anzahl $n_{\text{s,max}}$ der Seitenbänder hängt von der kinetischen Energie $U_a = \hbar^2 k^2 / 2m_e$ ($k = |\vec{k}| = \sqrt{2m_e[h\nu_{\text{xuv}} - \text{IP}(A)]/\hbar}$) der Photoelektronen ab.

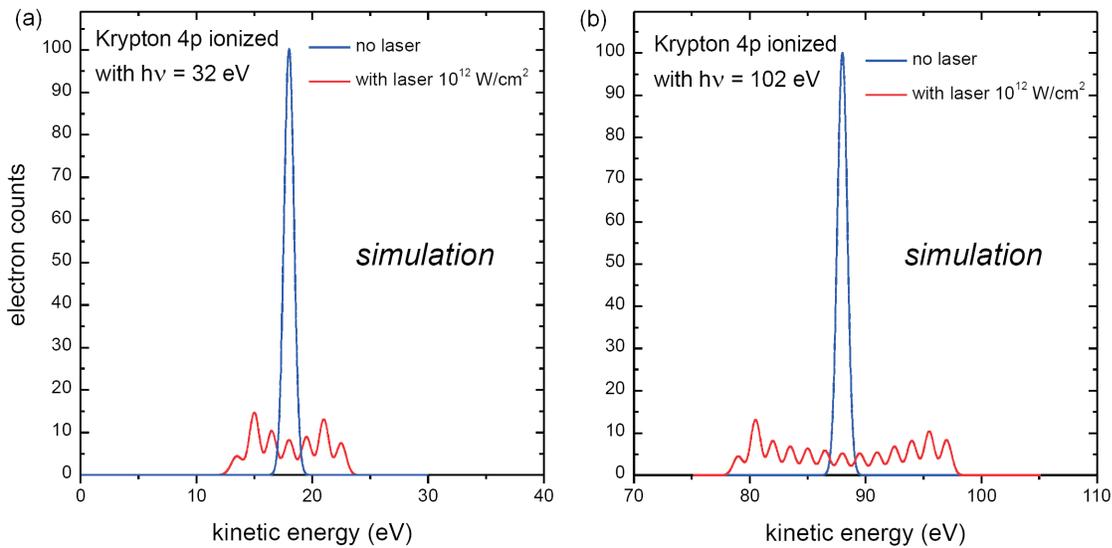


Abbildung 3.30: Simulation der laserunterstützten Photoionisation von Krypton. Die einfache Photolinie (blau) nach der Ionisation mit XUV Strahlung der Photonenenergie (a) $h\nu_{\text{xuv}} = 32$ eV bzw. (b) $h\nu_{\text{xuv}} = 102$ eV spaltet bei Anwesenheit eines intensiven Laserfeldes ($I = 10^{12}$ W/cm²) in eine Seitbandstruktur auf (rot). Die Anzahl und relative Intensität der Seitenbänder hängt bei gleicher Laserintensität von der kinetischen Energie der Elektronen ab [160].

Zur Erläuterung der Ausbildung von Seitenbändern kann ein einfaches, rein klassisches Modell benutzt werden: das beim Ionisationsprozess freigesetzte Photoelektron tritt zum Zeitpunkt t_0 in das Laserfeld $\vec{E}_L = \vec{E}_{0,L} \cdot \cos(\omega_L t)$ ein. Hat das Elektron anfänglich die kinetische Energie U_a , so ist seine kinetische Energie U im Feld E_L gegeben durch [156]:

$$U \approx U_a - \sqrt{8U_a U_p} \sin(\omega_L t_0) \cos \theta + U_p [1 + 2 \cdot \sin^2(\omega_L t_0)], \quad (3.30)$$

wobei U_p das ponderomotive Potential [Gleichung (3.25)] und θ der Winkel zwischen der Polarisationsrichtung des Laserfeldes und der Ausbreitungsrichtung des freien Elektrons ist. Allgemeinen gilt $U_a \gg U_p$. Für kleine Winkel kann der letzte Term in Gleichung (3.30) vernachlässigt werden. Folglich erhält man in dieser einfachen klassischen Herleitung eine $\cos \theta$ Abhängigkeit der Seitenbänderzeugung. Bei $\theta = 0^\circ$ und geeigneter Wahl von t_0 ändert sich die kinetische Energie U_a im Feld um den Wert $\sqrt{8U_a U_p}$. Dies stimmt mit dem Experiment nicht überein, beobachtet man doch keine einfache Verbreiterung der gemessenen Linie im Photoelektronenspektrum, sondern eine quantisierte Energieänderung in Vielfachen der Photonenenergie $h\nu_L$. Eine quantitative Übereinstimmung mit den Spektren liefern erst quantenmechanische Betrachtungen [155]. Die klassische Herleitung sagt jedoch die richtige Anzahl $n_{s,\max}$ der Seitenbänder um die Hauptlinie voraus [156]:

$$n_{s,\max} = 2\sqrt{8U_a U_p}/\hbar\omega_L. \quad (3.31)$$

Die Anzahl $n_{s,\max}$ der Seitenbänder kann folglich durch Erhöhung der kinetischen Energie der Photoelektronen und durch Erhöhung der Intensität I_L des Laserfeldes maximiert werden.

In der "Weiche Photonen Approximation" ist der differentielle Wirkungsquerschnitt $d\sigma_{n_s}/d\Omega$ für einen laserunterstützten Ionisationsprozess mit dem Austausch von n_s Photonen gegeben durch folgende Gleichung [161]:

$$\frac{d\sigma_{n_s}}{d\Omega} = \frac{d\sigma^{(1)}}{d\Omega} \cdot J_n^2(\vec{\alpha}_0 \cdot \vec{k}). \quad (3.32)$$

Dabei ist $d\sigma^{(1)}/d\Omega$ der differentielle Wirkungsquerschnitt für die Ionisation ohne zusätzliches Laserfeld, $J_n(z)$ die generalisierte Besselfunktion [162] und $\vec{\alpha}_0 = \vec{E}_{0,L}/\omega_L^2$. Gleichung (3.32) ist zu entnehmen, dass in dieser Approximation eine hohe Seitenbandintensität zu erzielen ist bei hoher kinetischer Energie der Photoelektronen ($\sim \vec{k}$), hoher Intensität der Laserstrahlung ($\sim \vec{E}_{0,L}$), Parallelität von \vec{k} und $\vec{\alpha}_0$ und effektiver Ionisation. Die letzte Abhängigkeit besagt, dass wie erwartet die absolute Zahl der Elektronen in den Seitenbändern mit zunehmender Gesamtzahl der Elektronen zunimmt.

3.4.7 Abbildungssysteme mit geladenen Teilchen

3.4.7.1 Prinzip der Erzeugung einer Abbildung

Treten aus einer räumlich begrenzten Struktur Elektronen oder Ionen aus, so können die Bahnen der geladenen Teilchen so beeinflusst werden, dass an einer anderen Stelle im Raum eine orts aufgelöste Abbildung der Struktur erzielt werden kann. Als abbildendes System kann ein **elektrostatisches Linsensystem** verwendet werden [163]. Die Bilderzeugung ist prinzipiell analog zu der bekannten Bilderzeugung in der Strahlenoptik [164]. Dies veranschaulicht das einfache Beispiel in Abbildung 3.31. Das darin verwendete elektrostatische Linsensystem besteht aus zwei coaxialen Zylindern, von denen der linke auf das elektrische Potential V_1 und der rechte auf V_2 gelegt wird. Innerhalb der Zylinder ist das elektrische Potential ähnlich dem Potential auf der entsprechenden Zylinderelektrode. In der Mitte zwischen den beiden Zylindern ist die Äquipotentialfläche eine vertikale Ebene und hat das Potential $(V_1 + V_2)/2$. Die anderen Äquipotentialflächen sind symmetrisch um diese herum verteilt und haben sphärische Oberflächen. Strahlen aus geladenen Teilchen, die das elektrostatische Linsensystem von links und von rechts parallel zur Mittelachse durchlaufen, werden in Richtung der Achse gebeugt. Genauer wird die Mittelachse für alle achsennah verlaufende Strahlen (**paraxiale Näherung**) in den beiden **Fokalfpunkten** F_1 und F_2 geschnitten. Damit ist dieser Prozess das Analogon zur Brechung von Licht an einer sphärischen Grenzfläche zwischen zwei Medien mit den Brechungsindizes n_1 und n_2 .

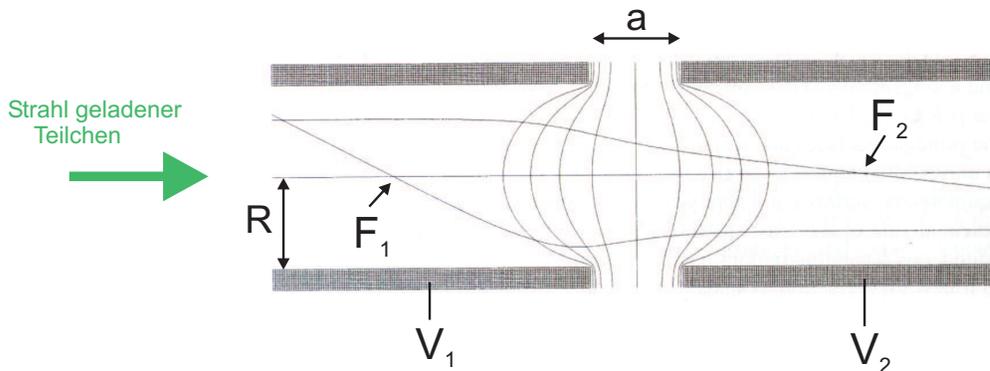


Abbildung 3.31: Pfad von geladenen Teilchen in einem elektrostatischen Linsensystem, bestehend aus zwei zylindrischen Linsen. In diesem Beispiel ist der Radius R der beiden Zylinder gleich deren Abstand a . In der Mitte des Linsensystems sind die Äquipotentialflächen mit durchgezogenen Linien dargestellt. Nur weit entfernt von diesem Gebiet sind die Bahnen der geladenen Teilchen in etwa gerade Linien (aus [164]).

Zur quantitativen Analyse muss die Bewegungsgleichung der geladenen Teilchen in dem elektrostatischen Feld $\vec{E} = -\vec{\nabla}V$ gelöst werden. Beschränken man sich bei den folgenden Betrachtungen auf Elektronen, so wirkt auf diese in dem elektrischen Feld die Kraft $\vec{F} = -e \cdot \vec{E}$.

Nach dem zweiten Newtonschen Axiom ergibt sich somit folgende Bewegungsgleichung:

$$\frac{d^2\vec{r}(t)}{dt^2} = \frac{e}{m_e} \vec{\nabla}V. \quad (3.33)$$

Diese Gleichung besagt, dass die Elektronen in Richtungen wachsenden Potentials und somit senkrecht zu Äquipotentialflächen beschleunigt werden. Zur Lösung der Bewegungsgleichung (3.33) muss das Potential der vorliegenden Elektrodenverteilung in dem Linsensystem berechnet werden. Dies kann mit Hilfe der **Poisson Gleichung** geschehen [165]:

$$\Delta V = -\frac{\rho}{\varepsilon_0}. \quad (3.34)$$

Dabei ist ρ die Ladungsdichte in dem System und ε_0 die Dielektrizitätskonstante des Vakuums. Für komplexe Aufbauten lässt sich im Normalfall keine analytische Lösung dieser Gleichung finden und sie muss numerisch gelöst werden. Daher beschränkt man sich auf die paraxiale Näherung, bei welcher nur Elektronenbahnen nahe der Mittelachse betrachtet werden. In diesem Fall ergibt sich in Zylinderkoordinaten folgende Bewegungsgleichung zur Beschreibung der radialen Bewegung eines geladenen Teilchens in einem rotationssymmetrischen Feld [164]:

$$\frac{d^2r}{dz^2} + \frac{1}{2} \frac{V_0'}{V_0} \frac{dr}{dz} = -\frac{r}{4} \frac{V_0''}{V_0}. \quad (3.35)$$

Dabei ist V_0 das Potential auf der Mittelachse des vorliegenden zylindersymmetrischen Systems, $V_0' = \frac{\partial V_0}{\partial z}$ und $V_0'' = \frac{\partial^2 V_0}{\partial z^2}$. In diesem Fall ist das zu lösende Problem deutlich einfacher, da die Kenntnis des Potentials auf der Mittelachse zur Lösung ausreicht. In Gleichung (3.35) ist weder die Masse noch die Ladung des betrachteten geladenen Teilchens enthalten. Damit sind die Bahnen von Elektronen und Ionen für achsennahe Strahlen bei einem rotationssymmetrischen Aufbau identisch.

Man kann analog zur Strahlenoptik ein Bild eines Objektes, welches geladene Teilchen emittiert, konstruieren. Das Prinzip ist in Abbildung 3.32 gezeigt. Das Objekt OO' der Höhe r_1 befindet sich in einem Abstand p vom ersten Fokalfunkt F_1 und in einem Abstand P von der Referenzebene R . Durch Einzeichnen von Strahlen, die die optische Achse in den beiden Fokalfunkten schneiden, können die Lage und Höhe des Bildes konstruiert werden. In dem vorliegenden Fall hat das Bild die Höhe r_2 , die Bildweite Q und den Abstand q vom zweiten Fokalfunkt F_2 . Die geometrischen Abmessungen des Bildes sind festgelegt durch die laterale Vergrößerung $M = r_2/r_1$ und die Winkelvergrößerung $M_\alpha = \alpha_2/\alpha_1$. Einfache geometrische Überlegungen zeigen, dass gilt [164]:

$$M \cdot M_\alpha = -f_1/f_2 = (V_1/V_2)^{1/2}. \quad (3.36)$$

Dabei sind V_1 und V_2 die Potentiale in der Umgebung des Objekts bzw. des Bildes und f_1 und f_2 die Abstände der Fokalfunkte von den Hauptebenen H_1 und H_2 des Abbildungssystems. Gleichung (3.36) besagt, dass M und M_α direkt miteinander gekoppelt sind und bei fester Energie die Erhöhung der einen Größe eine Erniedrigung der anderen Größe zur Folge hat und umgekehrt.

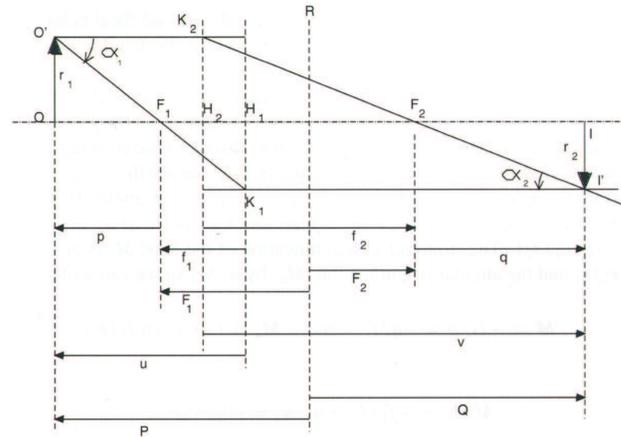


Abbildung 3.32: Konstruktion eines Bildes mit Hilfe einer elektrostatischen Linse. Die Winkel α_1 und α_2 werden vom oberen Strahl zum unteren Strahl gemessen und haben entgegengesetzte Vorzeichen. P und Q sind Gegenstands- bzw. Bildweite (aus [164]).

Die bisherigen Betrachtungen sind von idealen Abbildungseigenschaften ausgegangen. Wie optische Abbildungssysteme sind aber auch elektrostatische Linsensysteme Abbildungsfehlern unterworfen. Dabei hat die **sphärische Aberration** den mit Abstand bedeutendsten Einfluss auf die Abbildungsqualität [164]. Die Position des Fokus' einer Linse hängt vom Abstand eines bestimmten Elements des Objekts von der Mittelachse ab. Der Effekt der sphärischen Aberration ist schematisch in Abbildung 3.33 dargestellt.

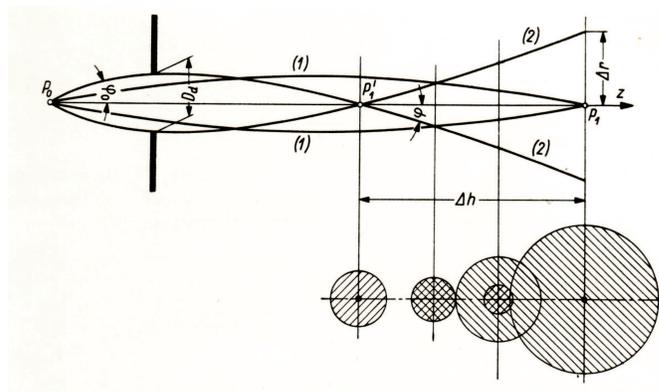


Abbildung 3.33: Sphärische Aberration: achsennahe Strahlen [Trajektorie (1)] werden im Punkt P_1 , weiter von der Achse entfernt verlaufende [Trajektorie (2)] dagegen im Punkt P'_1 fokussiert (aus [165]).

Achsenahne Strahlen werden im Fokuspunkt P_1 auf der Mittelachse fokussiert. Dagegen werden Strahlen, die weiter entfernt von der Mittelachse verlaufen, in einem Punkt P'_1 , welcher um Δh vor P_1 liegt, fokussiert. Der Punkt P_0 auf der optischen Achse, der abgebildet werden soll, erscheint aufgrund dessen in der Fokalebene nicht mehr als ein Punkt, sondern als eine Scheibe mit dem Radius Δr .

In elektrostatischen Linsensystemen können auch andere Abbildungsfehler wie chromatische Abberation, Astigmatismus, Coma, Bildfeldwölbung und Kissenverzeichnungen auftreten. Eine Zusammenfassung der Herkunft der verschiedenen Abbildungsfehler und die Diskussion über ihre Auswirkungen auf die Abbildung können der Literatur (z.B. [165],[166]) entnommen werden.

3.4.7.2 Einfluss von Coulombkräften und externen Feldern auf die Abbildung

Die bisherigen Betrachtungen gehen von einer völligen Analogie zwischen elektrostatischen Linsen- und optischen Abbildungssystemen aus. Ein Unterschied zwischen den beiden ist jedoch, dass in Strahlen geladener Teilchen Coulombkräften auftreten, die in der Optik kein Analogon haben. Man nehme im Folgenden an, beim Auslösen von Photoelektronen aus einem Objekt werde ein Elektronenstrahl produziert, der sich in z-Richtung ausbreitet. Eine orts aufgelöste Abbildung dieses Objekts soll mit Hilfe einer elektrostatischen Linse erzeugt werden. Unter diesen Voraussetzungen manifestiert sich die Coulombwechselwirkung auf drei Arten: es treten **Raumladungseffekte**, der **Effekt der Trajektorienverschiebung** und der **Energieverbreiterungseffekt** auf [166].

Raumladungseffekte

Dieser Effekt beschreibt die Ablenkung eines Teilchens durch die gesamte, gemittelte Ladung aller anderen Teilchen. Die Ladungsdichte innerhalb des Strahl bei Vernachlässigung von externen Ladungen lässt sich in einer Potenzreihe darstellen [166]:

$$\rho(r, z) = \frac{I\sqrt{m/2eV}}{\pi r_0(z)^2} \left[a(z) + b(z) \left(\frac{r}{r_0(z)} \right)^2 + c(z) \left(\frac{r}{r_0(z)} \right)^4 + \dots \right], \quad (3.37)$$

wobei I die Stromstärke des Teilchenstrahls, m die Masse des geladenen Teilchens, V das Beschleunigungspotential, $r_0(z)$ der Außendurchmesser des Strahls und a, b, c Parameter der Reihenentwicklung sind. Nach Voraussetzung ist $\rho(r, z) = 0$ für $r \geq r_0$. Die zu lösende Bewegungsgleichung (3.35) enthält dann einen zusätzlichen Term, der eine Funktion der Ladungsdichte $\rho(r, z)$ ist. Man unterscheidet zwei Fälle, je nachdem ob eine homogene oder eine inhomogene Ladungsverteilung vorliegt.

Die homogene Ladungsverteilung ist charakterisiert durch $a(z)=1$, $b(z)=c(z)=\dots=0$. Unter der Annahme eines Strahls mit rundem Querschnitt ist die Ablenkung eines Teilchens abhängig von seinem Abstand zur Mittelachse. Ein Strahl geladener Teilchen mit dem Radius $r_0(z)$ werde mit einer elektrostatischen Linse der Fokallänge f an eine bestimmte

Stelle fokussiert. Die homogen verteilte Raumladung bewirkt dann eine Verschiebung der Fokusslage um Δz_f gegenüber dem Fall, dass keine Wechselwirkung zwischen den Partikeln stattfindet. Die Raumladung bewirkt in diesem Fall also eine **Defokussierung** des Strahls. Der Effekt ähnelt der sphärischen Abberation [Abbildung 3.33]. Die Größe der Verschiebung der Fokusslage für ein zylindrisches Strahlsegment der Länge L ist gegeben durch [166]:

$$\Delta z_f = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{m}{2e}\right)^{1/2} \cdot \frac{a(z)IL}{r_0^2 V^{3/2}} f^2. \quad (3.38)$$

Da $\Delta z_f \propto f^2$, kann der Effekt der Defokussierung durch Anpassung der Brennweite des Linsensystems ausgeglichen werden. Da aber $\Delta z_f \propto I$, tritt bei Teilchenstrahlen, deren Stromstärke zeitlich variiert, eine zeitabhängige Fokusverschiebung auf.

Ist die Ladungsverteilung inhomogen, so tritt eine geometrische Aberration auf, die durch den quadratischen Term in der Reihenentwicklung der Ladungsdichte [Gleichung (3.37)] beschrieben wird. Die auftretende sphärische Aberration kann quantifiziert werden durch den folgendermaßen definierten Koeffizienten C_s [166]:

$$C_s = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \left(\frac{m}{2e}\right)^{1/2} \cdot \frac{-b(z)IL}{2r_0^4 V^{3/2}} f^4. \quad (3.39)$$

Die durch die Raumladung verursachte sphärische Aberration ist demnach besonders bedeutend für elektrostatische Linsensysteme mit großer Fokallänge.

Bisher sind nur Wechselwirkungen der Teilchen innerhalb des Strahls betrachtet worden. Es ist aber auch möglich, dass die Raumladung durch externe Ladungsträger gebildet wird [165]. In diesem Falle kann die Raumladung entweder gleich oder entgegengesetzt zu den Partikeln im Strahl geladen sein. Der erste Fall hat die beschriebene Defokussierung, der zweite eine Fokussierung des Elektronenstrahls zur Folge. Man spricht von **Gas-Fokussierung**. Die Größe des Effekts hängt von der Größe der Raumladung ρ und von den Eigenschaften des Strahls wie Intensität und Geschwindigkeit der Partikel ab. Einer Abschätzung zu Folge tritt ein solcher Effekt für $\rho \geq 10^{-11}$ C/cm³ auf [167].

Effekt der Trajektorienverschiebung und Energieverbreiterungseffekt

Im Gegensatz zu den Raumladungseffekten rühren die Effekte der Trajektorienverschiebung und der Energieverbreiterung von Fluktuationen in der Ladungsdichte im Strahl her. Diese stammt von der stochastischen Natur des Strahls und ist daher ein statistischer Effekt. Der Effekt der Trajektorienverschiebung beschreibt die laterale Verschiebung in der Position der Teilchen und die Änderung der Geschwindigkeitskomponente der Teilchen senkrecht zur Strahlachse. Im Zuge dessen kommt es auch zu einer Änderung der Geschwindigkeit der Teilchen in axialer Richtung, die zu einer Verbreiterung der Energieverteilung der Strahlpartikel führt [166].

Aufgrund dieser Coulombwechselwirkung wird ein einzelnes geladenes Teilchen eine Abweichung von seiner ungestörten Bahn erfahren. Wegen seiner statistischen Natur wird ein zweites Teilchen, welches die Ladungsverteilung zu einer späteren Zeit passiert, durch eine andere Ladungsverteilung beeinflusst und daher anders abgelenkt werden. Die Trajektorienverschiebung kann quantifiziert werden durch Angabe der **Winkelverschiebung** $\Delta\alpha$ [166]:

$$\Delta\alpha = \frac{\Delta v_{\perp}}{v_z}. \quad (3.40)$$

Dabei ist Δv_{\perp} die Änderung der transversalen Geschwindigkeitskomponente und v_z die axiale Geschwindigkeit des Testteilchens. Die Winkelverschiebung hängt mit der örtlichen Verschiebung Δr zusammen über [166]:

$$\Delta r = \Delta\alpha |z - z_i|. \quad (3.41)$$

Dabei ist $|z - z_i|$ der Abstand zwischen dem Ort der Ablenkung und der Bildebene. Betrachtet man ein zylindrisches Segment der Länge L und des Radius r_0 , so gilt für die Winkelverschiebung [166]:

$$\Delta\alpha_e = C_e \frac{m^{1/3}}{\varepsilon_0} \frac{I^{2/3} L}{V^{4/3} r_0^{4/3}}. \quad (3.42)$$

Die Größen sind gleich bezeichnet wie in Gleichung (3.37), C_e ist eine Konstante. Wird das betrachtete Strahlsegment mit Hilfe einer elektrostatischen Linse der Fokallänge f fokussiert, so lässt sich die örtlichen Verschiebung schreiben als [166]:

$$\Delta r = f \cdot \Delta\alpha. \quad (3.43)$$

Der Effekt der Energieverbreiterung beruht auf der Geschwindigkeitsänderung Δv_z der Teilchen in axialer Richtung. Diese kann berechnet werden über die folgende Formel [166]:

$$\Delta v_z = \frac{F_z \cdot t}{m}. \quad (3.44)$$

Dabei bezeichnet F_z die kombinierte Kraft in Bewegungsrichtung erzeugt durch alle anderen Teilchen und t die Flugzeit.

Der Beitrag eines zylindrischen Segments der Länge L und des Radius $r_0(z)$ zur Energieverbreiterung kann geschrieben werden als [166]:

$$\frac{\Delta E_e}{E} = C'_e \frac{m^{1/3}}{\varepsilon_0} \frac{I^{2/3} L}{V^{4/3} r_0^{4/3}}. \quad (3.45)$$

Für das aktuelle Experiment bedeutend sind insbesondere Experimente, bei denen die Elektronenpulse durch das Auslösen mit ultrakurzen Lichtpulsen erzeugt werden. So ist bei Zweiphotonen Photoemission aus einer Cu Oberfläche mit ultrakurzen NIR Pulsen ($\lambda = 800$ nm, $\tau = 40$ fs) eine \sqrt{N} - Abhängigkeit der Energieverbreiterung von der Anzahl N der Elektronen in dem ausgelösten Elektronenpuls beobachtet worden [168]. Zusätzlich kommt es zu einer Verschiebung des Signalschwerpunkts und zur Ausbildung einer asymmetrischen Linienform.

Einfluss externer Magnetfelder

Die Kraftwirkung in einem Magnetfeld \vec{B} auf ein Teilchen mit der Ladung q und der Geschwindigkeit \vec{v} ist durch die Lorentzkraft $\vec{F}_L = q \cdot \vec{v} \times \vec{B}$ gegeben. Während diese Kraftwirkung gezielt zur Konstruktion von magnetischen Linsensystemen ausgenutzt werden kann [165], ist sie für elektrostatische Linsensysteme ein unerwünschter Effekt, da sie die Qualität einer Abbildung reduziert. Das geladene Teilchen der Masse m und der Ladung q bewege sich in Richtung der z -Achse mit der Geschwindigkeit v_z . Diese wird als konstant angenommen, da nur im Grenzbereich zwischen zwei Linsenelementen eine Beschleunigung in Ausbreitungsrichtung erfolgt [Abbildung 3.31]. Durchläuft das Teilchen eine Strecke der Länge s_z , so sorgt ein Magnetfeld B_x am Ende der Wegstrecke für eine Verschiebung um Δs_y (B_y verursacht dementsprechend eine Verschiebung um Δs_x). Eine einfache Abschätzung liefert:

$$\Delta s_{x,y} = \frac{1}{2} \frac{q B_{y,x} \cdot s_z^2}{m} \frac{1}{v_z}. \quad (3.46)$$

Damit ist die durch das Magnetfeld induzierte Ablenkung besonders groß für langsame Teilchen. Wegen $\Delta s \propto \frac{1}{m}$ werden bei gleichem v_z schwere Ionen weniger durch Magnetfelder beeinflusst als Elektronen.

Die Kraftwirkung auf die geladenen Teilchen stammen hauptsächlich von externen Magnetfeldern, insbesondere dem Erdmagnetfeld. In Mitteleuropa hat dieses etwa ein Stärke von $\sim 20 \mu\text{T}$ (horizontale Komponente) bzw. $\sim 44 \mu\text{T}$ (vertikale Komponente). Da die Kraftwirkung von der individuellen Geschwindigkeit des geladenen Teilchens abhängt und das Magnetfeld auch ortsabhängig ist, lässt sie sich nicht vollständig durch Anpassen der Potentiale an den Linsenelementen ausgleichen. Vielmehr muss durch ein zusätzliches homogenes Magnetfeld der Einfluss des externen Magnetfelds kompensiert werden.

4 Experimenteller Aufbau des XUV-NIR Kreuzkorrelators

Das folgende Kapitel beschäftigt sich mit dem experimentellen Aufbau eines Kreuzkorrelators zur Messung der Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH relativ zu den NIR Pulsen des zeitlich synchronisierten Ti:Sa Lasersystems am Experimentierplatz. Es lassen sich durch geringe Modifikationen ohne Bruch des Vakuums drei voneinander unabhängige Kreuzkorrelationsexperimente durchführen. Den Gesamtaufbau des Experiments beschreibt Kapitel 4.1. Die eigentliche Wechselwirkung zwischen den beiden Pulsen findet in einer speziell gefertigten Vakuumkammer statt, welche in Kapitel 4.2 vorgestellt wird. Nach dem Austritt aus der optischen Beamline muss die NIR Strahlung in diese Wechselwirkungskammer gelenkt werden. Mit dem dazu benutzten optischen Aufbau sowie der zeitlichen Charakterisierung der NIR Referenzpulse beschäftigt sich Kapitel 4.3. Eine der Kreuzkorrelationsmethoden beruht auf laserunterstützter Photoionisation. Beide Pulse werden in einem Edelgastarget senkrecht gekreuzt. An den Orten zeitlichen Überlapps wird die Energieverteilung der emittierten Photoelektronen aufgrund der Ausbildung von Seitenbändern moduliert. Aus der örtlichen Lage dieses Kreuzkorrelationssignals innerhalb der Wechselwirkungszone kann auf die relative Ankunftszeitdifferenz geschlossen werden. Zur Aufnahme der notwendigen orts aufgelösten Abbildung wird ein elektrostatisches Linsensystem benutzt, welches in Kapitel 4.4 vorgestellt wird. Das benötigte Targetgas wird mit einer Gasdüse [Kapitel 4.5] in das Wechselwirkungsvolumen eingelassen und das orts aufgelöste Signal mit einem Elektronendetektor nachgewiesen, mit dessen Aufbau sich das Kapitel 4.6 beschäftigt. Ein zweite Kreuzkorrelationsmethode basiert auf der Aufnahme von Ionen Flugzeitspektren. Kapitel 4.7 zeigt den Aufbau eines Flugzeitspektrometers unter Benutzung der E-Optik. Bei der dritten Kreuzkorrelationsmethode findet die Wechselwirkung auf einer Festkörperoberfläche statt. Hierfür wird die E-Optik nicht benötigt, stattdessen wird ein GaAs Kristall in die Wechselwirkungszone gebracht [Kapitel 4.8]. Das Kreuzkorrelationssignal basiert dann auf der XUV induzierten Änderung der optischen Reflektivität an dem Kristall. Notwendige Voraussetzung für die Aufnahme von Kreuzkorrelationssignalen ist örtlicher und zeitlicher Überlapp der beiden Pulse in der Wechselwirkungszone. Daher ist es wichtig, die Strahlage der XUV und der NIR Strahlung online überwachen zu können, genau wie die geometrischen Abmessungen beider Strahlen und insbesondere die von Schuss zu Schuss variierende Intensität der XUV Strahlung. Des Weiteren ist eine zeitliche Vorjustage beider Pulse notwendig. Mit den zu diesem Zweck eingesetzten Charakterisierungswerkzeugen beschäftigt sich das Kapitel 4.9.

4.1 Gesamtaufbau und Komponenten des XUV-NIR Kreuzkorrelators

Abbildung 4.1 zeigt eine 3D Darstellung des XUV-NIR Kreuzkorrelators. Der Aufbau umfasst folgende Komponenten:

- In der **Wechselwirkungskammer** findet die Kreuzkorrelation statt. XUV und NIR Puls kreuzen einander senkrecht im Zentrum dieser Kammer. Das Gebiet der Wechselwirkung beider Pulse wird im weiteren Verlauf als **Wechselwirkungszone** bezeichnet.
- Der mechanische Aufbau ermöglicht die Justage der gesamten Apparatur bezüglich der XUV Strahlrichtung.
- Der optische Aufbau für die NIR Strahlung umfasst eine justierbare Strahlführung, justierbare Fokussierlinsen, Detektionssysteme zur Überwachung von Strahlage und Strahlprofil sowie Aufbauten zur zeitlichen Charakterisierung der NIR Pulse.
- Mit einem elektrostatischen Linsensystem kann eine vergrößerte Abbildung der Wechselwirkungszone durch die von dort emittierten Photoelektronen erzeugt werden. Dieses System wird im Folgenden als **E-Optik** bezeichnet.
- Mit einem Detektor (Energiefilter+MCP+Leuchtschirm) und einer nachfolgenden CCD Kamera werden die orts- und energiesepariereten Emissionsbilder der Photoelektronen erfasst. Zusätzlich können auch Ionensignale detektiert werden.
- Aufbau zur Beschleunigung von in der Wechselwirkungszone erzeugten positiv geladenen Ionen. Dies ist notwendige Voraussetzung zur Aufnahme von Ionen Flugzeitspektren.
- Halter zur Positionierung eines GaAs Kristalls in der Wechselwirkungszone.
- Nachweissysteme zur Überwachung von Strahlage, Strahlprofil und Intensität der XUV Strahlung von FLASH.

Für das Experiment ist es notwendig, die Abmessungen des XUV Strahls örtlich einschränken zu können. Dazu wurden eine 1 mm Lochblende sowie senkrecht stehende Spaltblenden mit $60 \times 300 \mu\text{m}^2$ und $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ als Eintrittsaperturen benutzt. Der Abstand zwischen Eintrittsblende und Wechselwirkungszone beträgt 20 mm. Dieser Abstand ist so gewählt, dass Beugung der XUV Strahlung an den Aperturen vernachlässigbar ist. Die Blenden sind elektrisch isoliert montiert. Sie können mit einer Lineardurchführung (L-2111-1, *Huntington*) ohne Brechung des Vakuums im XUV Strahl positioniert werden. Durch das Anlegen einer gegenüber dem Erdpotential positiven Spannung an die Eintrittsblenden werden die Elektronen, die beim Auftreffen der XUV Pulse aus dem

Blendenmaterial auslöset werden, wieder eingefangen und am Diffundieren in die Wechselwirkungszone gehindert. Die elektrische Kontaktierung erfolgt über eine SHV Hochspannungsdurchführung und ein abgeschirmtes vakuumtaugliches Koaxialkabel. Um einen Durchgriff des Blendenpotentials in die Wechselwirkungszone zu verhindern, ist eine gerdete Abschirmelektrode hinter der Blende eingeführt. Zusätzlich wirken die Blenden als Druckstufe, um das durch das Targetgas belastete Vakuum in der Wechselwirkungskammer von der XUV Beamline zu separieren.

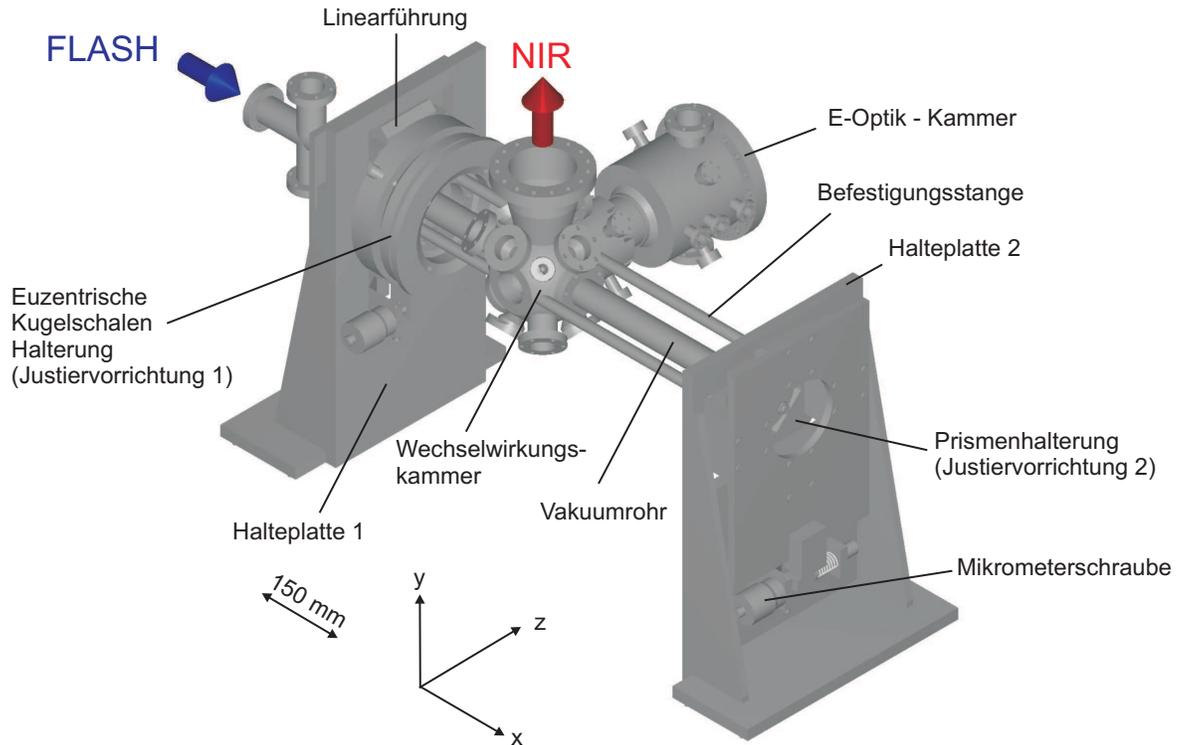


Abbildung 4.1: 3D CAD Zeichnung des XUV-NIR Kreuzkorrelators. Die Ausbreitungsrichtungen der XUV Strahlung von FLASH und der NIR Strahlung sind mit eingezeichnet. Das Dreibein gibt die im Text benutzten Referenzrichtungen x, y, z an. An den Halteplatten 1,2 sind y - z -Präzisions-Verschiebetische montiert, die über das Kugelschalen Ringlager bzw. über die Prismen-Messingscheiben Fixierung das Justieren der Eintrittsblende und der Strahlauslassblende bezüglich der XUV Strahlachse ermöglichen. Der 3. Justierpunkt ist durch eine Höhenabstützung der E-Optik-Kammer realisiert.

Die präzise Justage der Wechselwirkungskammer mit angeflanschter E-Optik zur Lage des XUV Strahls ist von besonderer Wichtigkeit. Die Strahlachse ist durch zwei Blenden festgelegt, nämlich die XUV Eintrittsapertur und eine 1 mm Blende aus Molybdän, die sich in einem Abstand von 430 mm hinter der Wechselwirkungszone befindet. Es ist notwendig, die gesamte Apparatur gezielt um diese beiden Blenden verkippen zu können. Die Justiervorrichtung ist daher so ausgeführt, dass die beiden Blenden zwei der drei notwendigen Justierpunkte sind. Als dritter Justierpunkt wird ein höhenverstellbarer Abstützpunkt am Ende der E-Optik-Vakuumkammer benutzt. Da der erste Justierpunkt innerhalb der

Wechselwirkungskammer liegt, ist eine euzentrische Kugelschalen Lagerung mit Zentrum in der Eintrittsblende eingesetzt worden. Das Prinzip ist in Abbildung 4.2 (a) erläutert.

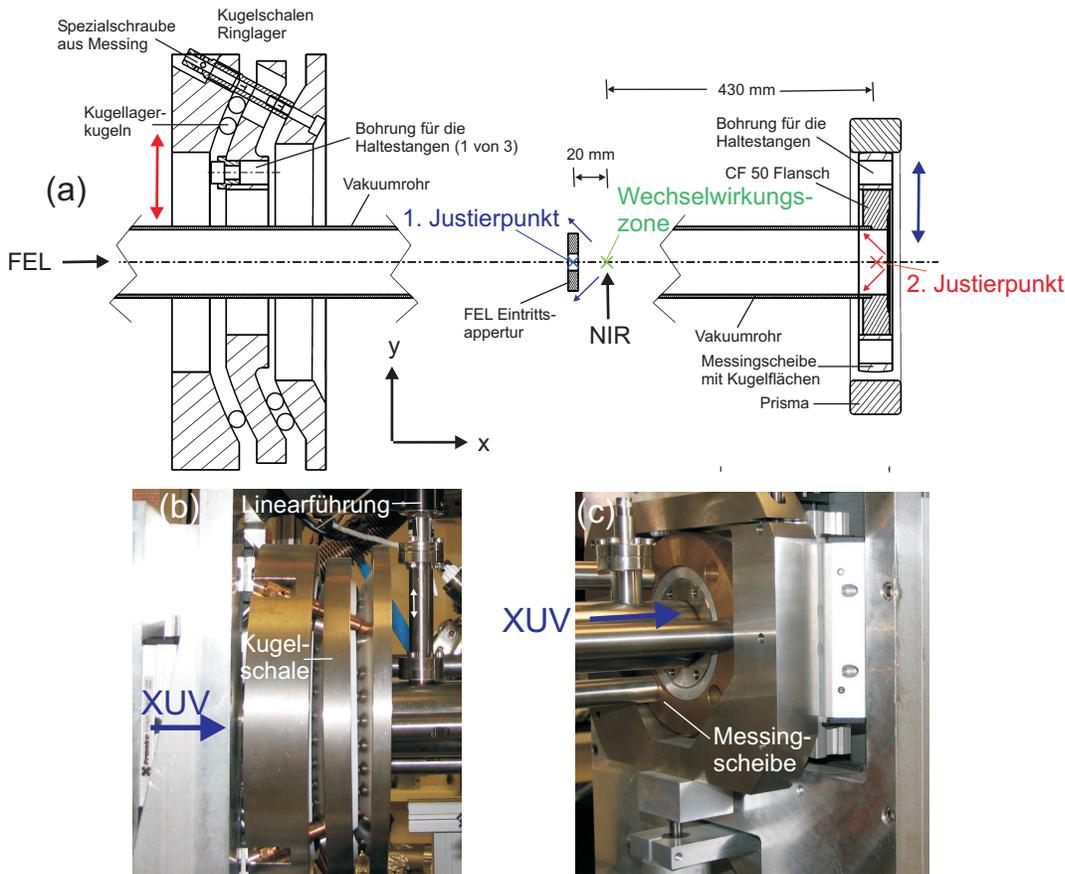


Abbildung 4.2: (a) Prinzip der Justage der Wechselwirkungskammer auf den XUV Strahl. Die Wechselwirkungskammer (der Übersichtlichkeit halber nicht mit eingezeichnet) ist mit der mittleren von drei Kugelschalenringen und einer Messingscheibe mit Kugelflächen verbunden, welche beweglich in einem Prisma gehalten ist. Wird die Justiervorrichtung 2 bewegt (blauer Pfeil), so ermöglicht die Bewegung des mittleren Kugelschalenrings eine Verkipfung der gesamten Apparatur um einen ortsfesten Punkt 20 mm vor der Wechselwirkungszone (1. Justierpunkt). In diesem Punkt befindet sich die Eintrittsapertur für die XUV Strahlung. Wird die Justiervorrichtung 1 bewegt (roter Pfeil), so wird die gesamte Apparatur um einen ortsfesten Punkt im Zentrum der Messingscheibe (2. Justierpunkt) verkippt. Hier befindet sich eine 1 mm Blende aus Molybdän. (b) Bild des Kugelschalen Ringlagers (Justiervorrichtung 1). Zu sehen ist auch die Lineardurchführung, mit welcher die gewünschte Eintrittsapertur ohne Bruch des Vakuums in den XUV Strahl gefahren werden kann. (c) Bild der Justiervorrichtung 2.

Die Wechselwirkungskammer ist auf der XUV Eintrittsseite über drei Edelstahlstangen an einem Kugelschalenring (Außenradius ~ 125 mm) befestigt, dessen Vorder- und Rückseite sphärische Flächen aufweisen. Dieser Kugelschalenring ist über 10 mm Lagerkugeln beweglich zwischen zwei miteinander verschraubten Kugelschalenringen gelagert [Abbildung 4.2 (b)]. Das Kugelschalen Ringlager ist mit einem y-z-Justierschlitten verbunden. Durch sein Zentrum verläuft das Verbindungsrohr zwischen Beamline und Wechselwirkungskam-

mer. Auf der XUV Austrittsseite ist die Wechselwirkungskammer ebenfalls mit drei Edelstahlstangen an einer Messingscheibe befestigt, die über eine Prismenhalterung mit Bewegungsfreiheit in x-Richtung an einem zweiten y-z-Justierschlitten verbunden ist [Abbildung 4.2 (c)]. Die Messingscheibe weist Kugelflächen auf, so dass eine Verkippung in der Prismenhalterung möglich ist. Beide y-z-Schlitten sind gegenüber zwei vertikal stehenden Halteplatten aus Aluminium (in Abbildung 4.1 bezeichnet als Halteplatte 1 und 2) präzise verstellbar. Diese Verstellung ist über Linearführungen (Serie FDD 25, *Franke*) und Mikrometerschrauben (Einbaumeßschraube 152-389, *Mitutoyo*) realisiert. Die beiden Halteplatten sind fest mit einem knapp 1,20 m hohen Untergestell aus Aluminium Profilen (*Minitec*) verbunden. Auf dieses Untergestell ist ein optisches Breadboard geschraubt, auf welchem das optische System zur Führung des NIR Strahls und die Werkzeuge zur zeitlichen Charakterisierung der NIR Laserpulse (siehe Kapitel 4.3) montiert sind.

4.2 Die Wechselwirkungskammer

Die Wechselwirkungskammer ist der Teil des Experiments, in welchem die Kreuzkorrelation stattfindet. Die Wechselwirkungszone liegt im Zentrum der Kammer; in ihr kreuzen die beiden ultrakurzen Pulse einander senkrecht. Bei der Konstruktion und Fertigung der Vakuumkammer waren folgende Aspekte wichtig:

- Möglichst kompakte Bauweise, gleichzeitig aber die Ausstattung mit möglichst vielen Flanschen zur Anbringung von Justage- oder Nachweissystemen.
- Kompatibilität mit bereits vorher vorhandenen Komponenten (z.B. E-Optik).
- Fertigung sämtlicher Komponenten aus nicht magnetisierbarem Edelstahl.
- Genaue Ausrichtung aller Flansche auf das Zentrum der Kammer.

Abbildung 4.3 zeigt 3D CAD Zeichnungen der Wechselwirkungskammer. Über den Flansch (13) wird die E-Optik (welche in Kapitel 4.4 vorgestellt wird) mit der Wechselwirkungskammer verbunden. Die Strahlung von FLASH betritt die Kammer zentral durch den Flansch (2) und verlässt sie durch den Flansch (3). Die fokussierte NIR Strahlung durchläuft die Kammer senkrecht dazu entlang der y-Achse. Die Wechselwirkungskammer wird mit einer Turbomolekularpumpe (*Leybold TW 70*), die ölfrei arbeitet und ein geringes magnetisches Streufeld aufweist, evakuiert. Zur Erzeugung eines möglichst partikelfreien Vakuums wird als Vorpumpe eine ölfreie Scrollpumpe benutzt. Ohne Ausheizen wird ein Hintergrundsdruck von $p_b = 8 \cdot 10^{-8}$ mbar erreicht. Gemessen wird der Druck über ein elektronisches Ionisationsvakuummeter (*Ionivac ITR 90 PB*, *Leybold*). Der von diesem Gerät angegebene Druck p'_x (x steht für das Gas) muss aber mit einem Korrekturfaktor C_x multipliziert werden, um den tatsächlichen Druck p_x zu erhalten [169]. Für die benutzten Edelgase sind dies $C_{Ne} = 4,1$; $C_{Kr} = 0,5$ und $C_{Xe} = 0,4$. Im weiteren Verlauf der Arbeit wird immer der Druck p_x angegeben.

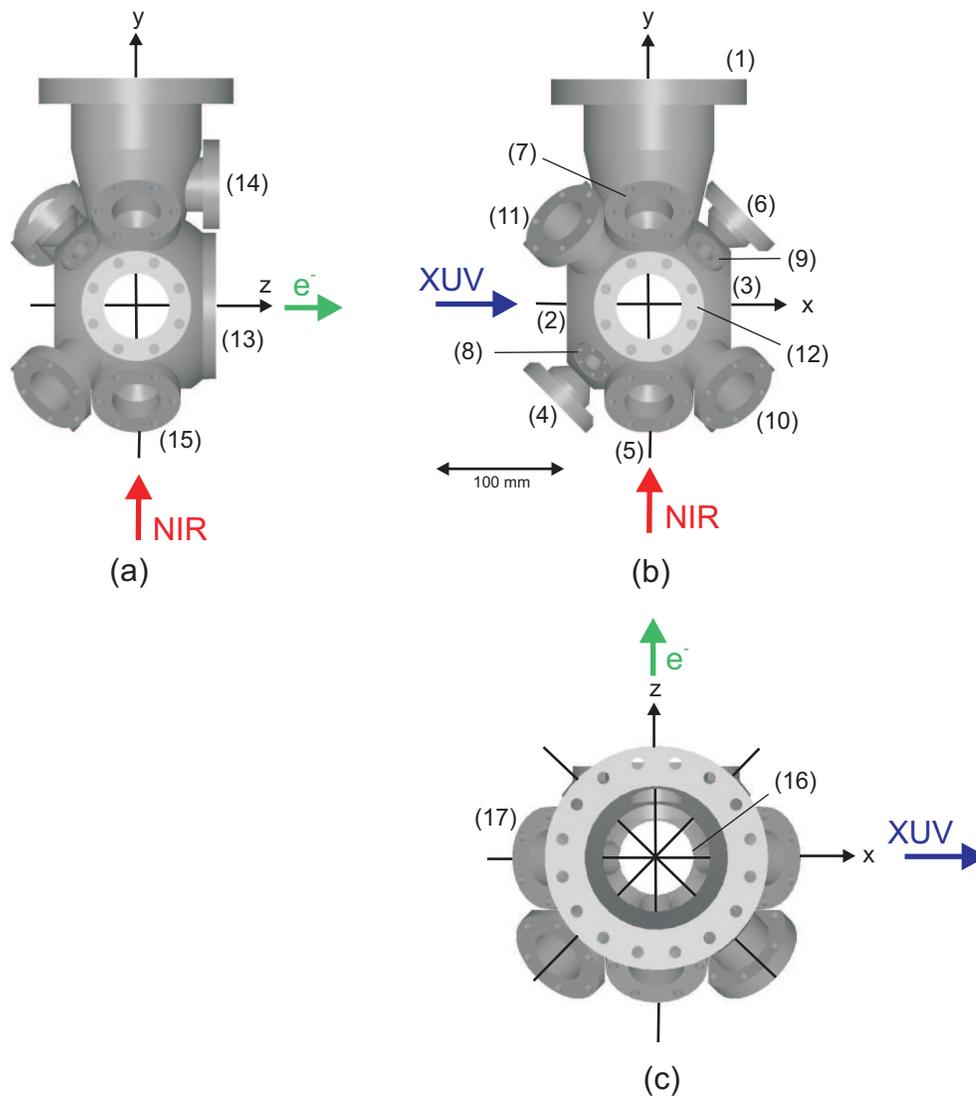


Abbildung 4.3: 3D CAD Zeichnung der Wechselwirkungskammer. Die insgesamt 17 Vakuumflansche sind zur leichteren Verständlichkeit jeweils mit Nummern versehen. (a) Ansicht in der yz -Ebene. Die XUV Strahlung läuft aus der Papierebene hinaus. Die E-Optik ist an den Flansch (13) geschraubt. (b) Ansicht in der xy -Ebene. Die emittierten Photoelektronen bewegen sich in die Papierebene hinein. (c) Ansicht in der xz -Ebene. Die NIR Strahlung läuft aus der Papierebene hinaus.

Kameras zur Online Überwachung

Für die Aufnahme von Kreuzkorrelationssignalen bzw. zur Überwachung verschiedener Strahlparameter wie Strahl Lage und Strahlgröße werden insgesamt fünf CCD Kameras eingesetzt. Diese Kameras werden im Folgenden aufgelistet. Der Einfachheit halber werden die Kameras durchnummeriert und im weiteren Verlauf der Arbeit wird die jeweilige Kamera durch Angabe der entsprechenden Nummer gekennzeichnet.

- **Kamera 1:** QICAM Fast 1394,Q Imaging (1/2" Chip, 1392 x 1040 Pixel, Pixelgröße $4,65 \times 4,65 \mu\text{m}^2$). Sie ist positioniert hinter einem Fensterflansch am Ende der E-Optik-Vakuumkammer [Abbildung 4.1].
- **Kamera 2:** The Imaging Source, DMK 21 BF 04 (1/4" Chip, 640 x 480 Pixel, Pixelgröße $5,6 \times 5,6 \mu\text{m}^2$). Sie ist am Flansch (12) der Wechselwirkungskammer gegenüber der E-Optik montiert.
- **Kamera 3:** The Imaging Source, DMK 21 BF 04 (1/4" Chip, 640 x 480 Pixel, Pixelgröße $5,6 \times 5,6 \mu\text{m}^2$). Sie ist am Flansch (4) der Wechselwirkungskammer unter einem Winkel von 45° bezüglich der x-Achse montiert.
- **Kamera 4:** The Imaging Source, DMK 21 BF 04 (1/4" Chip, 640 x 480 Pixel, Pixelgröße $5,6 \times 5,6 \mu\text{m}^2$). Sie ist in den optischen Aufbau integriert [siehe Abbildung 4.4].
- **Kamera 5:** Lumenera, LU 100 Series (1/2" Chip, 1280 x 1024 Pixel, Pixelgröße $5,2 \times 5,2 \mu\text{m}^2$). Sie ist am Flansch (1) der Wechselwirkungskammer in Ausbreitungsrichtung der NIR Strahlung befestigt.

4.3 NIR Optik Aufbau des XUV-NIR Kreuzkorrelators

Abbildung 4.4 zeigt eine 3D Skizze des optischen Aufbaus für die NIR Strahlung beim XUV-NIR Kreuzkorrelator. Die kurzen NIR Pulse ($\lambda_{\text{nir}} = 800 \text{ nm}, \tau_{\text{nir}} \approx 120 \text{ fs}$) treten in der Nähe des Messplatzes aus einem Fensterflansch der optischen Beamline aus.

Die Beamlinehöhe ist 1,5 m über dem Boden. Die NIR Strahlung wird mit dielektrischen Spiegeln $S_1 - S_4$ von unten in die Wechselwirkungskammer gelenkt. Anschließend wird die Strahlung mit Hilfe von Linsen auf die gewünschte Größe fokussiert. Die drei Spiegel $S_2 - S_4$ sind auf einem optischen Breadboard befestigt, welches auf das Untergestell des Kreuzkorrelators geschraubt ist und dessen Oberkante sich ca. 1,20 m über dem Boden befindet. Alle vier Spiegel sind hochreflektierend für 800 nm Strahlung, die an ihnen auftretende Dispersion ist nach Gleichung (3.6) bei der Pulsdauer von $\approx 120 \text{ fs}$ vernachlässigbar. Da der Wirkungsquerschnitt für laserunterstützte Photoionisation maximal ist bei Parallelität von der Ausbreitungsrichtung der Photoelektronen und der Polarisationsrichtung der Strahlung [Gleichung (3.32)], muss die NIR Strahlung in z-Richtung linear polarisiert

sein. Die Polarisation kann durch eine $\lambda/4$ Platte im Laserlabor eingestellt werden, deren Überprüfung am Messplatz erfolgt mit einer NIR Fotodiode und einem Polarisator.

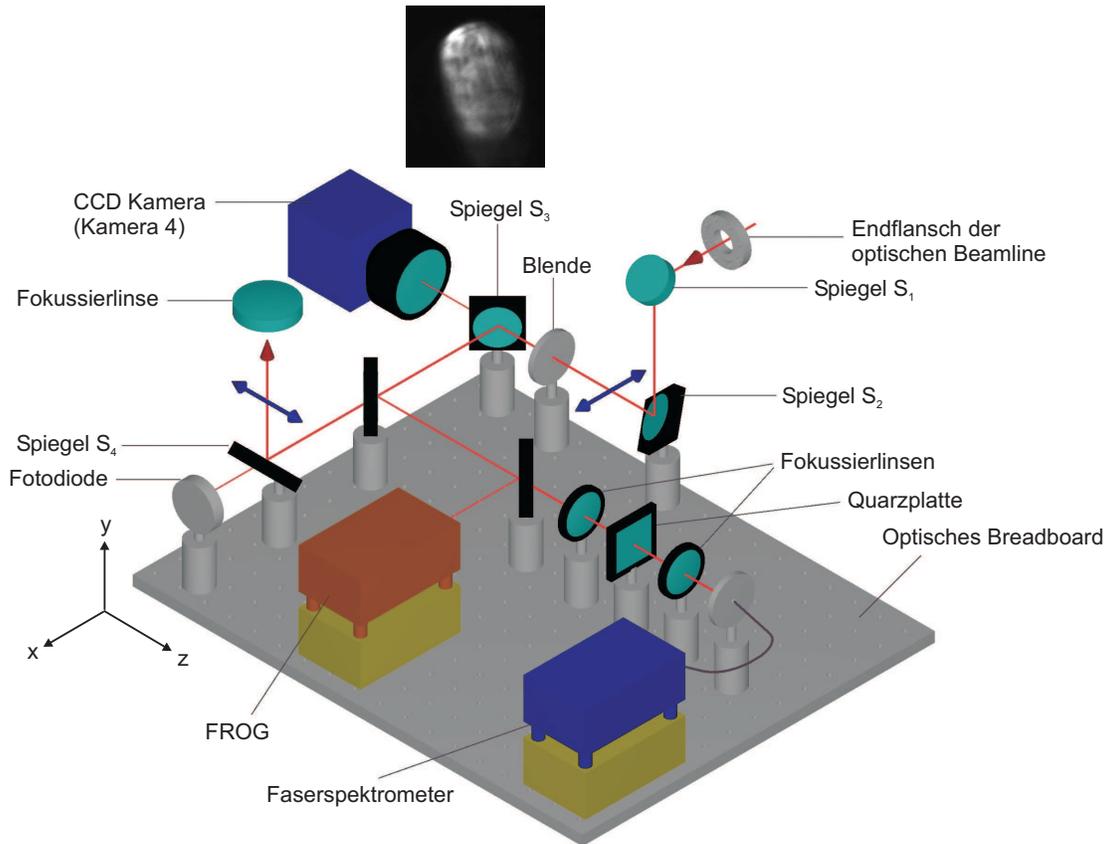


Abbildung 4.4: Prinzipskizze des NIR Aufbaus am XUV-NIR Kreuzkorrelator. Die NIR Pulse werden nach dem Austritt aus der optischen Beamline mit Hilfe der hochreflektierenden Spiegel $S_1 - S_4$ in Richtung der Wechselwirkungskammer gelenkt und anschließend auf die gewünschte Geometrie fokussiert. Die Strahlung ist linear polarisiert, der Polarisationsvektor (blau) zeigt in Ausbreitungsrichtung der Photoelektronen. In den Aufbau integriert sind eine CCD Kamera zur Überwachung des Strahlprofils (eine typische Aufnahme ist gezeigt), eine Fotodiode zur Triggerung und ein FROG bzw. Faserspektrometer zur zeitlichen Charakterisierung der Pulse.

Die Kamera 4 ist in den optischen Aufbau integriert. Sie detektiert den durch S_3 transmittierten Anteil der NIR Strahlung und damit möglicherweise auftretende Änderungen der NIR Strahlage. Hinter dem letzten Umlenkspiegel S_4 ist eine Fotodiode montiert, deren Signal als Triggersignal benutzt werden kann. Die Linsen zur Fokussierung der NIR Strahlung sind mit einer Antireflexschicht für den NIR Spektralbereich versehen (*Broadband AR coating B, Thorlabs*). Simulationen mit der Software SLNO [170] zeigen, dass die NIR Pulse durch die Fokussierung und das nachfolgende Durchqueren des Vakuumfensters zeitlich quasi nicht verlängert werden und in der Wechselwirkungszone immer noch Pulslängen von ≈ 120 fs vorliegen.

4.3.1 Zeitliche Charakterisierung der NIR Pulse

Für die Interpretation von Kreuzkorrelationssignalen ist die Kenntnis der Pulsdauer der NIR Referenzpulse bedeutend. Zu diesem Zweck sind ein **FROG** und ein Aufbau zur Aufnahme von **Weißlichtspektren** bestehend aus zwei Linsen, einer Quarzplatte und einem Spektrometer (*Aventes*) in den optischen Aufbau integriert. Durch einen Strahlteiler im Strahlengang kann ein Teil der Strahlung in das jeweils gewünschte Diagnosegerät gelenkt werden.

FROG

Die Methode des **frequenz aufgelösten optischen Taktens** (Frequency-Resolved Optical Gating) [171], im weiteren Verlauf als FROG bezeichnet, ist eine etablierte Methode zur zeitlichen Charakterisierung ultrakurzer Pulse. Er besteht aus einem **Autokorrelator** [172], bei welchem der Signalpuls zusätzlich spektral aufgelöst wird. Dieser Signalpuls wird erzeugt durch die Wechselwirkung zweier zeitlich verzögerter Pulse, die durch Strahlteilung aus dem zu charakterisierenden Puls erhalten werden, in einem optisch nicht-linearen Kristall [173]. Während die Autokorrelation allein die absolute Bestimmung der Pulslänge zulässt, aber ohne zusätzliche Information keine Aussagen über die Pulsform liefert [174], lässt sich mit einem FROG das zeitliche Intensitätsprofil des Eingangspulses vollständig rekonstruieren [175]. Allerdings ist ein FROG gekennzeichnet durch sehr empfindliche Justage (man hat mehrere empfindlich einstellbare Freiheitsgrade!) [176].

Weißlichtspektren

Fokussiert man einen intensiven ultrakurzen Laserpuls mit der spektralen Breite $\Delta\nu$ in ein transparentes Medium, so beobachtet man eine starke spektrale Verbreiterung [177]. Das entstehende Spektrum wird als Weißlichtspektrum bezeichnet. Die Verbreiterung beruht in erster Linie auf der im Material auftretenden Selbstphasenmodulation [Kapitel 3.2], einer Vierwellenmischung und dem sogenannten "self-steepening" [178]. Das Weißlichtspektrum kann durch Fokussierung von intensiven fs bzw. ps Pulsen in Kristallen [179], organischen Filmen [180] wie auch in Gasen [181] beobachtet werden. Die spektrale Breite des Weißlichtspektrums ist umso größer, je kürzer der einfallende Puls ist, welcher das Spektrum erzeugt. Indem die NIR Strahlung auf eine Quarzplatte fokussiert und die emittierte Strahlung über eine Glasfaser in das Spektrometer eingekoppelt wird [Abbildung 4.4], können qualitative Aussagen über die Pulsdauer der NIR Pulse gemacht werden.

Bestimmung der Pulsdauer τ_{nir} und der Pulsform

Abbildung 4.5 zeigt eine FROG Messung der NIR Pulse am Experimentierplatz. Aus der Entfaltung der Autokorrelationskurve (Halbwertsbreite $\Delta\tau$) ergibt sich die Pulsdauer zu $\tau_{\text{nir}} \approx 114$ fs (FWHM). Durch die spektral aufgelöste Messung lässt sich die Pulsform der NIR Pulse rekonstruieren. Es ergibt sich in guter Näherung ein Sekans Hyperbolikus Puls, in Übereinstimmung mit der erwarteten Form der Pulse eines modengekoppelten Festkörperlaser [182].

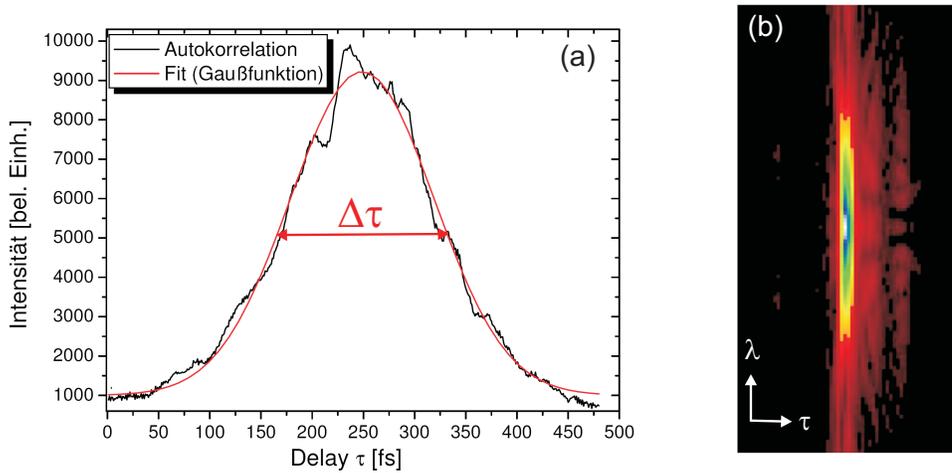


Abbildung 4.5: FROG Messungen zur zeitlichen Charakterisierung der NIR Pulse. (a) Autokorrelationsmessung. In rot ist der Fit einer Gaußfunktion an die Daten gezeigt, welche eine Halbwertsbreite von $\Delta\tau$ hat. (b) Spektral aufgelöstes FROG Bild zur Rekonstruktion der Pulsform.

Optimale zeitliche Komprimierung der NIR Pulse

Sowohl Weißlicht als auch FROG Messungen können dazu eingesetzt werden, die optimalen Einstellungen am Kompressor zu finden. Abbildung 4.6 zeigt die durch die Autokorrelation mit dem FROG ermittelte Pulsdauer τ_{nir} als Funktion der Kompressoreinstellungen.

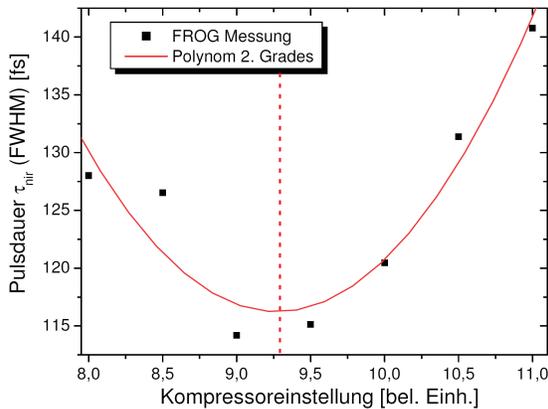


Abbildung 4.6: Über FROG ermittelte Pulsdauer der NIR Pulse am Experimentierplatz als Funktion der Gitterkompressorposition. In rot ist ein an die Messdaten gefittetes Polynom 2. Ordnung zu sehen. Die minimale Pulsdauer bei optimaler Komprimierung beträgt am Messplatz $\tau_{\text{nir}} \approx 114$ fs (FWHM).

4.3.2 Bestimmung von Strahlprofil und Intensität der NIR Strahlung

Für die Kreuzkorrelationsmessungen, welche auf der XUV induzierten Änderung der optischen Reflektivität auf einer Festkörperoberfläche basieren, wird die unfokussierte NIR Strahlung benutzt worden. Im Gegensatz dazu wird bei den anderen beiden Kreuzkorrelationsmethoden die NIR Strahlung auf ein rundes Profil fokussiert. Zusätzlich kommt bei den Kreuzkorrelationsmessungen, welche auf der laserunterstützten Photoionisation

beruhen, ein Linienfokus zum Einsatz. Beide Fokusgeometrien werden im Folgenden vorgestellt.

Rundfokus

Der Rundfokus wird mit Hilfe eines Achromaten für 800 nm mit nomineller Brennweite von $f = 100$ mm erzielt [Abbildung 4.7 (a)]. Der Achromat ist über Präzisionsverschiebetische in x- und y-Richtung verschiebbar gegenüber einer Halterung gelagert [Abbildung 4.7 (b)]. Letztere ist über Stangen starr mit dem unteren CF 50 Flansch der Wechselwirkungskammer [Flansch (16) in Abbildung 4.3] verbunden.

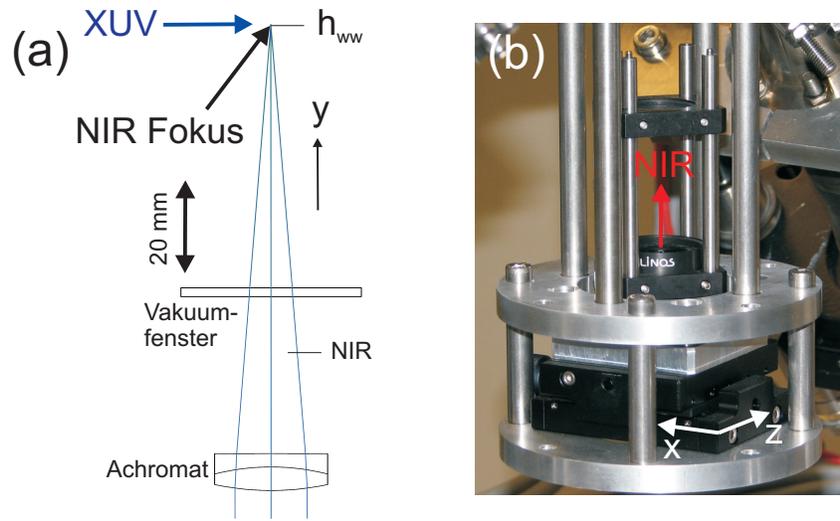


Abbildung 4.7: (a) Schematische Darstellung des optischen Aufbaus zur Erzeugung des NIR Rundfokus. Die Fokussierung erfolgt durch einen Achromaten für 800 nm, welcher außerhalb des Vakuums justierbar gelagert ist. Der NIR Puls durchläuft nach der Linse noch ein Eintrittsfenster in die Wechselwirkungskammer, welches ca. 40 mm von der Linse entfernt ist. (b) Bild der justierbaren Halterung für den Achromaten. Zu sehen sind die optischen Präzisionsverschiebetische und der Anbau an die Wechselwirkungskammer.

Simulation des Strahlprofils im Fokus

Die Fokussierung der Strahlung durch den Achromaten wird mit OSLO [183] simuliert. Bei den meisten optischen Problemen kann der Wellencharakter des Lichtes vernachlässigt und das Problem auf ein Strahlphänomen beschränkt werden. Man spricht in diesem Fall von **geometrischer Strahlenoptik**. Mit dieser kann das Verhalten eines optischen Aufbaus vorhergesagt werden. Dazu wird ein Objekt im Strahlengang in eine große Anzahl von kleinen Flächen aufgeteilt und die Strahlen durch das Zentrum jeder dieser Flächen wird verfolgt. Die Schnittpunkte dieser Strahlen mit der gewählten Bildebene wird als **Spotdiagramm** bezeichnet. In einem perfekten optischen System, bei welchem die Abbildungsfehler vernachlässigt werden, können die Strahlen nicht in einem Punkt zusammenlaufen, sondern man erhält in der Bildebene ein Objekt mit einer Mindestgröße. Man spricht vom **Beugungslimit**. Das Durchlaufen der NIR Strahlung durch den Achromaten kann in guter

Näherung durch Beugung an einer runden Apertur beschrieben werden. Man erhält als Beugungsbild ein System von konzentrischen hellen und dunklen Kreisen. Das zentrale, helle Scheibchen, das Airy-Scheibchen, hat einen Radius von [184]:

$$r_{\text{Airy}} = \frac{0,61 \cdot \lambda}{\text{NA}}. \quad (4.1)$$

Dabei ist $\text{NA} = n \cdot \sin \alpha$ die numerische Apertur, α der halbe Öffnungswinkel zum Bild (Akzeptanzwinkel) und n der Brechungsindex zwischen Bild und optischem Element.

Normalerweise ist ein optisches System aber nicht perfekt. Seine Güte kann angegeben werden durch die **Modulations Transfer Funktion** (MTF). Sie kann aus dem Spotdiagramm gewonnen werden, indem dieses in einer Richtung in kleine Segmente aufgespalten wird und die Zahl der Punkte in jedem dieser Segmente gezählt wird. Details können der Referenz [184] entnommen werden. Die MTF ist der Realteil der sogenannten **Optischen Transfer Funktion** (OTF). Diese wiederum ist die Fouriertransformierte der sogenannten **Punktspreizfunktion** (Point Spread Function). Sie ist das Beugungsbild eines Punktobjekts, d.h. sie gibt Auskunft darüber, wie ein als punktförmig angenommenes Objekt in der Objektebene durch das optische System abgebildet wird.

Für die Simulation wird angenommen, der einfallende Puls habe ein gaußförmiges örtliches Strahlprofil mit einer Halbwertsbreite von ~ 16 mm. In der Simulation wird das Gaußprofil dadurch berücksichtigt, dass die auf das Objekt einfallenden Strahlen mit unterschiedlichen Wichtungsfaktoren multipliziert werden. Für das System aus Abbildung 4.7 (a) ergibt sich nach Gleichung (4.1) eine beugungsbegrenzte Größe von $r_{\text{Airy}} \approx 6,1 \mu\text{m}$. Da die Gaußfunktion invariant unter Fouriertransformation ist, wird folglich bei Annahme eines perfekten optischen Systems aus dem einfallenden Gaußstrahl mit ~ 16 mm Halbwertsbreite im Fokus ein Gaußstrahl mit $\sim 12,2$ mm Halbwertsbreite.

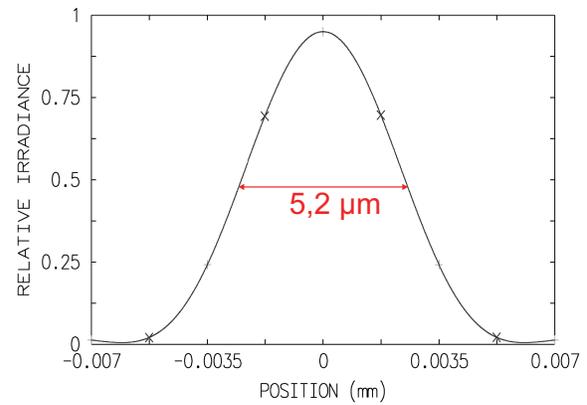
In einem realen System ergibt sich die Intensitätsverteilung im Fokus aus der Faltung des beugungsbegrenzten Gaußprofils und der Punktspreizfunktion. In Abbildung 4.8 ist die mit OSLO simulierte Punktspreizfunktion für das optische System aus Abbildung 4.7 (a) zu sehen. Sie weist auch ein gaußförmiges Profil mit einer Halbwertsbreite von $\approx 5,2 \mu\text{m}$ auf.

Die Gaussverteilung ist invariant unter Faltung, d.h. die Faltung von zwei Gausskurven mit den Halbwertsbreiten Δs_a und Δs_b ergibt wiederum eine Gausskurve mit der Halbwertsbreite

$$\Delta s_c = \sqrt{\Delta s_a^2 + \Delta s_b^2}. \quad (4.2)$$

Aus der Faltung des beugungsbegrenzten Gaußprofils und der Punktspreizfunktion ergibt sich damit im Fokus ein rundes Strahlprofil mit gaußförmiger Intensitätsverteilung und einer Halbwertsbreite von $\approx 13,2 \mu\text{m}$.

Abbildung 4.8: Punktspreizfunktion für den Aufbau aus Abbildung 4.7 (a) simuliert mit dem Programm OSLO.



Messung des NIR Strahlprofils im Fokus

Abbildung 4.9 zeigt den gemessenen Rundfokus der NIR Strahlung von oben aufgenommen mit der geeichten Kamera 5 und einen Intensitätsplot entlang der x -Achse (Ausbreitungsrichtung der XUV Strahlung). Der Gaußfit hat eine Halbwertsbreite von $\Delta x_{\text{nir}} \approx 13 \mu\text{m}$. Dieser gemessene Wert stimmt ausgezeichnete mit der Simulation überein.

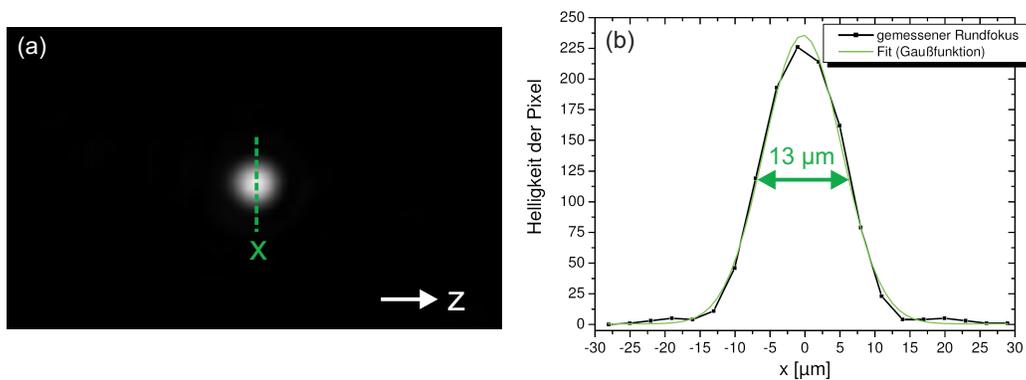


Abbildung 4.9: (a) Mit Kamera 5 von oben aufgenommener NIR Rundfokus in der Wechselwirkungszone. (b) Schnitt durch den Fokus entlang der in grün markierten Schnittlinie in x -Richtung.

Bei der Abschätzung der NIR Intensität wird folgendes angenommen:

- Die Pulsenergie E_{nir} liegt bei $\approx 15 \mu\text{J}$.
- Die Transmission der NIR Strahlung durch den Achromaten und das Vakuumfenster ist zu $\geq 90 \%$ bestimmt worden.
- Das zeitliche Profil hat eine Sekans Hyperbolikus Form (FROG Messungen).
- Die Pulsdauer ist $\tau_{\text{nir}} \approx 120 \text{ fs}$.

Damit ergibt sich nach Gleichung (9.4): $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$.

Linienfokus

Bei den Kreuzkorrelationsexperimenten basierend auf laserunterstützter Photoionisation ist neben dem Rundfokus auch eine Geometrie mit Linienfokus zum Einsatz gekommen. Dieser wird erzeugt durch zwei gekreuzt angeordnete Zylinderlinsen.

Abbildung 4.10 zeigt den gemessenen Linienfokus der NIR Strahlung, aufgenommen von oben mit Kamera 5 und einen Intensitätsplot entlang der x-Achse (Ausbreitungsrichtung der XUV Strahlung) und der z-Achse (Ausbreitungsrichtung der Photoelektronen). Der Fokus hat eine Länge von $\Delta x_{\text{nir}} \approx 270 \mu\text{m}$ (FWHM) und eine Breite $\Delta z_{\text{nir}} \approx 11 \mu\text{m}$ (FWHM). Die abgeschätzte NIR Intensität beträgt in dieser Fokusgeometrie $I_{\text{nir}} \approx 3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$, ist also um einen Faktor ~ 6 kleiner als in der anderen Geometrie mit Rundfokus.

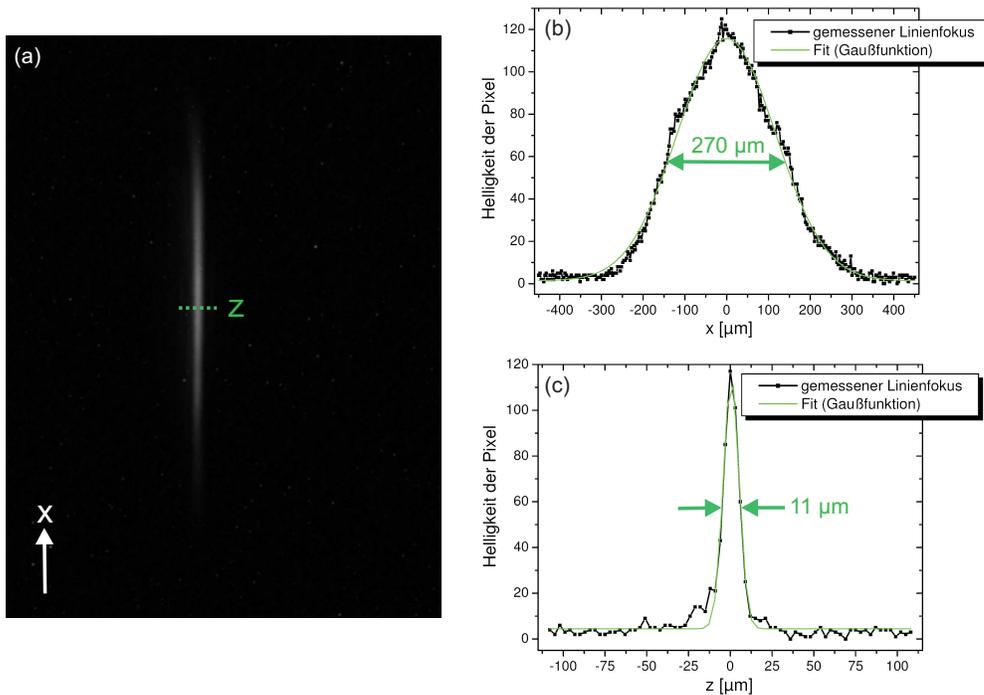


Abbildung 4.10: (a) Mit Kamera 5 von oben aufgenommener NIR Linienfokus in der Wechselwirkungszone. Schnitte durch den Fokus entlang der (b) x-Achse und der (c) z-Achse.

4.4 Das elektronenoptische System

Für die auf der laserunterstützten Photoionisation beruhenden Kreuzkorrelationsmessungen ist die Erzeugung einer vergrößerten Abbildung der Wechselwirkungszone notwendig, da die relative Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH aus der örtlichen Position des Kreuzkorrelationssignals innerhalb der Wechselwirkungszone gewonnen wird. Dazu wird ein abbildendes System für die in der Wechselwirkungszone emittierten Elektronen be-

nutzt. Dieses Abbildungssystem, die E-Optik, besteht aus einer Kombination von elektrostatischen Linsen. Auf einem Elektronendetektor [vorgestellt in Kapitel 4.6] wird die orts aufgelöste Messung sichtbar gemacht.

Die E-Optik verläuft zentrisch in einer Vakuumkammer aus nicht magnetisierbarem Edelstahl. Diese Vakuumkammer wird mit einer Turbomolekularpumpe (*Leybold TW 180 H*) evakuiert, die Druckmessung erfolgt über ein Ionisationsvakuummeter (*Ionivac ITR 90 PB, Leybold*). Typischerweise liegt der Hintergrunddruck ohne Gasinlass in der Wechselwirkungskammer bei $p_b = 5 \cdot 10^{-8}$ mbar. Abbildung 4.11 zeigt die E-Optik im Schnitt. Sie besteht aus der Kombination einer 3-Element-Scheibenlinse, einer 3-Element-Zylinderlinse und einer 4-Element-Zylinderlinse.

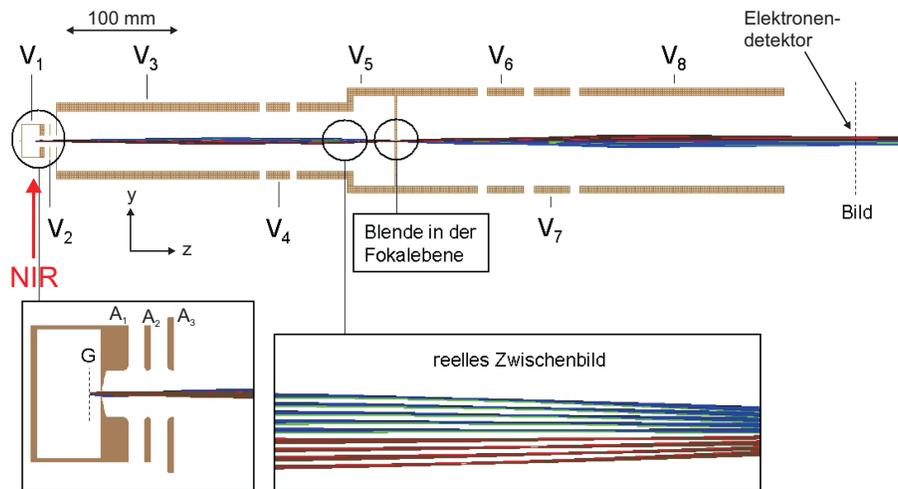


Abbildung 4.11: Schnitt durch das Linsensystem. Die Wechselwirkungszone befindet sich in der Ebene G und hat in z-Richtung einen Abstand 2,1 mm von der Eintrittsöffnung der E-Optik. Der XUV Puls von FLASH läuft in diesem Bild aus der Papierebene hinaus. Mit eingezeichnet sind Elektronentrajektorien simuliert mit dem Programm SIMION [185]. Der Strahllauf im Bereich des Zwischenbildes im Element V₅ ist vergrößert gezeigt. In die Bildebene wird der Elektronendetektor zur Aufnahme des orts aufgelösten Bildes gestellt. Der Abstand zwischen Bildebene und Wechselwirkungszone beträgt ≈ 730 mm (aus [186]).

Die Vakuumkammer samt E-Optik wird an den CF 63 Flansch der Wechselwirkungskammer [Flansch (13) in Abbildung 4.3] angesetzt. Entscheidend für die Eigenschaften des Bildes ist die vordere 3-Element-Scheibenlinse. Die vorderste Elektrode A₁ dieser Linse ist geerdet, so dass die Elektronen sie mit ihrer Startenergie $E_{\text{kin},0}$ erreichen. Für die Simulation ist diese Elektrode durch einen aufgesetzten, die Wechselwirkungszone G umfassenden Topf ergänzt. So ist das Potential in der gesamten Wechselwirkungszone definiert. Durch eine zentrale 1 mm Bohrung in dieser geerdeten Elektrode treten die in G erzeugten Elektronen in die E-Optik ein. Gleichzeitig wirkt dieses Loch als Druckstufe. Dadurch ist auch bei hoher Gaslast in der Wechselwirkungskammer ein sicherer Betrieb des Elektronendetektors (bestehend aus MCP und Leuchtschirm) möglich. Der Abstand dieser Eintritts-

sebene der E-Optik vom Zentrum der Wechselwirkungskammer, wo XUV und NIR Puls überlagert werden, beträgt 2,1 mm. Die Elektrode A_2 wird auf ein hohes positives Potential $V_2=30 \cdot E_{\text{kin},0}$ gelegt, die dritte Scheibenelektrode A_3 liegt auf dem niedrigeren Potential $V_3=5,2 \cdot E_{\text{kin},0}$. Somit werden die Elektronen nach dem Eintritt in die Elektronenoptik zunächst stark beschleunigt und anschließend auf ihre Sollenergie abgebremst. Durch die anfängliche, starke Beschleunigung ist dieser Aufbau weniger anfällig gegenüber äußeren Feldern oder Coulombabstoßung der Elektronen untereinander als eine Anordnung, bei welcher die Elektronen kontinuierlich beschleunigt werden. Gleichzeitig wird bei gleicher Transmission eine höhere Ortsauflösung erzielt [187]. Der Durchmesser der Eintrittsöffnung ist so gewählt, dass das elektrische Potential von A_2 nicht in das Wechselwirkungsvolumen greift. Die Dicke der Elektrode A_1 bewirkt, dass die 1 mm Eintrittsöffnung die Abbildung nicht wesentlich beeinflusst.

Signalelektronen, die unter großen Winkeln in die E-Optik eintreten, vermindern die Qualität der Abbildung aufgrund von sphärischer Abberation (Abbildung 3.33). Um die Winkeldivergenz einzugrenzen, können **Winkelblenden** (Kontrastblenden) verschiedener Durchmesser (von 0,3 bis 1 mm in Schritten von 100 μm) in die Brennpunktebene der E-Optik gefahren werden. In dieser Ebene, die in dieser Arbeit als **Fokalebene** bezeichnet wird, laufen die Trajektorien aller Elektronen zusammen, die die Objektebene unter dem gleichen Startwinkel φ verlassen. Durch Wahl einer geeigneten Blende können Elektronen mit großem Startwinkel aus dem Strahlengang entfernt werden. Bei Bedarf kann nahezu der gesamte von der E-Optik geformte Elektronenstrahl durch ein Loch mit 6 mm Durchmesser den Detektor erreichen.

Eine erste Fokalebene liegt innerhalb der vorderen 3-Element-Scheibenlinse. Die nachfolgende 3-Element-Zylinderlinse (V_3 bis V_5) bildet diese Fokalebene in einen feldfreien Raum ab. Hier kann die gewünschte Winkelblende positioniert werden. Die Kombination aus 3-Element-Scheibenlinse und der 3-Element-Zylinderlinse erzeugt ein reelles Bild des Objekts, welches aber noch vor der Fokalebene liegt. In diesem Bild tritt eine deutliche Bildfeldkrümmung auf [Abbildung 4.11]. Daher folgt hinter der Fokalebene eine 4-Element-Zylinderlinse (V_5 bis V_8), welche das reelle Zwischenbild auf den Elektronendetektor in der Bildebene abbildet. Die 4-Element-Zylinderlinse ist als ZOOM Linse ausgelegt [188]. Bei diesem Linsentyp bleiben Gegenstands- und Bildweite konstant, während das Verhältnis von Gegenstands- und Bildenergie verändert werden kann.

Äußere magnetische Felder wie das Erdmagnetfeld lenken die Elektronen senkrecht zu ihrer Ausbreitungsrichtung ab und führen dadurch zu einer Verringerung der örtlichen Auflösung der E-Optik. Zur Abschirmung dieser Felder wird ein μ -Metall-Zylinder zwischen die Elektronenlinsen und die Innenwand der Vakuumkammer gelegt. Es hat sich allerdings im Experiment gezeigt, dass diese Maßnahme allein nicht ausreicht. Daher ist zusätzlich eine Magnetfeldkompensation durch ein Paar von Helmholtz-Spulen realisiert worden.

Eine Simulation mit SIMION zeigt, dass die Schärfentiefe der E-Optik nur wenige 10 μm beträgt. Das bedeutet, dass die Photoelektronen in z-Richtung aus einer dünnen Schicht

stammen müssen, deren Dicke idealerweise $< 50 \mu\text{m}$ sein sollte. Das kann durch hinreichend schmale Eintrittsaperturen für die XUV Strahlung von FLASH erreicht werden. Daher werden Spalte mit $60 \mu\text{m}$ bzw. $125 \mu\text{m}$ Breite benutzt (Kapitel 4.1). Spalte mit einer Breite $\leq 50 \mu\text{m}$ haben sich nicht bewährt, da es mit ihnen bei Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung zu Justierschwierigkeiten aufgrund zu kleiner Signale gekommen ist.

Weitere Details zum Aufbau der E-Optik können der Diplomarbeit von R. Kalms (Referenz [186]) entnommen werden.

4.5 Die Gasdüse

Mit Hilfe der Gasdüse wird das im Experiment eingesetzte Targetgas in das Wechselwirkungsvolumen eingelassen.

Folgende Aspekte sind bei der Fertigung der Gasdüse berücksichtigt:

- Zur optimalen Positionierung bezüglich der Wechselwirkungszone ist die Düse in drei Raumrichtungen über einen XYZ Manipulator (KPM 12-50 *VAB Vakuum*) justierbar.
- Aufgrund der Nähe zum Wechselwirkungsvolumen sind unmagnetische Materialien verwendet worden.
- Das Totvolumen ist klein gehalten, um ein schnelles Einstellen der gewünschten Gasdichte im Wechselwirkungsvolumen zu erreichen.

Die Gasdüse besteht aus einem ca. 200 mm langen Edelstahlrohr, einem über Swagelock Verbindungsstücke angesetzten Kupferrohr mit 3 mm Außendurchmesser und einem dünnen 9 mm langen Röhrchen aus Kupfer (Außendurchmesser 0,25 mm). Damit ist ein gerichteter Strahl von Edelgasatomen in das Wechselwirkungsvolumen möglich. Das Ende des Röhrchens wird auf einen rechteckigen Querschnitt von $\sim 150 \mu\text{m}$ Höhe und $\sim 300 \mu\text{m}$ Breite gedrückt. Somit ist die Gasdüse für beide Fokusgeometrien einsetzbar [Kapitel 4.3.2]. Montiert ist das Gasdüsensystem mit Manipulator an einem der 45° Flansche [Flansch (7) in Abbildung 4.3]. Abbildung 4.12 zeigt die Gasdüse in ihrer Sollage. Das Gas wird über ein Dosierventil in das Düsenrohr eingelassen, als Gasvordruck wird stets 1 bar gewählt. Durch die Gaslast steigt der Druck vom Hintergrundsdruck p_b auf den Arbeitsdruck p_x , wobei x für das benutzte Edelgas steht.

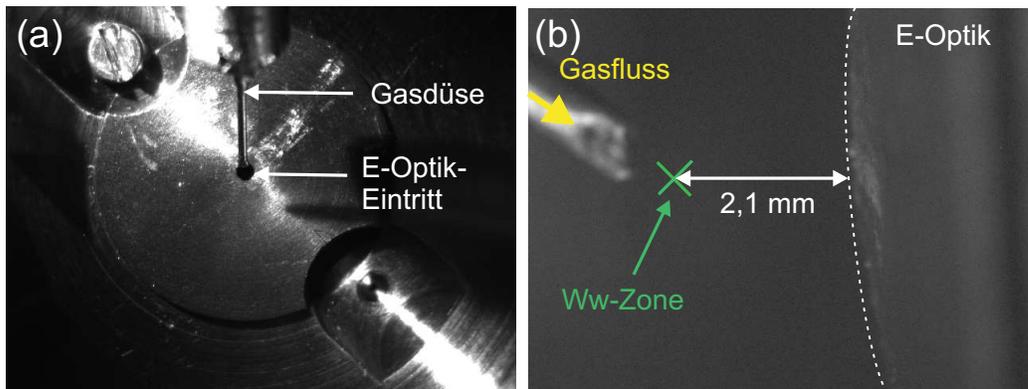


Abbildung 4.12: (a) Wechselwirkungszone mit der Gasdüse in Sollposition für nachfolgende Kreuzkorrelationsmessungen, aufgenommen mit Kamera 2. Im Hintergrund ist die Elektrode A1 der E-Optik mit der zentralen Bohrung für den Eintritt der Photoelektronen zu sehen. (b) Gasdüse in Sollposition in der Nähe der Wechselwirkungszone, aufgenommen mit Kamera 3. Die Richtung des Gasflusses ist durch einen gelben Pfeil dargestellt. Das ist auch die Richtung, aus welcher die Gasdüse in die Wechselwirkungszone hinein- und aus ihr herausgefahren werden kann. Zusätzlich kann sie in den beiden dazu senkrechten Richtungen justiert werden.

4.6 Das Detektionssystem

Der Detektor besteht aus einer MCP zur Signalverstärkung und einem Leuchtschirm mit CCD Kamera zur Aufnahme der mit der E-Optik erzeugten, orts aufgelösten Emissionsbilder. Zur Trennung des gesuchten Kreuzkorrelationssignals (Seitenbandsignal) vom Untergrundsignal (XUV induziertes Signal der Photolinie) muss der Detektor mit einem energieseparierenden Filter ausgestattet werden. Abbildung 4.13 zeigt eine Prinzipskizze des Detektorsystems. Mit der E-Optik kann durch Erdung aller elektrostatischen Linsen auch ein Flugzeitspektrometer realisiert werden [Kapitel 4.7]. In diesem Fall wird die MCP als nicht ortsempfindlicher Ionenzähler verwendet und der Leuchtschirm wirkt dabei als Auffänger. Die elektrischen Signale werden über einen Kondensator ausgekoppelt und mit einem Oszilloskop erfasst. Die einzelnen Komponenten des Detektionssystems werden im Folgenden beschrieben.

4.6.1 Komponenten des Detektionssystems

Die Mikrokanalplatte

Die **Mikrokanalplatte** (MCP) besteht aus einem Array von leitfähigen Kanälen. Einzelne, von der Vorderseite in die Kanäle eintretende Elektronen werden zunächst durch die zwischen Vorder- und Rückseite der MCP angelegte Spannung U_{MCP} beschleunigt. Sie treffen dann auf die Wände der Kanäle und erzeugen dort Sekundärelektronen, die unter mehrfachen Vervielfältigungsprozessen die Kanäle durchlaufen. Die aus den Kanälen

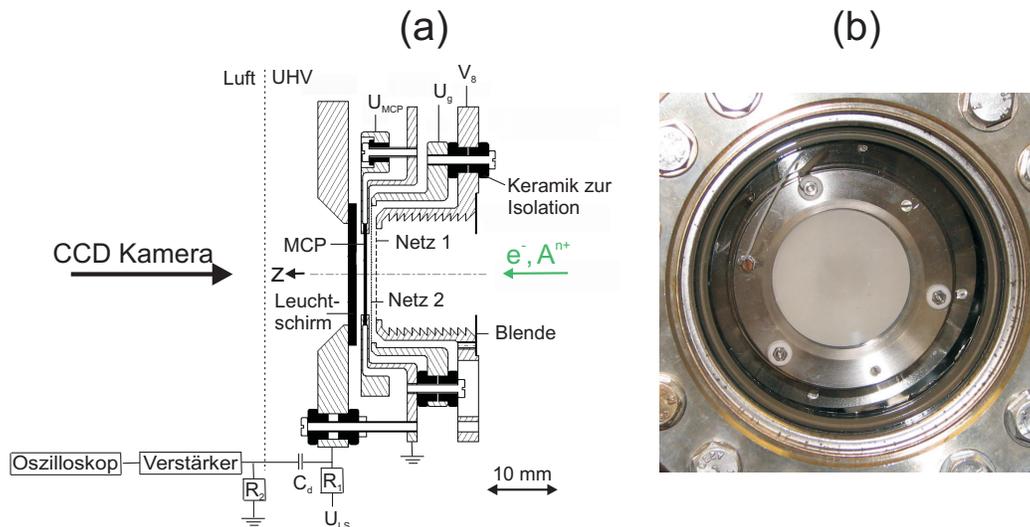


Abbildung 4.13: (a) Schnitt durch das Detektorsystem zur Aufnahme orts aufgelöster Elektronensignale. Es ist ausgestattet mit einem Leuchtschirm, einer MCP und einem Energiefilter, bestehend aus einem grobmaschigen Netz 1 (welches auf dem Potential V_8 des letzten Linsenelements liegt) und einem feinmaschigen Netz 2 mit variabel einstellbarem elektrischen Potential. Wird die E-Optik als Flugzeitspektrometer benutzt, können Ionensignale über einen Kondensator ausgekoppelt werden. (b) Bild des Leuchtschirms aufgenommen mit Kamera 1.

austretenden Elektronen werden durch die Leuchtschirmspannung U_{LS} zum Leuchtschirm hin beschleunigt.

Für eine MCP gibt es verschiedene Kenngrößen. Der Vervielfachungsfaktor, welcher den Quotienten aus der Zahl der an der Rückseite der MCP austretenden zur Zahl der einfallenden Elektronen beschreibt, hängt exponentiell von der Spannung U_{MCP} ab [189]. Die erreichbare Verstärkung einer einfachen MCP liegt im Bereich $10^3 - 10^4$ [190] und ist durch Ionennachpulse erzeugt durch die in Richtung Vorderseite der MCP beschleunigten Restgasionen begrenzt. Im vorliegenden Experiment wird nicht eine einzelne MCP benutzt, sondern zwei MCPs in der so genannten **Chevron** Anordnung [Abbildung 4.14]. Dadurch kann die Verstärkung auf maximal $10^6 - 10^7$ erhöht werden, bevor Sättigung eintritt. Pro MCP kann zwischen Vorder- und Rückseite maximal eine Potentialdifferenz von 1 kV angelegt werden, so dass $U_{MCP} \leq 2$ kV. Die Detektionseffizienz beschreibt den Quotienten aus der Zahl der nachgewiesenen zur Zahl der einfallenden Teilchen. Sie ist von der Art der einfallenden Teilchen und deren Energie abhängig. Für Elektronen mit $E_{kin} \approx 50$ eV beträgt sie ≈ 50 % [189] und nimmt mit höherer kinetischer Energie zu. Daher ließe sie sich durch Anlegen einer Platevorspannung zur Nachbeschleunigung zwischen dem Netz 2 und der MCP Vorderseite [Abbildung 4.13 (a)] erhöhen. Jedoch wurde in diesem Fall durch Linseneffekte an den Netzmaschen des Energiefilters die Kantenschärfe der Bilder auf dem Leuchtschirm wesentlich verschlechtert. Deshalb wird die Vorderseite der

MCP geerdet und die bei der Ionisation freigesetzten Elektronen erreichen diese mit einer kinetischen Energie von typischerweise einigen eV bis einigen 10 eV (vorgegeben durch die kinetische Startenergie $E_{\text{kin},0}$ und die Einstellungen des Energiefilters). Die Totzeit beschreibt die Zeitspanne, nach welcher die Ladungen auf den Wänden eines Kanals der MCP wieder aufgefüllt sind und somit erneute Verstärkung möglich ist. Die effektive Totzeit einer MCP liegt aufgrund der vielen Kanäle bei $\sim 10^{-7}$ s. Auch eine MCP, die keinerlei ionisierender Strahlung ausgesetzt ist, erzeugt Dunkelstrom-Impulse. Diese Impulse werden hauptsächlich durch den radioaktiven Zerfall von Bestandteilen des MCP Materials verursacht. Deren Rate liegt typischerweise bei ≤ 1 Impuls/s \cdot cm 2 .

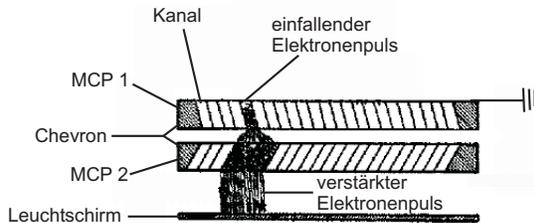


Abbildung 4.14: Chevron Anordnung von zwei kombinierten MCPs. Die Kanäle in den Platten stehen verkippt gegenüber der Flächennormalen. Der verstärkte Elektronenpuls trifft anschließend auf den Leuchtschirm (aus [189]).

Die benutzte MCP hat einen Durchmesser von 18 mm, die effektive Fläche einen Durchmesser von $d_{\text{eff}} = 14,5$ mm [Herstellerangaben, *Hamamatsu*].

Leuchtschirm und Signalaufnahme

Die Elektronen aus der MCP lösen am Ort ihres Auftreffens auf dem Leuchtschirm ein Fluoreszenzsignal aus. Zur Minimierung der Verschmierung dieses Signals aufgrund der Auffächerung des in der MCP verstärkten Elektronenpulses [Abbildung 4.14] wird an den Leuchtschirm gegenüber dem Erdpotential eine hohe Spannung $U_{\text{LS}} \gg U_{\text{MCP}}$ angelegt. Das hat eine Nachbeschleunigung der Elektronen nach Verlassen der MCP zur Folge. Für konstante Spannungen U_{LS} und U_{MCP} ist die Helligkeit eines Punktes auf dem Schirm proportional zur Zahl der einfallenden Elektronen. Daher spiegelt die Helligkeitsverteilung auf dem Leuchtschirm die örtliche Elektronendichte im Wechselwirkungsvolumen wider.

Der Leuchtschirm hat einen Durchmesser von 50 mm, die auf ihm ausgeleuchtete Fläche ist allerdings durch die effektive Fläche der MCP auf einen Durchmesser von etwa 14,5 mm beschränkt. Der Leuchtschirm ist mit dem Leuchtstoff P43 (Zusammensetzung $\text{Gd}_2\text{O}_2\text{S} : \text{Tb}$, *Proxitronic*) beschichtet. Der Leuchtschirm-Träger ist transparent und zur Kontaktierung mit leitfähigem Indium Zinn Oxid (ITO) belegt. Der Leuchtstoff P43 zeichnet sich durch eine hohe Effizienz in der Umwandlung von Elektronen in Photonen aus, wobei die Fluoreszenz im Bereich von 360 bis 680 nm liegt und ihr Maximum bei 545 nm besitzt. Das Nachleuchten des Leuchtstoffs ist ein wichtiger Parameter: für P43 beträgt die Zeitspanne für den Abfall der emittierten Lichtintensität von 90 % auf 10 % des Maximalwerts 1 ms, diejenige für den Abfall von 10 % auf 1 % des Maximalwerts 1,6 ms. Daher kann mit diesem Detektor die Unterpulsstruktur von FLASH mit MHz Repetitionsrate nicht aufgelöst werden. Folglich wird für $n_{\text{mikro}} > 1$ jedes aufgenommene Bild durch mehrere

Mikropulse erzeugt. Arbeitet FLASH dagegen im Einzelschussbetrieb ($n_{\text{mikro}}=1$), so kann bei der Repetitionsrate der Makropulse von $\nu_{\text{makro}}=5$ Hz zu jedem einzelnen Schuss ein entsprechendes Signalbild aufgenommen werden.

Der Leuchtschirm wird mit der Kamera 1 abfotografiert. Die Kamera ermöglicht die Aufnahme von Bildern mit einer Wiederholrate von 5 Hz bei voller Auflösung. Sie ist über ein elektronisches Kontrollsystem auf die Pulse von FLASH getriggert. Außerdem werden alle abgespeicherten Bilder mit Zeitstempeln versehen, so dass jedes aufgenommene Bild dem entsprechenden XUV Puls von FLASH zugeordnet werden kann. Die Q Imaging Kamera wird unter LabVIEW (Version 7.1,2004) betrieben. Neben dem Live-Bild und dem über 10 Messungen gemittelten Bild kann in dem Steuerprogramm auch die mittlere Helligkeit der Pixel auf dem Chip der CCD Kamera online ausgelesen werden. Diese Größe ist proportional zur Helligkeitsverteilung auf dem Schirm. Tritt nur ein lokal eingeschränkter Effekt auf, so dass es nur in einem bestimmten Bereich des Leuchtschirms zu einer Erhöhung der lokalen Elektronendichte kommt, so kann eine **Region of Interest (ROI)** um diesen Ort gesetzt werden. Es ist zu beachten, dass die mittlere Helligkeit der Pixel der Kamera keine absolute Größe ist. Vielmehr ist sie von vielen Parametern (U_{MCP} , U_{LS} , Wahl des Targetgases, Gasdichte, Intensität I_{XUV} , Einstellungen der E-Optik, Wahl des ROI...) abhängig und damit in verschiedenen Messreihen nicht direkt zu vergleichen. Wo es nicht explizit anders erwähnt ist, wird im Verlauf der Arbeit die mittlere Helligkeit der Kamerapixel bei Wahl einer geeigneten ROI in beliebigen Einheiten angegeben und als **Elektronensignal** bezeichnet.

Energiefilter

Zur Aufnahme von orts- und energieseparierten Emissionsbildern ist eine Trennung des Seitenbandsignals von der Hauptphotolinie erforderlich. Der dafür eingesetzte Energiefilter besteht aus zwei ebenen Netzen, die unmittelbar vor der MCP in einem Abstand von 0,5 mm voneinander im Strahlengang der Photoelektronen liegen [Abbildung 4.13]. Das Netz 1 (8 Linien/mm) liegt auf dem Potential V_8 des letzten Linsenelements. Damit bewegen sich die Elektronen zwischen diesem Linsenelement und dem Netz idealerweise im feldfreien Raum. An das zweite, feinmaschigere Netz 2 (20 Linien/mm) wird gegenüber dem Erdpotential die Spannung $U_{\text{ret}} < 0$ angelegt. Diese Potentialdifferenz wird im weiteren Verlauf der Arbeit als **Retardierungsspannung** bezeichnet. Ein Elektron mit einer kinetischen Startenergie $E_{\text{kin},0} \leq |U_{\text{ret}}|$ kann die MCP nicht erreichen. Indem U_{ret} variiert wird, erhält man einen durchstimmbaren Energie-Hochpassfilter. Durch das Netz 1 ist sichergestellt, dass das elektrische Gegenfeld senkrecht zu den Netzebenen sehr homogen ist.

4.6.2 Aufnahme von orts aufgelösten Signalen mit dem Detektor

Die Anwendbarkeit des Aufbaus bestehend aus der E-Optik und dem Detektorsystem zur Aufnahme orts aufgelöster Emissionbilder muss überprüft werden.

Ortsaufgelöste Abbildung des NIR Pfads durch Multiphotonenionisation

Für die Geometrie mit Linienfokus ($I_{\text{nir}} \approx 3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$) sind weder bei Krypton noch bei Xenon oder Neon MPI Signale zu erwarten, die allein durch die 800 nm Strahlung erzeugt werden [Abbildung 3.27]. Diese Vorhersage bestätigt sich auch im Experiment. Dagegen sollten bei Xenon für die Geometrie mit dem Rundfokus ($I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$) schon deutlich MPI Signale zu sehen sein. Abbildung 4.15 (a) zeigt ein ortsaufgelöstes MPI Signal von Xenon ohne XUV Puls, aufgenommen mit dem Elektronendetektor in der Bildebene der E-Optik. Der NIR Puls durchläuft dabei die Wechselwirkungszone von unten, das Targetgas wird über die Gasdüse eingelassen. Abbildung 4.15 (b) zeigt das MPI Signal als Funktion der kinetischen Energie E_{kin} der nachgewiesenen Elektronen. Diese wird erhalten durch Ableitung des Elektronensignals aufgenommen in Abhängigkeit von der Retardierungsspannung U_{ret} . Es treten deutlich höhere kinetische Energien der Photoelektronen auf als die Photonenenergie $h\nu_{\text{nir}} = 1,55 \text{ eV}$. Offensichtlich tritt kein Schwellenprozess auf, sondern die Multiphotonenionisation wird von ATI Prozessen begleitet [Abbildung 3.29].

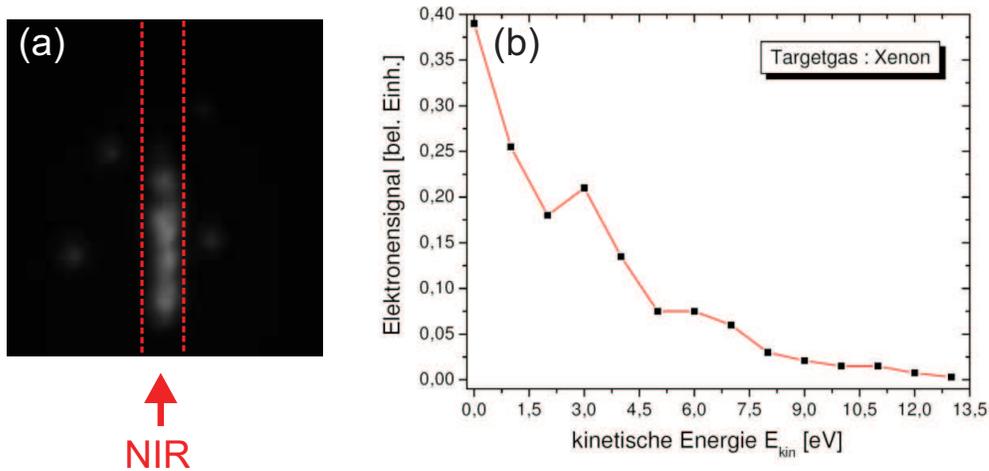
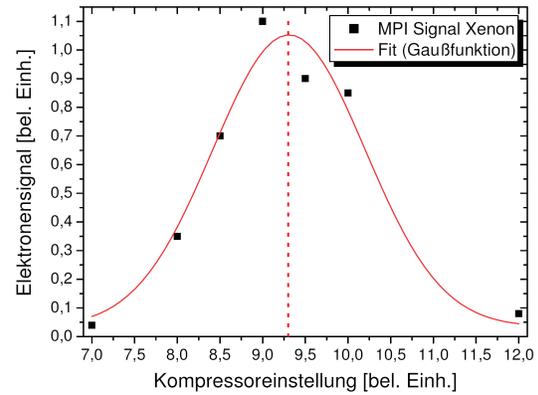


Abbildung 4.15: (a) Ortsaufgelöstes Multiphotonenionisationssignal (MPI) erzeugt durch einen NIR Puls ($n_{\text{mikro}}=5$, $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$) ohne XUV Puls, aufgenommen mit Kamera 1. Das Targetgas ist Xenon ($p_{\text{Xe}} = 1,2 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$). Der Ionisationspfad des optischen Lasers ist zu sehen. (b) MPI Signal von Xenon als Funktion der kinetischen Energie E_{kin} der Photoelektronen.

Das nachgewiesene MPI Signal hat für die Durchführung des Experiments eine praktische Bedeutung: neben dem örtlichen Überlapp von XUV und NIR Pulsen in der Wechselwirkungszone ist auch eine optimale vertikale Lage des NIR Fokus bezüglich der Eintrittsapertur der E-Optik notwendig. Nur dann ist die Erzeugung eines Kreuzkorrelationssignals ausreichender Größe möglich. Die vertikale Fokusslage kann durch Verschiebung der Fokussierlinsen eingestellt und prinzipiell auf optischem Wege [Abbildungen 4.9 und 4.10] überprüft werden. Dieses Verfahren ist aber limitiert durch die endliche Schärfentiefe des Aufbaus. Eine alternative Methode steht mit dem NIR induzierten MPI Signal zur

Verfügung. Da nach Gleichung (3.19) dieses Signal $\propto (I_{\text{nir}})^n$ ist, wobei n die Anzahl der zur Ionisation benötigten Photonen ist, steht ein empfindlicher Intensitätsmonitor zur Verfügung. Damit hat schon eine geringe Abweichung der Fokusposition von der Solllage eine drastische Reduktion des MPI Signals zur Folge. Da die Intensität I_{nir} umgekehrt proportional zur Pulsdauer τ_{nir} ist, kann das MPI Signal auch als Monitor zur Überprüfung der optimalen zeitlichen Komprimierung der NIR Pulse am Experiment dienen. Abbildung 4.16 zeigt das MPI Signal als Funktion der Gitterkompressoreinstellung. Die Ergebnisse stimmen gut mit den Ergebnissen der FROG Messung überein [Abbildung 4.6].

Abbildung 4.16: MPI Signal von Xenon ($p_{\text{Xe}} = 1,2 \cdot 10^{-5}$ mbar) erzeugt durch die NIR Pulse ($I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13}$ W/cm²) als Funktion der Einstellung am Gitterkompressor. In rot ist ein Gaußfit an die Messdaten zu sehen. Im Maximum der Kurve liegen am Experiment zeitlich optimal komprimierte Pulse vor.



Ortsaufgelöste Abbildung des XUV Pfads

Entlang der Trajektorie des XUV Strahls von FLASH kommt es im Gastarget zur Emission von Photoelektronen, da für alle Edelgase $h\nu_{\text{xuv}} > IP_1$ gilt. Abbildung 4.17 (a) zeigt ein typisches ortsaufgelöstes Photoelektronensignal erzeugt durch die XUV Pulse von FLASH ohne NIR Pulse bei Neon als Targetgas.

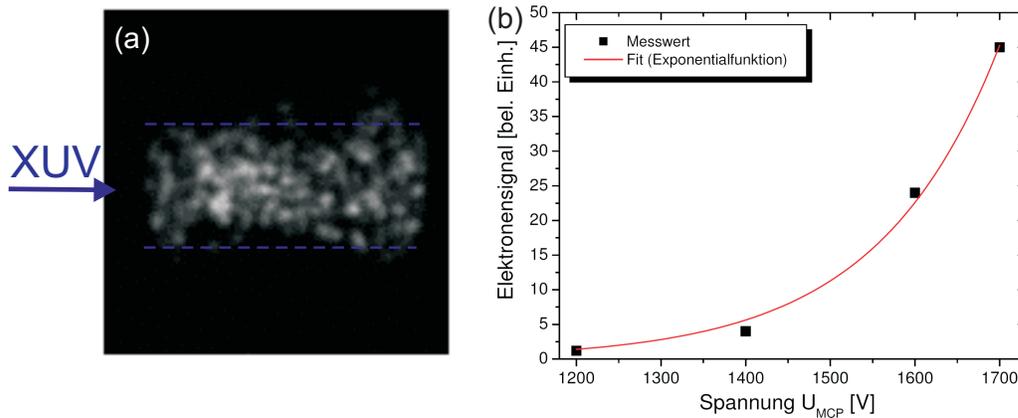


Abbildung 4.17: (a) Ortsaufgelöstes Elektronensignal erzeugt durch die XUV Pulse von FLASH an der Beamline PG2 ($\lambda_{\text{xuv}} = 13,6$ nm, $I_{\text{xuv}} \approx 1,6 \cdot 10^7$ W/cm², $n_{\text{mikro}} = 1$) in Neon ($p_{\text{Ne}} = 4 \cdot 10^{-5}$ mbar) ohne NIR Pulse, aufgenommen mit Kamera 1. Das Bild wird aufgenommen ohne Retardierung. Es ergibt sich durch Mittelung über 50 Einzelbilder jeweils erzeugt durch einen XUV Puls. (b) Elektronensignal für die Messung aus (a) als Funktion der Spannung U_{MCP} . Mit eingezeichnet ist ein Fit (Exponentialfunktion) an die Messdaten.

Solche Messungen demonstrieren die Anwendbarkeit der E-Optik zur Aufnahme eines orts aufgelösten XUV induzierten Signals. Das Elektronensignal zeigt als Funktion von U_{MCP} in guter Näherung den erwarteten exponentiellen Anstieg [Abbildung 4.17 (b)]. Bei der vorliegenden Gasdichte und XUV Intensität I_{xuv} tritt also keine Sättigung der MCP für $U_{\text{MCP}} \leq 1700$ V auf.

4.7 Das Flugzeitspektrometer

Bei einem der drei Kreuzkorrelationsexperimente, die in dieser Arbeit vorgestellt werden, ist es das Ziel, durch die XUV Strahlung von FLASH ionisierte Edelgasatome durch die NIR Pulse weiter zu ionisieren, so dass sich das relative Verhältnis zwischen Ionen verschiedener Ladungsstufen als Funktion des zeitlichen Delays zwischen beiden Pulsen ändert. Für die Untersuchung solch eines Kreuzkorrelationssignals wird ein **Flugzeitspektrometer** (Time of Flight = TOF Spektrometer) benötigt, welches eine Trennung der im Wechselwirkungsvolumen emittierten Ionen nach ihrer Ladungsstufe ermöglicht. Mit dem XUV-NIR Kreuzkorrelator lassen sich Flugzeitspektren aufnehmen, indem die E-Optik durch Erdung aller Linsenelemente und der beiden Netze des Energiefilters als freie Flugstrecke benutzt wird und der Detektor als Ionenzähler fungiert. Zusätzlich ist eine Beschleunigung der Ionen direkt nach ihrer Entstehung in der Wechselwirkungszone in Richtung des Detektors notwendig. Das Prinzip dieser Beschleunigung ist in Abbildung 4.18 dargestellt. Direkt vor der E-Optik Eintrittsapertur befinden sich zwei voneinander elektrisch isolierte Elektroden, zwischen denen die **Beschleunigungsspannung** U_b angelegt werden kann.

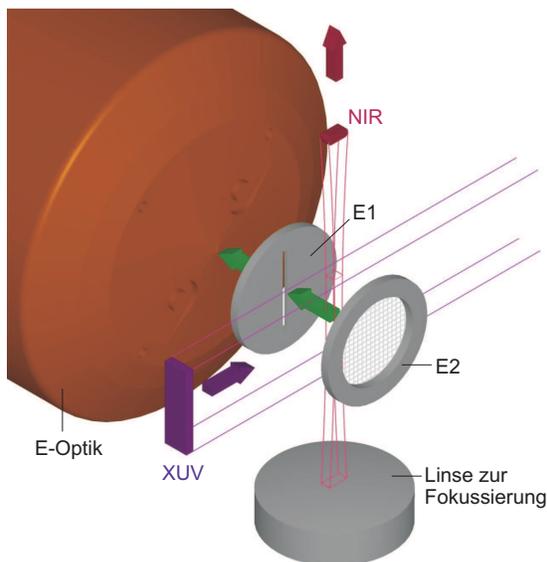


Abbildung 4.18: *Prinzipskizze des Aufbaus zur Beschleunigung der Ionen im Flugzeitspektrometer. Im Kreuzungsgebiet zwischen den XUV Pulsen von FLASH (blau) und den fokussierten NIR Pulsen (rot) werden Photoionen (grün) erzeugt. Durch Anlegen einer Spannung zwischen den Elektroden E1 und E2 werden diese in Richtung E-Optik (braun) und damit in Richtung Detektor beschleunigt.*

Die der E-Optik zugewandte Elektrode E1 ist eine dünne geerdete Platte aus nicht-magnetisierbarem Edelstahl mit einem Außendurchmesser von knapp 20 mm. In ihrem Zentrum befindet sich ein 2 mm hoher und 125 μm breiter Spalt. Auf der anderen Seite

der Wechselwirkungszone befindet sich eine zweite Elektrode E2. Sie besteht aus einem auf einen Ring aufgeklebten Netzchen aus Kupfer mit 8 Linien/mm (nominelle Transmission 85 %) und ist mit Keramikhütchen in einem Abstand von 3,5 mm elektrisch isoliert von der Elektrode E1 montiert. Der Einsatz des Netzes als Elektrode E2 ermöglicht die Erzeugung eines homogenen elektrischen Beschleunigungsfeldes. Gleichzeitig ist durch das Netz hindurch die Zufuhr des Targetgases und eine Beobachtung der Wechselwirkungszone mit Kamera 2 möglich. Um den vertikalen Spalt der Elektrode E1 zentrisch vor dem Eingangsloch der E-Optik positionieren zu können, ist der gesamte Aufbau an einem xyz - Manipulator befestigt. Damit kann zusätzlich die Beschleunigungseinheit in die Wechselwirkungszone hinein- und aus ihr herausgefahren werden.

Abbildung 4.19 (a) zeigt den Manipulator und den CF 40 Flansch, an welchen die geerdete Elektrode E1 mit einer speziell gefertigten Edelstahlstange befestigt ist. Der Manipulator ist an einem der 45° Flansche der Wechselwirkungskammer [Flansch (5) in Abbildung 4.3] montiert, so dass die Beschleunigungseinheit bezüglich der z-Achse unter 45° von unten in die Wechselwirkungszone gefahren werden kann. Der CF 40 Flansch hat im Zentrum eine UHV Hochspannungsdurchführung, mit der die Elektrode E2 auf das gewünschte positive elektrische Potential gelegt werden kann. Abbildung 4.19 (b) zeigt die Aufnahme der Ionen-Beschleunigungseinheit in Sollposition vor der E-Optik Eintrittsapertur.

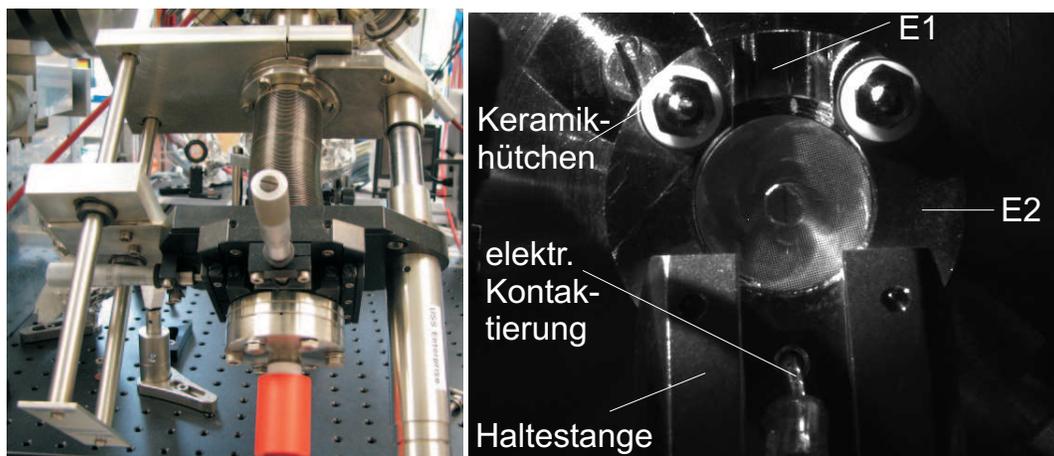


Abbildung 4.19: (a) Manipulator zur Verschiebung der Beschleunigungseinheit für die Ionen. (b) Bild der Beschleunigungseinheit in der Sollposition im Wechselwirkungsvo-lumen, aufgenommen mit Kamera 2. Im Hintergrund sind die Eintrittselektrode in die E-Optik sowie der Spalt auf der Elektrode E1 zu sehen. Die der E-Optik abgewandte Elektrode E2 mit dem Cu-Netzchen ist von der Vakuumkammer elektrisch isoliert aufgehängt und kann auf das gewünschte elektrische Potential gelegt werden.

4.8 Aufbau zur Messung einer XUV induzierten Reflektivitätsänderung

Auf der XUV induzierten Änderung der optischen Reflektivität [Kapitel 3.3.4] basiert eine weitere Kreuzkorrelationsmethode. Die Kreuzkorrelation findet dabei auf der Oberfläche eines GaAs Kristalls statt. Auf einen undotierten GaAs (001) Wafer wurde durch Molekülstrahl Epitaxie eine 800 nm dicke GaAs Schicht aufgebracht. Die Dicke der nativen Oxidschicht beträgt bei dieser Methode nur wenige nm [191]. Ein $3 \times 3 \text{ mm}^2$ Stück wird mit einem leitfähigen UHV Klebstoff an einer Haltevorrichtung aus Aluminium befestigt. Diese ist über eine Lineardurchführung (*L-2111-1, Huntington*) an einem der 45° Flansche der Wechselwirkungskammer montiert [Flansch (15) in Abbildung 4.3]. Damit kann der GaAs Kristall von unten unter 45° gegenüber den Hauptachsen in die Wechselwirkungszone hinein gefahren werden. Abbildung 4.20 (a) zeigt ein Bild der Wechselwirkungszone mit dem GaAs Kristall. Die reflektierende Kristalloberfläche ist gegenüber der x-Achse (Ausbreitungsrichtung der XUV Pulse) um einen Winkel von $\gamma = 22,5^\circ$ gekippt. Dadurch kann die unfokussierte, reflektierte NIR Strahlung in die Kamera 3 gelenkt werden, ohne dass ein Umbau erforderlich ist. Um eine Überbelichtung oder gar Zerstörung der Pixel auf dem CCD Chip der Kamera zu verhindern, wird die reflektierte NIR Strahlung mit geeigneten Filtern um etwa 3 Größenordnungen abgeschwächt. Dabei wurden Filter eingesetzt, die den NIR Puls zeitlich nicht strecken. Abbildung 4.20 (b) zeigt ein Bild des GaAs Kristalls in der Wechselwirkungszone ohne NIR Strahlung aufgenommen mit Kamera 3.

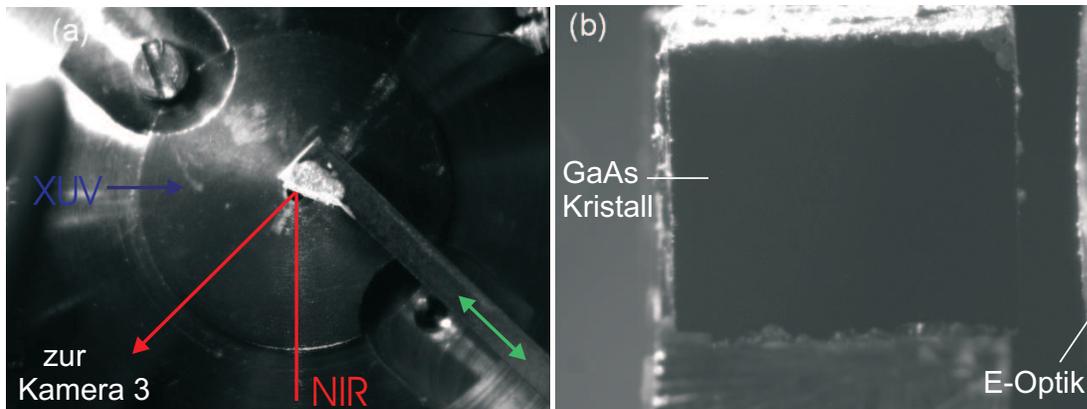


Abbildung 4.20: (a) Bild der Wechselwirkungszone mit GaAs Kristall aufgenommen mit Kamera 2. Der Kristall ist mit leitfähigem UHV Klebstoff auf einen Halter geklebt und kann so mit einer Lineardurchführung in Richtung des grünen Pfeils in die Wechselwirkungszone hinein und aus ihr heraus gefahren werden. Die NIR Pulse werden an der Kristalloberfläche, die bezüglich der x-Achse um $22,5^\circ$ verkippt ist, reflektiert und in die Kamera, die unter 45° die Wechselwirkungszone überwacht, gelenkt. Das Leuchten des Kristalls wird durch die NIR Strahlung verursacht. (b) Aufnahme der Oberfläche des GaAs Kristalls in der Wechselwirkungszone mit Kamera 3. Der NIR Laser ist hier ausgeschaltet.

Frequenzverdopplung der NIR Strahlung

In dieser Arbeit wurde die XUV induzierte Reflektivitätsänderung sowohl für NIR Strahlung mit $\lambda_{\text{nir}} = 800 \text{ nm}$ als auch für optische Strahlung mit $\lambda_{\text{opt}} = 400 \text{ nm}$ untersucht.

Die 400 nm Strahlung wird durch **Frequenzverdopplung** [192] aus der 800 nm Strahlung erzeugt. In einem doppelbrechenden Kristall kann die zweite Harmonische einer intensiven einfallenden Welle erzeugt werden, wenn die so genannte Phasenanpassungsbedingung erfüllt ist [121]. Im vorliegenden Fall findet die Frequenzkonversion in einem BBO (Beta Bariumborat, $\beta - \text{BaB}_2\text{O}_4$) Kristall statt. Eine Simulation mit der Software SLNO zeigt, dass bei dieser Frequenzkonversion unter den vorliegenden Bedingungen keine signifikante zeitliche Verlängerung der Pulse auftritt. Damit besitzen die frequenzverdoppelten Pulse ebenfalls eine Pulsdauer von $\approx 120 \text{ fs}$ (FWHM).

4.9 Die Charakterisierungs- und Justagewerkzeuge

4.9.1 Das Multifunktionstool (MFT)

Das sogenannte "Multifunktionstool" **MFT** ist für die durchgeführten Kreuzkorrelationsexperimente von entscheidender Bedeutung. Dabei handelt es sich um eine ca. 280 mm lange Stange aus nicht magnetisierbarem Edelstahl, an welcher diverse Charakterisierungs- und Justagewerkzeuge befestigt sind. Mit einem Präzisions UHV-Manipulator (KPM 12-50, *VAB Vakuum*), welcher an Flansch (6) der Wechselwirkungskammer montiert ist, können diese einzeln in die Wechselwirkungszone gefahren werden. Abbildung 4.21 zeigt Bilder des MFT.

Die einzelnen Komponenten des MFT werden im folgenden aufgelistet.

Zeitsonde

Das Zeitfenster der Kreuzkorrelationsmessungen beträgt typischerweise einige ps. Um nicht bei der Suche nach einem Kreuzkorrelationssignal über große Delaybereiche zwischen XUV und NIR Pulsen scannen zu müssen, wird eine zeitliche Vorjustage der beiden Pulse benötigt. Dafür wird der photoelektrische Effekt benutzt. Beide Pulse (XUV und NIR) sind in der Lage, Photoelektronen aus einem Festkörper auszulösen. Da der Beginn der Photoemission quasi instantan nach dem Auftreffen der Strahlung auf das Target einsetzt, ist der Effekt schnell genug um zur zeitlichen Charakterisierung eingesetzt zu werden.

Die Auslösung der Photoelektronen geschieht aus dem Innenleiter eines Koaxialkabels (*RG402-AL-TP, RS Components*), welches durch eine zentrale Bohrung in dem MFT geführt wird [Abbildung 4.21 (c)]. Das verwendete Kabel hat einen Gesamtdurchmesser von $\approx 3,5 \text{ mm}$ und eine Nennimpedanz von 50Ω . Der Innenleiter besteht aus versilbertem Kupfer, der Mantel aus Aluminium. Das dazwischen liegende Dielektrikum ist PTFE (Polytetrafluorethylen), so dass das Kabel für den benutzten Druckbereich vakuumtauglich ist.

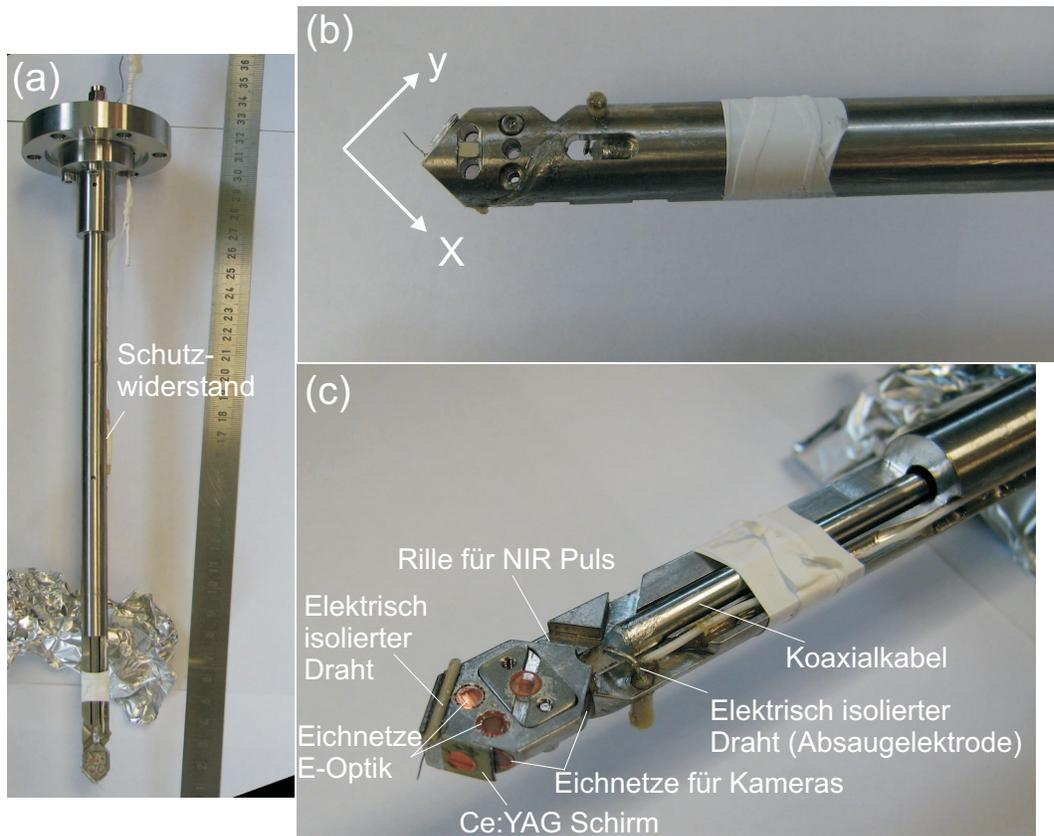


Abbildung 4.21: Bilder des Multifunktionstools. (a) Das gesamte MFT inklusive CF 40 Befestigungsflansch. (b) Blick auf die Seite des MFT, welche der E-Optik Eintrittsöffnung abgewandt ist. (c) Blick auf die Seite des MFT, welche der E-Optik Eintrittsöffnung zugewandt ist.

Während das Auslösen der Photoelektronen aus dem Innenleiter durch die XUV Strahlung in einem linearen Prozess stattfindet, wird für die NIR Strahlung Multiphotonenionisation benötigt (Austrittsarbeit für Kupfer $W_A \approx 4,5$ eV und für Silber $W_A \approx 4,3$ eV). Die Photoemission verursacht in dem Innenleiter einen elektrischen Impuls, welcher über eine SMA-Vakuumdurchführung ausgekoppelt wird. Nach der Vorverstärkung (*ZX-60 - 6013 E, Minicircuits*, Bandbreite 20 MHz bis 6 GHz, Verstärkung 12 - 16 dB) wird das Signal mit einem schnellen Oszilloskop (*LeCroy, Wavemaster*, Bandbreite 6 GHz, Abtastrate bis 20 Gs/s) ausgelesen. Zur Signalverbesserung ist direkt neben der Spitze des Koaxialkabels ein positiv vorgespannter Draht als Absaugelektrode platziert. Die Kontaktierung erfolgt über eine UHV Hochspannungsdurchführung und einen hochohmigen Schutzwiderstand. Die angelegte Absaugspannung wird mit U_{sonde} bezeichnet.

Zeitliche Vorjustage von XUV und NIR Puls

Die zeitliche Struktur der auf dem Innenleiter induzierten elektrischen Impulse ist proportional zu der zeitlichen Struktur der einfallenden Lichtimpulse. Wird die Spitze des Koaxialkabels in die Wechselwirkungszone gebracht, so hat man ein Maß für die relative Ankunftszeitdifferenz der beiden Pulse am nominellen Überlapport. Mit Hilfe der

optischen Delayline wird das Delay Δt so lange variiert, bis die Anstiegsflanken der beiden elektronischen Signale überlagert sind. Abbildung 4.22 zeigt die elektrischen Signale erzeugt durch die beiden Pulse und aufgenommen mit dem schnellen Oszilloskop. Die Triggerrung der Signale erfolgt über eine Fotodiode, welche die NIR Strahlung kurz vor dem Eintritt in die Wechselwirkungskammer detektiert [siehe Abbildung 4.4]. Die Anstiegszeit $\Delta\tau_{\text{rise}}$ ist die Zeit, die der elektrische Impuls benötigt um von 10 % seiner Amplitude auf 90 % anzusteigen. Sie beträgt für beide Signale ~ 115 ps. Diese Zeit sollte der Anstiegszeit des benutzten Verstärkers ZX-60 - 6013 E entsprechen. Letztere wird nach Auskunft der Firma Minicircuits mit 300 ps angegeben, wobei es sich hierbei um eine konservative Abschätzung aus Stromkreissimulationen handelt. Die Genauigkeit der beschriebenen Methode zur zeitlichen Synchronisation ist in erster Linie gegeben durch die Präzision, mit welcher die beiden ansteigenden Flanken überlagert werden können. Man beobachtet bei längerer NIR Bestrahlung eine kontinuierlich Abnahme des NIR induzierten Signals. Diese Abnahme, die wahrscheinlich aufgrund von Ablation des Festkörpers auftritt, verhindert eine Anwendung der Zeitsonde als NIR Intensitätsmonitor (beispielsweise zur Bestimmung der optimalen vertikalen Fokusslage). Die zeitliche Messung wird jedoch durch diese Abnahme nicht entscheidend behindert, da sich dadurch die Pulsform - insbesondere an der ansteigenden Flanke - nicht ändert. Nachfolgende Kreuzkorrelationsmessungen zeigen, dass der zeitliche Nullpunkt mit einer Genauigkeit von ± 10 ps bestimmt werden kann.

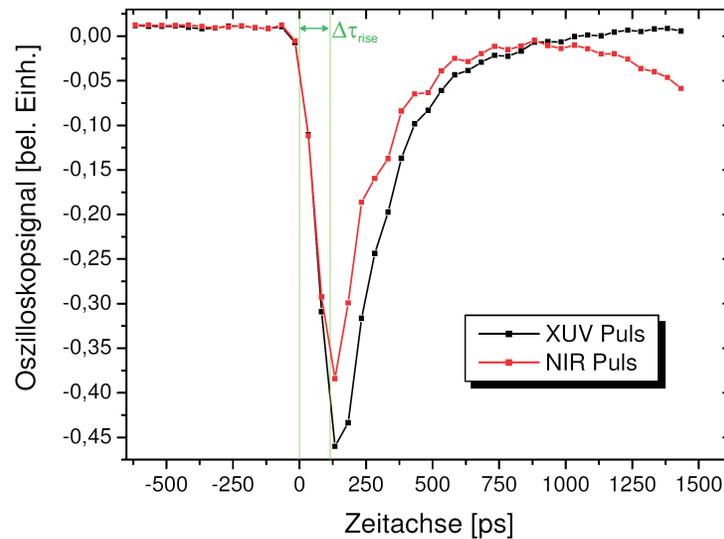


Abbildung 4.22: Zeitsondensignal erzeugt durch die XUV Pulse von FLASH (schwarz) und die NIR Pulse (rot). Die Messung wurde an der fokussierten Beamline PG2 bei $\lambda_{\text{XUV}} = 13,7$ nm durchgeführt, die angegebenen Signale ergeben sich aus der Mittelung über 200 Einzelschüsse. Die abfallenden Flanken beider elektronischen Pulse liegen übereinander, beide Signale haben Anstiegszeiten von $\Delta\tau_{\text{rise}} \sim 115$ ps. Die Absaugspannung beträgt $U_{\text{sonde}} = 93$ V.

Eichobjekte

Damit absolute Größenangaben von Objekten in der Wechselwirkungszone gemacht werden können, müssen die zur Beobachtung eingesetzten CCD Kameras geeicht werden. Zu diesem Zweck sind am MFT mehrere Eichobjekte bekannter Abmessungen mit periodischen Strukturen befestigt.

Eichung der Kamera unter 45° bezüglich x - Achse (Kamera 3)

Mit Kamera 3 kann unter anderem der absolute Abstand der XUV und NIR Pulse von der Eintrittsebene in die E-Optik bestimmt werden. Für eine möglichst gute örtliche Auflösung wird diese Kamera mit einem Makroobjektiv ausgestattet (Navitar, "Precision Eye Combination": 0,5x + Precise Eye + 1.0x). Das Objektiv hat einen Arbeitsabstand von 175 mm und liefert eine nominelle Vergrößerung von $V_{\text{Obj}} = 0,9$. Als Eichobjekt dient ein TEM-Netz bestehend aus periodisch angeordneten, parallelen Stegen aus Kupfer (200 Linien/Zoll, Stegbreite: $45,6 \mu\text{m}$, Stegabstand: $85 \mu\text{m}$, *Plano*), welches eben auf die Vorderfläche des MFT oberhalb eines CE:YAG Leuchtschirms befestigt ist. Abbildung 4.23 zeigt ein Bild dieses Eichobjekts in der Wechselwirkungszone. Mit der Eichmessung wird die örtliche Auflösung der Kamera 3 mit dem Makroobjektiv zu $\approx 8 \mu\text{m}$ bestimmt.

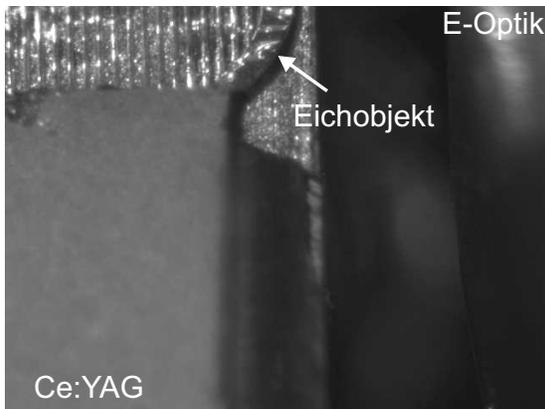


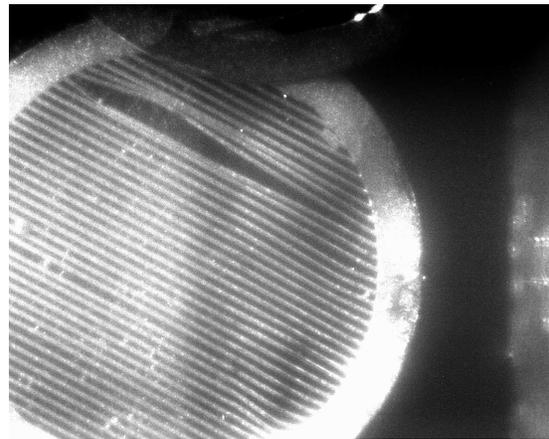
Abbildung 4.23: TEM Netz in der Wechselwirkungszone zur absoluten Eichung der Kamera 3. Die aus der bekannten Periode ermittelte Pixelgröße in dem Bild ist $\approx 8 \mu\text{m}$.

Eichung der oberen Kamera (Kamera 5)

Kamera 5 überwacht die Wechselwirkungszone von oben. Mit einer Bikonvexlinse ($f = 125 \text{ mm}$) wird eine Vergrößerung von 3 erreicht. Der Abstand der Wechselwirkungszone zum Chip der Kamera beträgt $\sim 500 \text{ mm}$. Nach der Eichung kann die Kamera zur Bestimmung der NIR Fokusgröße benutzt werden [Abbildungen 4.9 und 4.10].

Das Eichobjekt (TEM - Parallelstege aus Kupfer mit 200 Linien/Zoll, Stegbreite: $45,6 \mu\text{m}$, Stegabstand: $85 \mu\text{m}$, *Plano*) ist waagrecht am MFT angebracht. Abbildung 4.24 zeigt ein Bild dieses Objekts in der Wechselwirkungszone aufgenommen mit Kamera 5. Die Beleuchtung des Objektes erfolgt unter 45° von oben durch einen Fensterflansch mit einer 800 nm Diode. Dadurch wird die Scharfstellung der Kamera auf eine falsche Ebene aufgrund von chromatischer Aberration verhindert. Mit den bekannten geometrischen Abmessungen der Parallelstege wird die Kamera geeicht, die örtliche Auflösung ist $\approx 3 \mu\text{m}$.

Abbildung 4.24: Vergrößerte Abbildung eines Eichobjektes in der Wechselwirkungszone, aufgenommen mit Kamera 5. Die ermittelte örtliche Auflösung ist $\approx 3 \mu\text{m}$.



Der Wolfram Draht

Am vorderen Ende des MFT ist ein $125 \mu\text{m}$ breiter Wolfram Draht waagrecht (entlang der x-Achse) angebracht [siehe Abbildung 4.21 (b)]. Er ist zur mechanischen Stabilisierung in eine Keramikhülse geklebt und ermöglicht über Lichtemission eine Positionsbestimmung der NIR Strahlung. Damit ist die örtliche Justage der NIR Strahlung bezüglich der E-Optik Eintrittsapertur möglich. Dies zeigt Abbildung 4.25.

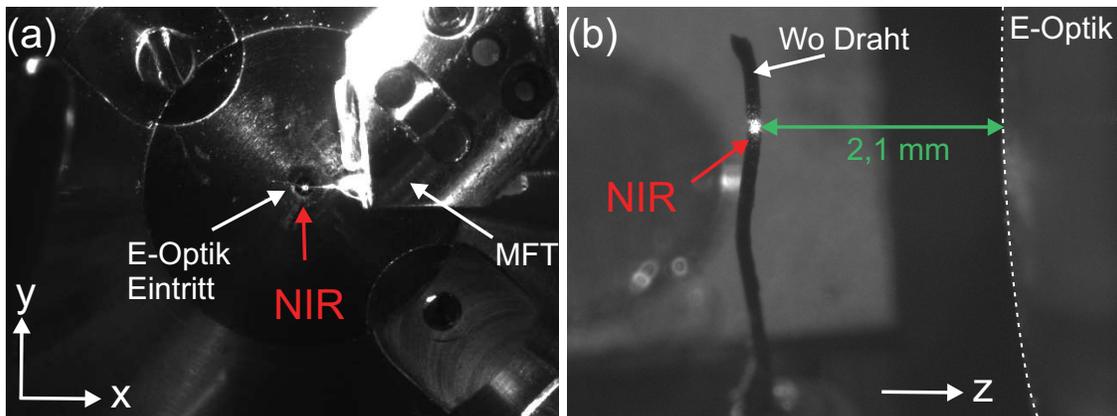


Abbildung 4.25: (a) Bild des $125 \mu\text{m}$ dicken W-Drahts in der Wechselwirkungszone, aufgenommen mit Kamera 2. Am Auftreffort der NIR Strahlung auf dem Draht kommt es zur Lichtemission. Dies ermöglicht die örtliche Justage des Strahls bezüglich der E-Optik Eintrittsapertur entlang der Ausbreitungsrichtung der XUV Pulse. (b) Bild des Drahts mit NIR induzierter Lichtemission aufgenommen mit Kamera 3. Damit ist die örtliche Justage entlang der Ausbreitungsrichtung der Photoelektronen möglich.

Aufgrund seiner bekannten Dicke kann der Draht auch als Eichobjekt für die Kamera 2 benutzt werden. Wird er in Sollabstand zur E-Optik Eintrittsapertur gebracht und die Kamera 2 auf ihn scharf gestellt, so wird eine örtliche Auflösung von $\approx 40 \mu\text{m}$ ermittelt.

Der Ce:YAG Leuchtschirm

Am Ende des MFT ist mit einem UHV-tauglichen, leitfähigen Klebstoff ein Ce:YAG Leuchtschirm aufgeklebt [Abbildung 4.21]. Auf diesem ist XUV induzierte Fluoreszenz im sichtbaren Spektralbereich mit Maximum bei 550 nm zu sehen. Die Abklingzeit für diese Fluoreszenz liegt bei ≤ 100 ns [71]. Zusätzlich wird die NIR Strahlung am Leuchtschirm gestreut und wird dadurch ebenfalls sichtbar. Damit der Leuchtschirm von der NIR Strahlung streifend getroffen werden kann, ist er gegenüber der vertikalen Achse (y -Achse) um 5° gegen den Uhrzeigersinn gekippt eingebaut. Des Weiteren ist er um 5° gegen den Uhrzeigersinn gegenüber der z -Achse verkippt. Dadurch kann mit Kamera 2 bestimmt werden, in welcher Höhe der XUV Puls den Leuchtschirm trifft. Das Signal auf dem Ce:YAG Schirm ermöglicht folgende Messungen:

- Überwachung des Abstands des XUV/NIR Strahlwegs von der E-Optik.
- Überwachung der Strahlhöhe des XUV Pulses bezüglich der E-Optik.
- Überwachung des örtlichen Überlapps von XUV und NIR Pulsen in der Wechselwirkungszone.
- Vermessung des XUV Strahlprofils in der Wechselwirkungszone.
- Örtliche Stabilität der XUV Strahlung von FLASH von Puls zu Puls.

Überwachung der XUV Strahlhöhe bezüglich der E-Optik Eintrittsappertur

Abbildung 4.26 zeigt die richtige Strahlposition des XUV Pulses bezüglich der E-Optik Eintrittsappertur.

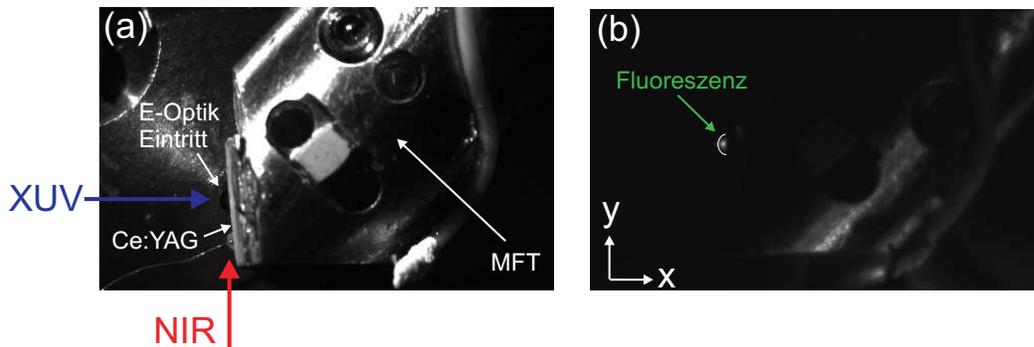


Abbildung 4.26: Einstellung der XUV Strahlhöhe bezüglich der E-Optik Eintrittsappertur anhand des Fluoreszenzsignals auf dem Ce:YAG Leuchtschirm des MFT. Beide Bilder wurden mit Kamera 2 aufgenommen. (a) Der Ce:YAG Leuchtschirm ist in die Wechselwirkungszone gefahren worden. (b) Bei reduzierter Beleuchtung ist das XUV induzierte Fluoreszenzsignal zu sehen. Der XUV Puls läuft in Höhe der Mitte des Eintrittsloch (mit weißem Halbkreis kenntlich gemacht) durch die Wechselwirkungszone.

Überwachung des örtlichen Überlapps von XUV und NIR Pulsen

Der optimale Arbeitsabstand von 2,1 mm zwischen der Wechselwirkungszone und der Eintrittsebene in die E-Optik kann mit Hilfe des XUV Fluoreszenzsignals und der Kamera 3 eingestellt werden. Danach ist der örtliche Überlapp mit der NIR Strahlung entlang der z-Achse zu überprüfen. Dies zeigen die beiden Bilder in Abbildung 4.27.

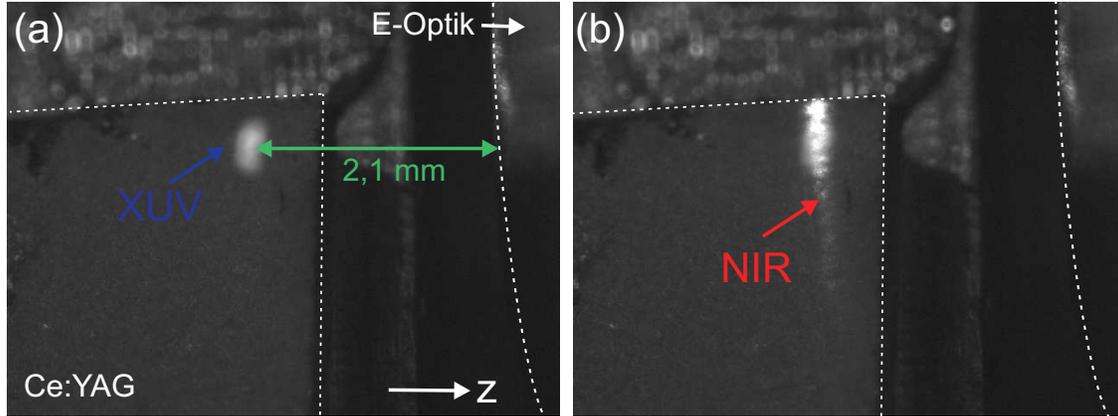


Abbildung 4.27: Bilder mit dem Ce:YAG Schirm in der Wechselwirkungszone, aufgenommen mit Kamera 3. (a) Fluoreszenzsignal erzeugt durch XUV Strahlung von FLASH an der fokussierten Beamline PG 2. Durch Justage der gesamten Apparatur wird das Zentrum des Fluoreszenzsignals in den Sollabstand zur E-Optik Eintrittsapertur gebracht. (b) Durch das XUV Fluoreszenzsignal und Streuung der NIR Strahlung am Leuchtschirm kann örtlicher Überlapp entlang der z-Achse sichergestellt werden.

Vermessung des XUV Strahlprofils über Fluoreszenzsignal auf dem Ce:YAG

Das XUV Strahlprofil in der Wechselwirkungszone ist ein wichtiger Parameter im Experiment. Während bei den Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung dieses Strahlprofil durch die XUV Eintrittsöffnung gegeben ist, kann für die fokussierte Strahlung an der Beamline PG2 die Fokusgröße mit dem Fluoreszenzsignal auf dem Ce:YAG Schirm des MFT ermittelt werden. Dabei ist zu berücksichtigen, dass Kamera 3 unter $\alpha = 45^\circ$ gegenüber der x-Achse den Leuchtschirm überwacht und dieser zusätzlich um $\beta = 5^\circ$ gegenüber der y-Achse verkippt ist. Sind h_{xuv}' und z_{xuv}' die im Bild ermittelte Fokushöhe und -breite, so gilt für die tatsächlichen Fokusabmessungen in der Wechselwirkungszone:

$$h_{\text{xuv}} = h_{\text{xuv}}' \frac{\cos \beta}{\cos (\alpha - \beta)} \quad \text{bzw.} \quad z_{\text{xuv}} = z_{\text{xuv}}'. \quad (4.3)$$

Zusätzlich ist der Leuchtschirm auch um 5° gegenüber der z-Achse verkippt. Allerdings liegt der Fehler, der dadurch bei der Bestimmung von h_{xuv} gemacht wird, bei unter 2 %.

Abbildung 4.28 zeigt die XUV induzierte Fluoreszenz auf dem Ce:YAG Kristall bei Benutzung der $60 \times 300 \mu\text{m}^2$ bzw. der $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ Eintrittsblende sowie Intensitätsplots entlang der y- und der z-Achse.

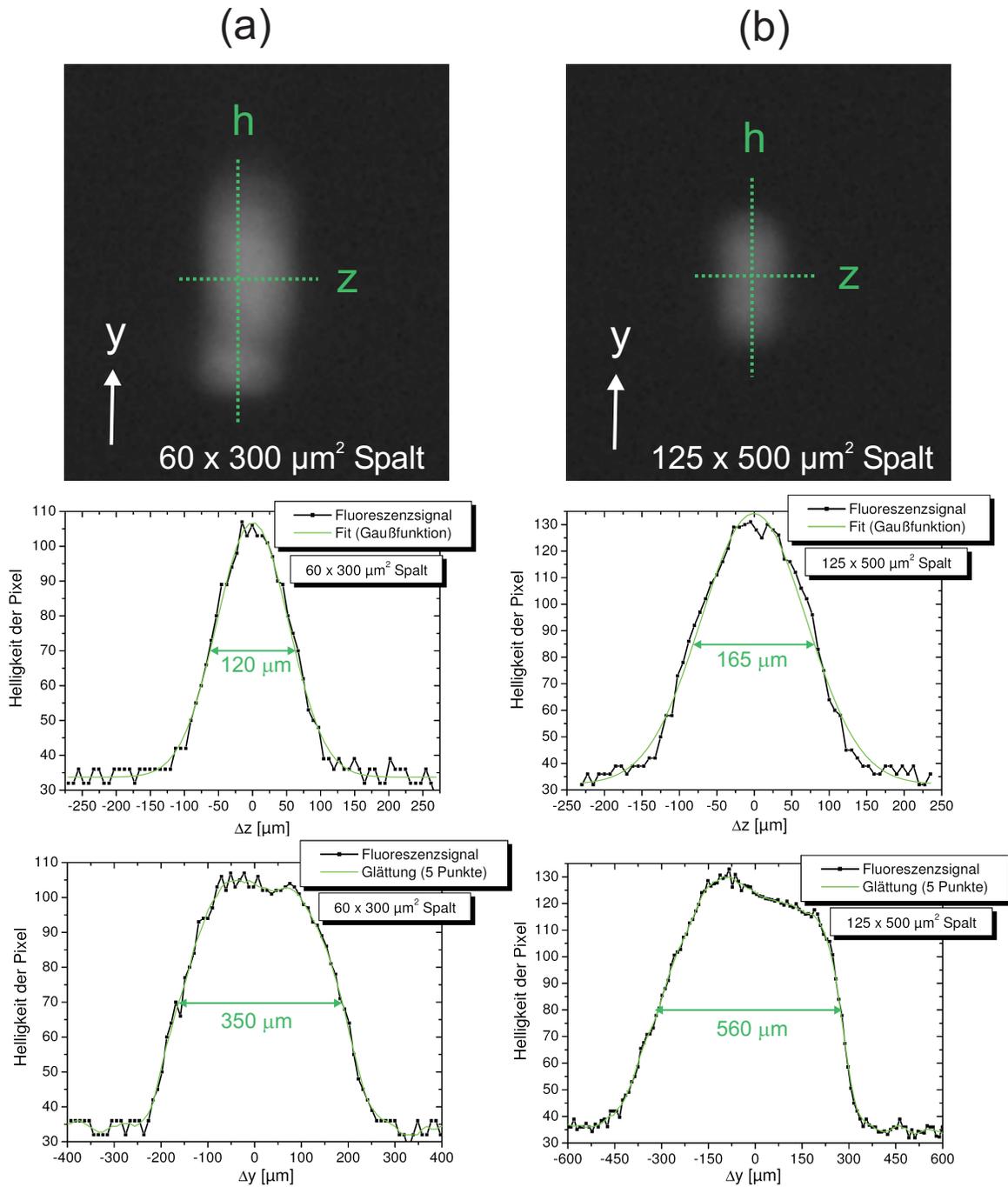


Abbildung 4.28: Fluoreszenzsignal auf dem Leuchtschirm des MFT erzeugt durch die fokussierte Strahlung von FLASH an der Beamline PG2 bei Benutzung einer (a) $60 \times 300 \mu\text{m}^2$ bzw. (b) $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ Eintrittsblende. Unten sind Intensitätsverteilungen des Fokus entlang der y-Achse (Ausbreitungsrichtung der NIR Strahlung) und der z-Achse (Ausbreitungsrichtung der Photoelektronen) dargestellt. Die Projektionen nach Gleichung (4.3) sind dabei berücksichtigt.

Unter Berücksichtigung der Projektion nach Gleichung (4.3) ergeben sich Fokusabmessungen von $z_{\text{XUV}} \approx 120 \mu\text{m}$ (FWHM) / $h_{\text{XUV}} \approx 350 \mu\text{m}$ (FWHM) für den $60 \times 300 \mu\text{m}^2$ Spalt und $z_{\text{XUV}} \approx 165 \mu\text{m}$ / $h_{\text{XUV}} \approx 560 \mu\text{m}$ (FWHM) für den $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ Spalt. Diese ermittelten Werte sind also systematisch größer als die Abmessungen der Eintrittsblenden. Der Wert, um welchen das Fluoreszenzsignal zu groß ist, ist quasi unabhängig von der Wahl der Apertur und nahezu gleich in horizontaler und vertikaler Richtung. Offensichtlich ist diese Verbreiterung daher nicht auf Beugung zurück zu führen, sondern sollte ihren Ursprung in einer Streuung der XUV Strahlung an den Leuchtschirmpartikeln haben. Sie verursacht ein Leuchthalo, welches den XUV Fokus größer erscheinen lässt als er ist.

4.9.2 GaAs Kristall zur Bestimmung des XUV Strahlprofils

Auf dem GaAs Kristall, an dem die Kreuzkorrelationsmessungen basierend auf der Änderung der optischen Reflektivität stattfinden, findet XUV induzierte Fluoreszenz statt. Analog zu den Messungen mit dem Ce:YAG Schirm können damit die Abmessungen des XUV Spots von FLASH in der Wechselwirkungszone bestimmt werden. Abbildung 4.29 (a) zeigt das Fluoreszenzbild der fokussierten XUV Strahlung von FLASH auf dem GaAs Kristall. Als Eintrittsblende für den XUV Puls ist der $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ Spalt benutzt worden. Beim Positionieren des Spalts im XUV Strahl wird eine Verkleinerung des Fluoreszenzsignals in z-Richtung beobachtet. Folglich sollte die Breite des Fluoreszenzsignals der Spaltbreite entsprechen.

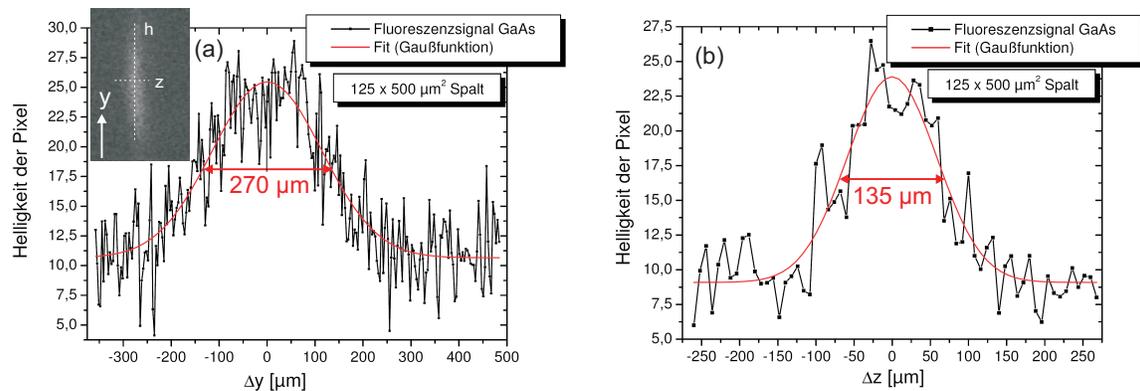


Abbildung 4.29: Abmessungen des XUV Fokus (a) entlang der Ausbreitungsrichtung der NIR Strahlung (y-Achse) und (b) entlang der Ausbreitungsrichtung der Photoelektronen (z-Achse) bestimmt über das Fluoreszenzsignal auf dem GaAs Kristall [Inlet in (a)]. Dieses Signal wird erzeugt durch die fokussierte Strahlung von FLASH an der Beamlinie PG2 mit $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ Eintrittsspalt und wurde aufgenommen mit der Kamera 3. Die Projektion bei der Bestimmung der Höhe nach Gleichung (4.4) ist berücksichtigt. In rot ist jeweils ein Gaußfit gezeigt.

Sind h_{XUV}' und z_{XUV}' die im Bild ermittelte Fokushöhe und -breite, so muss zur Bestimmung der tatsächlichen Fokushöhe h_{XUV} berücksichtigt werden, dass der Kristall um $\phi = 22,5^\circ$

gegenüber der x-Achse verkippt ist. Zusätzlich überwacht die Kamera 3 den Kristall unter 45° gegenüber der x-Achse. Aus einfacher geometrischer Betrachtung ergibt sich:

$$h_{\text{xuv}} = h'_{\text{xuv}} \frac{\cos(90^\circ - \phi)}{\cos \phi}. \quad (4.4)$$

Gegenüber dem Signal auf dem Leuchtschirm des MFT [vgl. Abbildung 4.28] zeigt das gemessene Fluoreszenzsignal zwar einen schlechteren Kontrast, es tritt aber keine Streuung der XUV Strahlung an der Oberfläche des Kristalls auf. Daher ist die ermittelte Breite von $z_{\text{xuv}} = 135 \mu\text{m}$ (FWHM) deutlich näher an an der Spaltbreite von $125 \mu\text{m}$ als beim Ce:YAG Schirm, wo $z_{\text{xuv}} = 165 \mu\text{m}$ (FWHM) gemessen wurde.

4.9.3 Die Online Normierung

Die Normierung der gemessenen Signale auf die schwankende Intensität der Strahlung von FLASH ist von besonderer Wichtigkeit. Die XUV Pulsenergie kann Schuss für Schuss mit Hilfe der beiden in die Beamline integrierten Gas Monitor Detektoren (GMD) [Abbildung 3.9] bestimmt werden. Diese Messdaten werden mit Zeitstempeln abgespeichert, und können nachträglich den individuellen Schüssen von FLASH zugeordnet werden. Jedoch befinden sich die GMD innerhalb der Beamline und somit in deutlicher Entfernung vom Messplatz. Werden hinter ihnen Aperturen in den XUV Strahl gebracht, so kann deren Einfluss auf die XUV Intensität nicht berücksichtigt werden. Gerade wenn aus einem breiten XUV Strahl nur ein kleiner Teil ausgeschnitten wird (wie es bei Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung der Fall ist), so kann der Einfluss der von Schuss zu Schuss auftretenden ortsabhängigen Intensitätsschwankungen innerhalb des Strahlprofils bedeutend werden. Daher ist eine zusätzliche Intensitätsmessung in der Nähe des eigentlichen Experiments hinter der FEL Eintrittsblende sinnvoll. Dies wurde durch eine sogenannte **Online Normierung** realisiert. Dabei handelt es sich um einen Ionendetektor, der aus zwei Mikrokanalplatten in Chevron Anordnung, einem Signalauffänger und einem ladungsempfindlichen Vorverstärker besteht. Der Ionendetektor ist auf der XUV Austrittsseite der Wechselwirkungskammer entlang des auslaufenden XUV Pulses montiert [Abbildung 4.30 (a)]. Die Größe des durch den XUV Puls erzeugten Ionensignals ist ein Maß für die XUV Pulsenergie. Da für den Nachweis schon die Edelgasatome aus dem Targetgas, die zum Ort des Ionendetektors diffundiert sind, ausreichen, wird durch die zusätzliche Intensitätsmessung das eigentliche Kreuzkorrelationsexperiment nicht beeinflusst. Abbildung 4.30 (b) zeigt eine Prinzipskizze zur Erläuterung der Funktionsweise des Aufbaus.

Abhängigkeit der Daten der Online Normierung von der Spannung U_1

Es zeigt sich, dass für die jeweiligen Strahlparameter von FLASH individuell optimierte Einstellungen für den Ionendetektor der Online Normierung gefunden werden müssen. Es muss sichergestellt werden, dass sich das Ionensignal als Funktion der XUV Intensität linear verhält. Das wird insbesondere durch passende Wahl der Spannung U_1 an der Vorderseite der ersten MCP erreicht, wie Abbildung 4.31 zeigt.

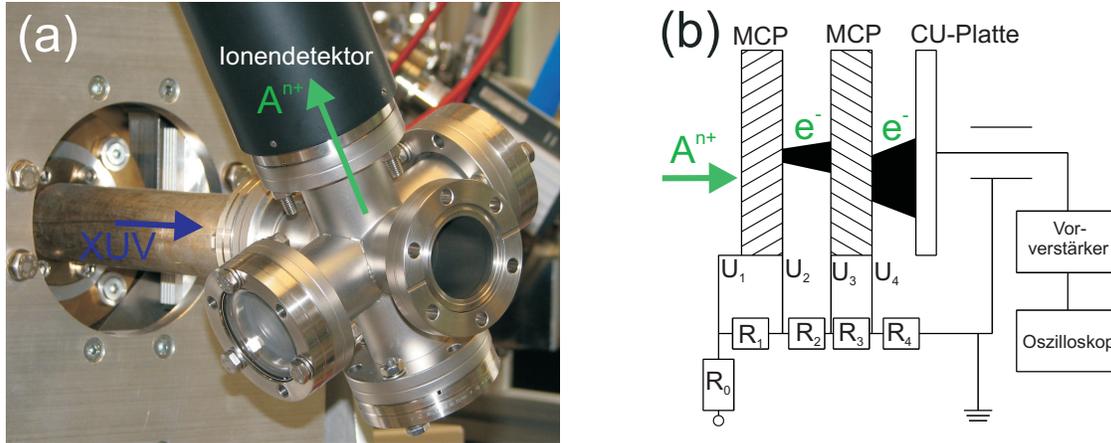


Abbildung 4.30: (a) Bild der Online Normierung. Das CF 40 Doppelkreuz ist auf der Beamline abgewandten Seite der Wechselwirkungskammer montiert und hat an einem Arm einen Ionendetektor. (b) Prinzipskizze des Ionendetektors. Die durch die XUV Strahlung erzeugten Edelgasionen werden durch das gegenüber dem Erdpotential negative Potential U_1 auf die Vorderseite der ersten MCP beschleunigt und durch die Doppel-MCP in Elektronenpulse gewandelt. Die Elektronenpulse werden vom Auffänger in einen ladungsempfindlichen Vorverstärker abgeleitet und dort in Spannungssignale gewandelt, die mit einem Oszilloskop aufgenommen werden. Die Peakhöhe ist proportional zur Zahl der einfallenden Ionen und damit zur XUV Pulsenergie.

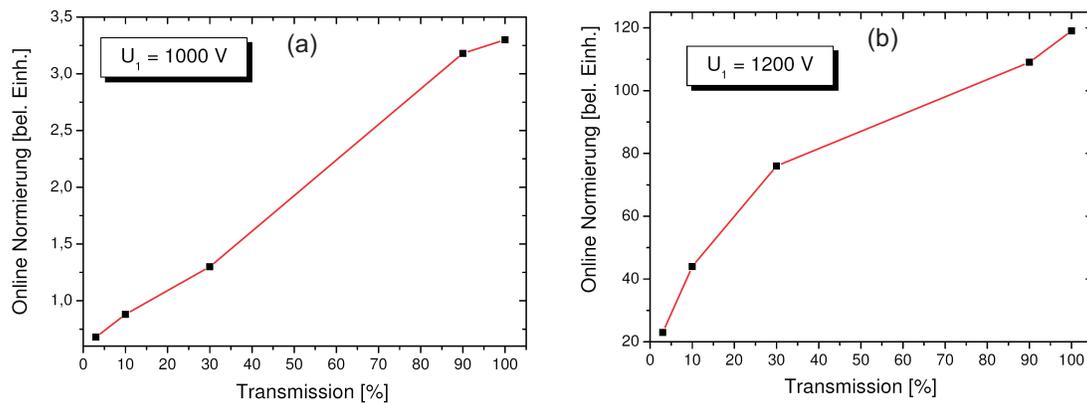


Abbildung 4.31: Signal der Online Normierung als Funktion der Transmission der XUV Beamline PG2 für zwei verschiedene Hochspannungen U_1 an der Vorderseite der ersten MCP des Ionendetektors der Online Normierung. Die Transmission wird mit Hilfe des Gasabsorbers eingestellt. Jeder Signalpunkt wird erhalten durch Mittelung über 128 Einzelschüsse von FLASH.

Hier ist die Peakhöhe des Signals der Online Normierung für zwei verschiedene Spannungen U_1 als Funktion der XUV Pulsenergie aufgetragen. Letztere ist angegeben in Form der Transmission der PG2 Beamline, welche über den Gasabsorber eingestellt wird. Dabei entspricht laut GMD Daten eine Transmission von 100 % einer Pulsenergie von $\sim 15 \mu\text{J}$. Während sich für $U_1 = 1000 \text{ V}$ in guter Näherung ein linearer Zusammenhang ergibt, sind für $U_1 = 1200 \text{ V}$ Anzeichen von Sättigung der Signale festzustellen.

Vergleich der XUV Pulsenergie gemessen mit Online Normierung und GMD

Zum Funktionstest der Online Normierung werden die mit ihr gemessenen XUV Pulsenergien von einzelnen Schüssen von FLASH (mit $n_{\text{micro}} = 1$) verglichen mit den Pulsenergien, die das GMD für die selben Schüsse misst. Die gemessenen Signale werden bei beiden Verfahren mit Zeitstempel versehen und können dadurch den entsprechenden Schüssen zugeordnet werden. Abbildung 4.32 (a) und (b) zeigen die vom GMD bzw. der Online-Normierung gemessenen XUV Pulsenergien für 2500 Schüsse von FLASH an der fokussierten Beamline PG2 bei $\lambda_{\text{xuv}} = 13,7 \text{ nm}$ ohne FEL Eintrittsappertur. Beide Signale werden gegen die Nummer des XUV Pulses von FLASH aufgetragen, wobei es sich nicht um den offiziellen Zeitstempel, sondern um eine aufsteigende Nummerierung startend bei 1 handelt. Bei den GMD Daten ist die Pulsenergie in μJ , bei der Online Normierung über die Peakhöhe des Ionensignals in beliebigen Einheiten angegeben. In grau sind dabei die gemessenen Pulsenergien für die einzelnen Schüsse dargestellt, während die rote Kurve jeweils über 20 Messpunkte gemittelt ist. Die Schwankungen in der Signalthöhe sind Schwankungen in der Pulsenergie von FLASH zuzuschreiben. Man sieht, dass die beiden Signale qualitativ ein ähnliches Verhalten zeigen. So sind Signaleinbrüche in der selben Gegend zu verzeichnen (kenntlich gemacht durch die farbigen Pfeile). Allerdings gibt es Schüsse, bei denen die Online Normierung fast kein Signal misst, das GMD aber noch eine deutliche Pulsenergie detektiert (blauer Pfeil).

Die über beide Verfahren bestimmten Messsignale können auch gegeneinander aufgetragen werden. Abbildung 4.32 (c) zeigt dies für die über 20 Punkte gemittelten Werte. Für höhere Pulsenergie sieht man annähernd den erwarteten linearen Zusammenhang, während es für kleinere Pulsenergien einen deutlichen "Knick" in der Messkurve gibt. Ein linearer Fit an die Daten liefert eine Fitgerade mit einem y-Achsenabschnitt von ≈ 5 . Dies bedeutet, dass für einige Schüsse vom GMD Pulsenergien $\geq 5 \mu\text{J}$ detektiert werden während die Online Normierung kein Signal misst. Der Verlauf kann dadurch begründet sein, dass die Zuordnung der Messpunkte aufgrund falsch abgespeicherter Zeitstempel nicht korrekt ist. Dadurch wäre auch zu erklären, warum sich beim Auftragen der Ergebnisse der Einzelmessungen für beide Methoden gegeneinander keine eindeutige Korrelation ergibt. Andererseits könnten die Messdaten aus Abbildung 4.32 (c) auch auf eine Sättigung der GMD Daten mit zunehmender Pulsenergie hindeuten. Obwohl beide Verfahren auf der gleichen Methode beruhen, könnten sie aufgrund unterschiedlicher lokaler XUV Intensität von nichtlinearen Effekten der Ionisation unterschiedlich stark betroffen sein. Jedoch arbeiten beide Methoden mit geringen Gasdichten, so dass für beide mit einer linearen Antwort zu rechnen ist.

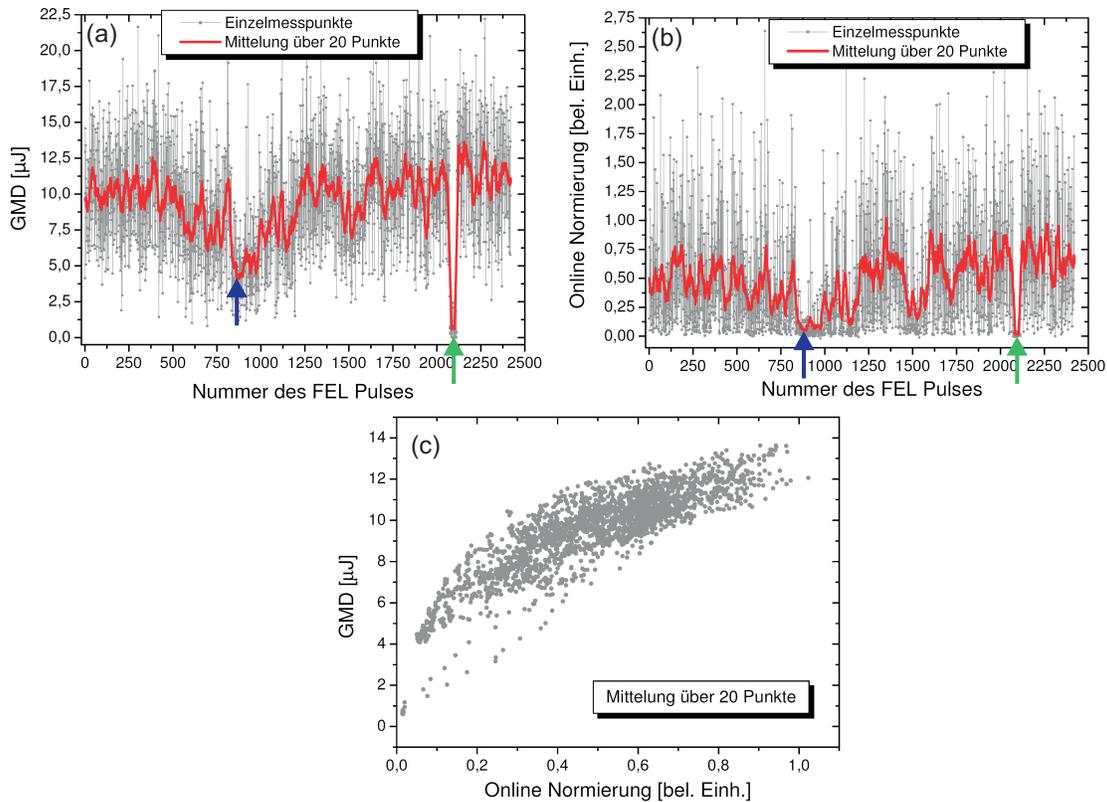


Abbildung 4.32: (a) GMD Daten und (b) Messwerte der Online Normierung für die selbe Messreihe als Funktion der Nummer des XUV Pulses von FLASH ($\lambda_{\text{xuv}} = 13,7 \text{ nm}$, $n_{\text{micro}} = 1$, $I_{\text{xuv}} \leq 10^{12} \text{ W/cm}^2$). In grau sind die einzelnen Messpunkte für den jeweiligen Puls von FLASH aufgetragen, in rot die über 20 Messwerte gemittelten Werte. (c) Messwerte für beide Messmethoden gegeneinander aufgetragen. Dabei handelt es sich um die gemittelten Werte. Bei den Einzelmesswerten lässt sich keine eindeutige Korrelation feststellen.

Vergleich der XUV Pulsenergie gemessen mit Online Normierung und E-Optik

Die Daten der Online Normierung sollen dazu dienen, den Einfluss von Schwankungen in der XUV Pulsenergie auf das eigentliche Kreuzkorrelationssignal, insbesondere bei Aufnahme von orts aufgelösten Emissionsbildern, zu bestimmen. Daher zeigt Abbildung 4.33 für die selben Schüsse aufgenommene Signale der E-Optik (also das Elektronensignal) und der Online Normierung im Einzelschuss (grau) und bei Mittelung über 20 Messwerte (rot) als Funktion der Nummer der Pulse von FLASH. Die Signalkurven für beide Messmethoden zeigen qualitativ einen ähnlichen Verlauf. Trägt man die Messdaten beider Methoden gegeneinander auf, so beobachtet man für die über 20 Punkte gemittelten Daten in etwa einen linearen Zusammenhang. Dagegen kann für die einzelnen Messpunkte keine Korrelation beobachtet werden. Das könnte wiederum daran liegen, dass die Zeitstempel für beide Messungen nicht übereinstimmen. Insbesondere deuten die Messungen darauf hin, dass bei der Online Normierung einzelne Bilder nicht aufgenommen und die nachfolgenden dann mit falschem Zeitstempel versehen wurden.

Eine Korrelation zwischen den Daten der E-Optik und der Online Normierung ist nachgewiesen worden. Im Gegensatz zu den GMD Daten können die Daten der Online Normierung direkt in das Auswerteprogramm eingelesen werden, so dass parallel zu den Kreuzkorrelationsmessungen eine Normierung auf die XUV Intensität erfolgen kann. Die Messungen zeigen allerdings, dass eine nachträgliche Normierung der Spektren mit den Daten der Online Normierung nur begrenzt möglich ist.

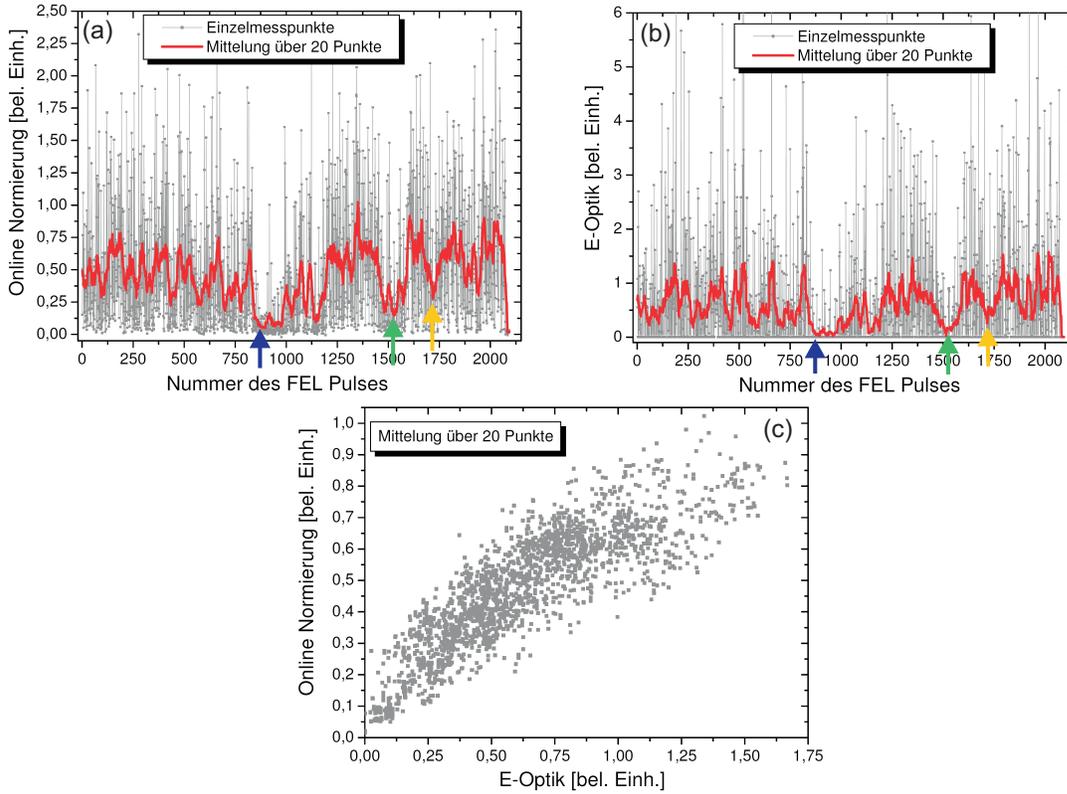


Abbildung 4.33: Messwerte der Online Normierung (a) und der E-Optik (b) für die selbe Messreihe als Funktion der Nummer des XUV Pulses von FLASH ($\lambda_{\text{xuv}} = 13,7$ nm, $n_{\text{micro}} = 1$, $I_{\text{xuv}} \leq 10^{12}$ W/cm²). In grau sind die einzelnen Messpunkte für den jeweiligen Puls von FLASH aufgetragen, in rot die über 20 Messwerte gemittelten Werte. (c) Messwerte für beide Messmethoden gegeneinander aufgetragen. Dabei handelt es sich um die gemittelten Werte. Bei den Einzelmesswerten lässt sich keine eindeutige Korrelation feststellen.

5 Kreuzkorrelation durch NIR induzierte Erzeugung mehrfach geladener Ionen

Neben ihrem Einsatz als abbildendes System für Elektronen, kann mit der E-Optik durch Erdung aller Linsenelemente und des Retardierungsnetzes ein Flugzeitspektrometer realisiert werden [Kapitel 4.7]. Dabei werden Flugzeitspektren der positiv geladenen Ionen detektiert, die in der Wechselwirkungszone zwischen den XUV Pulsen von FLASH und den NIR Pulse nach der Ionisation eines Edelgases erzeugt werden. Das Kreuzkorrelationssignal beruht darauf, dass in den XUV induzierten Flugzeitspektren durch die NIR Pulse Ionen höherer Ladungsstufen erzeugt werden und sich das Verhältnis der Ionen verschiedener Ladungsstufen delayabhängig verändert. Weitere Details zum Prinzip der Kreuzkorrelationsmessung finden sich in Kapitel 5.1. Um detektierte Kreuzkorrelationssignale auswerten zu können, müssen die Flugzeitspektren interpretiert und die Signalpeaks identifiziert werden. Allgemeine Grundlagen zur Interpretation von Flugzeitspektren finden sich in Kapitel 5.2. Des Weiteren müssen vor der Aufnahme von Kreuzkorrelationssignalen NIR und XUV induzierte Flugzeitspektren separat voneinander untersucht werden. Damit beschäftigen sich die Kapitel 5.3 und 5.4. Schließlich werden in Kapitel 5.5 die eigentlichen Kreuzkorrelationsmessungen präsentiert. Sämtliche Messergebnisse stammen von einer Strahlzeit im Januar/Februar 2007 an der fokussierten Monochromator Beamline PG2 am FLASH.

5.1 Das Prinzip einer Kreuzkorrelationsmessung

Ein einfaches Beispiel für die Aufnahme eines vom Delay Δt zwischen den XUV Pulsen von FLASH und den NIR Pulsen abhängigen Kreuzkorrelationssignals mit dem Flugzeitspektrometer ist in Abbildung 5.1 gezeigt. Die Photonenenergie der XUV Strahlung ist dabei so gewählt, dass ein Autoionisationszustand A_b^* des Edelgasatoms A resonant angeregt werden kann. Dieser Zustand kann durch Fluoreszenz in den Grundzustand des Atoms oder unter Emission eines Photoelektrons strahlungslos in einen Zustand des Ions A^+ (der Einfachheit halber wird dieser als Grundzustand angenommen) entleert werden. Während die Strahlungslebensdauer τ_b typischerweise bei einigen ns liegt [193], kann der strahlungslose Übergang (Zerfallsdauer τ_a) auf einer deutlich schnelleren Zeitskala stattfinden.

Es sind drei Fälle für Δt zu unterscheiden:

(a) XUV Puls kommt deutlich vor NIR Puls ($\Delta t \gg \tau_a$).

Dann ist der Zustand A_b^* zerfallen, bevor der NIR Puls das Wechselwirkungsvolumen erreicht hat. Sind die NIR Pulse nicht in der Lage das A^+ Ion weiter zu ionisieren, dann

hat das Einstrahlen der NIR Pulse keine Veränderung der Intensitäten der A^+ und A^{2+} Ionensignale im Flugzeitspektrum zur Folge.

(b) Beide Pulse treffen gleichzeitig in der Wechselwirkungszone ein ($\Delta t \leq \tau_a$).

Die NIR Pulse sind dann in der Lage zusätzliche A^{2+} Ionen zu erzeugen. Das A^{2+} Ionensignal im Flugzeitspektrum nimmt zu, während das A^+ Signal abnimmt.

(c) XUV Puls kommt deutlich nach NIR Puls $|\Delta t| \gg \tau_a$.

Die NIR Pulse sollten mit $I_{\text{nir}} \approx 10^{13} \text{ W/cm}^2$ in der Lage sein, das Atom in einem MPI Prozess einfach zu ionisieren. Wenn der Wirkungsquerschnitt für eine Photoionisation des Ions A^+ entsprechend groß ist, kann der XUV Puls das Atom doppelt ionisieren. Auch dieser Prozess hat somit eine Erhöhung des A^{2+} Ionensignals zur Folge, die aber unabhängig vom Delay Δt ist.

Insgesamt zeigt in diesem Schema das A^{2+} Ionensignal im Flugzeitspektrum als Funktion des Delays Δt einen stufenartigen Anstieg bei $\Delta t \leq \tau_a$. Die Breite der Stufe und somit die Zeitauflösung des Experiments ist durch τ_a gegeben, sofern die Pulsdauer der beiden beteiligten Pulse kleiner als τ_a .

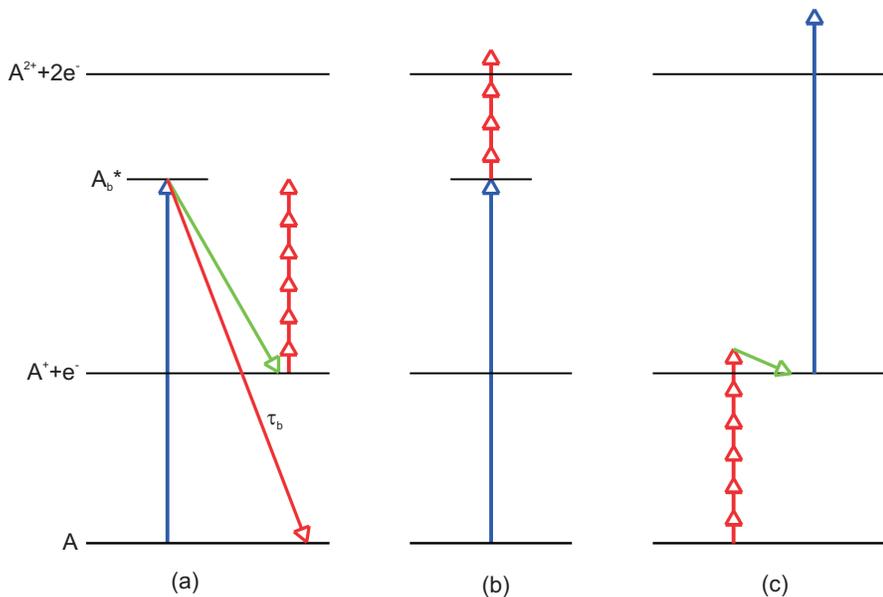


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung einer möglichen Kreuzkorrelationsmessung mit dem Flugzeitspektrometer. Das zeitliche Delay zwischen XUV und NIR Pulsen ist Δt , A_b^* ein Autoionisationszustand, der durch Fluoreszenz (rot, Strahlungslebensdauer τ_b) oder strahlungslos (grün, Zerfallsdauer τ_a) zerfallen kann. Die XUV Photonen werden durch blaue, die NIR Photonen durch rote vertikale Pfeile symbolisiert. (a) XUV Puls kommt deutlich vor NIR Puls: eine doppelte Ionisation ist nicht möglich. (b) $\Delta t \leq \tau_a$: die doppelte Ionisation kann stattfinden. (c) XUV Puls kommt deutlich nach NIR Puls: doppelte Ionisation kann unter Umständen stattfinden, ist aber vom Delay unabhängig.

5.2 Grundlagen der Auswertung von Flugzeitspektren

Die Auswertung von Flugzeitspektren besteht in der Identifizierung der einzelnen Peaks anhand ihrer Laufzeitunterschiede bis zum Erreichen des Detektors.

Die Atome eines Edelgases A mit der Masse m_A werden durch Strahlung der Intensität I und der Photonenenergie $h\nu$ ionisiert. Im Flugzeitspektrum kann man positiv geladene Ionen A^{n+} (mit $n = 1, 2, \dots, n_{\max}$) nachweisen, da sie sich je nach Ladungsstufe in ihrer Flugzeit unterscheiden.

Bestimmung der absoluten Flugzeit

Die positiv geladenen Ionen werden nach ihrer Erzeugung in der Wechselwirkungszone mit der Spannung U_b zwischen den Elektroden E1 und E2 beschleunigt [Abbildung 4.18]. Die kinetische Energie der Ionen direkt nach dem Verlassen dieses Plattenkondensators ist gegeben durch:

$$E_{\text{kin}} = \frac{q_n U_b s_k}{s_E}. \quad (5.1)$$

Dabei ist q_n die Ladung des durch U_b beschleunigten Ions, s_E der Abstand der beiden Elektroden und s_k die zurückgelegte Wegstrecke des Ions im Kondensator. Nach der Beschleunigung fliegt das Ion idealerweise im feldfreien Raum mit der konstanten Geschwindigkeit v_A . Mit $E_{\text{kin}} = \frac{1}{2} m_A v_A^2$ ergibt sich folgende Formel für die absolute Laufzeit $t_{A,n+}$, nach welcher das Ion A^{n+} den Detektor bei einer Flugstrecke von s_A erreicht:

$$t_{A,n+} = s_A \sqrt{\frac{m_A \cdot s_E}{2q_n U_b \cdot s_k}}. \quad (5.2)$$

Die Zeit t_k , die die Ionen benötigen um nach ihrer Erzeugung den Plattenkondensator zu verlassen, ist durch folgende Formel gegeben:

$$t_k = \sqrt{\frac{2m_A s_k s_E}{q_n U_b}}. \quad (5.3)$$

Aus den Gleichungen (5.2) und (5.3) ergibt sich, dass $t_k/t_{A,n+} = 2s_k/s_A$. Wegen $s_k \ll s_A$, ist $t_k \ll t_{A,n+}$.

Abhängigkeit der Flugzeit von der Ladungsstufe n

Meist ist nicht die absolute Laufzeit entscheidend, sondern die relative Laufzeitdifferenz für Ionen unterschiedlicher Ladungsstufen. Ist $t_{A,+}$ die Laufzeit des A^+ Ions, so ist die Laufzeit eines höher geladenen Ions A^{n+} ($n > 1$) der gleichen Atomsorte gegeben durch:

$$t_{A,n+} = \frac{t_{A,+}}{\sqrt{n}}. \quad (5.4)$$

Flugzeitspektren erzeugt durch zwei verschiedene Atomsorten

Besteht ein Flugzeitspektrum aus A^{n+} und B^{m+} Ionen der Massen m_A bzw. m_B und ist die Ladungsstufe für beide Ionen gleich ($m=n$), so gilt für die Laufzeit des B^{n+} Ions:

$$t_{B,n+} = \sqrt{\frac{m_B}{m_A}} t_{A,n+}. \quad (5.5)$$

Im Umkehrschluss gilt dann:

$$m_B = m_A \frac{t_{B,n+}^2}{t_{A,n+}^2}. \quad (5.6)$$

Gleichung (5.6) ist nützlich zur Identifizierung unbekannter Signalpeaks im Flugzeitspektrum der Atomsorte A, die keiner Ladungsstufe A^{n+} zugeordnet werden können.

5.3 NIR induzierte Flugzeitspektren

Um das Flugzeitspektrometer zu eichen, sind Flugzeitspektren aufgenommen worden, welche allein durch die NIR Pulse erzeugt wurden. Die NIR Strahlung hatte dabei folgende Parameter: Rundfokus [Abbildung 4.9] mit $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $n_{\text{mikro}}=1$, $\nu_{\text{makro}}=5 \text{ Hz}$ und $h\nu_{\text{nir}} = 1,55 \text{ eV}$.

Mit Hilfe der E-Optik ist der Nachweis NIR induzierter MPI Signale für Xenon ortsaufgelöst gelungen, wobei die MPI von ATI Prozessen begleitet wird [Abbildung 4.15]. Da bei diesen Messungen ausschließlich die Elektronen detektiert werden, erhält man keine Auskunft darüber, ob dabei auch höher geladene Ionen A^{n+} mit $n>1$ erzeugt worden sind. Flugzeitspektren dagegen liefern diese Information, da die Ionen verschiedener Ladungsstufen unterschieden werden können.

MPI Signale bei Krypton als Targetgas

Bei $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ sollten MPI Ionen Signale von Krypton detektierbar sein [Abbildung 3.27 (a)]. Abbildung 5.2 zeigt das entsprechende Flugzeitspektrum aufgenommen mit dem Flugzeitspektrometer. Das mit einem Oszilloskop ausgelesene Signal wird im Folgenden als **Ionensignal** bezeichnet. Die absolute Größe dieses Signals hängt von vielen Parametern ab, wie beispielsweise U_{MCP} und U_{LS} . Somit sind verschiedene Spektren hinsichtlich der Signalintensität nur dann zu vergleichen, wenn sie bei genau gleichen Bedingungen hintereinander aufgenommen worden sind. Daher wird das Ionensignal in beliebigen Einheiten angegeben. Das in Abbildung 5.2 dargestellte Signal ist gemittelt über 16 Einzelschüsse. Das linke Bild ist bei größerer, das rechte bei kleinerer Zeitbasis aufgenommen. Das Signal besteht aus fünf nahe beieinander liegenden Peaks. Sämtliche Signalpeaks stammen vom Krypton, wie ein Vergleich mit einem Restgasspektrum ohne Krypton zeigt.

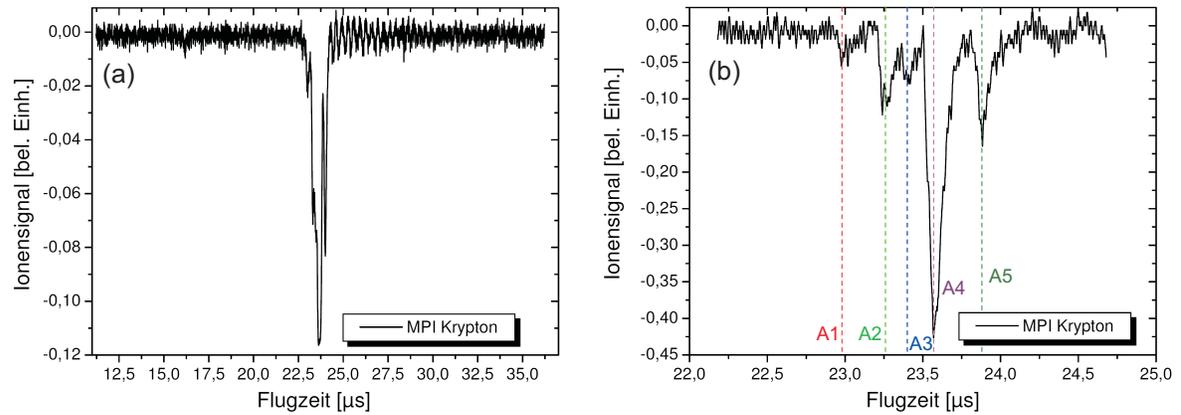


Abbildung 5.2: Flugzeitspektren von Krypton ($p_{\text{Kr}} = 2,5 \cdot 10^{-5}$ mbar) erzeugt durch die fokussierte NIR Strahlung ($I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13}$ W/cm², $h\nu_{\text{nir}} = 1,55$ eV) bei einer Beschleunigungsspannung $U_b = 900$ V, dargestellt über eine größere (a) und eine kleinere (b) Zeitbasis. Das dargestellte Ionensignal ergibt sich aus einer Mittelung über 16 Einzelschüsse.

Die Flugzeiten dieser unterschiedlichen Peaks sind in der ersten Spalte in Tabelle 5.1 zusammengefasst. Die Triggerung der Signale erfolgt auf das Signal der Fotodiode, die hinter dem letzten Umlenkspiegel positioniert ist [Abbildung 4.4]. Daher handelt es sich bei den angegebenen Zeiten um absolute Laufzeiten der Ionen von der Erzeugung bis zum Nachweis am Detektor. Die zweite Spalte enthält die relativen Intensitäten der fünf Signalpeaks. Diese werden bestimmt, indem zunächst über die gesamte und dann über die individuelle Fläche der Signalpeaks integriert wird und anschließend die Verhältnisse dieser Größen gebildet werden. Bei einer gesamten Flugstrecke der Ionen nach Verlassen des Kondensators bis zum Erreichen des Detektors von $s_A \approx 730$ mm [Abbildung 4.11] ergibt sich nach Gleichung (5.2) eine erwartete Flugzeit von $t_{\text{Kr},+} \approx 22,8$ μs .

Es liegt die Vermutung nahe, dass die einzelnen Signalpeaks von den Isotope des Kryptons stammen. Nimmt man an, der intensivste Peak A4 stamme von dem am häufigsten natürlich vorkommenden Isotop ⁸⁴Kr mit einer Atommasse von 83,9 u [194], dann kann die Masse der anderen Signalpeaks nach Gleichung (5.6) bestimmt werden. Die so errechneten Werte sind in der dritten Spalte von Tabelle 5.1 zu sehen. In der vierten Spalte sind die Isotope, die diesen Peaks zugeordnet werden, zusammen mit deren relativen Atommassen eingetragen. Die fünfte Spalte enthält deren relative Häufigkeit in Prozent. Die theoretischen und experimentell ermittelten Werte stehen in guter Übereinstimmung. Insbesondere zeigt die Messung, dass das nachgewiesene Ionensignal proportional zur Zahl der im Wechselwirkungsvolumen erzeugten Ionen ist. Das ist notwendige Voraussetzung für die nachfolgende Aufnahme von Kreuzkorrelationssignalen.

Tabelle 5.1: Aus dem Flugzeitspektrum in Abbildung 5.2 (b) bestimmte Flugzeiten und relative Intensitäten der fünf Signalpeaks (Spalten 1 und 2). Unter der Annahme, der Peak A4 stamme von $^{84}\text{Kr}^+$ Ionen, lassen sich die Massen der anderen Ionen berechnen. Die Werte sind in der dritten Spalte eingetragen. Die Peaks können damit den verschiedenen Isotopen zugeordnet werden. Deren Atommasse und Häufigkeit des Vorkommens sind in den letzten beiden Spalten eingetragen (aus [194]).

	Flugzeit	rel. Intensität	berechnete Masse	Isotop	Häufigkeit (%)
Peak A1	22,98 μs	5,2 %	79,8 u	79,9 u = ^{80}Kr	2,25(2)
Peak A2	23,26 μs	12,7 %	81,7 u	81,9 u = ^{82}Kr	11,6(1)
Peak A3	23,40 μs	9,7 %	82,7 u	82,9 u = ^{83}Kr	11,5(1)
Peak A4	23,57 μs	52,3 %	83,9 u	83,9 u = ^{84}Kr	57,0(3)
Peak A5	23,88 μs	20,2 %	86,1 u	85,9 u = ^{86}Kr	17,3(2)

Nach Gleichung (5.4) müssten Kr^{2+} Ionen nach einer Flugzeit von $t_{\text{Kr},2+} = 16,7 \mu\text{s}$ den Detektor erreichen. Bei dieser Flugzeit ist nur der Ansatz eines Signals zu sehen, der sich aber nicht merklich vom Untergrundrauschen absetzt [Abbildung 5.2 (a)]. Dies zeigt, dass wie bei der benutzten Intensität I_{nir} erwartet [vgl. Abbildung 3.27 (a)], durch die NIR Pulse keine mehrfach geladenen Ionen erzeugt wurden. Die Halbwertsbreite für den Peak 4 in Abbildung 5.2 (b) ist $\Delta t_{\text{Kr},+} \approx 0,083 \mu\text{s}$. Nach der Formel $\Delta E_{\text{kin}} = \Delta t_{\text{Kr},+} \cdot m_{\text{A}}(s_{\text{A}}^2/t_{\text{Kr},+}^3)$, welche sich aus den Gleichungen (5.1) und (5.2) ergibt, lässt sich dies in eine Energiebreite von $\sim 3 \text{ eV}$ umrechnen. Die Ionen werden durch die fokussierten NIR Pulse produziert mit $\Delta z_{\text{nir}} \approx 13 \mu\text{m}$ [Abbildung 4.9]. Dies entspricht einer örtlichen Verteilung $\Delta z_{\text{nir}} = \Delta s_{\text{k}}$, aus welcher die Ionen emittiert werden. Nach Gleichung (5.1) ist $E_{\text{kin}} \propto s_{\text{k}}$, so dass beim Verlassen des Kondensators eine Energieverteilung vorliegt mit $\Delta E_{\text{kin}} = \Delta s_{\text{k}} q_{\text{n}} U_{\text{b}}/s_{\text{E}} \approx 3,3 \text{ eV}$. Die Abschätzungen deuten darauf hin, dass die Breite der Signale im Flugzeitspektrum in erster Linie durch den Beschleunigungsprozess vorgegeben ist und nicht durch die spektrale Breite der ionisierenden NIR Strahlung.

5.4 XUV induzierte Flugzeitspektren

In diesem Kapitel werden Flugzeitspektren von Krypton und Xenon erzeugt alleine durch die XUV Pulse von FLASH an der fokussierten Beamline PG2 vorgestellt. Sämtliche Messungen wurden bei folgenden Parametern durchgeführt:

- $h\nu_{\text{xuv}} \approx 45 \text{ eV}$.
- Fokusgröße $120 \times 300 \mu\text{m}^2$ (FWHM).
- $I_{\text{xuv}} \approx 7 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$, wobei Transmission der PG2 47 % (bei $h\nu_{\text{xuv}} \approx 45 \text{ eV}$, 0. Ordnung Monochromator), Pulsenergie $\approx 15 \mu\text{J}$, Pulsdauer $\tau_{\text{xuv}} = 25 \text{ fs}$ (FWHM).
- $n_{\text{mikro}} = 1$, $\nu_{\text{makro}} = 5 \text{ Hz}$.

Bei der Analyse dieser Flugzeitspektren sind neben linearen Ionisationsprozessen durch die Fundamentale mit 45 eV bei der benutzten XUV Intensität auch nicht-lineare Prozesse bei Absorption von maximal zwei XUV Photonen zu berücksichtigen [140]. Zusätzlich könnten Höhere Harmonische der XUV Strahlung einen Beitrag leisten [Kapitel 3.1.3].

Krypton

Abbildung 5.3 (a) zeigt das Flugzeitspektrum erzeugt durch die fokussierte Strahlung von FLASH bei Krypton als Targetgas ohne NIR Pulse. Das Ionensignal ist durch Mittelung über 16 Einzelschüsse erhalten worden. Die Triggerung der Signale erfolgt wie bei Aufnahme der NIR induzierten Flugzeitspektren auf das Signal der optischen Fotodiode.

Im Flugzeitspektrum finden sich sieben Signalpeaks unterschiedlicher Intensität (F1 - F7). Zur Identifikation der einzelnen Signale ist ein Restgasspektrum bei gleichen XUV Parametern aufgenommen worden [Abbildung 5.3 (b)]. Offensichtlich stammen die Peaks F6 und F7 und eventuell F4 oder F5 aus dem Krypton, während die restlichen Peaks dem Restgas entstammen. Aufgrund der $1/\sqrt{n}$ Abhängigkeit der Flugzeit von der Ladungsstufe n [Gleichung (5.4)] muss F6 von Krypton Ionen höherer Ladungsstufe als F7 erzeugt worden sein. Folglich stammt F7 von einfach positiv geladenen Kr^+ Ionen.

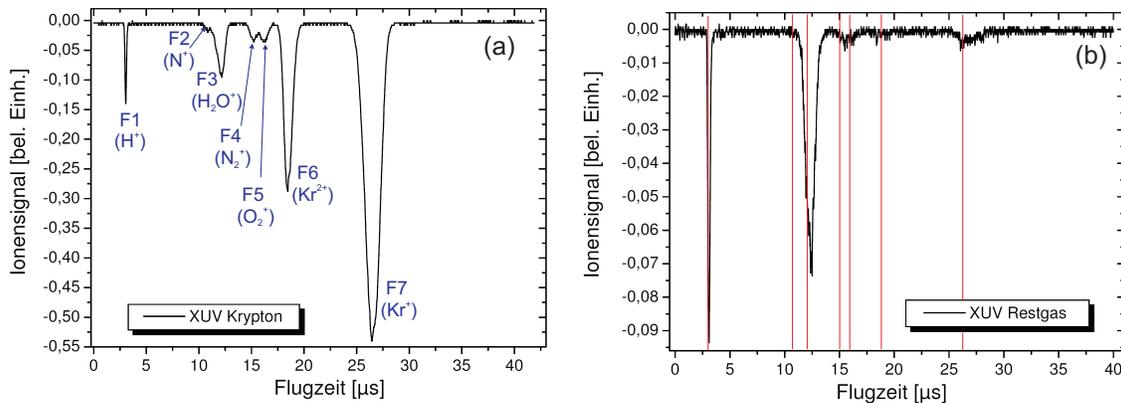


Abbildung 5.3: Flugzeitspektren erzeugt durch die fokussierte Strahlung von FLASH an der Beamline PG2 ($I_{\text{XUV}} \approx 7 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$, $h\nu_{\text{XUV}} = 45 \text{ eV}$) bei einer Beschleunigungsspannung $U_b = 900 \text{ V}$. Die dargestellten Signale ergeben sich aus einer Mittelung über 16 Einzelschüsse. (a) Targetgas Krypton ($p_{\text{Kr}} = 2 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$). (b) Restgasspektrum mit $p_{\text{Kr}} = 5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$. Die vertikalen Striche geben die Position der Peaks im Krypton Spektrum an.

In der ersten Spalte in Tabelle 5.2 sind die absoluten Flugzeiten $t_{A,+}$ für alle Signale des Flugzeitspektrums aus Abbildung 5.3 (a) zusammengefasst. Ist F7 das Kr^+ Signal, so lassen sich gemäß Gleichung (5.4) die Flugzeiten für Ionen höherer Ladungsstufen berechnen. Es ergibt sich $t_{\text{Kr},2+} = 18,7 \text{ } \mu\text{s}$; $t_{\text{Kr},3+} = 15,3 \text{ } \mu\text{s}$; $t_{\text{Kr},4+} = 13,2 \text{ } \mu\text{s}$. Ein Vergleich mit dem Flugzeitspektrum zeigt, dass es sich bei F6 offensichtlich um das Signal der Kr^{2+} Ionen handelt, während andererseits keine Kr^{4+} Ionen detektiert worden sind. Bei F4 könnte es sich um Kr^{3+} Ionen handeln. Die anderen Peak stammen aus dem Restgas. Nimmt man

Tabelle 5.2: Interpretation des Flugzeitspektrums erzeugt durch die XUV Pulse von FLASH bei Krypton als Targetgas [Abbildung 5.3 (a)]. Die Restgas Peaks sind aus dem Laufzeitunterschied relativ zum Kr^+ - Peak identifiziert worden. Dabei wird vorausgesetzt, dass alle diese Ionen nur einfach geladen sind.

	Flugzeit (μs)	berechnete Masse (u)	Herkunft des Signals
Peak F7	26,5	-	Kr^+
Peak F6	18,5	-	Kr^{2+}
Peak F5	16,1	31,0	O_2^+
Peak F4	15,2	27,7	N_2^+
Peak F3	12,1	17,5	H_2O^+
Peak F2	10,8	14,0	N^+
Peak F1	3,1	1,1	H^+

an, es handle sich ausschließlich um einfach geladene Spezies, so lässt sich nach Gleichung (5.6) aus dem Laufzeitunterschied die Masse der jeweiligen Ionenspezies bestimmen. Die so bestimmten Massen sind in der zweiten Spalte in Tabelle 5.2 eingetragen, die dadurch identifizierten Ionensorten in der dritten Spalte.

Die Restgassignale in dem gemessenen Flugzeitspektrum stehen in guter Übereinstimmung mit den Restgassignalen in Flugzeitspektren am FLASH bei $h\nu_{\text{xuv}} \approx 12,7$ eV [Abbildung 3.28]. Ein Vergleich der Spektren zeigt, dass es sich bei F1 vermutlich um eine Überlagerung von H^+ und H_2^+ handelt. Ob im aktuellen Flugzeitspektrum ein Kr^{3+} Signal detektiert worden ist, ist nicht zweifelsfrei zu beantworten, da dieses Signal von dem intensiven N_2^+ Peak überlagert sein könnte.

Folgende Feststellungen können anhand des XUV induzierten Flugzeitspektrums getroffen werden:

(a) Das Kr^+ Signal (F7) hat eine Halbwertsbreite von $\Delta t_{\text{Kr},+} \approx 1,4$ μs . Dies entspricht einer energetischen Breite von $\Delta E_{\text{kin}} = \Delta t_{\text{Kr},+} \cdot m_{\text{A}} (s_{\text{A}}^2 / t_{\text{Kr},+}^3) \approx 37,2$ eV. Nimmt man wie bei den NIR Flugzeitspektren an, diese energetische Breite wäre in erster Linie durch den Beschleunigungsprozess im Kondensator vorgegeben, so entspricht diese einer örtlichen Verteilung von $\Delta s_{\text{k}} = \Delta E_{\text{kinSE}} / q_{\text{n}} U_{\text{b}} \approx 144$ μm . Der Wert dieser Abschätzung liegt in der richtigen Größenordnung wie die ermittelte geometrische Breite des XUV Fokus in der Wechselwirkungszone von ~ 120 μm [FWHM].

(b) Die absolute Flugzeit $\Delta t_{\text{nir,Kr},+}$ der Kr^+ Ionen im NIR induzierten Flugzeitspektrum beträgt nur etwa 88 % der Flugzeit $\Delta t_{\text{xuv,Kr},+}$ für Kr^+ Ionen im XUV induzierten Flugzeitspektrum [vergleiche Tabellen 5.1 und 5.2]. Dass ein zeitliches Delay Δt zwischen XUV und NIR Pulsen dies verursacht, kann ausgeschlossen werden, da die beiden Pulse mit der Zeitsonde bis auf ≤ 10 ps vorsynchronisiert sind. Die Herkunft dieses Unterschiedes in der Flugzeit ist bislang ungeklärt.

(c) Das Verhältnis der Kr^+ und Kr^{2+} Ionen im Flugzeitspektrum aus Abbildung 5.3 kann durch Integration über F6 und F7 bestimmt werden zu $\text{Kr}^+/\text{Kr}^{2+} \approx 3$. In der Vergangenheit sind XUV Ionisationsexperimente am Krypton mit Synchrotronstrahlung durchgeführt worden (z.B. [195],[196],[197]), wobei bei 45 eV die Intensität abgeschätzt wurde zu $I_{\text{XUV}} \approx 5 \cdot 10^8 \text{ W/cm}^2$ [198]. Hier ist ein Verhältnis $\text{Kr}^+/\text{Kr}^{2+} \approx 20$ gemessen worden. Der größere relative Anteil an Kr^{2+} Ionen im aktuellen Experiment könnte ein Hinweis auf eine nicht-lineare Wechselwirkung zwischen den Krypton Atomen und dem Strahlungsfeld sein.

Interpretation des XUV Flugzeitspektrums von Krypton

Abbildung 5.4 zeigt eine Zusammenstellung möglicher Ionisationspfade von Krypton Atomen bei Absorption von maximal zwei XUV Photonen mit $h\nu_{\text{XUV}} = 45 \text{ eV}$ (Fundamentale der FLASH Strahlung).

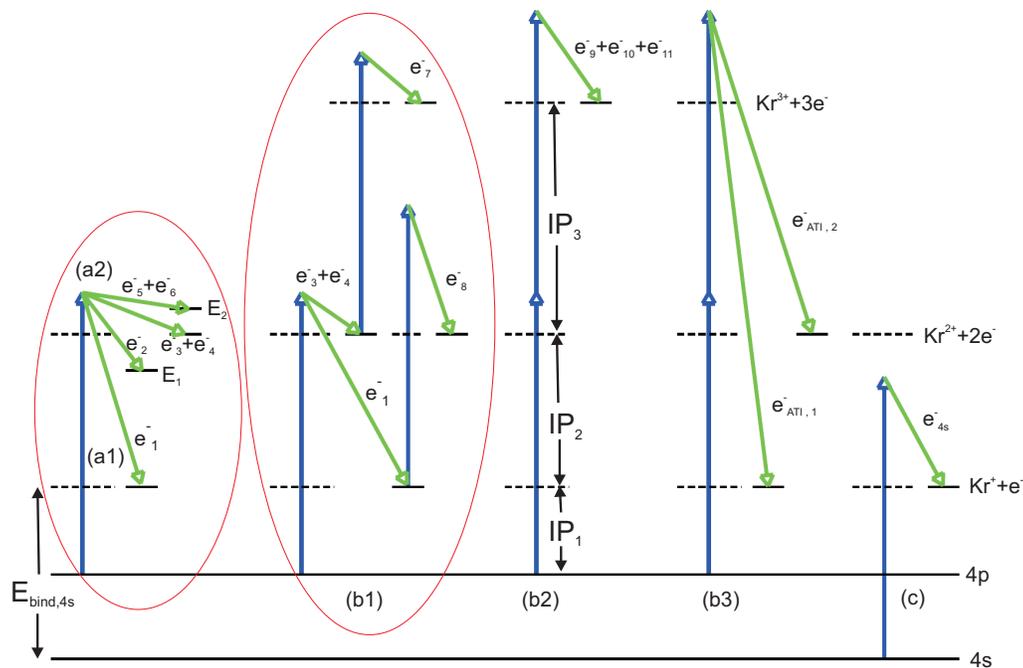


Abbildung 5.4: Schematische Darstellung möglicher Ionisationsprozesse bei der Wechselwirkung von Krypton mit maximal zwei XUV Photonen mit 45 eV. Die horizontalen Linien stellen einige Energiezustände des Krypton Atoms und der Ionen Kr^+ , Kr^{2+} und Kr^{3+} dar. Die grünen Pfeile beschreiben nicht-strahlende Übergänge, die dabei freigesetzten Elektronen werden mit e_x bezeichnet. Strahlende Übergänge sind nicht mit eingezeichnet. (a) Einfache (a1) oder doppelte (a2) Ionisation bei Absorption eines XUV Photons durch ein 4p Elektron. (b) Sequentielle dreifache [linker Prozess in (b1)] oder doppelte Ionisation [rechter Prozess in (b1)] bei Absorption von zwei XUV Photonen. Alternativ können auch direkte dreifache Ionisation (b2) oder ein ATI Prozess (b3) auftreten. (c) Einfache Ionisation bei Absorption eines XUV Photons durch ein 4s Elektron ($E_{\text{bind},4s} \approx 27,5 \text{ eV}$).

Die möglichen Ionisationsprozesse sind im Folgenden aufgelistet:

(a1) Einfache Ionisation durch Absorption eines XUV Photons durch die 4p Schale, Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}(\text{Kr}^+)$. Die Größe des Wirkungsquerschnitts kann Abbildung 9.2 entnommen werden.

(a2) Doppelte Ionisation durch Absorption eines XUV Photons durch die 4p Schale, Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}(\text{Kr}^{2+})$. Für 45 eV sollte $\sigma^{(1)}(\text{Kr}^+) \approx 20 \cdot \sigma^{(1)}(\text{Kr}^{2+})$ sein [196].

(b1) Doppelte oder dreifache sequentielle Ionisation durch Absorption von zwei XUV Photonen durch die 4p Schale, Wirkungsquerschnitte $\sigma_{\text{seq}}^{(2)}(\text{Kr}^{2+})$ bzw. $\sigma_{\text{seq}}^{(2)}(\text{Kr}^{3+})$. Es gilt $\sigma^{(1)}(\text{Kr}^+) \gg \sigma_{\text{seq}}^{(2)}(\text{Kr}^{2+})$ [Kapitel 3.4.4].

(b2) Direkte dreifache Ionisation durch Absorption von zwei XUV Photonen durch die 4p Schale, Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{dir}}^{(2)}(\text{Kr}^{3+})$.

Nach den Ausführungen in Kapitel 3.4.4 kann davon ausgegangen werden, dass $\sigma_{\text{dir}}^{(2)}(\text{Kr}^{3+}) \ll \sigma_{\text{seq}}^{(2)}(\text{Kr}^{3+})$. Eine Bestätigung dessen ist bei der doppelten Ionisation von Krypton nach Absorption von zwei XUV Photonen mit $h\nu_{\text{xuv}} = 25$ eV und $I_{\text{xuv}} \approx 10^{12}$ W/cm² beobachtet worden [199]. Die direkte dreifache Ionisation kann daher in der weiteren Diskussion vernachlässigt werden.

(b3) XUV induzierte ATI Prozesse, Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{ATI}}(\text{Kr})$.

Trotz der Proportionalität $\propto 1/\omega^4$ [Gleichung (3.28)] sind auch im XUV Spektralbereich ATI Prozesse bei Edelgasatomen experimentell nachgewiesen worden ([153],[200]). Typischerweise liegt der Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{ATI}}^{(2)}$ für Zweiphotonenprozesse dabei etwa eine Größenordnung über dem entsprechenden Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{dir}}^{(2)}$ für direkte Zweiphotonenionisation [154]. Obwohl der Literatur für $h\nu_{\text{xuv}} = 45$ eV keine konkreten Werte für σ_{ATI} zu entnehmen sind, lässt sich der Anteil, den dieser Prozess im aktuellen Experiment zum Gesamtsignal beiträgt, abschätzen. Dazu wird ein orts aufgelöstes XUV induziertes Elektronensignal aufgenommen [Abbildung 4.17 (a)] und die Retardierungsspannung U_{ret} so hoch gewählt, dass nur die energiereichen ATI Elektronen den Detektor erreichen können. Der Beitrag von XUV induzierten ATI Prozessen wird dann zu $< 1\%$ bestimmt.

(c) Ionisationsprozesse unter Beteiligung von 4s Elektronen

In Abbildung 5.4 (c) ist beispielhaft die einfache Ionisation des Krypton Atoms durch Absorption eines Photons durch die 4s Schale dargestellt. Der zugehörige Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}(\text{Kr}^+)$ besitzt bei $h\nu_{\text{xuv}} = 45$ eV gerade ein Minimum, wie Abbildung 9.2 zeigt. Dementsprechend besitzt bei dieser Photonenenergie auch die Ionenausbeute ein Minimum [201], und der Prozess kann im Folgenden vernachlässigt werden.

Man kann folglich davon ausgehen, dass das Flugzeitspektrum aus Abbildung 5.3 (a) vornehmlich auf den Prozessen (a1), (a2) und (b1) beruht. Diese Prozesse sind in Abbildung 5.4 rot eingekreist.

Abhängigkeit der Ionensignale im Flugzeitspektrum von der Intensität I_{XUV}

Die Größe des Verhältnisses der Ionensignale von $\text{Kr}^+/\text{Kr}^{2+}$ ist ein erster Indikator, dass nicht-lineare Ionisationsprozesse eine Rolle spielen könnten. Einen weiteren Beweis für solche Effekte gibt die Abhängigkeit der Ionensignale im Flugzeitspektrum von der XUV Intensität an. Treten nicht-lineare Effekte auf, so zeigt die Größe der Ionensignale eine nicht-lineare Abhängigkeit von I_{XUV} .

Abbildung 5.5 (a) zeigt die Abhängigkeit der Ionensignale im XUV Flugzeitspektrum von der XUV Intensität. Die Intensität I_{XUV} ist bestimmt worden über die während der 16 Einzelschüsse vorliegende mittlere GMD Pulsenergie. Die Pulsenergie wird über den Druck im Gasabschwächer mit N_2 als Absorbergas eingestellt.

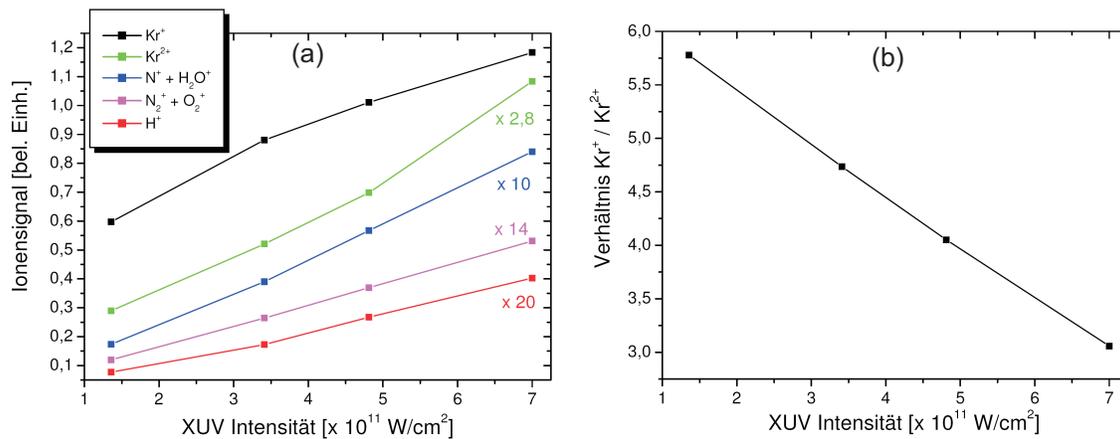


Abbildung 5.5: (a) Ionensignale für verschiedenen Ionensorten im XUV Flugzeitspektrum als Funktion der XUV Intensität bei $h\nu_{\text{XUV}} = 45 \text{ eV}$ ohne NIR Pulse. Das Targetgas ist Krypton ($p_{\text{Kr}} = 2,8 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$). Aus Gründen der Darstellung sind die Absolutwerte der Ionensignale angepasst. Die ineinander gefalteten Signale von N^+ und H_2O^+ bzw. N_2^+ und O_2^+ wurden gemeinsam betrachtet. Bei den Signalen der Kr^+ und Kr^{2+} Ionen sind deutliche Abweichungen von der Linearität festzustellen. (b) Verhältnis $\text{Kr}^+/\text{Kr}^{2+}$ als Funktion der XUV Intensität. Mit zunehmender XUV Intensität nimmt das Verhältnis ab, was dem Auftreten von nicht-linearen Effekten zugeschrieben werden kann.

Die Ionensignale der Restgaspeaks H^+ , $\text{N}_2^+ + \text{O}_2^+$ und $\text{N}^+ + \text{H}_2\text{O}^+$ verhalten sich in guter Näherung linear. Die Linearität ist insbesondere für das Kombinationssignal aus N_2^+ und O_2^+ erwähnenswert. Zum einen sind nämlich in der Vergangenheit nicht-lineare Wechselwirkungen zwischen der XUV Strahlung von FLASH und molekularem Stickstoff beobachtet worden, allerdings bei anderer Photonenenergie ($\lambda_{\text{XUV}} = 32 \text{ nm}$) und Intensitäten $I_{\text{XUV}} \geq 10^{12} \text{ W/cm}^2$ [144]. Zum anderen könnte es sich bei dem Signal um eine Überlagerung des N_2^+ und des Kr^{3+} Signals handeln, wobei für letzteres ein nicht-linearer Prozess benötigt wird (wenn man von einer Ionisation durch die 2. Harmonische von FLASH absieht). Dass ein linearer Anstieg beobachtet wird, schließt die Existenz von Kr^{3+} Ionen aber nicht gänzlich aus. Der lineare Zusammenhang könnte daran liegen, dass der sich linear verhaltende N_2^+ Peak das Signal dominiert.

Offensichtlich verhalten sich im Gegensatz dazu das Kr^+ und das Kr^{2+} Signal mit zunehmendem I_{XUV} nicht linear. So nimmt das Kr^{2+} Signal mit zunehmender XUV Intensität überproportional zu, während das Kr^+ Signal in ein Plateau übergeht. Diese Beobachtung steht in guter Übereinstimmung mit der Erwartung, dass sich mit zunehmender XUV Intensität die Wahrscheinlichkeit für eine sequentielle doppelte Ionisation erhöht. Dementsprechend nimmt das Verhältnis $\text{Kr}^+/\text{Kr}^{2+}$ mit zunehmender XUV Intensität ab [Abbildung 5.5 (b)].

Xenon

Abbildung 5.6 zeigt das Flugzeitspektrum von Xenon, erzeugt durch die fokussierte Strahlung von FLASH ohne NIR Pulse. Das Signal ist über 16 Einzelschüsse gemittelt.

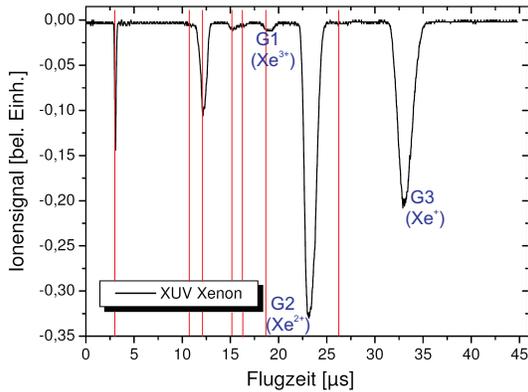


Abbildung 5.6: Flugzeitspektrum von Xenon ($p_{\text{Xe}} = 1,2 \cdot 10^{-5}$ mbar) erzeugt durch die fokussierte Strahlung von FLASH an der Beamline PG2 ($I_{\text{XUV}} \approx 7 \cdot 10^{11}$ W/cm², $h\nu_{\text{XUV}} = 45$ eV) bei einer Beschleunigungsspannung $U_b = 900$ V. Das Signal ist über 16 Einzelschüsse gemittelt. Die vertikalen Striche markieren die Positionen der Peaks F1-F7 im XUV Flugzeitspektrum von Krypton.

Ein Vergleich mit dem entsprechenden Spektrum von Krypton [Abbildung 5.3 (a)] zeigt, dass die Restgaspeaks F1-F3 in ähnlicher Intensität wieder auftauchen. Allerdings ist die Doppelppeakstruktur aus den Peaks F4 und F5 im Kryptonspektrum hier weniger ausgeprägt. Das könnte ein Hinweis darauf sein, dass es sich bei dem Peaks F4 im Krypton Spektrum tatsächlich um eine Überlagerung aus dem N_2^+ und dem Kr^{3+} Signal handelt. Die Peaks F6 und F7 sind nicht mehr vorhanden, dafür sind die drei Peaks G1-G3 neu hinzugekommen. Durch Vergleich mit dem Krypton Flugzeitspektrum lässt sich nach Gleichung (5.6) G3 mit einer Flugzeit von $\sim 32,9$ μs als Xe^+ Signal identifizieren. Nach Gleichung (5.4) ist dann $t_{\text{Xe},2+} = 23,3$ μs , $t_{\text{Xe},3+} = 19,1$ μs und $t_{\text{Xe},4+} = 16,5$ μs . Damit kann G2 eindeutig den Xe^{2+} und G1 eindeutig den Xe^{3+} Ionen zugeschrieben werden.

Es ist auffällig, dass das Xe^{2+} Signal größer ist als das Xe^+ Signal, das Verhältnis ist $\text{Xe}^{2+}/\text{Xe}^+ \approx 1,25$.

Im Gegensatz zu Ionisationsexperimenten mit Xenon am FLASH bei $h\nu_{\text{XUV}} = 12,7$ eV [Abbildung 3.28] wird im vorliegenden Experiment bei 45 eV keine Sättigung der Xenon Ionensignale beobachtet. Dies ist verständlich wegen $\sigma_{\text{Xe}}^{(1)}(5p, 45 \text{ eV}) \ll \sigma_{\text{Xe}}^{(1)}(5p, 13 \text{ eV})$ [Abbildung 9.3].

Interpretation des XUV Flugzeitspektrums von Xenon

Abbildung 5.7 zeigt schematisch die möglichen Ionisationsprozesse für Xenon nach Einstrahlung von XUV Photonen mit $h\nu_{\text{XUV}} = 45 \text{ eV}$.

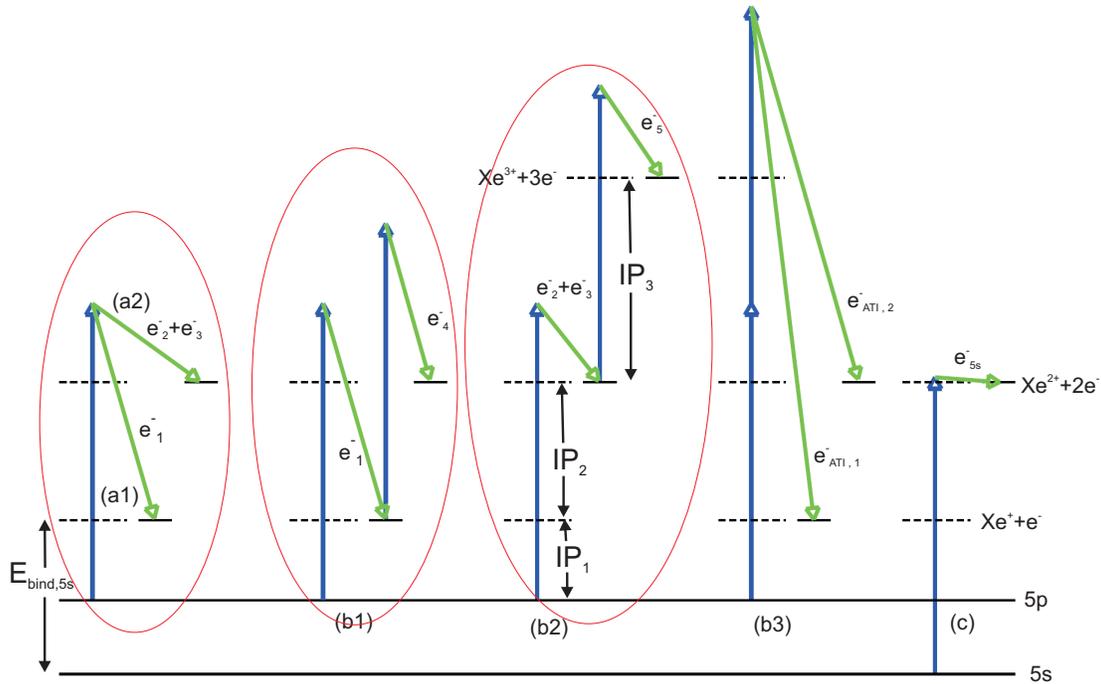


Abbildung 5.7: Schematische Darstellung möglicher Ionisationsprozesse bei der Wechselwirkung von Xenon mit maximal zwei XUV Photonen mit 45 eV. Die grünen Pfeile beschreiben nicht-strahlende Übergänge, die dabei freigesetzten Elektronen werden mit e_x bezeichnet. Strahlende Übergänge sind nicht mit eingezeichnet. (a) Einfache (a1) oder doppelte (a2) Ionisation bei Absorption eines XUV Photons durch ein 5p Elektron. (b) Sequentielle doppelte (b1) oder dreifache Ionisation (b2) bei Absorption von zwei XUV Photonen. Alternativ kann auch ein ATI Prozess (b3) auftreten. (c) Doppelte Ionisation bei Absorption eines XUV Photons durch ein 5s Elektron ($E_{\text{bind},5s} \approx 23,3 \text{ eV}$). Alternativ kann auch eine einfache Ionisation auftreten.

Die Überlegungen sind prinzipiell äquivalent zu denen für Krypton. Demnach sollten insbesondere folgende Prozesse zum Flugzeitspektrum aus Abbildung 5.6 beitragen:

(a1) Einfache Ionisation durch Absorption eines XUV Photons durch die 5p Schale, Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}(\text{Xe}^+)$. Die Größe des Wirkungsquerschnitts kann Abbildung 9.3 entnommen werden.

(a2) Doppelte Ionisation durch Absorption eines XUV Photons durch die 5p Schale, Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}(\text{Xe}^{2+})$. Für 45 eV sollte $\sigma^{(1)}(\text{Xe}^+) \approx 2,5 \cdot \sigma^{(1)}(\text{Xe}^{2+})$ sein [196].

(b1) Doppelte sequentielle Ionisation durch Absorption von zwei XUV Photonen durch die 5p Schale, Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{seq}}^{(2)}(\text{Xe}^{2+})$.

Dieser nicht-lineare Prozess dürfte bedeutend dazu beitragen, dass $\text{Xe}^{2+}/\text{Xe}^+ > 1$.

(b2) Dreifache sequentielle Ionisation durch Absorption von zwei XUV Photonen durch die 5p Schale, Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{seq}}^{(2)}(\text{Xe}^{3+})$. Wegen $\sigma_{\text{dir}}^{(2)}(\text{Xe}^{3+}) \ll \sigma_{\text{seq}}^{(2)}(\text{Xe}^{3+})$ wird wie beim Krypton die direkte dreifache Ionisation vernachlässigt.

(b3) XUV induzierte ATI Prozesse, Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{ATI}}(\text{Xe})$

Während theoretisch ermittelte Werte für den Wirkungsquerschnitt $\sigma_{\text{ATI}}(\text{Xe})$ für Photonenenergien $h\nu \leq 19$ eV [202] bekannt sind für $h\nu_{\text{xuv}} = 25$ eV ein Wert von $\sigma_{\text{ATI}}(\text{Xe}) = 1,0 \cdot 10^{-15} \text{Mb}^2\text{s}$ experimentell ermittelt worden ist [202], ist der Literatur für $h\nu_{\text{xuv}} = 45$ eV kein Wert für $\sigma_{\text{ATI}}(\text{Xe})$ zu entnehmen. Allerdings kann mit dem selben Argument wie beim Krypton der Beitrag dieses Ionisationspfades als gering abgeschätzt werden.

(c) Ionisationsprozesse unter Beteiligung von 5s Elektronen

Der Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}(\text{Xe})$ für die 5s Schale ist bei 45 eV etwa eine Größenordnung kleiner als für die 5p Schale [Abbildung 9.2]. Ein bedeutender Unterschied zum Krypton ist, dass beim Xenon bereits die einfache Absorption eines XUV Photons der Fundamentalen durch die 5p Schale zu einer doppelten Ionisation führen kann [Abbildung 5.7 (c)].

(d) Ionisation mit der 2. Harmonischen von FLASH

Für das Xe^{3+} Signal im Flugzeitspektrum aus Abbildung 5.6 gilt $\text{Xe}^{2+}/\text{Xe}^{3+} \approx 30$. Betrachtet man nur Wechselwirkungen mit der Fundamentalen bei 45 eV, so müsste das Xe^{3+} Signal in einem nicht-linearen Ionisationsprozess erzeugt worden sein. Jedoch ist beim Xenon die Freisetzung von Elektronen aus der inneren 4d Schale (Bindungsenergie 69,5 eV für $4d_{3/2}$ bzw. 67,5 eV für $4d_{5/2}$ [203]) durch die 2. Harmonische der FLASH Strahlung aufgrund des hohen Wirkungsquerschnitts $\sigma^{(1)}(4d, 90 \text{ eV})$ wahrscheinlich. Der Photoemission folgen Auger-Prozesse im Atom nach, die die Emission von Auger-Elektronen auslösen. Das führt zur Erzeugung von Xe^{2+} , aber auch von Xe^{3+} Ionen [204].

5.5 XUV-NIR Kreuzkorrelationsmessungen mit dem Flugzeitspektrometer

In diesem Kapitel werden die Flugzeitspektren präsentiert, die bei Einstrahlung beider Pulse gemessen worden sind.

Krypton

Die folgenden Messungen mit Krypton sind mit $I_{\text{xuv}} \approx 7 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ durchgeführt worden. Aufgrund der von Puls zu Puls variierenden XUV Intensität kann es passieren, dass für weniger intensive XUV Pulse nur lineare Effekte zum Flugzeitspektrum beitragen, während für intensivere Pulse aber auch nicht-lineare Effekte bei der Erzeugung der Kr^+ und Kr^{2+} Ionen auftreten können [siehe Abbildung 5.5 (a)]. Dagegen verhält sich das

GMD Signal genau wie das Signal der Online Normierung aufgrund geringer Gasdichte als Funktion von I_{XUV} linear. Da die Flugzeitspektren durch Mittelung über 16 Einzelschüsse gewonnen werden, erscheint es daher sinnvoll, die relevanten Ionen Signale über die Restgassignale in den Flugzeitspektren auf die XUV Intensität zu normieren. Dazu wird das Kombinationssignal aus N^+ und H_2O^+ benutzt. Jedoch tritt auch bei dieser Normierung ein Fehler auf, der insbesondere daraus resultiert, dass die Kr^+ und Kr^{2+} Signale nicht genau die gleiche Abhängigkeit von I_{XUV} zeigen wie die Restgassignale [Abbildung 5.5 (a)].

Flugzeitspektrum bei großem zeitlichen Delay Δt

Abbildung 5.8 zeigt das Flugzeitspektrum für Krypton bei einem festen Delay $\Delta t \approx 30$ ps zwischen den XUV Pulsen von FLASH und den NIR Pulsen (schwarzes Spektrum). Der nominelle zeitliche Nullpunkt ($\Delta t = 0$ ps) wird mit der Zeitsonde gemessen und über die XUV induzierte Änderung der optischen Reflektivität am GaAs Kristall [siehe Kapitel 7.2] überprüft. Generell gilt: für $\Delta t > 0$ ps erreicht der XUV Puls vor, für $\Delta t < 0$ ps entsprechend nach dem NIR Puls die Wechselwirkungszone.

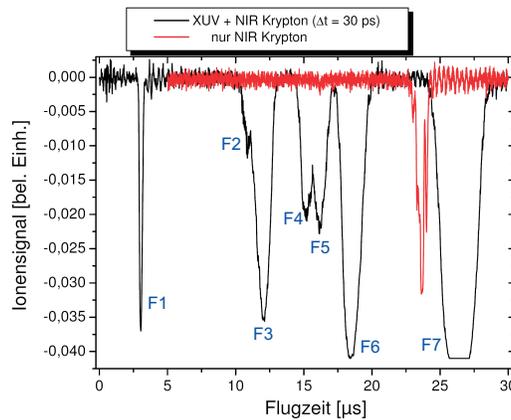


Abbildung 5.8: Flugzeitspektrum von Krypton ($p_{\text{Kr}} = 2 \cdot 10^{-5}$ mbar) bei Einstrahlen der XUV Pulse von FLASH ($I_{\text{XUV}} \approx 7 \cdot 10^{11}$ W/cm², $h\nu_{\text{XUV}} = 45$ eV) und der NIR Pulse ($I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13}$ W/cm², $h\nu_{\text{nir}} = 1,55$ eV) [schwarz]. Die XUV Pulse treffen deutlich vor den NIR Pulsen in der Wechselwirkungszone ein ($\Delta t \approx 30$ ps). Zur besseren Anschaulichkeit wird eine Messung mit kleiner Einstellung der Signalachse präsentiert, was in dieser Darstellung eine Sättigung der Kr^+ und Kr^{2+} Signale zur Folge hat. Zum Vergleich ist zusätzlich das Flugzeitspektrum, welches in einem MPI Prozess allein durch die NIR Pulse erzeugt wird, überhöht eingezeichnet (vgl. Abbildung 5.2) [rot]. Diese Linie fehlt im Gesamtspektrum ganz. Die Flugzeitspektren ergeben sich jeweils aus einer Mittelung über 16 Einzelschüsse.

Das Flugzeitspektrum ist offensichtlich nicht die Summe aus dem XUV [Abbildung 5.3 (a)] und dem NIR [Abbildung 5.2 (a)] Flugzeitspektrum. Die MPI Photolinie, erzeugt allein durch die NIR Pulse (überhöht in rot dargestellt), fehlt im Gesamtspektrum völlig. Diese Photolinie hat etwa 10 % der Intensität des Kr^{2+} Signals im XUV Flugzeitspektrum. Da der XUV Puls vor den NIR Pulsen auf das Edelgastarget trifft, wäre eine Sättigung der Probe durch die XUV Strahlung als Grund für das Fehlen der MPI Linie vorstellbar.

Dann würden durch diese Strahlung bereits fast alle Krypton Atome einfach oder doppelt ionisiert und es stünden keine Atome mehr zur Verfügung, die in einem MPI Prozess durch die NIR Pulse ionisiert werden könnten. Jedoch würde man dann erwarten, dass diese MPI Photolinie für $\Delta t < 0$ ps auftaucht. Dies bestätigt sich nicht.

Aufnahme eines Kreuzkorrelationssignals mit Hilfe des Flugzeitspektrometers

Zur Untersuchung eines zeitabhängigen Kreuzkorrelationssignals werden Flugzeitspektren in Abhängigkeit vom Delay Δt beider Pulse aufgenommen. Das Delay wird dabei definiert über eine optische Delayline im Laserlabor eingestellt und kann mit 0,05 ps/s variiert werden. Messungen dieser Art werden im Folgenden als **Delayscans** bezeichnet. Wird über die relevanten Signalpeaks in den resultierenden Flugzeitspektren integriert, so erhält man bei Krypton als Targetgas die in Abbildung 5.9 dargestellten Messkurven.

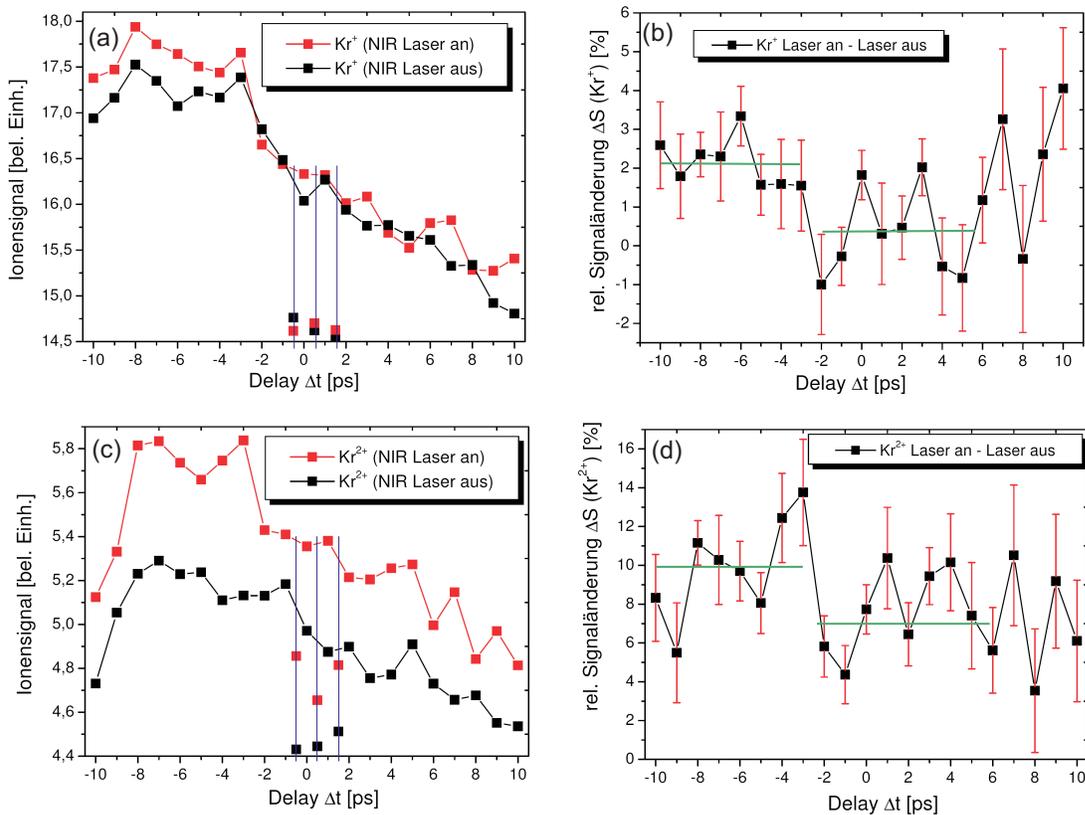


Abbildung 5.9: Ionensignale von Krypton als Funktion des Delays Δt zwischen XUV Pulsen ($I_{\text{xuv}} \approx 7 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$, $h\nu_{\text{xuv}} = 45 \text{ eV}$) und NIR Pulsen ($I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $h\nu_{\text{nir}} = 1,55 \text{ eV}$). Sämtliche Ionensignale sind mittels des $\text{N}^+ + \text{H}_2\text{O}^+$ Signals auf die XUV Intensität normiert worden. Die horizontalen grünen Linien geben den Mittelwert der Signale über das gewählte Delayintervall wider. (a) Ionensignal von Kr^+ . (b) Prozentuale Änderung $\Delta S(\text{Kr}^+)$ verursacht durch die NIR Pulse. (c) Ionensignal von Kr^{2+} . (d) Prozentuale Änderung $\Delta S(\text{Kr}^{2+})$ verursacht durch die NIR Pulse.

Die Kr^+ und Kr^{2+} Ionensignale werden dabei mit Hilfe des Kombinationssignal aus N^+ und H_2O^+ Ionen auf die XUV Intensität normiert. Durch Aufnahme mehrerer XUV induzierter Flugzeitspektren wurde die Eignung dieser Methode überprüft und der Fehler bei dieser Normierung abgeschätzt. Es ist auffällig, dass die absolute Größe des Kr^+ wie auch des Kr^{2+} Signals mit zunehmendem Delay abnehmen. Das liegt daran, dass die XUV Intensität während der Messreihe abgenommen hat und sich das Ionensignal der Edelgase und das Normierungssignal als Funktion von I_{xuv} nicht identisch verhalten [Abbildung 5.5 (a)]. Das sieht man auch an den Messungen bei $\Delta t = -0,5 \text{ ps}$, $0,5 \text{ ps}$ und $1,5 \text{ ps}$, welche nachträglich bei deutlich geringerer XUV Intensität aufgenommen worden sind. Daher ist es wichtig, die Messungen mit eingeschaltetem NIR Laser beziehungsweise ausgeschaltetem NIR Laser für festes Delay Δt bei ähnlicher XUV Intensität auszuführen.

Beim Kr^+ Signal [Abbildung 5.9 (a)] beobachtet man für $\Delta t \leq -3 \text{ ps}$ eine leichte NIR induzierte Signalerhöhung. Die relative Signaländerung $\Delta S(\text{Kr}^+) = [\text{Kr}^+ (\text{Laser an}) - \text{Kr}^+ (\text{Laser aus})] / \text{Kr}^+ (\text{Laser aus})$ liegt für $\Delta t \leq -3 \text{ ps}$ bei $\sim 2 \%$, während für $\Delta t \geq -2 \text{ ps}$ fast keine NIR induzierte Signaländerung auftritt [Abbildung 5.9 (b)]. Für Delays $\Delta t > 6 \text{ ps}$ lässt sich nur schwer eine Aussage treffen, da die relative Signaländerung hier aufgrund besonders stark schwankender XUV Intensität während der Signalaufnahme stark variiert. Einen noch größeren Effekt sieht man beim Kr^{2+} Signal [Abbildung 5.9 (c)]: die NIR Pulse sorgen hierbei für $\Delta t \leq -3 \text{ ps}$ für eine Signalerhöhung um im Mittel $\sim 10 \%$ und für $\Delta t \geq -2 \text{ ps}$ um im Mittel $\sim 7,5 \%$ [Abbildung 5.9 (d)]. Eine eindeutige Abhängigkeit des Kreuzkorrelationssignals für Kr^+ beziehungsweise Kr^{2+} vom Delay Δt ist nicht gegeben, auch wenn sich für beide Signale bei $\Delta t = -2 \text{ ps}$ die Größe der NIR induzierten Signalerhöhung zu ändern scheint.

Ein mögliche Erklärung der Delayscans wird im Folgenden gegeben. Dabei werden zwei Fälle unterschieden:

XUV Puls kommt vor NIR Puls, $\Delta t > 0 \text{ ps}$

Die Auswertung der XUV induzierten Flugzeitspektren deutet an, dass für Krypton bei der vorliegenden XUV Intensität eine Sättigung des Targets eine Rolle spielen könnte. Sättigung hätte zur Folge, dass durch den zuerst einfallenden XUV Puls bereits fast alle Krypton Atome einfach oder doppelt ionisiert werden. Einige der einfach geladenen Kr^+ Ionen befinden sich dabei nach der Ionisation nicht im Grundzustand, sondern in einem angeregten Zustand des Ions, dessen Strahlungslebensdauer typischerweise bei einigen ns liegt [193]. Demnach können die den XUV Pulsen zeitlich nachfolgenden NIR Pulse aufgrund fehlender neutraler Krypton Atome zwar keine einfache Ionisation in einem MPI Prozess bewirken (daher sieht man die MPI Linie nicht), sie können aber unter Umständen die angeregten Kr^+ Ionen weiter ionisieren. Dies würde sich in einer Erhöhung des Kr^{2+} Signals äußern, wie sie für positive Delays auch beobachtet wird [Abbildung 5.9 (d)].

NIR Puls kommt vor XUV Puls, $\Delta t < 0 \text{ ps}$

Durch den NIR Puls werden die Atome in einem MPI Prozess einfach ionisiert. Durch die Absorption des XUV Photons könnten diese Ionen dann doppelt ionisiert werden, falls

der Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)+}(\text{Kr}^{2+})$ bei 45 eV ausreichend groß ist. Dann sollte man für $\Delta t < 0$ ps eine Erhöhung des Kr^{2+} Signals beobachten, die von Δt unabhängig ist. Eine solche Signalerhöhung wird experimentell auch beobachtet [Abbildung 5.9 (d)].

Auffällig ist, dass die NIR induzierte Signalerhöhung des Kr^{2+} (gerade für $\Delta t < 0$ ps) ähnlich groß ist wie das MPI Signal in den NIR Flugzeitspektren ($\sim 10\%$). Des Weiteren fällt auf, dass die Zunahme des Kr^{2+} Signals keine Erniedrigung des Kr^+ Signals zur Folge hat, sondern im Gegenteil für $\Delta t < 0$ ps sogar eine NIR induzierte Kr^+ Signalerhöhung auftritt. Es scheint also so, als ob die Signalerhöhung in beiden Fällen aus dem MPI Signal stammt.

Xenon

Im Gegensatz zu Krypton sind beim Xenon bei $I_{\text{xuv}} \approx 7 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ keinerlei Anzeichen von Sättigung der Probe beobachtet worden.

Flugzeitspektrum bei großem zeitlichen Delay Δt

Abbildung 5.10 zeigt das Flugzeitspektrum für Xenon bei Einstrahlung sowohl der NIR Pulse als auch der XUV Pulse von FLASH bei festem Delay von $\Delta t \approx 30$ ps (schwarzes Spektrum). Zusätzlich eingezeichnet ist die allein durch die NIR Pulse erzeugte MPI Photolinie (rot).

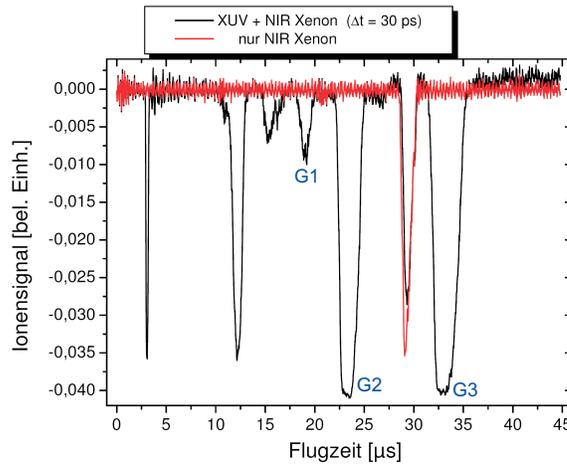


Abbildung 5.10: Flugzeitspektrum von Xenon ($p_{\text{Xe}} = 1,2 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$) erzeugt durch die XUV Pulse von FLASH ($I_{\text{xuv}} \approx 7 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$, $h\nu_{\text{xuv}} = 45 \text{ eV}$) und die NIR Pulse ($I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $h\nu_{\text{nir}} = 1,55 \text{ eV}$) [schwarz]. Die XUV Pulse treffen dabei 30 ps vor den NIR Pulsen in der Wechselwirkungszone ein. Zur besseren Anschaulichkeit wird eine Messung mit kleiner Einstellung der Signalachse präsentiert, was in dieser Darstellung eine Sättigung der Xe^+ und Xe^{2+} Signale zur Folge hat. Daher sind die Verhältnisse der Peakintensitäten nicht korrekt. Zum Vergleich ist zusätzlich das NIR induzierte MPI Flugzeitspektrum eingezeichnet [rot]. Im Gesamtspektrum findet sich dieses Signal wieder und hat eine ähnlich Signalintensität. Die Flugzeitspektren ergeben sich jeweils aus einer Mittelung über 16 Einzelschüsse.

Man sieht im Gegensatz zu der entsprechenden Messung mit Krypton [Abbildung 5.8], dass die MPI Photolinie mit ähnlicher Intensität auch im Gesamtspektrum zu sehen ist. Das MPI Signal macht etwa 10 % des Xe^+ Signals in den XUV induzierten Flugzeitspektren aus. Die MPI Ionen erreichen dabei um $\sim 4 \mu\text{s}$ vor den Xe^+ Ionen im XUV Flugzeitspektrum den Detektor, was wie beim Krypton einer relativen Flugzeit von 88 % entspricht.

Aufnahme eines Kreuzkorrelationssignals mit Hilfe des Flugzeitspektrometers

Zur Untersuchung eines delayabhängigen Kreuzkorrelationssignals wurden Flugzeitspektren unter Einstrahlung beider Pulse in Abhängigkeit vom zeitlichen Delay Δt aufgenommen. Eine aussagekräftige, NIR induzierte Zu- oder Abnahme der Xe^+ und Xe^{2+} Ionensignale als Funktion von Δt ist dabei nicht gefunden worden. Von besonderem Interesse ist die delayabhängige Änderung des Xe^{3+} Signals. Da zu seiner Erzeugung ein nicht-linearer Ionisationsprozess durch die Fundamente vermutlich einen großen Beitrag leistet (neben dem Beitrag durch die 2. Harmonische der Strahlung von FLASH), könnte man vermuten, dass dieses Signal besonders sensitiv auf die gleichzeitige Wechselwirkung von NIR und XUV Pulsen mit dem Target ist. Jedoch ist durch die Nichtlinearität des Signals die Normierung auf die XUV Intensität stark erschwert. Zur Normierung bräuchte man einen Effekt, der die gleiche Abhängigkeit von der XUV Intensität zeigt wie das Signal selbst. Aus diesem Grund lässt sich keine eindeutige Aussage über den Verlauf des Xe^{3+} Signals als Funktion des Delays treffen.

5.6 Zusammenfassung der Messergebnisse und Ausblick

Es wurde unter Benutzung der E-Optik und des Leuchtschirms als Ionenzähler ein Flugzeitspektrometer für Ionen aufgebaut. In voneinander unabhängigen XUV und NIR induzierten Flugzeitspektren von Krypton und Xenon wurde gezeigt, dass das gemessene Verhältnis von Ionen verschiedener Ladungsstufen bzw. Massen übereinstimmt mit dem entsprechenden Verhältnis der im Wechselwirkungsvolumen emittierten Ionen. Die Ergebnisse dieser Messungen stehen in guter Übereinstimmung mit in der Vergangenheit aufgenommenen XUV/NIR Flugzeitspektren. Damit sind die Voraussetzungen für die Durchführung von Kreuzkorrelationsmessungen geschaffen.

In Delayscan wurde bei Krypton eine NIR induzierte Signalerhöhung detektiert. Eine eindeutige Abhängigkeit der Signalerhöhung vom Delay wurde dabei nicht gefunden, jedoch scheint sich der Mittelwert der Signalerhöhung in der Nähe des nominellen zeitlichen Nullpunkts zu ändern. Die Daten deuten darauf hin, dass kein resonanter Zustand im Krypton durch einen der Pulse angeregt und anschließend mit dem anderen Puls abgefragt wurde. Beim Xenon ist keine NIR induzierte Signaländerung beobachtet worden.

Die Messungen haben die Dringlichkeit einer zusätzlichen Normierung auf die XUV Intensität gezeigt. Dies wird für zukünftige Messungen um so bedeutender, wenn Kreuzkorrelationsmessungen im Einzelschuss aufgenommen werden. Dieses Normierungssignal muss die gleiche Abhängigkeit von I_{XUV} zeigen wie das eigentliche Ionensignal in den XUV induzierten Flugzeitspektren. Eine mögliche Schema wäre ein zweites Flugzeitspektrometer in unmittelbarer Nähe zu der Kreuzkorrelationsmessung zu platzieren, welches bei idealerweise gleicher XUV Intensität und Gasdichte ein XUV Flugzeitspektrum aufnimmt. Durch Vergleich der beiden Flugzeitspektren kann das Kreuzkorrelationssignal identifiziert werden. Für zukünftige Messungen der relativen Ankunftszeit von Schuss zu Schuss sollte die Photonenenergie $h\nu_{\text{XUV}}$ so gewählt werden, dass durch Absorption eines Photons beispielsweise ein Autoionisationszustand in dem benutzten Edelgas resonant angeregt wird. Die Untersuchung der Zerfallsdynamik von Autoionisationszuständen von Edelgasen ist in der Vergangenheit untersucht worden (z.B. [205], [206]), und es wurden Lebensdauern bis hinunter zu einigen zehn fs detektiert [207]. Für ausreichend kurze ionisierende Pulse gibt diese Lebensdauer die Zeitauflösung der Messung vor.

Besonders interessant ist dabei das Schema aus [208]. Durch einen ultrakurzen XUV Puls ($\tau_{\text{XUV}} \sim 250$ as) mit $h\nu_{\text{XUV}} = 91$ eV wird der $3d^{-1}np$ Zustand von Krypton resonant angeregt. Auf einer fs Zeitskala zerfällt dieser Zustand aufgrund von Auger-Prozessen, wobei Zerfallskanäle zur Produktion von Kr^{3+} Ionen offen sind. Die Kreuzkorrelation mit den kurzen Pulse eines NIR Lasers ($\tau_{\text{NIR}} \sim 5$ fs, $\lambda_{\text{NIR}} = 750$ nm, $I_{\text{NIR}} \sim 4 \cdot 10^{13}$ W/cm²) führt zu einer Erhöhung des Kr^{3+} Signals. Man erhält ein vom Delay Δt der beiden Pulse abhängiges Signal mit einer Anstiegszeit von $\tau_{\text{rise}} \sim 8$ fs und eine Abfallszeit von $\tau_{\text{fall}} \sim 20$ fs. Dieses Schema läßt sich direkt auf das aktuelle Problem anwenden, indem bei 91 eV Flugzeitspektren von Krypton in Abhängigkeit vom zeitlichen Delay aufgenommen werden und die delayabhängige Änderung der Größe des Kr^{3+} Signals bestimmt wird.

6 Kreuzkorrelation durch laserunterstützte Seitenbanderzeugung an freien Atomen

Mit Hilfe der E-Optik lässt sich über die im Kreuzungsgebiet zwischen XUV und NIR Pulsen emittierten Photoelektronen eine orts aufgelöste Abbildung der Wechselwirkungszone auf einem Elektronendetektor erzielen. Durch laserunterstützte Photoionisation wird in einem örtlich eingeschränkten Bereich innerhalb der Wechselwirkungszone (bei örtlichem und zeitlichem Überlapp der beiden Pulse) die Energieverteilung der Photoelektronen moduliert. Durch Einsatz eines Energie-Hochpassfilters lässt sich dieser Ortsbereich vom Hintergrund separieren. Man erhält dann ein orts aufgelöstes Kreuzkorrelationssignal, welches zur Bestimmung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH relativ zu den NIR Pulsen des zeitlich zu FLASH synchronisierten Ti:Sa Lasersystems genutzt werden kann. Die Messungen erfolgen direkt am Experimentierplatz, so dass alle Quellen des zeitlichen Jitters der XUV Strahlung erfasst werden. In Kapitel 6.1 wird das Prinzip der Kreuzkorrelationsmessung genauer erläutert. Notwendige Voraussetzung für die Aufnahme von aussagekräftigen Kreuzkorrelationssignalen ist eine optimale Arbeitsweise der E-Optik. Dafür sind einige vorcharakterisierende Messungen notwendig, die im Kapitel 6.2 vorgestellt werden. Danach werden die Ergebnisse der Kreuzkorrelationsmessungen präsentiert und analysiert. Diese stammen von insgesamt drei Messzeiten am FLASH im August/September 2005, im Januar/Februar 2006 und im August/September 2006. Die Ergebnisse lassen sich unterscheiden nach Messungen an der unfokussierten XUV Beamline BL3 [Kapitel 6.3] und der fokussierten XUV Beamline PG2 [Kapitel 6.4 und 6.5].

6.1 Das Messprinzip

Bereits Mitte der 90er Jahre sind Kreuzkorrelationsexperimente basierend auf laserunterstützter Photoionisation in einem Edelgas [Kapitel 3.4.6] durchgeführt worden. Damit ist es gelungen, die Pulsdauer eines VUV Pulses durch Kreuzkorrelation mit NIR Strahlung von 800 nm experimentell zu bestimmen [155]. Auch am FLASH sind Kreuzkorrelationsexperimente unter Benutzung dieses Effekts zwischen den XUV Pulsen und den NIR Pulsen des zeitlich synchronisierten Ti:Sa Lasersystems als Pump- und Probepulse in der Vergangenheit an Helium und Xenon durchgeführt worden [209]. Dabei wurden die FLASH Pulse ($h\nu_{\text{xuv}} = 48,5$ eV für He bzw. $h\nu_{\text{xuv}} = 90$ eV für Kr, $I_{\text{xuv}} \approx 10^{13}$ W/cm²) und die NIR Pulse ($I_{\text{nir}} \approx 2 \cdot 10^{12}$ W/cm², $\tau_{\text{nir}} \approx 120$ fs) kollinear eingestrahlt und die emittierten Elektronen mit einer magnetischen Flasche detektiert. Dabei handelt es sich um ein Flugzeitspektrometer, in welches die freigesetzten Ionen durch das starke Feld ei-

nes Permanentmagneten gelenkt werden. Man erreicht damit eine Nachweiseffizienz von nahezu 100 % [59]. Bei Helium beobachtete man für das erste Seitenband eine relative Intensität von ca. 20 % der Hauptlinie, in Übereinstimmung mit theoretischen Vorhersagen basierend auf der Lösung der Schrödingergleichung für ein 3D Modell des He mit nur einem aktiven Elektron [210]. Die erwartete starke Abhängigkeit des Seitenbandsignals von der Intensität der Laserstrahlung [Gleichung (3.32)] konnte durch Vergleich zu Kreuzkorrelationsmessungen zwischen den FLASH Pulsen und den optischen Pulsen des Nd:YLF Lasersystems [Kapitel 3.2] mit $\lambda_{\text{opt}} = 532 \text{ nm}$ und $I_{\text{opt}} \approx 2 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ demonstriert werden. Hier beträgt die relative Seitenbandintensität für Helium nur etwa 2 % [211].

Gemessene Xenon Einzelschussspektren bei $h\nu_{\text{xuv}} = 90 \text{ eV}$ zeigt Abbildung 6.1. Durch das größere $|\vec{k}|$ ist die relative Seitenbandintensität größer als beim Helium [vgl. Gleichung (3.32)]. Treffen XUV Puls und NIR Puls in einem zeitlichen Abstand von $\Delta t = 300 \text{ fs}$ auf die Probe, so ist kein Seitenbandsignal zu sehen und das Photoelektronenspektrum besteht aus den beiden $5p$ Linien des Xenons. Beim nominellen zeitlichen Überlapp ($\Delta t = 0 \text{ fs}$) erhält man Seitenbänder hoher relativer Intensität.

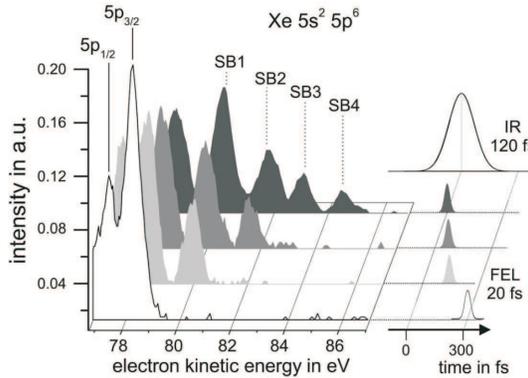


Abbildung 6.1: Photoelektronenspektren von Xenon bei laserunterstützter Photoionisation. Die Ionisation der Xenon Atome geschieht durch die XUV Pulse von FLASH ($h\nu_{\text{xuv}} = 90 \text{ eV}$, $I_{\text{xuv}} \approx 10^{13} \text{ W/cm}^2$, $\tau_{\text{xuv}} \approx 10\text{-}20 \text{ fs}$), die Ausbildung von Seitenbändern durch zusätzlich eingestrahelte NIR Pulse ($h\nu_L = h\nu_{\text{nir}} = 1,55 \text{ eV}$, $I_{\text{nir}} \approx 2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$, $\tau_{\text{nir}} \approx 120 \text{ fs}$). Beim nominellen zeitlichen Überlapp ($\Delta t = 0 \text{ fs}$) bilden sich Seitenbänder (SB) hoher relativer Intensität aus (aus [209]).

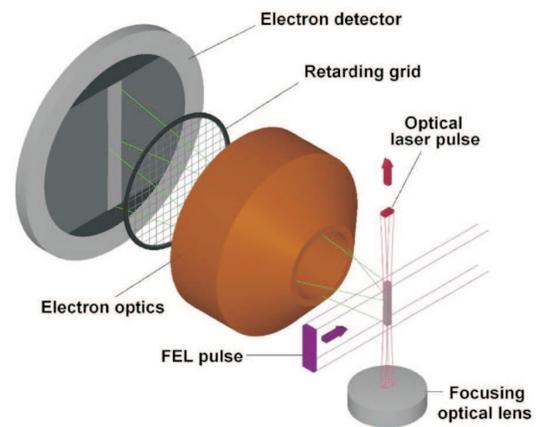
Das Seitenbandsignal reagiert also sehr sensitiv auf den zeitlichen Überlapp der beiden Pulse und kann daher zur Bestimmung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH benutzt werden. Indem viele Photoelektronenspektren von Xenon aufgenommen wurden und in diesen jeweils über die Seitenbänder integriert wurde, ist eine Obergrenze für den zeitlichen Jitter von 250 fs (RMS) ermittelt worden [209].

Für ein zeitaufgelöstes Pump-Probe Experiment jedoch ist die Bestimmung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse gegenüber den NIR Pulsen für jeden einzelnen Schuss von FLASH am Messplatz notwendig. Nur dann können die gewonnen Pump-Probe Daten sortiert und die gemessenen Spektren auf den zeitlichen Jitter korrigiert werden. Zu diesem Zweck wurde in den in dieser Arbeit vorgestellten XUV-NIR Kreuzkorrelator ein Aufbau zur Aufnahme von Kreuzkorrelationssignalen basierend auf der laserunterstützten Photoionisation integriert. Dieser unterscheidet sich in zwei Punkten von dem in [209] präsentierten Schema: statt eines kollinearen Aufbaus kreuzen die Pulse von FLASH und der fokussierten NIR Strahlung einander senkrecht in einem Edelgastarget. Die ande-

re Änderung betrifft die Signalaufnahme: hier wird nicht die Verteilung der kinetischen Energie der Photoelektronen gemessen, sondern mit Hilfe eines abbildenden Systems für Elektronen, der E-Optik, nach Hochpassfilterung eine vergrößerte Abbildung der Wechselwirkungszone beider Pulse aufgenommen.

Abbildung 6.2 zeigt eine Prinzipskizze des Aufbaus. Das notwendige Targetgas wird mit einer Gasdüse zugeführt [Abbildung 4.12]. Die Hochpassfilterung wird durch Anlegen der Retardierungsspannung U_{ret} an ein feinmaschiges Netz, welches sich unmittelbar vor dem Elektronendetektor befindet [Abbildung 4.13 (a)], realisiert. Bei geeigneter Wahl von U_{ret} können einige der aufgrund der laserunterstützten Photoionisation energetisch modulierten Photoelektronen [Abbildung 3.30] im Gegensatz zu den Elektronen der Hauptphotolinie den Hochpassfilter passieren und den Detektor erreichen. Damit kann das Gebiet örtlichen und zeitlichen Überlapps im orts aufgelösten Bild vom Hintergrund separiert werden.

Abbildung 6.2: Prinzipskizze zum Aufbau des XUV-NIR Kreuzkorrelators. Die XUV Pulse von FLASH (lila) und die fokussierten NIR Pulse (rot) werden in einem Gargetet vor dem Eintritt in eine E-Optik (braun) senkrecht zueinander gekreuzt. Mit der E-Optik wird die Wechselwirkungszone vergrößert auf einem Elektronendetektor abgebildet. Durch ein feinmaschiges Netzchen (Hochpassfilter) gelingt die Trennung von Hauptliniensignal und Seitenbandsignal (aus [212]).



Wie der Aufbau zur Bestimmung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse genutzt werden kann, zeigt Abbildung 6.3 schematisch. Die beiden Pulse bewegen sich senkrecht aufeinander zu, wobei das Überlappgebiet vor der Eintrittsapertur der E-Optik liegt (a). Die NIR Strahlung wird in dieser Geometrie auf ein rundes Profil fokussiert, die Halbwertsbreite des Gauß'schen Strahlprofils in der Wechselwirkungszone ist $\Delta x_{\text{nir}} \approx 13 \mu\text{m}$ [Abbildung 4.9]. Entlang ihrer Trajektorien gibt es ein Gebiet, in welchem die beiden Pulse örtlich und zeitlich überlagert sind. In diesem Gebiet wird die Energieverteilung der Photoelektronen aufgrund der laserunterstützten Photoionisation moduliert (b). Aufgrund des zeitlichen Jitters wandert das Gebiet örtlichen und zeitlichen Überlapps bezogen auf einen willkürlich gewählten Referenzpunkt von Schuss zu Schuss in der vertikalen Richtung um $\Delta y = \pm c_0 \Delta t_j$ auf- und abwärts (c). Da mit dem Hochpassfilter dieses Überlappgebiet vom Hintergrund separiert werden kann, besteht die Aufgabe des Experiments darin, bezogen auf einen willkürlich gewählten Nullpunkt die Größe der Verschiebung Δy aus der Abbildung auf dem Elektronendetektor von Schuss zu Schuss zu messen. Dann lässt sich die Ankunftszeitdifferenz bestimmen nach der Gleichung (**Time-to-Space Mapping**):

$$\Delta t_j = \Delta y / c_0. \quad (6.1)$$

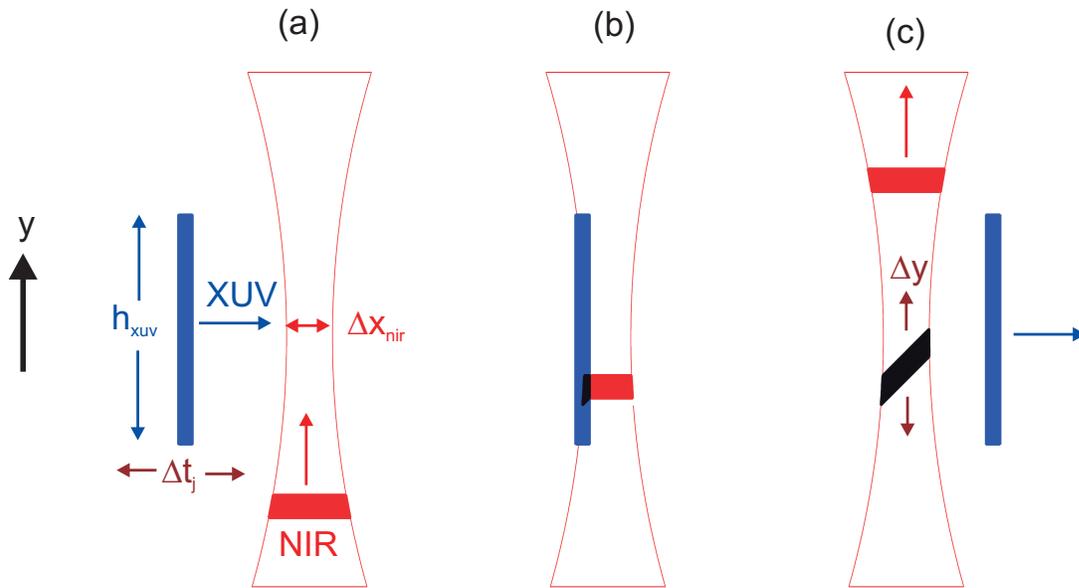


Abbildung 6.3: Geometrie der XUV-NIR Kreuzkorrelation mit Rundfokus. (a) Der XUV Puls von FLASH (blau) und der fokussierte NIR Puls (rot) kreuzen einander in einer Ebene vor dem Eintritt in die E-Optik (die Photoelektronen laufen hier in die Papierebene hinein). (b) In der Wechselwirkungszone gibt es ein Gebiet (schwarz), in welchem die beiden Pulse örtlich und zeitlich in einem Edelgastarget überlagert sind. (c) Beide Pulse haben die Wechselwirkungszone verlassen. Entlang der gemeinsamen Trajektorie wird die kinetische Energieverteilung der aus dem Edelgas ausgelösten Photoelektronen aufgrund der Ausbildung von Seitenbändern moduliert. Die örtliche Position des Überlappungsgebiets entlang der y -Achse ist ein Maß für die relative Ankunftszeit der beiden Pulse in der Wechselwirkungszone.

Die Ausbildung von Seitenbändern findet auf einer sehr schnellen Zeitskala statt, so dass die Zeitauflösung der Messung nicht durch diesen Effekt sondern durch die Pulslängen beider Pulse bestimmt sein sollte. Ein langer NIR Puls sorgt für eine Verschmierung des Signals in der vertikalen Richtung. Außerdem hängt die Zeitauflösung von der örtlichen Auflösung der E-Optik ab. Gelingt eine örtliche Auflösung in der Größenordnung von $10 \mu\text{m}$, wie Simulationen mit SIMION [185] für die benutzte E-Optik vorhersagen, dann ist für hinreichend kurze Pulse eine zeitliche Auflösung $\leq 50 \text{ fs}$ zu erwarten. In der Geometrie mit Rundfokus ist das Zeitfenster t_w gegeben durch die geometrische Höhe h_{xuv} des XUV Pulses von FLASH. Mit h_{xuv} in der Größenordnung zwischen typischerweise 300 und $500 \mu\text{m}$ (festgelegt durch die XUV Fokusabmessungen bzw. Wahl der Eintrittsblende) liegt t_w zwischen 1 ps und $1,7 \text{ ps}$.

Zusätzlich sind auch Kreuzkorrelationsmessungen mit einem NIR Linienfokus mit $\Delta x_{\text{nir}} \approx 270 \mu\text{m}$ bzw. $\Delta z_{\text{nir}} \approx 11 \mu\text{m}$ [Abbildung 4.10] durchgeführt worden. Wie in dieser Fokusgeometrie die Ankunftszeitmessung der XUV Pulse erfolgt, kann Abbildung 6.4 entnommen werden. Der bedeutendste Unterschied zu den Messungen mit Rundfokus ist, dass das Gebiet örtlichen und zeitlichen Überlapps je nach Ankunftszeitdifferenz Δt_j der XUV

Pulse nun um Δx entlang der Ausbreitungsrichtung der XUV Strahlung wandert, die Zeitachse also horizontal verläuft. Dementsprechend ist das Zeitfenster der Messung hier durch Δx_{nir} gegeben und beträgt knapp 1 ps. Das Messen mit den beiden verschiedenen Fokusgeometrien ermöglicht unter anderem die Untersuchung der Abhängigkeit des Kreuzkorrelationssignals von der NIR Intensität I_{nir} , die sich zwischen den beiden Fokusgeometrien um einen Faktor ~ 6 unterscheidet [Kapitel 4.3.2].

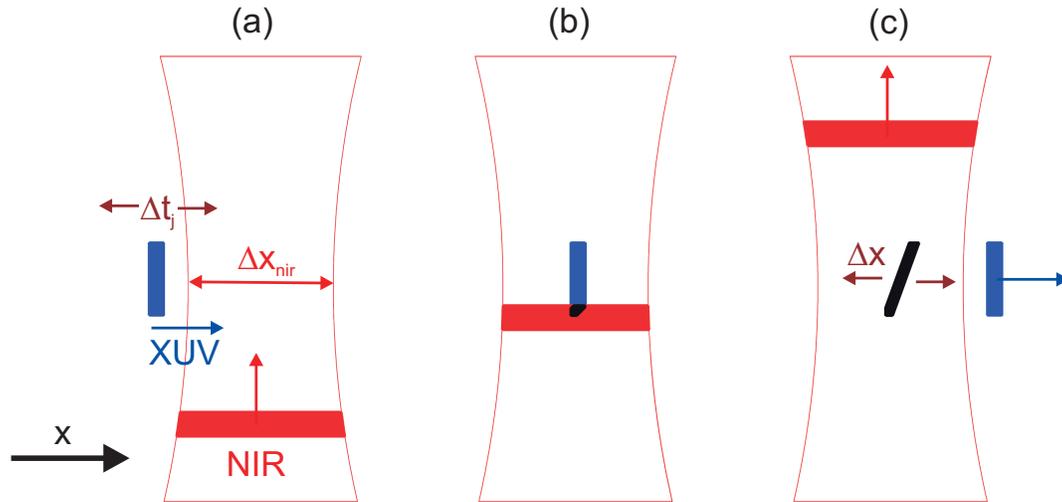


Abbildung 6.4: Geometrie der XUV-NIR Kreuzkorrelation mit Linienfokus. (a) Der XUV Puls von FLASH ist in blau und der fokussierte NIR Puls in rot dargestellt. (b) In der Wechselwirkungszone gibt es ein Gebiet (schwarz), in welchem die beiden Pulse örtlich und zeitlich in einem Edelgastarget überlagert sind. (c) Beide Pulse haben die Wechselwirkungszone verlassen. Die örtliche Position des Kreuzkorrelationssignals entlang der x-Achse ist ein Maß für die relative Ankunftszeit der beiden Pulse in der Wechselwirkungszone.

Unabhängig von der NIR Fokusgeometrie besteht der Signaluntergrund aus den Photoelektronen in der hochenergetischen Flanke der Hauptphotolinie, die trotz der gewählten Retardierungsspannung den Elektronendetektor erreichen, und sämtliche Photoelektronen mit größerer kinetischer Energie als die Elektronen im Seitenband. Letztere können aus Restgasanregungen, aus Anregungen durch die 2. oder 3. Harmonische der FLASH Strahlung oder aus XUV induzierten nicht-linearen Ionisationsprozessen stammen. Bei NIR induzierten ATI Prozessen ist die kinetische Energie der emittierten Photoelektronen vergleichsweise gering und sie werden durch die Retardierungsspannung mit abgefangen. XUV induzierte ATI Prozesse sind aufgrund der $1/\omega^4$ - Abhängigkeit [Gleichung (3.28)] unwahrscheinlich und ihr Beitrag zum Gesamtsignal ist zu $< 1\%$ abgeschätzt worden [Kapitel 5.4].

Die Methode der Kreuzkorrelation unter Benutzung der laserunterstützten Photoionisation hat gegenüber den anderen eingesetzten Verfahren zur Bestimmung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH [siehe Kapitel 3.3] folgende Vorteile:

- Die Methode ist nicht an spezielle atomare Übergänge im Atom gebunden und damit potentiell bei beliebigen Photonenenergien bis in den Röntgenspektralbereich anwendbar. Prinzipiell sollte sich der Kontrast zwischen dem Hauptliniensignal und dem auf laserunterstützter Photoionisation beruhenden Kreuzkorrelationssignal nach Gleichung (3.32) mit zunehmender Photonenenergie verbessern.
- Die Methode ist nicht invasiv für beide Pulse und es besteht nicht die Gefahr einer Zerstörung der Probe, wie sie bei den Methoden der Röntgenreflektion an nicht-thermisch schmelzenden Festkörpern [Kapitel 3.3.3] und der XUV induzierten Änderung der Reflektivität [Kapitel 3.3.4] auftreten kann.
- Die Methode kann - entsprechende Wahl des Detektors vorausgesetzt - bei der vollen Repetitionsrate der Mikropulse (MHz) arbeiten.
- Das Kreuzkorrelationsexperiment kann direkt am Messplatz beim eigentlichen Pump-Probe Experiment durchgeführt werden und somit im Gegensatz zum TEO Experiment [Kapitel 3.3.2] sämtliche Quellen des zeitlichen Jitter [Abbildung 2.5] erfassen.
- Gelingt eine ausreichend gute örtliche Auflösung der E-Optik, so ist mit einer deutlich besseren zeitlichen Auflösung der Ankunftszeitmessungen als beispielsweise bei der Streackamera [Kapitel 3.3.1] zu rechnen.

6.2 Charakterisierende Vormessungen

In diesem Kapitel werden Charakterisierungsmessungen präsentiert, welche die Voraussetzungen für die Aufnahme von Kreuzkorrelationssignalen basierend auf laserunterstützter Photoionisation zur Ankunftszeitmessung der XUV Pulse von FLASH sind.

6.2.1 Bestimmung der Vergrößerung der E-Optik

Das Prinzip der Messung der relativen Ankunftszeit beruht darauf, dass eine Orts- in eine Zeitmessung übersetzt wird [Gleichung (6.1)]. Daher ist die Bestimmung der Vergrößerung M der Abbildung wichtig. Dafür wird eine vergrößerte, scharfe Abbildung eines Eichobjekts in der Wechselwirkungszone auf dem Leuchtschirm der E-Optik gemacht. Statt eines XUV induzierten Signals können die dafür benötigten Elektronen von einer Elektronenkanone (3kV Glancing Incidence Gun, *Eurovac*) stammen, welche an dem Flansch gegenüber der Eingangsöffnung der E-Optik [Flansch (12) Abbildung 4.3] angebracht wird. Das Bild ist somit ein "Schattenwurf" des Eichobjekts. Abbildung 6.5 zeigt eine solche Abbildung

für zwei Eichobjekte. Das eine ist ein TEM - Netz aus Kupfer mit 1000 Linien/Zoll (Maschenweite: $25,4 \mu\text{m}$, Transmission: 58%, Stegbreite: $6 \mu\text{m}$, *Plano*), das andere TEM - Parallelstege aus Kupfer mit 200 Linien/Zoll (Stegbreite: $45,6 \mu\text{m}$, Stegabstand: $85 \mu\text{m}$, *Plano*).

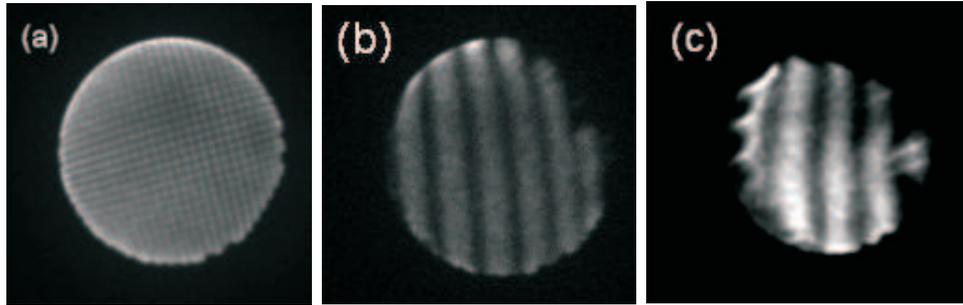


Abbildung 6.5: "Schattenwürfe" verschiedener Eichobjekte aufgenommen auf dem Leuchtschirm der E-Optik. (a) Eichobjekt: TEM - Netz aus Kupfer mit 1000 Linien/Zoll. Kinetische Startenergie der Elektronen: $E_{\text{kin},0} = 100 \text{ eV}$. Die Bildgröße ist durch die effektive Fläche der MCP vorgegeben. (b) Eichobjekt: TEM - Parallelstege aus Kupfer mit 200 Linien/Zoll. $E_{\text{kin},0} = 40 \text{ eV}$. (c) Messung wie in (b) mit $E_{\text{kin},0} = 17 \text{ eV}$.

In Abbildung 6.5 (a) sind gut die Ränder der effektiven Fläche der MCP zu sehen. Da der Durchmesser dieser Fläche ($14,5 \text{ mm}$) ebenso bekannt ist wie die Abmessungen der abgebildeten Eichobjekte, kann die Vergrößerung bestimmt werden. Bei den beiden TEM - Eichobjekten ist eine von der kinetischen Startenergie der Elektronen abhängige Vergrößerung von $M \approx 18 - 23$ bestimmt worden. Da die elektrischen Potentiale an den Linsenelementen entsprechend der kinetischen Startenergie linear skaliert werden, sollte die Vergrößerung eigentlich unabhängig von der Startenergie der Elektronen sein. Die im Experiment beobachtete Abhängigkeit der Vergrößerung von $E_{\text{kin},0}$ sollte in den nach der Kompensation noch verbliebenen magnetischen Streufeldern begründet liegen.

Es ist zu beachten, dass die Winkeldivergenz des Elektronenstrahls aus der Elektronenkanone (angegebener Strahldurchmesser $\sim 0,5 \text{ mm}$) deutlich kleiner ist als die der Elektronen bei der Emission aus dem Edelgas im Wechselwirkungsvolumen. Über die Bildfeldkrümmung könnte das einen Einfluss auf die Vergrößerung haben. Daher muss die bestimmte Vergrößerung durch einen Vergleich mit dem XUV Ionisationskanal bekannter Höhe [Abbildung 4.17 (a)] überprüft werden.

6.2.2 Optimierung der E-Optik und Bestimmung der örtlichen Auflösung

Während zur Bestimmung der Vergrößerung der E-Optik Elektronen der Elektronenkanone benutzt werden können, ist dies zur Optimierung der Abbildung und zur nachfolgenden Bestimmung der örtlichen Auflösung nicht möglich. Die deutlich kleinere Winkeldivergenz der Elektronenkanone führt dazu, dass deren Strahlen weniger von Abbildungsfehlern, ins-

besondere der sphärischen Abberation, betroffen sind [Abbildung 3.33]. Folglich kann nur ein XUV induziertes Signal zur Optimierung der E-Optik Einstellungen benutzt werden.

Abbildung 6.6 zeigt Ionisationskanäle erzeugt beim Durchtritt der XUV Strahlung durch ein Neon Target. Die Messungen fanden statt an der unfokussierten Beamline BL3 mit $h\nu_{\text{XUV}} = 38,4 \text{ eV}$, d.h. $E_{\text{kin},0} = h\nu_{\text{XUV}} - \text{IP}_1(\text{Ne}) \approx 17 \text{ eV}$. Als Eintrittsapertur für die XUV Strahlung wird der $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ Spalt benutzt. Die dargestellten Bilder werden erzeugt durch Mittelung über 200 Einzelmessungen, jeweils erzeugt durch einen XUV Puls. Die Bilder in Abbildung 6.6 unterscheiden sich von oben nach unten dadurch, dass Winkelblenden verschiedener Größen in die Fokalebene der E-Optik [Abbildung 4.11] gefahren werden. Beim linken Bild ist jeweils der volle Ionisationskanal zu sehen, während beim rechten Bild die scharfe Kante einer Edelstahlplatte von oben in den XUV Strahl gefahren worden ist. Dies geschieht mit einer Linearführung, die an einem der 45° Flansche der Wechselwirkungskammer [Flansch (17) in Abbildung 4.3] befestigt ist. Im ortsaufgelösten Bild taucht ein konstanter Untergrund durch XUV induzierte Emission von Festkörperelektronen aus der Kante auf. Diese Elektronen jedoch haben eine kinetische Energie von nur wenigen eV und bereits durch das Anlegen einer geringen Retardierungsspannung kann dieser Untergrund komplett entfernt werden.

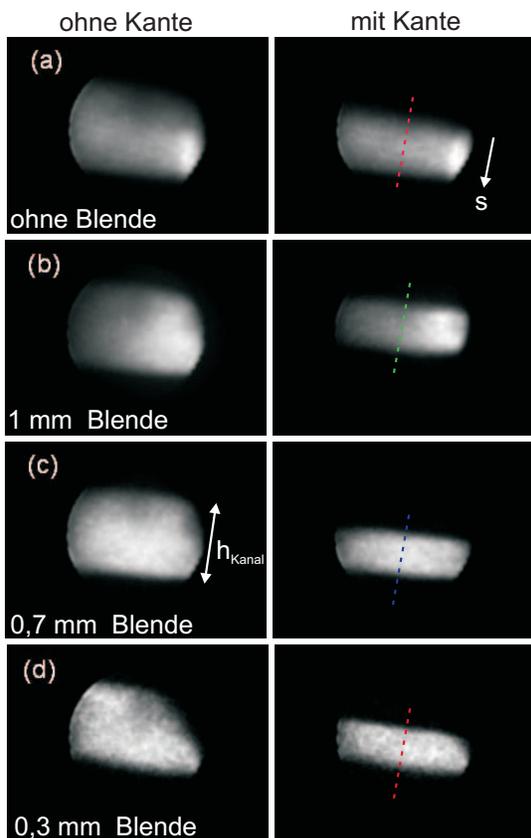


Abbildung 6.6: Abbildung des Ionisationskanals der XUV Pulse von FLASH an der BL3 ($I_{\text{XUV}} \approx 7 \cdot 10^5 \text{ W/cm}^2$) beim Durchtritt durch ein Ne Target ($p_{\text{Ne}} = 4,7 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$). Die XUV Eintrittsapertur ist jeweils ein $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ Spalt. Die Bilder werden erhalten durch Mittelung über 200 Einzelbilder, jeweils erzeugt durch einen XUV Puls mit $n_{\text{mikro}} = 30$.

Die geometrische Höhe des XUV Strahls in der Wechselwirkungszone ist durch die Höhe des Eintrittsspalts gegeben. Mit Hilfe der für 17 eV ermittelten Vergrößerung unter Benutzung der Elektronen der Elektronenkanone [Abbildung 6.5 (c)] kann die absolute geometrische Höhe h_{Kanal} des Ionisationskanals in Abbildung 6.6 bestimmt werden. Es scheint auf den ersten Blick so, als sei h_{Kanal} bei vollem Loch ohne Winkelblende [Abbildung 6.6 (a)] kleiner als mit Winkelblende. Das ist aber nicht der Fall, nur die Elektronendichte ist ohne Winkelblende an der oberen Kante geringer als im Rest des Ionisationskanals. Bei allen Bildern ergibt sich $h_{\text{Kanal}} \approx 525 \mu\text{m}$. Dieser Wert stimmt bis auf 5 % mit der geometrischen Höhe des XUV Pulses festgelegt durch die Höhe des Eintrittsspalt überein. Dies zeigt, dass die Bestimmung der Vergrößerung M mit Hilfe der Elektronenkanone eine adäquate Methode ist.

Mit Winkelblenden sollte eine deutlich bessere örtliche Auflösung zu erzielen sein [Kapitel 4.4]. Einen Vorteil der Winkelblenden sieht man schon auf den ersten Blick: während bei der Messung ohne Winkelblende und mit der 1 mm Winkelblende die Signalintensität auf der rechten Seite des Kanals konzentriert ist [Abbildung 6.6 (a) und (b)], was dem Einfluss von magnetischen Feldern zugeschrieben wird [Gleichung (3.46)], ist die Dichtverteilung bei den beiden kleineren Blenden deutlich homogener. Ein Nachteil der Winkelblenden ist, dass die Signalintensität im Vergleich zur Messung mit dem vollen Loch deutlich reduziert wird. Diese Tatsache ist in der Abbildung 6.6 nicht erkennbar, weil die Messungen bei kleinen Winkelblenden zur Erzielung eines ausreichenden Kontrasts bei etwas höheren Spannungen U_{MCP} und U_{LS} durchgeführt wurden.

Das Auflösungsvermögen der E-Optik kann bestimmt werden, indem bei den Bildern der Ionisationskanäle mit abschneidender Kante Schnitte senkrecht zum Ionisationskanal gemacht werden. Die Richtung der Schnittlinie s ist in Abbildung 6.6 mit einem Pfeil symbolisiert. In Abbildung 6.7 sind die so erhaltenen Intensitätsprofile zu sehen.

Als Maß für das Auflösungsvermögen der E-Optik dient die Kantenschärfe, d.h. die Kantebreite s_k bis die Signalintensität entlang s von 10% ihres Maximalwertes auf 90% gestiegen ist. Die Messungen sind zur Vergleichbarkeit der Kantenschärfe auf 1 normiert worden. Die vordere Anstiegsflanke ist entscheidend, da hier der Kontrast durch die abschneidende Kante erzeugt wird.

Es werden folgende Kantebreiten bestimmt:

- $s_k \approx 50 \mu\text{m}$ für 0,3 mm Blende [$\equiv 165 \text{ fs}$]
- $s_k \approx 65 \mu\text{m}$ für 0,7 mm Blende [$\equiv 215 \text{ fs}$]
- $s_k \approx 120 \mu\text{m}$ für 1,0 mm Blende [$\equiv 400 \text{ fs}$]
- $s_k \approx 130 \mu\text{m}$ für 6,0 mm Blende [$\equiv 435 \text{ fs}$]

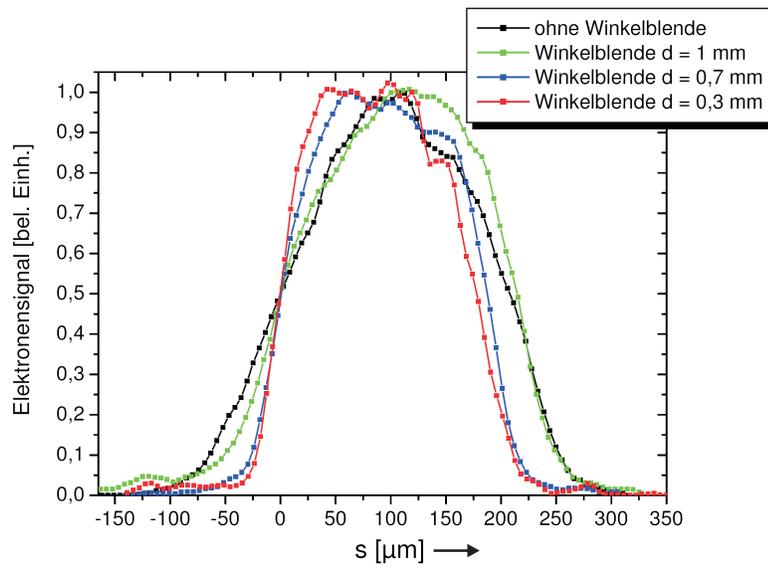


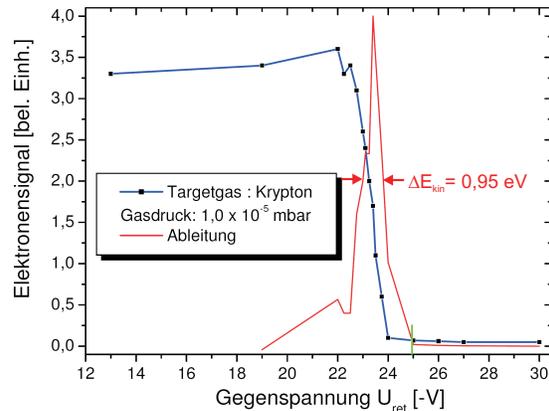
Abbildung 6.7: Normierte Intensitätsprofile senkrecht zum Ionisationskanal entlang der in Abbildung 6.6 eingezeichneten Schnittlinien bei verschiedenen Winkelblenden zur Bestimmung der Kantenschärfe. Bei der vorderen Signalfanke wird der Kontrast durch die abschneidende Kante erzeugt. Der Nullpunkt der Längenskala ist in den Wendepunkt der ansteigenden Flanken gelegt worden.

Offensichtlich kann durch den Einsatz der Winkelblenden das Auflösungsvermögen der E-Optik deutlich verbessert werden. Die maximale örtliche Auflösung wird zu $\sim 50 \mu\text{m}$ bestimmt, was einer Zeitauflösung von $\approx 165 \text{ fs}$ entspricht. Dieser Wert liegt um einen Faktor ~ 5 über dem Wert, den die Simulation mit SIMION vorhersagt. Diese Abweichung wird den nicht kompensierten magnetischen Streufeldern sowie der begrenzten Schärfentiefe der E-Optik (das Quellvolumen ist mit $125 \mu\text{m}$ zu tief) zugeschrieben. Außerdem ist der ermittelte Wert der örtlichen Auflösung eine Obergrenze. Da es sich um eine Mittelung von 200 Bildern handelt, kann schon ein leicht örtlich fluktuierendes Signal eine Verschmierung der ansteigenden Flanke zur Folge haben. Die örtliche Auflösung für einzelne Schüsse von FLASH, welche sich aufgrund des geringen Kontrastes in den Einzelbildern nicht bestimmen lässt, sollte daher besser sein. Die Messungen zeigen insbesondere, dass die Zeitauflösung der Methode durch die örtliche Auflösung und nicht durch die Pulsdauer des längeren NIR Pulses begrenzt sein wird.

6.2.3 Test des Energiefilters

Messungen, bei denen das Elektronensignal auf dem Leuchtschirm als Funktion der Retardierungsspannung aufgenommen wird, werden im folgenden als **Retardierungskurven** bezeichnet. Eine solche Messung zeigt Abbildung 6.8. Mit den XUV Pulsen von FLASH an der unfokussierten Beamline BL3 wird ein Ionisationskanal gemäss Abbildung 4.17 (a) aufgenommen. Ein geeignetes ROI um diesen Kanal liefert das Elektronensignal.

Abbildung 6.8: Retardierungskurve für Krypton erhalten mit der unfokussierten XUV Strahlung von FLASH [$h\nu_{\text{xuv}} = 38,4$ eV, $I_{\text{xuv}} \approx 7 \cdot 10^5$ W/cm², $n_{\text{micro}} = 30$ bei $\nu_{\text{mikro}} = 1$ MHz] bei Benutzung des 125×500 μm^2 Spalts *ohne* NIR Pulse. Jeder Messpunkt ist der Mittelwert über 50 Einzelmessungen jeweils erzeugt durch einen Makropuls. In rot ist die ermittelte Photolinie eingezeichnet. Der grüne vertikale Strich zeigt die erwartete Lage des ersten Seitenbandes [Gleichung (3.29)].



Nur Photoelektronen mit $E_{\text{kin},0} > |U_{\text{ret}}|$ können den Detektor erreichen. Somit entspricht die Ableitung der Retardierungskurve der Photolinie. Bei Krypton stammen die Elektronen aus der 4p Schale, die kinetische Energie sollte daher $E_{\text{kin}}(\text{Kr}) = h\nu_{\text{xuv}} - \text{IP}_1(\text{Kr}) \approx 24$ eV sein. Das ist in guter Übereinstimmung mit der ermittelten Photolinie, welche in Abbildung 6.8 in rot zu sehen ist. Der vertikale grüne Strich markiert die erwartete Position des ersten Seitenbandes, dessen Abstand zum Maximum der Hauptphotolinie $h\nu_{\text{nir}} = 1,55$ eV [Gleichung (3.29)] beträgt. Da die Halbwertsbreite der Photolinie $\Delta E_{\text{kin}} < 1$ eV ist, kann man sie vom Seitenbandsignal trennen. Der Aufbau aus den beiden Netzen ist somit ein geeigneter Energie-Hochpassfilter.

Die Retardierungskurve in Abbildung 6.8 offenbart auch, dass das Signal der Hauptphotolinie in der Umgebung des ersten Seitenbandes nicht Null ist. Daher muss für nachfolgende Kreuzkorrelationsmessungen der Wert U_{ret} der Gegenspannung so gewählt werden, dass einerseits der XUV induzierte Untergrund möglichst gering ist, man sich aber andererseits noch so weit unterhalb des ersten Seitenbandes befindet, dass man dieses Signal vollständig erfassen kann. Der so bestimmte optimale und bei Kreuzkorrelationsmessungen fest eingestellte Wert der Retardierungsspannung wird mit $U_{\text{ret,opt}}$ bezeichnet.

Wichtig ist die Wahl eines geeigneten Targetgases. Bei $h\nu_{\text{xuv}} \approx 38$ eV besitzt die 2p Schale von Neon einen höheren Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}$ als die 4p Schale des Kryptons (vergleiche Abbildungen 9.1 und 9.2). Daher könnte man vermuten, dass Neon bei dieser Photonenenergie das bessere Targetgas wäre. Jedoch beobachtet man bei der benutzten Photonenenergie für Neon bei $U_{\text{ret,opt}}$ einen deutlich größeren XUV induzierten Untergrund. Daher wird für alle Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung Krypton als Targetgas eingesetzt.

6.3 Kreuzkorrelationsmessungen mit unfokussierter XUV Strahlung

Die Kreuzkorrelationsmessungen mit der unfokussierten XUV Strahlung sind an der Beamline BL3 durchgeführt worden. Hierbei sind die beiden Fokusgeometrien mit Linienfokus und Rundfokus zum Einsatz gekommen. Die Pulsstruktur der NIR Strahlung ist in beiden Fällen die selbe wie bei den XUV Pulsen von FLASH.

Vor der Aufnahme eines Kreuzkorrelationssignals müssen alle notwendigen charakterisierenden Vormessungen erfolgt sein. Neben der Sicherstellung des örtlichen Überlapps von XUV und NIR Pulsen im Sollabstand zur E-Optik und der zeitlichen Vorjustage der beiden Pulse mit Hilfe der Zeitsonde, sind dies insbesondere die Optimierung der örtlichen Abbildung der E-Optik sowie die Ermittlung der optimalen Retardierungsspannung $U_{\text{ret,opt}}$.

6.3.1 Parameter der unfokussierten XUV Strahlung

Die Messungen an der BL3 sind bei den folgenden XUV Parametern durchgeführt worden:

- Wellenlänge $\lambda_{\text{xuv}} \approx 32,4$ nm.
- Pulsenergie $E_{\text{xuv}} \leq 15$ μJ .
- $\nu_{\text{makro}} = 5$ Hz.
- Wenn nicht explizit anders gesagt, dann ist $n_{\text{mikro}} = 30$ mit $\nu_{\text{mikro}} = 1$ MHz.

Abbildung 6.9 zeigt ein typisches Spektrum der XUV Strahlung.

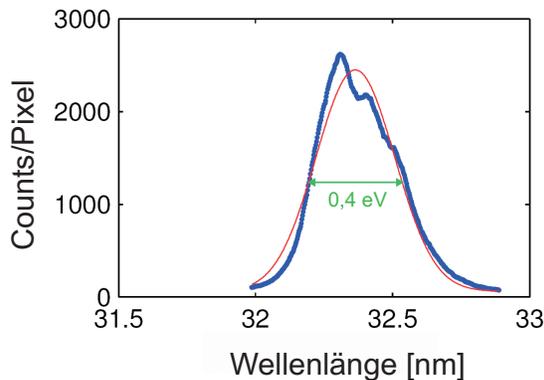


Abbildung 6.9: Typisches Spektrum der unfokussierten Strahlung von FLASH mit $n_{\text{mikro}} = 50$, erhalten durch Mittelung über 10 Pulse. Der Gaußfit (rot) hat sein Maximum bei $h\nu_{\text{xuv}} = 38,3$ eV.

Das XUV Strahlprofil am Experiment ist ein Gaußprofil mit ≈ 10 mm Halbwertsbreite. Allerdings sind sämtliche Messungen an der BL3 mit dem 125×500 μm^2 Eintrittsspalt durchgeführt worden. Die transmittierte Energie lässt sich durch Integration des Gaußprofils über die örtliche Ausdehnung des Eintrittsspalt abschätzen. Nimmt man an, das

zeitliche Profil sei gaußförmig mit einer Pulsdauer von 25 fs (FWHM) [15] und die Eintrittsblende sei zentral im FEL Strahl positioniert, so ist die abgeschätzte Intensität nach Gleichung (9.4) $I_{\text{xuv}} \approx 7 \cdot 10^5 \text{ W/cm}^2$. Es kommt allerdings von Schuss zu Schuss innerhalb des XUV Strahlprofils zu ortsabhängigen Intensitätsschwankungen. Dies führt zu einem Fehler bei der Bestimmung der durch den Eintrittsspalt transmittierten Energie. Die Gas Monitor Detektoren [Abbildung 3.9] sind nicht sensitiv auf diese Schwankungen, da die Messung der Pulsenergie innerhalb der Beamline stattfindet, wo der volle XUV Strahl zur Verfügung steht. Die Online Normierung [Kapitel 4.9.3] berücksichtigt diese Schwankungen, da die Messung der Pulsenergie hinter der XUV Eintrittsblende stattfindet. Allerdings stand sie bei den Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung noch nicht zur Verfügung.

6.3.2 Detektion des Kreuzkorrelationssignals bei mehreren Mikropulsen pro Makropuls

Linienfokus

Abbildung 6.10 (a) zeigt einen Delayscan, d.h. das Elektronensignal auf dem Leuchtschirm als Funktion des zeitlichen Delays Δt zwischen den XUV Pulsen von FLASH und den NIR Pulsen bei Krypton als Targetgas. Der Wert von 0 ps entspricht dem aus der Zeitsondenmessung ermittelten Wert des optimalen zeitlichen Überlapps von XUV und NIR Pulsen.

Innerhalb eines Scanbereichs von ± 10 ps um den Nullpunkt kommt es zu einem Anstieg des Signals. Dabei handelt es sich um das gesuchte Kreuzkorrelationssignal, basierend auf der laserunterstützten Photoionisation mit der Ausbildung von Seitenbändern. Im Maximum dieses Signals liegt optimaler zeitlicher Überlapp beider Pulse vor. In diesen Punkt wird der Nullpunkt einer neuen Zeitskala Δt_D gelegt. Der Gaußfit an die Messdaten (rot) hat eine Halbwertsbreite von $\Delta t_{D,\text{FWHM}} \sim 1,6$ ps. Dieser Wert ist größer als das nominelle Zeitfenster von ~ 1 ps. Die Messkurve ist eine Faltung der zeitabhängigen Intensitätsprofile beider Pulse [Gleichung (2.1)] und der über 30 Mikropulse gemittelten Ankunftszeitdifferenz Δt_j der XUV Pulse. Daher kann die gemessene Halbwertsbreite als Obergrenze für den zeitlichen Jitter angesehen werden.

Eine Bestätigung, dass dieses Signal das gesuchte Kreuzkorrelationssignal ist, findet sich in Abbildung 6.10 (b). Bei konstantem Delay $\Delta t_D = 0$ ps ist eine deutliche Differenz zwischen dem Signal mit und ohne NIR Pulse zu erkennen. Diese Signalerhöhung beobachtet man nicht für $\Delta t_D = 7$ ps. Die angegebenen Intensitätswerte sind aus der Mittelung über 200 Einzelmessungen mit jeweils 30 Mikropulsen erhalten worden. Sowohl das XUV induzierte Untergrundsignal als auch das eigentliche Messsignal bei Überlagerung beider Pulse schwankt um einen Mittelwert. Die Ursache dafür sind Schwankungen der XUV Intensität.

In den Abbildungen 6.10 (a) und (b) ist neben dem Elektronensignal auch die absolute Zahl der detektierten Elektronen angegeben. Diese ist über eine so genannte **Blob Analyse** abgeschätzt worden. Die Methode funktioniert folgendermaßen: ein Elektron, welches

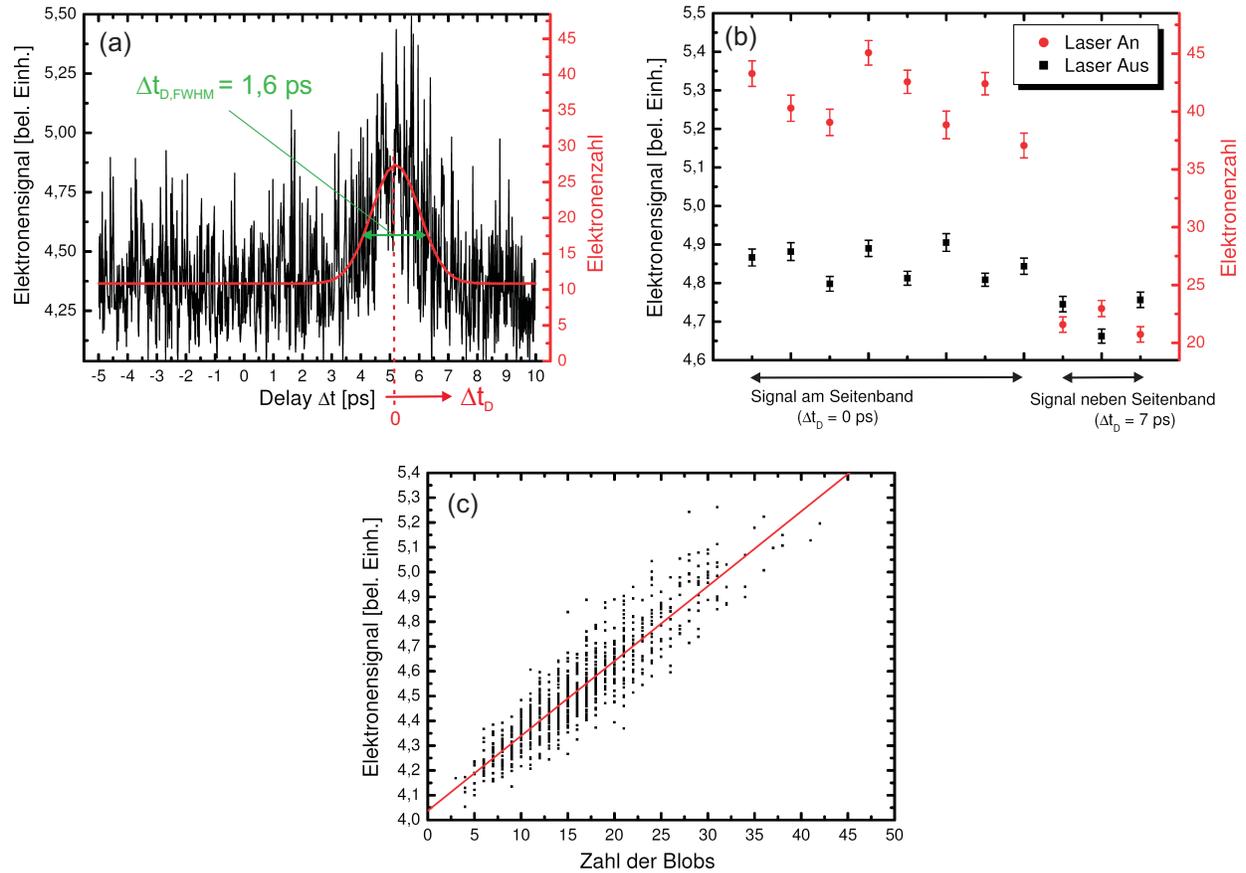


Abbildung 6.10: Kreuzkorrelationssignal erhalten bei Überlagerung der XUV Pulse von FLASH ($h\nu_{\text{FEL}} \approx 38 \text{ eV}$, $I_{\text{XUV}} \approx 7 \cdot 10^5 \text{ W/cm}^2$) und der NIR Pulse (Linienfokus, $I_{\text{nir}} \approx 3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$) bei Krypton als Targetgas ($p_{\text{Kr}} = 1,2 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$). Die Messungen werden durchgeführt mit $n_{\text{mikro}} = 30$ und $\nu_{\text{makro}} = 5 \text{ Hz}$ bei $U_{\text{ret,opt}}$ und ohne Winkelblende in der E-Optik. (a) Delayscan. Jeder Messpunkt wird durch einen Makropuls erzeugt. $\Delta t = 0 \text{ ps}$ entspricht dem mit der Zeitsonde bestimmten zeitlichen Nullpunkt. Die Signalerhöhung beruht auf der laserunterstützten Photoionisation, ihr Maximum liegt bei $\Delta t_D = 0 \text{ ps}$. Neben dem Elektronensignal ist auch die absolute Zahl detektierter Elektronen aufgetragen. Der Gaußfit an die Messwerte (rot) hat eine Halbwertsbreite von $\Delta t_{D,FWHM} \sim 1,6 \text{ ps}$. (b) Signalunterschied zwischen Messungen mit NIR Laser an/aus bei $\Delta t_D = 0 \text{ ps}$ und $\Delta t_D = 7 \text{ ps}$. Die Messwerte ergeben sich aus einer Mittelung über 200 Einzelmessungen jeweils erzeugt durch einen Makropuls. Die Fehlerbalken geben die ermittelten Standardabweichungen an. (c) Blob Analyse zur Umrechnung des Elektronensignals in die absolute Zahl detektierter Elektronen auf dem Leuchtschirm.

an einem bestimmten Ort auf die MCP fällt, wird vervielfacht und erzeugt an entsprechender Stelle auf dem Leuchtschirm einen Leuchtpunkt, einen so genannten "Blob". Bei nicht zu hoher Zahl einfallender Elektronen ist die Anzahl der Blobs proportional zum mittleren Pixelwert auf der Kamera, d.h. zum Elektronensignal. Ob ein Helligkeitspunkt auf dem Schirm als Signalelektron gezählt wird oder nicht, wird über eine SchwellwertEinstellung in der Auswertesoftware festgelegt. Wird das Elektronensignal als Funktion der gezählten Blobs aufgetragen, so kann durch einen linearen Fit an die ermittelten Daten die absolute Zahl der Signalelektronen bestimmt werden. Da für eine größere Zahl an einfallenden Elektronen die Blob Regionen überlappen, kann für diese Signale die absolute Elektronenzahl nur durch Extrapolation abgeschätzt werden. Voraussetzung für diese Abschätzung ist die Linearität zwischen dem Elektronensignal und der Zahl der Blobs auch bei größerer Elektronenzahl. Abbildung 6.10 (c) zeigt die Blob Analyse für das Kreuzkorrelationssignal aus (a). Die Genauigkeit der Methode ist dadurch begrenzt, dass die Zahl der Elektronen, die ein Blob auf dem Leuchtschirm erzeugen, nicht eindeutig bestimmt werden kann. So kann dieser Helligkeitspunkt von einem oder von mehreren Elektronen stammen, die die MCP an nahe beieinander liegenden Punkten treffen. Außerdem ist die Dunkelzählrate der MCP zu berücksichtigen.

Die in Abbildung 6.10 (a) beobachtete Signalerhöhung wird der laserunterstützten Photoionisation zugeschrieben. Abbildung 6.11 (a) zeigt solche Retardierungskurven für Krypton. Die NIR induzierte Signalerhöhung ist der Beweis für laserunterstützte Photoionisation.

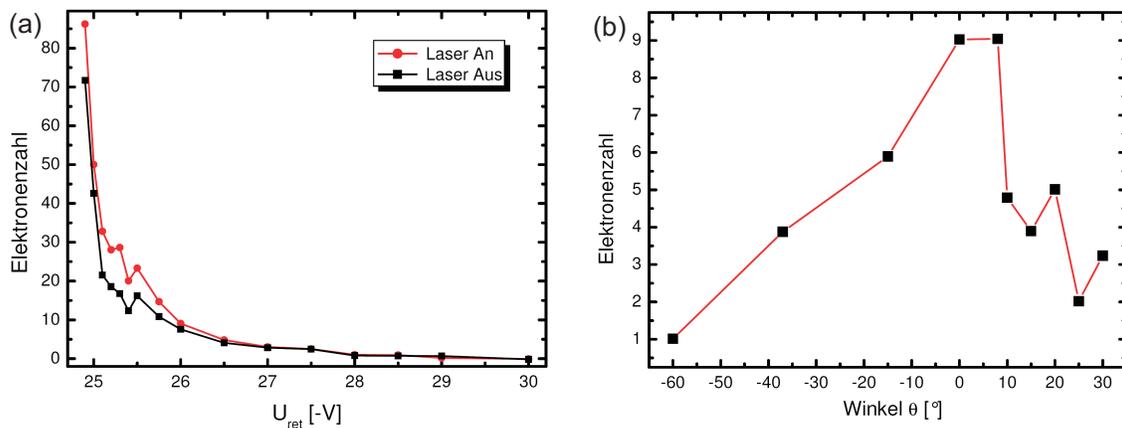


Abbildung 6.11: Messungen zur Verifikation des Seitenbandsignals. Die Signale werden erhalten mit den XUV Pulsen von FLASH ($h\nu_{\text{FEL}} \approx 38 \text{ eV}$, $I_{\text{XUV}} \approx 7 \cdot 10^5 \text{ W/cm}^2$) und den NIR Pulsen (Linienfokus, $I_{\text{nir}} \approx 3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$) mit $n_{\text{mikro}} = 30$ und $\nu_{\text{makro}} = 5 \text{ Hz}$ ohne Winkelblende bei Krypton als Targetgas ($p_{\text{Kr}} = 1,1 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$). (a) Retardierungskurve für Krypton mit (rot) und ohne (schwarz) NIR Pulse. Man sieht eine NIR induzierte Erhöhung des Signals. (b) Abhängigkeit des Differenzsignals bei $U_{\text{ret,opt}}$ vom Winkel θ zwischen Polarisationsrichtung der NIR Strahlung und Ausbreitungsrichtung der Photoelektronen. Das Signal hat sein Maximum bei 0° .

Der winkelabhängige Wirkungsquerschnitt für laserunterstützte Photoionisation ist $\propto \cos \theta$, wobei θ der Winkel zwischen Polarisationsrichtung der NIR Strahlung und der Ausbreitungsrichtung der Photoelektronen (z-Achse) ist [Gleichung (3.32)]. Abbildung 6.11 (b) zeigt das gemessene Signal als Funktion von θ . Die Variation des Winkels wird durch Drehung der NIR Polarisationsrichtung mit einer $\lambda/4$ - Platte und einem Polarisator im Laserlabor vollzogen. Die Polarisationsrichtung am Experiment wird mit einem weiteren Polarisator und einer Photodiode überprüft. Bei verschiedenen Winkeln θ werden jeweils die Signalintensitäten mit und ohne NIR Pulse aufgenommen und die Messwerte anschließend voneinander subtrahiert. Das Signal ist wie erwartet maximal bei $\theta \approx 0^\circ$.

Rundfokus

Durch die Benutzung des Rundfokus mit einer Halbwertsbreite des gaußschen Strahlprofils von $\approx 13 \mu\text{m}$ wird gegenüber dem Linienfokus eine höhere Intensität von $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ erzielt. Damit sollte nach Gleichung (3.32) eine effizientere Seitenbanderzeugung möglich sein. Bei dieser Intensität wird ein NIR induziertes MPI Signal beobachtet [Abbildung 4.15] und zur zeitlichen Komprimierung der NIR Pulse [Abbildung 4.16] eingesetzt werden. Aufgrund ihrer geringen kinetischen Energien werden diese MPI Elektronen aber durch die Gegenspannung $U_{\text{ret,opt}}$ mit abgefangen und liefern keinen störenden Untergrundbeitrag zum Kreuzkorrelationssignal.

Abbildung 6.12 zeigt Kreuzkorrelationsmessungen erzeugt durch die XUV Pulse von FLASH und die NIR Pulse mit Rundfokus bei Krypton als Targetgas. In (a) ist ein Delayscan zu sehen. Das Signal weist eine NIR induzierte Signalerhöhung aufgrund der laserunterstützten Photoionisation auf. Sie hat ihr Maximum bei $\Delta t_D = 0 \text{ ps}$, während für $\Delta t_D = 5 \text{ ps}$ keine Signalerhöhung zu beobachten ist [Abbildung 6.12 (b)]. Die an die Messwerte des Delayscans angefitzte Gaußfunktion (rot), hat eine Halbwertsbreite von $\Delta t_{D,\text{FWHM}} \sim 2,3 \text{ ps}$ und ist damit knapp 1,5 mal so groß wie bei den Kreuzkorrelationsmessungen mit NIR Linienfokus [Abbildung 6.10 (a)]. Dieser Faktor ist etwas kleiner als der Faktor von $\sim 1,8 \text{ ps}$, um den das Zeitfenster bei der Messung mit dem Rundfokus aufgrund der gedrehten Zeitachse größer sein sollte.

In Abbildung 6.12 (c) ist eine Retardierungskurve von Krypton mit und ohne NIR Pulse gezeigt. Wegen der laserunterstützten Photoionisation kommt es zu einer NIR induzierten Signalerhöhung. Offensichtlich ist die absolute Zahl der Seitenbandelektronen im Vergleich zu den entsprechenden Retardierungskurven mit Linienfokus größer [vgl. mit Abbildung 6.11 (a)]. Des Weiteren beobachtet man für Gegenspannungen $U_{\text{ret}} > 26 \text{ V}$ noch eine NIR induzierte Signalerhöhung, was auf die Existenz von höheren Seitenbändern $n_s > 1$ hindeutet. Zur Überprüfung dessen wird die Ableitung des Differenzsignals aus (c) als Funktion der Retardierungsspannung aufgetragen. Das Ergebnis ist in Abbildung 6.12 (d) in rot eingezeichnet. Die erwartete Lage der ersten beiden Seitenbänder ist mit grünen Pfeilen markiert. Man erkennt das erste Seitenband deutlich und das zweite Seitenband schwach.

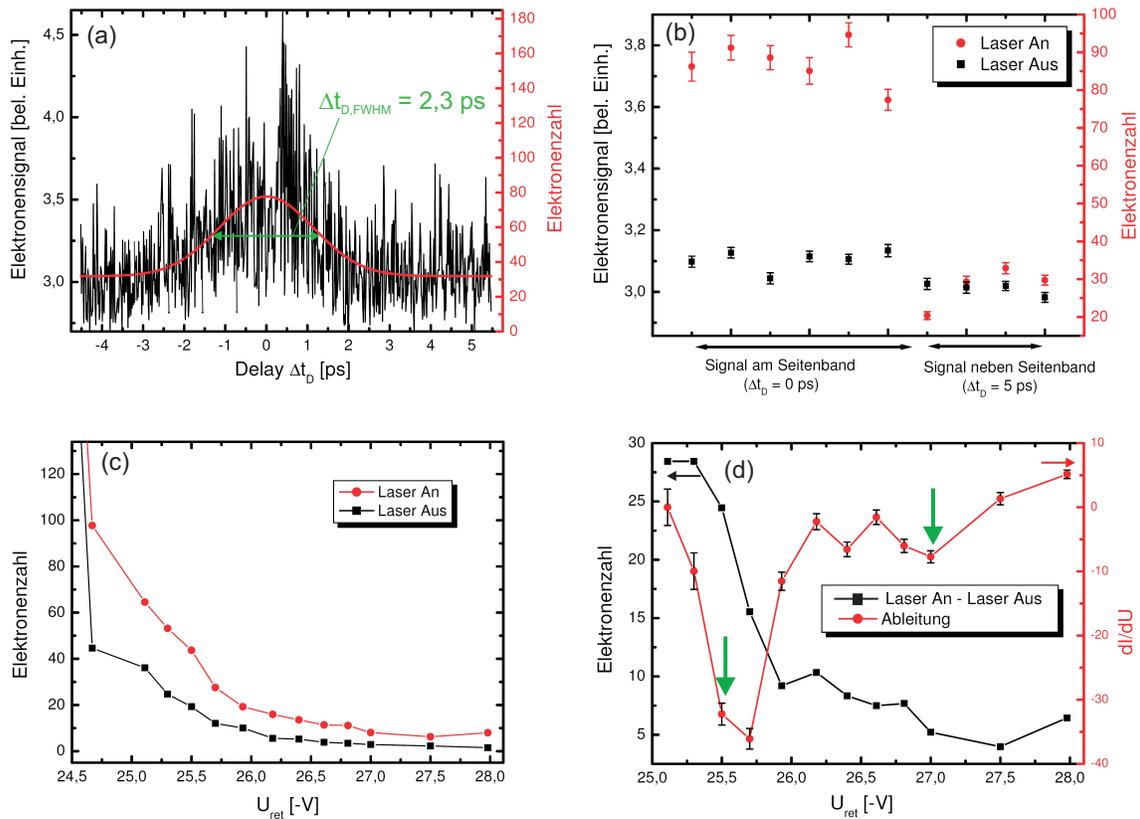


Abbildung 6.12: Kreuzkorrelationssignal erhalten bei Überlagerung der XUV Pulse von FLASH ($h\nu_{\text{FEL}} \approx 38 \text{ eV}$, $I_{\text{XUV}} \approx 7 \cdot 10^5 \text{ W/cm}^2$) und der NIR Pulse (Rundfokus, $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$) bei Krypton als Targetgas ($p_{\text{Kr}} = 7,5 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$). Die Messungen werden durchgeführt mit $n_{\text{mikro}} = 30$ und $\nu_{\text{makro}} = 5 \text{ Hz}$ bei $U_{\text{ret,opt}}$ und ohne Winkelblende in der E-Optik. (a) Delayscan. Jeder Messpunkt wird durch einen Makropuls erzeugt. Die Signalerhöhung beruht auf der laserunterstützten Photoionisation, ihr Maximum liegt bei $\Delta t_D = 0 \text{ ps}$. Zusätzlich ist die absolute Zahl detektierter Elektronen erhalten über eine Blob Analyse eingetragen. Der Gaußfit an die Messwerte (rot) hat eine Halbwertsbreite von $\Delta t_{D,FWHM} \sim 2,3 \text{ ps}$. (b) Signalunterschied zwischen Messungen mit NIR Laser an/aus bei $\Delta t_D = 0 \text{ ps}$ und $\Delta t_D = 5 \text{ ps}$. Die Messwerte ergeben sich aus einer Mittelung über 200 Einzelmessungen jeweils erzeugt durch einen Makropuls. Die Fehlerbalken geben die ermittelten Standardabweichungen an. (c) Retardierungskurve für Krypton ohne (schwarz) und mit (rot) NIR Pulsen. Die Signalerhöhung mit NIR Strahlung beruht auf der laserunterstützten Photoionisation. (d) Das Differenzsignal für die Messung aus (c) ist in schwarz dargestellt. Die Ableitung dieses Signals (rot) entspricht dem Seitenbandspektrum. Die grünen Pfeile geben die erwartete Lage der ersten beiden Seitenbänder an, die Fehlerbalken sind in schwarz eingezeichnet.

6.3.3 Abschätzung der Effizienz der Seitenbänderzeugung

Linienfokus

Abbildung 6.11 ist zu entnehmen, dass das Seitenbandsignal von ~ 10 Elektronen gebildet wird. Über die Blob Analyse in Abbildung 6.10 (c) kann die Zahl der Elektronen, die bei $|U_{\text{ret}}| < |U_{\text{ret,opt}}|$ auf den Leuchtschirm treffen, durch Extrapolation zu ~ 3500 abgeschätzt werden. Damit weist das Seitenbandsignal eine relative Intensität von nur $\sim 0,3\%$ bezogen auf die Hauptphotolinie auf. Trotz ähnlicher Intensität I_{nir} beträgt die relative Seitenbandintensität nur etwa $1/100$ des Werts bei den Kreuzkorrelationsexperimenten mit kollinearem Aufbau, wo für Xenon bei $h\nu_{\text{xuv}} = 90$ eV und $I_{\text{xuv}} \approx 10^{13}$ W/cm² relative Seitenbandintensität von $> 20\%$ detektiert worden sind [Abbildung 6.1]. Diese starken Unterschiede sollten zum einen an den unterschiedlichen XUV Parametern liegen [Gleichung (3.32)]. Der entscheidende Punkt dürfte allerdings die Geometrie sein: in dem aktuellen Aufbau mit senkrecht gekreuzten Strahlen lässt sich aus den Abmessungen des XUV Kanals und des NIR Fokus abschätzen, dass nur aus $\sim 1/40$ des Gesamtvolumens überhaupt energetisch modulierte Seitenbandelektronen emittiert werden können. Aber auch entlang des Gebiets potentiellen örtlichen Überlapps von XUV und NIR Pulsen findet aufgrund des begrenzten zeitlichen Überlapps beider Pulse nur in einem Bruchteil laserinduzierte Photoionisation statt. Damit ist die im Vergleich zum kollinearen Aufbau sehr geringe relative Intensität des Seitenbandsignals verständlich.

Rundfokus

Man sieht in Abbildung 6.12 (d), dass das Seitenbandsignal von ~ 20 Elektronen gebildet wird. Gegenüber dem Linienfokus ist damit die absolute Zahl der Seitenbandelektronen verdoppelt worden. Aus der Blob Analyse wird durch Extrapolation die Absolutzahl der Elektronen, die bei $|U_{\text{ret}}| < |U_{\text{ret,opt}}|$ auf den Leuchtschirm gelangen, zu ~ 500 abgeschätzt. Das ist ein Faktor von 7 weniger als bei den Messungen mit Linienfokus. Dies liegt an der unterschiedlichen Gasdichte in der Wechselwirkungszone bei beiden Messungen, unterschiedlicher Wahl der ROI und an verschiedenen Spannungen U_{MCP} und somit unterschiedlicher Verstärkung der Signale. Die relative Intensität des Seitenbandsignals bezogen auf die Hauptphotolinie ist dann $\sim 4\%$. Dieser Wert liegt etwa eine Größenordnung über dem entsprechenden Wert beim Linienfokus ($\sim 0,3\%$), obwohl das Volumen, welchem energetisch modulierte Seitenbandelektronen entstammen können, aufgrund der stärkeren Fokussierung noch kleiner ist. Dies liegt an der effizienteren Seitenbänderzeugung aufgrund der höheren Intensität I_{nir} [Gleichung (3.32)]. Des Weiteren kann in diesem Fall eine kleinere ROI um das Kreuzkorrelationssignal gesetzt werden.

6.3.4 Abschätzung der absoluten Zahl der Elektronen im Wechselwirkungsvolumen

Mit der über die Blob Analyse abgeschätzten Absolutzahl der Elektronen, die auf dem Leuchtschirm auftreffen, lässt sich grob auf die Zahl der im Wechselwirkungsvolumen emittierten Elektronen zurückrechnen. Folgendes wird dabei berücksichtigt:

- Detektionseffizienz der MCP: für diese wird ein Wert von $\approx 50\%$ angenommen [189].
- Verstärkung der MCP: diese wird aus Herstellerangaben [Hamamatsu] grob abgeschätzt.
- Wahl der ROI
- Winkelabhängigkeit der Ionisation: es können nur Elektronen in die E-Optik gelangen, die in ein Raumelement unter dem Öffnungswinkel 2α in Richtung der E-Optik emittiert werden. Der Akzeptanzwinkel α wird dabei aus dem Abstand zwischen Wechselwirkungszone und E-Optik Eintritt und dem Durchmesser der Eintrittsapertur zu $\sim \pm 13,5^\circ$ bestimmt. Wäre die Photoemission isotrop, so würde folglich ein Anteil von $7,5\%$ aller in der Wechselwirkungszone emittierten Photoelektronen in die E-Optik gelangen. Tatsächlich aber ist die Photoemission anisotrop, was durch den Asymmetrieparameter β quantitativ erfasst wird [Kapitel 3.4.1]. Durch Integration von Gleichung (3.17) über den angegebenen Akzeptanzwinkel bzw. über den vollen Raumwinkel erhält man den von β abhängigen Anteil der Photoelektronen, der in die E-Optik gelangt, bezogen auf die gesamte Emission zu $E_\beta = (1 - 0,48 \cdot \beta) / (1 + 1,86 \cdot \beta)$.
- Transmission der E-Optik : eine Simulation mit SIMION zeigt, dass von 100.000 Elektronen, die mit 70 eV Startenergie die Wechselwirkungszone verlassen, bei Benutzung der 1 mm Winkelblende nur ~ 160 Elektronen den Detektor erreichen, während es für das volle Loch (6 mm Durchmesser) ~ 1050 Elektronen sind. Die Simulation geht davon aus, dass die Elektronen aus einem quaderförmigen Volumen der beschriebenen Abmessungen stammen, welches sich zentrisch im Sollabstand vor der E-Optik befindet. Die Simulation berücksichtigt nicht die Anisotropie der Photoemission und den Effekt nicht-kompensierter magnetischer Störfelder. Im Folgenden wird angenommen, dass die Transmission für $E_{\text{kin},0} < 100$ eV näherungsweise unabhängig von der Startenergie ist.
- Ionisation aus anderen Zuständen: Elektronen, die mit $E_{\text{kin},0} < |U_{\text{ret}}|$ in der Wechselwirkungszone erzeugt werden, können nicht berücksichtigt werden.

Bei $h\nu_{\text{xuv}} \approx 38$ eV ist $E_{\text{kin}} = h\nu_{\text{xuv}} - \text{IP}_1(\text{Kr}) \approx 24$ eV. Für die 4p Schale von Krypton beträgt der Asymmetrieparameter bei dieser Photonenenergie $\beta \approx 1,75$ [Abbildung 9.2], und es ergibt sich $E_\beta \sim 3,6\%$. Da bei den Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung keine Winkelblende benutzt wurde, ist die Transmission der E-Optik ca. 1 %.

Unter Berücksichtigung aller aufgeführten Punkte wird die Zahl der pro Mikropuls in der Wechselwirkungszone erzeugten Elektronen zu etwa 750 abgeschätzt. Die geometrische Abmessung des FEL Pulses ist durch den Eintrittsspalt auf $125 \times 500 \mu\text{m}^2$ festgelegt. In Ausbreitungsrichtung der XUV Strahlung wird eine Kanallänge von 1 mm angenommen, was dem Durchmesser der E-Optik Eintrittsapertur entspricht. Geht man von homogener Verteilung der Photoelektronen im gesamten Wechselwirkungsvolumen aus, so lässt sich damit die Ladungsdichte abschätzen zu $\rho \sim 1,9 \cdot 10^{-12} \text{ C/cm}^3$. Dieser Wert liegt unter dem Wert von 10^{-11} C/cm^3 , ab welchem Raumladungseffekte eine Rolle spielen sollten [Kapitel 3.4.7.2]. Obwohl es sich um eine grobe Abschätzung mit mehreren vereinfachenden Annahmen handelt, stimmt das Ergebnis der Abschätzung mit der Beobachtung überein, dass bei den Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung keine Anzeichen von einer Beeinflussung durch Coulomb-Wechselwirkungen beobachtet wurden.

6.3.5 Die Aufnahme eines orts aufgelösten Signals mit mehreren Mikropulsen pro Makropuls

Um das detektierte Kreuzkorrelationsignal zur Ankunftszeitmessung der XUV Pulse von FLASH zu nutzen, ist eine vergrößerte Abbildung des Wechselwirkungsvolumens mit beiden Laserpulsen auf dem Leuchtschirm der E-Optik nötig.

Linienfokus

Es zeigt sich, dass mit dem Linienfokus in Einzelbildern jeweils erzeugt durch einen Makropuls mit 30 Mikropulsen kein ausreichend großes Seitenbandsignal vorhanden ist. Wird über viele Aufnahmen mit eingeschaltetem Laser gemittelt und vom resultierenden Bild ein über die entsprechende Anzahl an Bildern gemitteltes Untergrundbild subtrahiert, so beobachtet man ein diffuses, nicht örtlich lokalisiertes Differenzsignal.

Rundfokus

Abbildung 6.13 (a) zeigt eine orts aufgelöste Abbildung des XUV induzierten Ionisationskanals bei $|U_{\text{ret}}| < |U_{\text{ret,opt}}|$ nach Optimierung der örtlichen Auflösung. Das bei $|U_{\text{ret,opt}}|$ noch übrige Untergrundsignal ist in Abbildung 6.13 (b) gezeigt. Abbildung 6.13 (c) zeigt die selbe Region bei zusätzlicher Einstrahlung der auf ein rundes Profil fokussierten NIR Pulse. Man sieht die erwartete Zunahme des Signals entlang des NIR Pfads aufgrund der laserunterstützten Photoionisation. Das orts aufgelöste Kreuzkorrelationsignal ist noch besser in Abbildung 6.13 (d) zu sehen, wo das Differenzsignal aus den Messungen mit eingeschaltetem und ausgeschaltetem Laser gezeigt ist. Die Messungen sind ohne Winkelblende durchgeführt worden, da durch diese das Seitenbandsignal unter die Detektionsgrenze gedrückt wird.

Die dargestellten orts aufgelösten Signale ergeben sich aus der Mittelung von 1200 Einzelaufnahmen jeweils erzeugt von einem Makropuls mit 30 Mikropulsen. Damit wird über 1200×30 individuelle Werte der Ankunftszeitdifferenz Δt_j der XUV Pulse gemittelt. Während das Signal für einen Makropuls von etwa 20 Elektronen gebildet wird [Abbildung

6.12 (d)], zeigt eine Analyse mit der Software SIMION, dass für einen ausreichenden Kontrast zur Einzelschussanalyse mindestens 100 Elektronen nötig sind. Für eine ausreichende Statistik ist eine Mittelung über entsprechend viele Makropulse erforderlich.

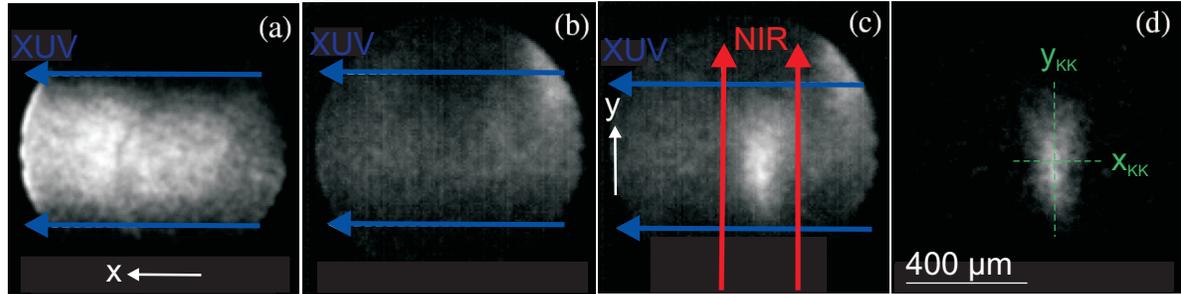


Abbildung 6.13: Vergrößerte Abbildung der Wechselwirkungszone mit Hilfe der E-Optik für Krypton ($p_{Kr} = 7,5 \cdot 10^{-6}$ mbar). Die Messungen wurden mit $n_{\text{mikro}} = 30$ und $\nu_{\text{makro}} = 5$ Hz ohne Winkelblende in der E-Optik durchgeführt. Jedes Bild resultiert aus der Mittelung über 1200 Einzelaufnahmen jeweils erzeugt durch einen Makropuls. (a) Ionisationskanal erzeugt durch die XUV Pulse von FLASH ($h\nu_{\text{FEL}} \approx 38$ eV, $I_{\text{xuv}} \approx 7 \cdot 10^5$ W/cm²) ohne NIR Pulse bei $|U_{\text{ret}}| < |U_{\text{ret,opt}}|$. (b) Untergrundsignal ohne NIR Pulse bei $|U_{\text{ret,opt}}|$. (c) Signalerhöhung im Zentrum des Bildfeldes basierend auf laserunterstützter Photoionisation bei Zuschalten der NIR Pulse (Linienfokus, $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13}$ W/cm²). (d) Differenzsignal, welches aus der Subtraktion der Bilder (c) und (b) erhalten wird.

Das Konzept des Time-to-Space Mappings liefert eine Information über die relative Ankunftszeit der XUV Pulse aus der Verschiebung der örtlichen Position des Signals um Δy [Abbildung 6.3]. Aus der bekannten Vergrößerung der E-Optik kann die Größe des ortsaufgelösten Kreuzkorrelationssignals bestimmt werden.

Abbildung 6.14 zeigt die Intensitätsprofile entlang der Schnittlinien x_{KK} und y_{KK} aus Abbildung 6.13 (d). Der Gaußfit an das Intensitätsprofil entlang x_{KK} hat eine Halbwertsbreite von $\Delta x_{\text{KK}} \approx 80$ μm . Dieser Wert liegt um einen Faktor ~ 6 über dem ermittelten NIR Fokussdurchmesser von 13 μm (FWHM). Diese Abweichung könnte an Abbildungsfehlern (insbesondere der sphärischen Abberation) aufgrund des Fehlens einer Winkelblende liegen. Außerdem ist ohne Winkelblende die XUV induzierte Elektronenverteilung innerhalb des Kanals nicht homogen [Abbildung 6.6], was Einfluss auf das Differenzbild hat. Eine weitere Verbreiterungsquelle könnte die örtliche Fluktuation der NIR Strahlage sein, da hier über 1200 Makropulse mit jeweils 30 Mikropulsen gemittelt wurde.

Aus der örtlichen Ausdehnung des Signals entlang der Zeitachse in y-Richtung kann eine Obergrenze für den während der Messreihe von 1200 hintereinander aufgenommenen Einzelmessungen aufgetretenen Jitter angegeben werden. Der Gaußfit hat eine Halbwertsbreite von $\Delta y_{\text{KK}} \approx 230$ μm , was einem zeitlichen Jitter von ~ 750 fs (FWHM) entspricht.

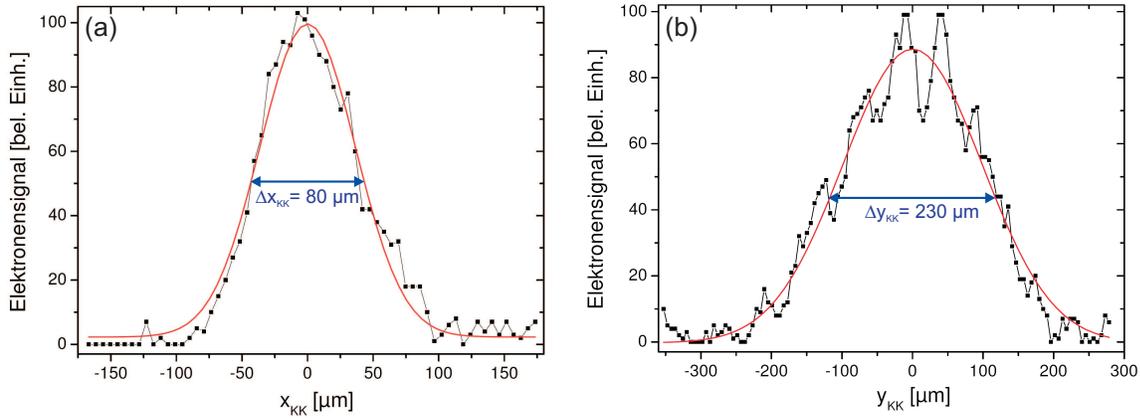


Abbildung 6.14: Intensitätsprofile entlang der Schnittlinien x_{KK} (a) und y_{KK} (b) aus Abbildung 6.13 (d). Die rote Kurve ist jeweils der Gaußfit an die Messdaten.

6.3.6 Detektion des Kreuzkorrelationssignals im Einzelschuss

Für ein zeitaufgelöstes Pump-Probe Experiment ist die Bestimmung der relativen Ankunftszeit jedes einzelnen Mikropulses von FLASH wichtig. Da in der aktuellen Konfiguration aufgrund der eingeschränkten Ausleserate der Kamera die Datenaufnahme bei der vollen Repetitionsrate $\nu_{\text{mikro}} = 1 \text{ MHz}$ nicht möglich ist, muss überprüft werden, ob auch im Einzelschuss ein Kreuzkorrelationssignal zu detektieren ist.

Typische Messungen für $n_{\text{mikro}} = 1$ zeigt Abbildung 6.15. In (a) ist ein Delayscan zu sehen. Wie erwartet ist der Kontrast deutlich schlechter als bei vergleichbaren Messungen mit $n_{\text{mikro}} = 30$. Bei $t_D = 0 \text{ ps}$ ist eine leichte Signalerhöhung zu sehen. Dass hier tatsächlich das auf der laserunterstützten Photoionisation basierende Kreuzkorrelationssignal detektiert worden ist, zeigt Abbildung 6.15 (b). Das Seitenbandsignal wird durch etwa 2 Photoelektronen erzeugt. Damit ist es zu gering zur Aufnahme aussagekräftiger ortsaufgelöster Messungen. Mit einem Gaußfit an den Delayscan in Abbildung 6.15 (a) kann die Obergrenze für den zeitlichen Jitter mit $\Delta t_{D,\text{FWHM}} \sim 1 \text{ ps}$ angegeben werden.

6.4 Messungen mit fokussierter nicht-monochromatischer XUV Strahlung

Die Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung an der Beamline BL3 haben gezeigt, dass die Intensität des detektierten Kreuzkorrelationssignals zu gering ist um eine Messung der relativen Ankunftszeit der FLASH Pulse von Schuss zu Schuss vornehmen zu können. So konnte zwar auch im Einzelschussbetrieb ein Kreuzkorrelationssignal detektiert werden, durch die NIR Pulse werden aber nur etwa 2 Photoelektronen ins Seitenband gebracht. Dies reicht für eine aussagekräftige Abbildung nicht aus.

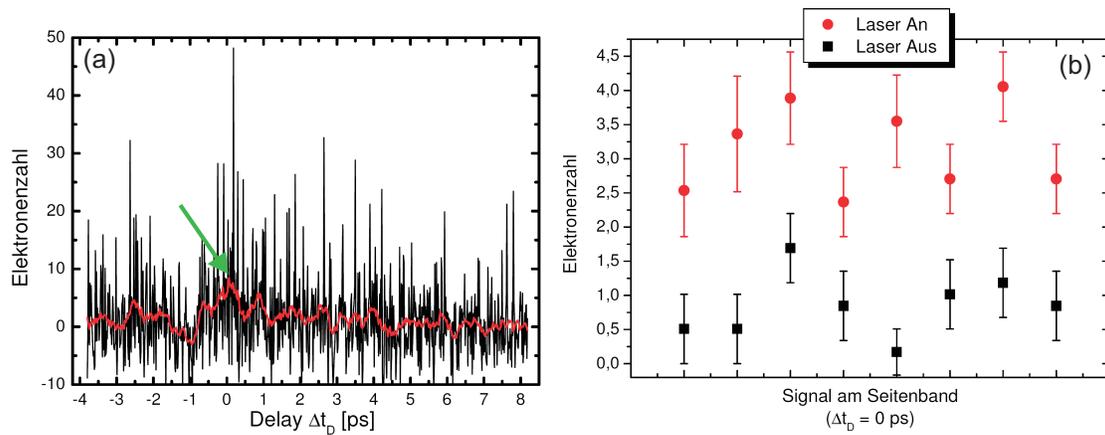


Abbildung 6.15: Kreuzkorrelationssignal erhalten bei Überlagerung der XUV Pulse von FLASH ($h\nu_{\text{FEL}} \approx 38$ eV, $I_{\text{XUV}} \approx 7 \cdot 10^5$ W/cm²) und der NIR Pulse (Rundfokus, $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13}$ W/cm²) bei Krypton als Targetgas ($p_{\text{Kr}} = 7,5 \cdot 10^{-6}$ mbar). Die Messungen werden durchgeführt mit $n_{\text{mikro}} = 1$ und $\nu_{\text{makro}} = 5$ Hz bei $U_{\text{ret,opt}}$ und ohne Winkelblende in der E-Optik. (a) Delayscan. Jeder Messpunkt wird durch einen Makropuls erzeugt. Die Signalerhöhung (grüner Pfeil) beruht auf der laserunterstützten Photoionisation, ihr Maximum liegt bei $\Delta t_D = 0$ ps. Hier liegt örtlicher und zeitlicher Überlapp der beiden Pulse vor. Die absolute Zahl detektierter Elektronen wird über eine Blob Analyse erhalten, aufgrund der geringen Zählraten ergeben sich dabei auch negative Elektronenzahlen. In rot ist die geglättete Kurve der Messwerte dargestellt. Ein Gaußfit an die Messwerte hat eine Halbwertsbreite von $\Delta t_{D,\text{FWHM}} \sim 1$ ps. (b) Signalunterschied zwischen Messungen mit NIR Laser an/aus bei $\Delta t_D = 0$ ps. Die Messwerte ergeben sich aus einer Mittelung über 200 Einzelmessungen jeweils erzeugt durch einen Makropuls. Die Fehlerbalken geben die ermittelten Standardabweichungen an. Das Kreuzkorrelationssignal wird im Schnitt durch etwa 2 Photoelektronen erzeugt.

Durch eine Erhöhung der Intensität I_{nir} kann die Zahl der Seitenbandelektronen gesteigert werden, was durch Vergleich der Ergebnisse der Kreuzkorrelationsmessungen mit Rund- und Linienfokus bestätigt wurde. Allerdings arbeitete man mit dem Rundfokus nahe am Beugungslimit, so dass eine weitere Erhöhung der Intensität I_{nir} nicht möglich war. Nach Gleichung (3.32) ist die Effizienz der Seitenbänderzeugung auch proportional zum Wellenvektor \vec{k} der freigesetzten Photoelektronen und zum differentiellen Wirkungsquerschnitt $d\sigma_v^{(1)}/d\Omega$ der Ionisation. Folglich ist zu erwarten, dass eine Erhöhung der Photonenenergie $h\nu_{\text{XUV}}$ sowie der Intensität I_{XUV} zu einer Zunahme der absoluten Zahl der Seitenbandelektronen führt. Aus diesem Grund werden die Kreuzkorrelationsmessungen mit fokussierter XUV Strahlung wiederholt. Im ersten Schritt wird nicht monochromatische Strahlung benutzt, d.h. man arbeitet mit der natürlichen Bandbreite der Strahlung von ca. 0,5 % der Photonenenergie. Daher wurden die nachfolgend beschriebenen Messungen an der fokussierten Monochromator Beamline PG2, betrieben in der 0. Beugungsordnung, durchgeführt.

6.4.1 Parameter der fokussierten nicht-monochromatischen XUV Strahlung

Die fokussierte XUV Strahlung hat eine Photonenenergie von $h\nu_{\text{xuv}} \approx 92$ eV. Abbildung 6.16 zeigt typische Spektren. Da die Ankunftszeit jedes einzelnen Mikropulses bestimmt werden soll, wurden sämtliche Messungen im Einzelschussbetrieb ($n_{\text{mikro}} = 1$) durchgeführt. Aufgrund seines großen Wirkungsquerschnitts $\sigma^{(1)}$ bei 92 eV [Abbildung 9.1] wird Neon als Targetgas gewählt.

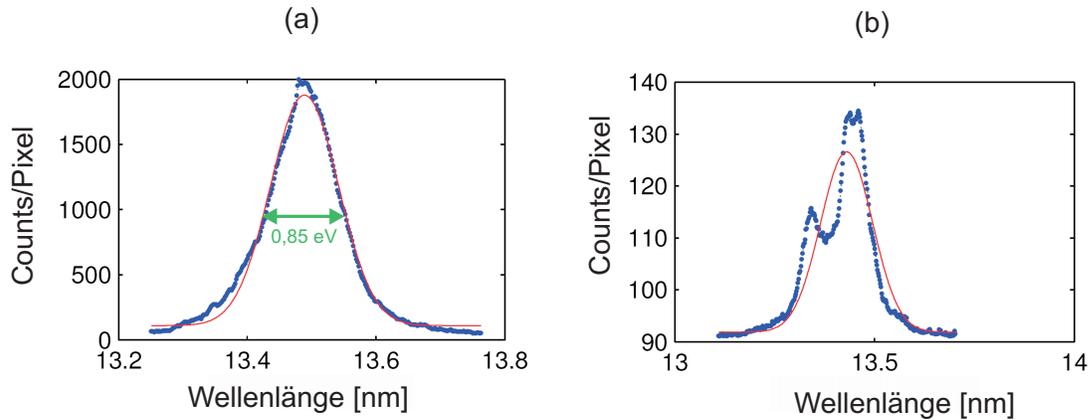


Abbildung 6.16: Typische Spektren der benutzten fokussierten Strahlung von FLASH. An die Spektren wird eine Gaußfunktion (rot) angefitet. (a) Über viele Einzelpulse gemitteltes Spektrum. Der Gaußfit hat sein Maximum bei $h\nu_{\text{xuv}} = 91,8$ eV. (b) Einzelpulsspektrum ($n_{\text{mikro}} = 1$). Man sieht deutlich ein Nebenmaximum neben dem Hauptmaximum.

Die Fokusgröße hängt vom täglichen Betrieb ab und kann über das Fluoreszenzsignal auf dem Ce:YAG Schirm [Abbildung 4.28] am Experiment bestimmt werden. Dabei ist der Fehler aufgrund der Streuung der Strahlung an den Leuchtschirmpartikeln zu berücksichtigen. Typischerweise liegt die Fokusgröße in der Größenordnung $150 \times 250 \mu\text{m}^2$ (FWHM). In der 0. Ordnung bei $\lambda_{\text{xuv}} = 13,5$ nm mit $\tau_{\text{xuv}} \sim 10$ fs und einer typischen Pulsenenergie von $\geq 15 \mu\text{J}$ ergibt sich unter Berücksichtigung der Transmission der Beamline, die für das benutzte 200 Linien/mm Beugungsgitter bei $\alpha = 86^\circ \approx 22\%$ beträgt [71], eine XUV Intensität von $I_{\text{xuv}} \geq 10^{12}$ W/cm². Dieser Wert liegt um etwa 6 Größenordnungen über der Intensität der unfokussierten Strahlung ($\approx 7 \cdot 10^5$ W/cm²).

6.4.2 Effekte hoher lokaler Ladungsdichten

In Elektronenstrahlen treten Coulomb-Wechselwirkungen zwischen den Teilchen des Strahls auf, die besonders bei hoher lokaler Ladungsdichte (d.h. großer Stromstärke I_e) bedeutend werden [Kapitel 3.4.7.2]. Solche Elektronen"strahlen" können auch erzeugt werden, wenn durch intensive Strahlung viele Photoelektronen pro Fläche aus einem Target ausgelöst werden. Auch bei Photoionisationsexperimenten mit der Strahlung von FLASH

treten solche Raumladungseffekte auf, wie beispielsweise bei der Untersuchung der 4f Photoemission aus Wolfram durch die XUV Strahlung beobachtet worden ist [213]. Für das aktuelle Experiment bedeutet dies, dass bei der Ionisation der Edelgase durch die fokussierte Strahlung von FLASH ebenfalls mit solchen Effekten zu rechnen ist. Man nehme an, die in Kapitel 3.4.7.2 diskutierten Einflüsse der Coulomb-Wechselwirkungen lassen sich direkt auf die Elektronenpulse, die durch Photoemission aus dem Edelgas erzeugt werden, übertragen. Dann äußern sich die Coulomb-Wechselwirkungen auf zwei Arten:

a) Es kommt zu einer Trajektorienverschiebung. Im Experiment ist daher kein örtlich stabiler XUV induzierter Ionisationskanal [wie in Abbildung 6.13 (a)] zu erzielen, sondern man beobachtet Fluktuationen der lokalen Ladungsdichte innerhalb des Kanals sowie eine örtliche Fluktuation des gesamten Kanals in vertikaler Richtung. Die Größe dieser örtlichen Verschiebung sollte $\propto f$ [Gleichung (3.43)] und $\propto I_e^{2/3}$ [Gleichung (3.42)] sein.

b) Ebenso tritt eine Verbreiterung der Energieverteilung der Photoelektronen auf, deren Größe $\Delta E/E \propto I_e^{2/3}$ und $\propto m^{1/3}$ sein sollte [Gleichung (3.45)].

Die Stromstärke I_e des Elektronenstrahls (und damit $\Delta E/E$) ist abhängig von der Intensität I_{xuv} , der Wahl des Targetgases sowie von der lokalen Dichte der Atome im Wechselwirkungsvolumen. Dies zeigt Abbildung 6.17: bei konstantem Gasdruck sind für drei verschiedene XUV Pulsenergien ($E_{\text{xuv}} = 2,5 - 15 \mu\text{J}$) Retardierungskurven [Messreihen (1)-(3)] mit Neon als Targetgas aufgenommen worden [Abbildung (a)], deren Ableitungen die Photolinien sind [Abbildung (b)].

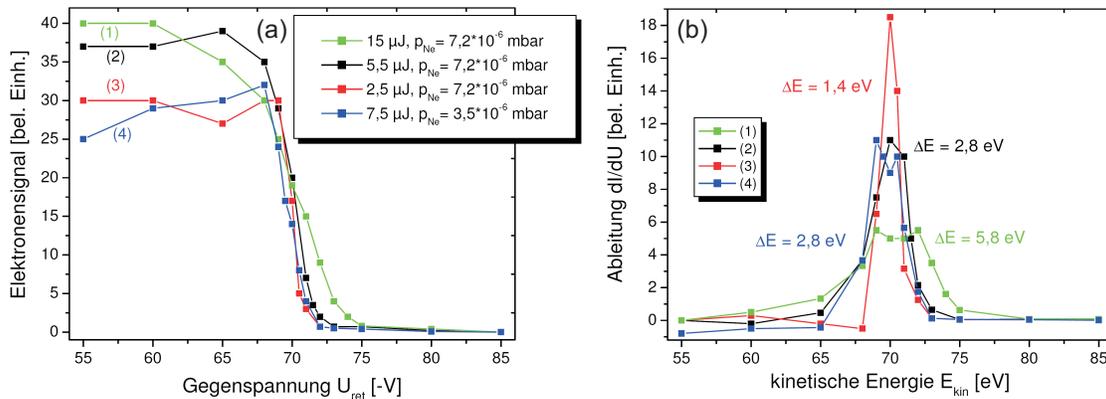


Abbildung 6.17: Abhängigkeit der Energieverbreiterung von der Pulsenergie E_{xuv} und dem Gasdruck p_{Ne} . (a) Retardierungskurven an der fokussierten Beamline PG2 (0. Ordnung) ohne NIR Pulse bei Neon als Targetgas. Bei den Messreihen (1)-(3) ist bei festem Gasdruck p_{Ne} die XUV Intensität variiert worden, bei der maximalen Pulsenergie von $E_{\text{xuv}} = 15 \mu\text{J}$ wird die Intensität abgeschätzt zu $I_{\text{xuv}} \approx 2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Bei der Messreihe (4) ist zusätzlich der Gasdruck p_{Ne} verändert worden. (b) Photolinien, die sich durch Ableitung der Retardierungskurven aus (a) ergeben. Mit zunehmender XUV Intensität ist eine energetische Verbreiterung zu beobachten, was durch hohe lokale Ladungsdichten verursacht wird.

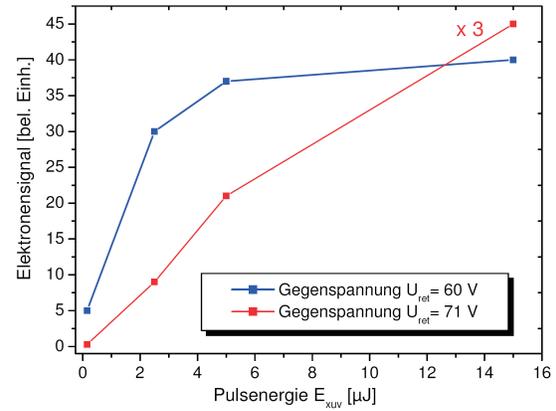
Die XUV Pulsenergie wird über den Druck im Gasabsorber eingestellt. Mit einem ermittelten Fokus von $150 \times 220 \mu\text{m}^2$ (FWHM) lässt sich die Intensität bei der maximalen Pulsenergie von $15 \mu\text{J}$ abschätzen zu $I_{\text{xuv}} \approx 2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Eine Verringerung der Halbwertsbreite der Photolinien mit abnehmender XUV Intensität ist sichtbar. Nimmt man einen linearen Zusammenhang zwischen I_e und E_{xuv} an, so wäre die erwartete Proportionalität $\Delta E/E \propto (E_{\text{xuv}})^{2/3}$. Für $E_{\text{xuv}} = 5,5 \mu\text{J}$ und $15 \mu\text{J}$ ist diese Vorhersage erfüllt, für $E_{\text{xuv}} = 2,5 \mu\text{J}$ ist der ermittelte Exponent kleiner. Das könnte an dem Auftreten von nicht-linearen Beiträgen zur Ionisation liegen, die bei der vorliegenden XUV Intensität auftreten können [siehe Kapitel 5.4]. Dann hängt I_e nicht mehr linear von E_{xuv} ab. Da das erste Seitenband vom Maximum der Photolinie einen Abstand von $h\nu_{\text{nir}} = 1,55 \text{ eV}$ hat [Gleichung (3.29)], sind die Photolinien für $E_{\text{xuv}} > 2,5 \mu\text{J}$ energetisch zu breit. Offensichtlich kann beim vorliegenden Gasdruck nicht bei der maximalen XUV Intensität gearbeitet werden und eine Abschwächung ist notwendig.

Zur Untersuchung des Einflusses der Teilchendichte im Wechselwirkungsvolumen auf die Energieverbreiterung ist eine vierte Retardierungskurve aufgenommen worden, bei welcher der Gasdruck p_{Ne} auf etwa die Hälfte reduziert worden ist [Messreihe (4)]. Offensichtlich zeigt die Energieverbreiterung von der Variation der Teilchendichte eine schwächere Abhängigkeit als von einer Variation der XUV Intensität. Das ist gut durch Vergleich der Messreihen (2) und (4) zu sehen: obwohl bei (4) der Gasdruck halbiert und die Pulsenergie E_{xuv} um einen Faktor $\sim 1,4$ erhöht wird, ist die Halbwertsbreite ΔE beider Photolinien gleich groß.

Auffällig ist, dass die Elektronensignale bei den Messreihen (1) und (2) ähnliche Größe haben, obwohl die XUV Pulsenergie bei (1) 3 mal so groß ist wie bei (2). Da beide Messungen bei identischen Detektoreinstellungen aufgenommen worden sind, liegt offensichtlich Sättigung vor. Dies wird verdeutlicht in Abbildung 6.18: hier sind für zwei verschiedene Gegenspannungen U_{ret} die absoluten Signalintensitäten für die Messreihen (1)-(3) aus Abbildung 6.17 (a) aufgetragen. Der vierte Punkt ergibt sich aus einer Retardierungskurve bei gleichem Gasdruck p_{Ne} wie bei den anderen drei Messreihen aber mit $E_{\text{xuv}} = 0,15 \mu\text{J}$. Bei $U_{\text{ret}} = 60 \text{ V}$, bei der die Elektronen der Hauptphotolinie den Detektor erreichen können, geht das Signal mit zunehmender XUV Pulsenergie in Sättigung. Die Kurve bei der Gegenspannung $U_{\text{ret}} = 71 \text{ V}$, bei welcher nur noch ein Bruchteil der emittierten Photoelektronen den Detektor erreichen kann, zeigt eine ähnliche Tendenz, aber weniger stark ausgeprägt.

Es stellt sich die Frage, ob für große I_{xuv} die MCP oder das Gastarget gesättigt ist. Ausgeschlossen werden kann eine Sättigung der Kamerapixel. Bei der benutzten MCP Spannung sollte man noch weit entfernt von Sättigung sein. Des Weiteren sollte in diesem Fall bei $U_{\text{ret}} = 71 \text{ V}$ keinerlei Sättigung zu beobachten sein, da die Zahl der auf die MCP auftreffenden Elektronen gering ist. Dass auch hier leichte Anzeichen für Sättigung beobachtet werden, spricht eher für eine Sättigung der Probe. Kann die Teilchendichte n_w in der Wechselwirkungszone abgeschätzt werden, so wäre mit dem bekannten Wirkungsquerschnitt $\sigma^{(1)}(92 \text{ eV})$ für Neon eine Aussage darüber möglich, ob eine Sättigung der Probe vorliegen kann.

Abbildung 6.18: Elektronensignal der Retardierungskurven aus Abbildung 6.17 (a) bei zwei festen Retardierungsspannungen U_{ret} als Funktion der XUV Pulsenergie. Die maximale Intensität beträgt $I_{\text{xuv}} \approx 2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Bei $U_{\text{ret}} = 60 \text{ V}$ zeigt das Signal mit zunehmender XUV Intensität deutlich Sättigung, bei $U_{\text{ret}} = 71 \text{ V}$ ist der Sättigungseffekt deutlich weniger ausgeprägt.



Nimmt man Neon als ideales Gas an, welches isentropisch durch die Öffnung der Gasdüse ins Vakuum expandiert, hängen Druck und Teilchendichte in der Gasdüse (p_0, n_0) mit den entsprechenden Größen beim Austritt aus der Gasdüse (p, n) zusammen über die Beziehung $p/p_0 = (n/n_0)^\gamma$ [214], wobei $\gamma = C_p/C_v$ ($C_p, C_v =$ Wärmekapazität). Leider ist daraus eine Abschätzung für n_w nicht möglich, da insbesondere die Größe γ im Experiment nicht bestimmt werden kann und n/n_0 stark vom Abstand zwischen Austrittsöffnung der Gasdüse und der Wechselwirkungszone abhängt [214]. Dieser Abstand kann nicht exakt vermessen, sondern nur grob abgeschätzt werden [Abbildung 4.12 (b)]. Bei Photoionisationsexperimenten mit Neon am FLASH bei $h\nu_{\text{xuv}} = 38 \text{ eV}$ ist für $N_{\text{Ph}} > \sim 2 \cdot 10^{11}$ XUV Photonen pro Puls eine Sättigung des Ionensignals beobachtet worden [69]. Im aktuellen Experiment ist N_{Ph} , welches mit Gleichung (9.5) berechnet werden kann, in der selben Größenordnung. Obwohl zu berücksichtigen ist, dass $\sigma_{\text{Ne},2p}^{(1)}(92\text{eV}) \approx 1/2 \cdot \sigma_{\text{Ne},2p}^{(1)}(38\text{eV})$, deuten diese experimentellen Ergebnisse darauf hin, dass die in Abbildung 6.18 dargestellte Signalabhängigkeit auf eine Sättigung der Probe zurückzuführen ist.

6.4.3 Detektion des Kreuzkorrelationssignals im Einzelschuss

Da für $E_{\text{xuv}} = 2,5 \mu\text{J}$ ($\equiv I_{\text{xuv}} \approx 3 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$) und $p_{\text{Ne}} = 7,2 \cdot 10^{-6} \text{ mbar}$ die Photolinie eine Halbwertsbreite von $\Delta E \approx 1,4 \text{ eV}$ hat [Abbildung 6.17 (b)] und das Signal nicht gesättigt ist [Abbildung 6.18], sollte bei diesen Parametern eine Kreuzkorrelationsmessung möglich sein. Gegenüber den Messungen mit der unfokussierten Strahlung von FLASH ist die XUV Intensität dann um einen Faktor $\sim 4,3 \cdot 10^5$ erhöht. Aufgrund dessen und der höheren Photonenenergie ($\lambda_{\text{xuv}} = 13,5 \text{ nm}$ statt 32 nm) sollte gegenüber den Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung eine effizientere Seitenbänderzeugung möglich sein [Gleichung (3.32)]. Tatsächlich aber ist es bei Zuschalten der NIR Pulse nicht gelungen ein Kreuzkorrelationssignal zu detektieren. Das wird dem Auftreten von Raumladungseffekten zugeschrieben. Aufgrund der Fluktuationen in der XUV Intensität kann es während einer Messreihe zu einer energetischen Verbreiterung der Retardierungskurve kommen. In diesem Fall ist die Detektion eines Kreuzkorrelationssignals nicht mehr möglich.

6.5 Messungen mit fokussierter monochromatischer XUV Strahlung

Bei den Messungen mit der fokussierten, aber nicht monochromatischen XUV Strahlung in der 0. Beugungsordnung an der PG2 konnte kein Kreuzkorrelationssignal basierend auf laserunterstützter Photoionisation detektiert werden. Dies wird der durch Coulomb-Wechselwirkungen verursachten Energieverbreiterung der Photolinien zugeschrieben, wodurch eine Trennung von Hauptphotolinie und Seitenbandsignal nicht mehr möglich ist. Um a priori eine schmalere Energiebreite der Photolinie zu haben, wurde die monochromatische XUV Strahlung in der 2. Ordnung des Monochromators an der Beamline PG2 benutzt.

6.5.1 Pulsdauer und Intensität der fokussierten monochromatischen XUV Strahlung

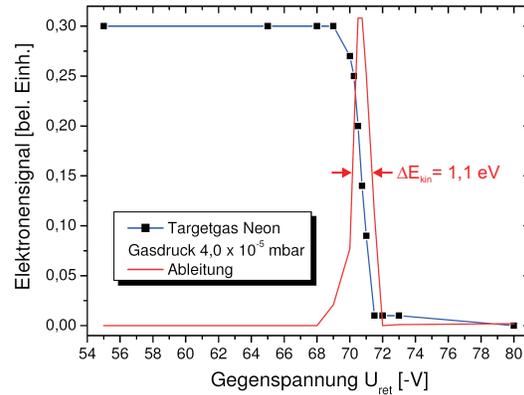
Die Messungen mit der monochromatischen XUV Strahlung in der 2. Beugungsordnung an der PG2 fanden bei $h\nu_{\text{XUV}} \approx 92$ eV statt. Es kommt dabei gegenüber der 0. Ordnung zu einer Verlängerung der Pulsdauer τ_{XUV} . Diese beruht auf unterschiedlichen optischen Weglängen der Strahlen, die an verschiedenen Punkten des benutzten Gitters (200 Linien/mm) gebeugt werden. Die Größe der Pulsverbreiterung hängt von λ_{XUV} , den Einstellungen des Monochromators und der Zahl der ausgeleuchteten Striche des Gitters ab. Im konkreten Fall wird mit geometrischer Strahlenoptik abgeschätzt, dass während der Experimente etwa 1/3 des Beugungsgitters beleuchtet war. Demnach lässt sich mit $\text{cff} = 1,5$ die Pulsdauer nach dem Monochromator in der 2. Ordnung abschätzen zu $\tau_{\text{XUV}} \approx 1,1$ ps. Außerdem ist zu beachten, dass gerade für die 2. Beugungsordnung die Transmission der Beamline gering ist [Abbildung 3.13]. Sie beträgt im konkreten Fall nur etwa 0,1 %. Dies hat eine deutliche Abnahme der XUV Intensität gegenüber den Messungen in der 0. Beugungsordnung zur Folge. Mit $E_{\text{XUV}} \approx 10$ μJ und einer ermittelten XUV Spotgröße von 160×340 μm^2 (FWHM) lässt sie sich abschätzen zu $I_{\text{XUV}} \approx 1,6 \cdot 10^7$ W/cm^2 . Diese Intensität ist um einen Faktor ~ 20 höher als bei den Messungen an der BL3 ($\approx 7 \cdot 10^5$ W/cm^2).

6.5.2 Test des Energiefilters mit fokussierter monochromatischer XUV Strahlung

Abbildung 6.19 zeigt eine Retardierungskurve bei Neon als Targetgas, aufgenommen in der 2. Ordnung des Monochromators an der PG2. Die Halbwertsbreite der Photolinie beträgt 1,1 eV und ist somit trotz der Benutzung der monochromatischen Strahlung größer als bei den Messungen mit der unfokussierten Strahlung mit der natürlichen Bandbreite der Strahlung [Abbildung 6.8]. Das könnte ein Hinweis darauf sein, dass auch hier Coulomb-Wechselwirkungen bedeutend sein könnten. Es ist aber festzustellen, dass die Photolinie

energetisch schmal genug zur nachfolgenden Aufnahme von Kreuzkorrelationssignalen ist. Anhand dieser Messung lässt sich auch die optimale Retardierungsspannung $U_{\text{ret,opt}}$ finden.

Abbildung 6.19: Retardierungskurve (schwarze Punkte) bei Neon als Targetgas ($p_{\text{Ne}} = 4 \cdot 10^{-5}$ mbar) in der 2. Ordnung des Monochromators der fokussierten Beamline PG2 bei $\lambda_{\text{xuv}} = 13,5$ nm und $n_{\text{mikro}} = 1$. Die XUV Intensität wird abgeschätzt zu $I_{\text{xuv}} \approx 1,6 \cdot 10^7$ W/cm². Die Photolinie (rot) hat eine Halbwertsbreite von $\Delta E = 1,1$ eV, und ist somit schmal genug um das Seitenbandsignal zu detektieren.



6.5.3 Detektion des Kreuzkorrelationssignals im Einzelschuss

Die im Folgenden beschriebenen Kreuzkorrelationsmessungen sind alle im Einzelschussbetrieb ($n_{\text{mikro}} = 1$) durchgeführt worden. Für die NIR Strahlung ist ausschließlich der Rundfokus (Abbildung 4.9) verwendet worden. Das Targetgas war Neon.

Abbildung 6.20 zeigt mit diesen Parametern durchgeführte Kreuzkorrelationsmessungen. In (a) ist ein Delayscan zu sehen, also das Elektronensignal als Funktion des zeitlichen Delays Δt beider Pulse. Der Nullpunkt der Zeitskala wird in das Delay gesetzt, bei welchem mit der Zeitsonde optimaler zeitlicher Überlapp gemessen worden ist. Man sieht, dass einzelne Punkte hoher Signalintensität auftreten. Diese werden den einzeln auftretenden besonders intensiven XUV Pulsen zugeschrieben, die jeweils zu einer hohen lokalen Ladungsdichte innerhalb der ausgelösten Elektronenpulse führen. Es ist sowohl experimentell [215] als auch theoretisch [216] bestätigt, dass Coulomb-Wechselwirkungen neben den in Kapitel 3.4.7.2 beschriebenen Effekten auch zum Auftreten von einzelnen Photoelektronen mit sehr hoher kinetischer Energie, die die benutzte Photonenenergie um ein Vielfaches übersteigt, führen können. Diese Photoelektronen können den Energie-Hochpassfilter passieren und treffen mit hoher kinetischer Energie auf die MCP. Dies würde die hohe Signalintensität dieser vereinzelt Peaks erklären. Es ist sinnvoll, diese Raumladungs-Peaks nachträglich aus dem Signal zu entfernen. Dann erhält man bei zusätzlicher Normierung der Signale auf die XUV Intensität den in Abbildung 6.20 (b) dargestellten Delayscan. Eine vom Delay abhängige NIR induzierte Zunahme des Elektronensignals ist zu sehen. Das ist das Kreuzkorrelationssignal basierend auf der laserunterstützten Photoionisation. Der Gaußfit an die Datenpunkte (rot) hat eine Halbwertsbreite von $\Delta t_{\text{D,FWHM}} \approx 1,1$ ps. Es ist überraschend, dass dieser Wert der Pulsdauer τ_{xuv} entspricht. Aufgrund der Faltung der Pulsdauer beider Pulse, dem Zeitfenster und der Ankunftszeitfluktuation der XUV Pulse würde man eine deutlich breitere Gaußfunktion erwarten [vgl. Gleichung (4.2)]. Für $\Delta t_{\text{D}} = 0$ ps sieht man mit eingeschaltetem Laser im Vergleich zu Messungen mit ausgeschaltetem Laser eine deutliche Signalerhöhung [Abbildung 6.20 (c)].

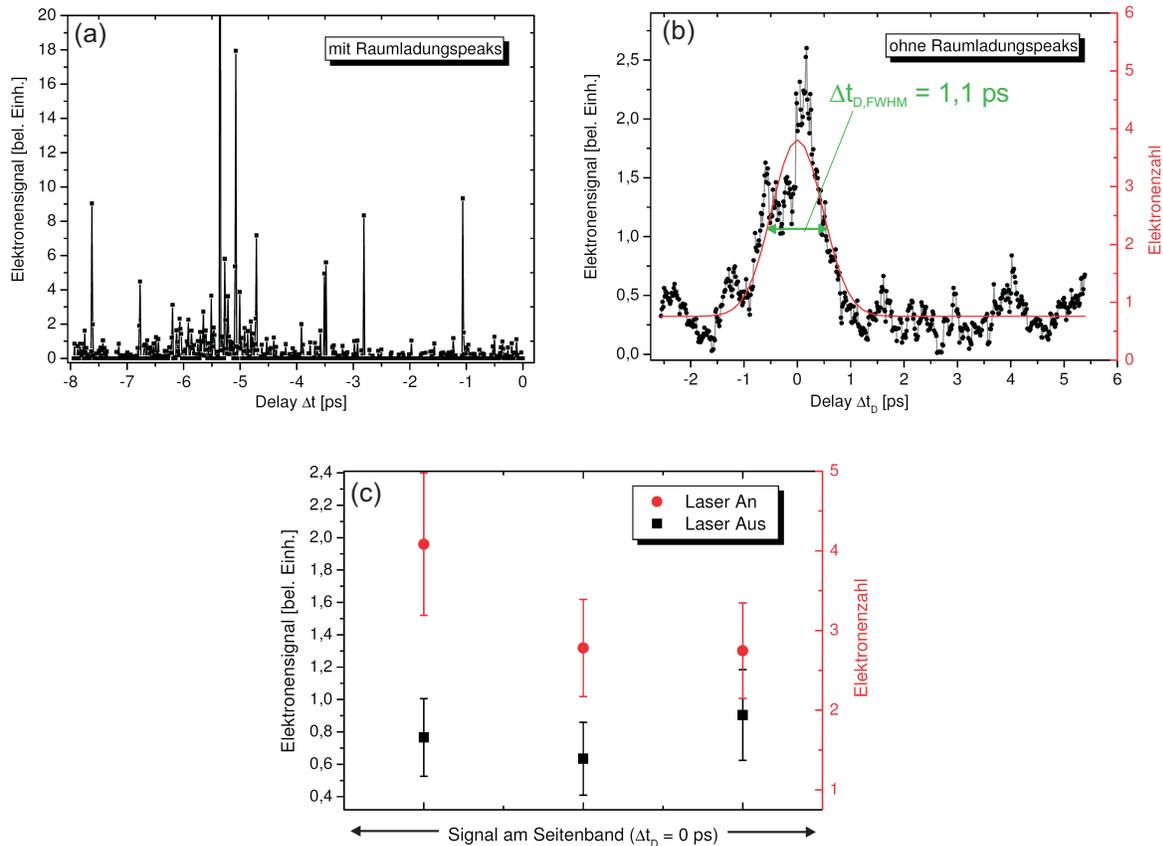


Abbildung 6.20: Kreuzkorrelationssignal erhalten bei Überlagerung der XUV Pulse von FLASH (2. Ordnung Monochromator, $\tau_{\text{xuv}} = 1,1 \text{ ps}$, $I_{\text{xuv}} \approx 1,6 \cdot 10^7 \text{ W/cm}^2$, $h\nu_{\text{FEL}} \approx 92 \text{ eV}$) und der NIR Pulse (Rundfokus, $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$) bei Neon als Targetgas ($p_{\text{Ne}} = 4,0 \cdot 10^{-5} \text{ mbar}$). Die Messungen werden durchgeführt mit $n_{\text{mikro}} = 1$ und $\nu_{\text{makro}} = 5 \text{ Hz}$ bei $U_{\text{ret,opt}}$ und mit 1 mm Winkelblende in der E-Optik. (a) Delayscan. Jeder Messpunkt wird durch einen Makropuls erzeugt. Einzelne Messpunkte hoher Intensität aufgrund einzelner intensiver XUV Pulse sind zu sehen. Man befindet sich offensichtlich an der Schwelle der Intensität I_{xuv} , oberhalb welcher Coulomb-Wechselwirkungen bedeutend werden. (b) Delayscan nach Entfernen der hohen Signalpeaks und Normierung auf die XUV Intensität. Der Gaußfit (rot) hat eine Halbwertsbreite von $\Delta t_{D,FWHM} \sim 1,1 \text{ ps}$. (c) Vergleich der Signalintensitäten mit und ohne NIR Pulse bei festem Delay $\Delta t_D = 0 \text{ ps}$. Eine NIR induzierte Signalerhöhung ist zu beobachten. Die Messwerte ergeben sich aus einer Mittelung über 200 Makropulse. Die Fehlerbalken geben die ermittelten Standardabweichungen an.

Ein weiterer Beweis, dass das nachgewiesene Signal das gesuchte Kreuzkorrelationssignal ist, erfolgt durch Aufnahme von Retardierungskurven mit und ohne NIR Pulse. Abbildung 6.21 (a) zeigt eine Retardierungskurve erzeugt allein durch die XUV Strahlung von FLASH (schwarz) und bei zusätzlicher Einstrahlung der NIR Pulse (rot) bei festem Delay $\Delta t_D = 0$ ps. Es ist für die Messungen mit NIR Pulsen eine deutliche Signalerhöhung zu verzeichnen. Eine Blob Analyse offenbart, dass das Seitenbandsignal aus 2 Photoelektronen gebildet wird. Das ist der gleiche Absolutwert wie bei den Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung im Einzelschussbetrieb [Abbildung 6.15]. Die absolute Größe des Seitenbandsignals konnte also trotz der Erhöhung von I_{XUV} und $h\nu_{\text{XUV}}$ nicht erhöht werden.

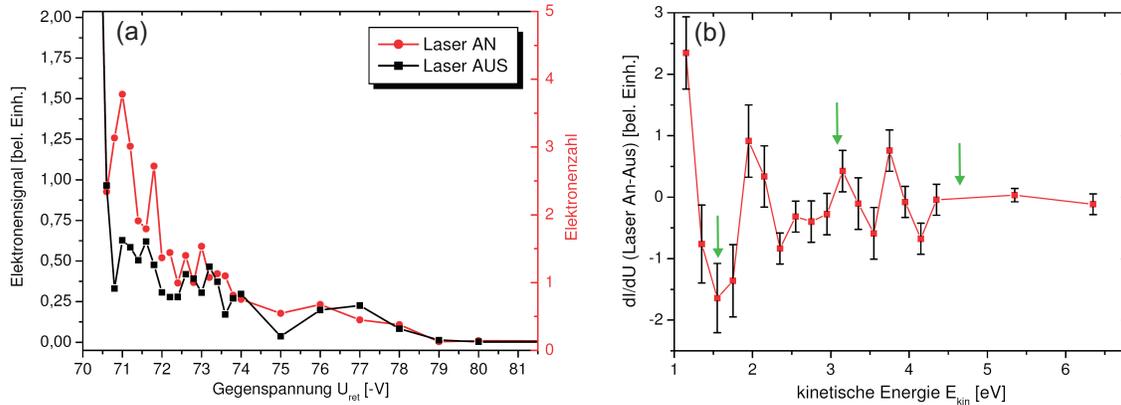


Abbildung 6.21: (a) Retardierungskurve bei Neon als Targetgas ($p_{\text{Ne}} = 4,0 \cdot 10^{-5}$ mbar) erzeugt allein durch die XUV Pulse von FLASH (2. Ordnung Monochromator, $\tau_{\text{XUV}} = 1,1$ ps, $I_{\text{XUV}} \approx 1,6 \cdot 10^7$ W/cm², $h\nu_{\text{FEL}} \approx 92$ eV) (schwarz) und bei zusätzlicher Einstrahlung der NIR Pulse (Rundfokus, $I_{\text{nir}} \approx 1,9 \cdot 10^{13}$ W/cm²) (rot) beim festen Delay $\Delta t_D = 0$ ps im Einzelschussbetrieb ($n_{\text{mikro}} = 1$) mit 1 mm Winkelblende. Man sieht eine NIR induzierte Signalerhöhung. (b) Differenz der beiden Retardierungskurven aus (a) und anschließende Differentiation. Der Nullpunkt wird in das Maximum der 2p Photolinie gelegt. Die erwartete Lage der ersten drei Seitenbänder ist mit grünen Pfeilen gekennzeichnet.

Über die Ableitung des Differenzsignals der Retardierungskurven mit und ohne NIR Pulse kann das Photoelektronenspektrum bestimmt werden. Dies ist in Abbildung 6.21 (b) zu sehen, wo der Nullpunkt der Energieskala in das Maximum der Photolinie gelegt ist. Bei Vielfachen der Photonenenergie $h\nu_{\text{nir}} = 1,55$ eV sollten die Maxima liegen [Gleichung (3.29)]. Für die ersten drei Seitenbänder sind diese Positionen durch Pfeile gemacht. Während das erste Seitenband gut zu erkennen ist, konnten das zweite und dritte Seitenband nicht eindeutig nachgewiesen werden.

6.5.4 Abschätzung der Effizienz der Seitenbänderzeugung

Aus der Blob Analyse lässt sich durch Extrapolation abschätzen, dass für $|U_{\text{ret}}| \leq 69$ V ~ 50 Elektronen auf die MCP fallen. Damit besitzt das Seitenbandsignal eine relative

Intensität von ~ 4 % des Signals der Hauptphotolinie. Dieser Wert ist identisch mit der relativen Seitenbandintensität für Krypton bei den Messungen mit der unfokussierten XUV Strahlung mit $n_{\text{mikro}}=30$ [Kapitel 6.3.3]. Ein wichtiger Unterschied dabei ist, dass bei den Messungen in der 2. Ordnung des Monochromators an der PG2 die 1 mm Winkelblende benutzt werden konnte und bei den Messungen an der BL3 ohne Winkelblende gearbeitet werden musste.

6.5.5 Abschätzung der absoluten Zahl der Elektronen im Wechselwirkungsvolumen

Details zu den Annahmen, die dieser Abschätzung zugrunde liegen, können Kapitel 6.3.4 entnommen werden. Für $h\nu_{\text{XUV}} \approx 92$ eV folgt $E_{\text{kin}} = h\nu_{\text{XUV}} - \text{IP}_1(\text{Neon}) \sim 70$ eV. Für die 2p Schale von Neon beträgt der Asymmetrieparameter bei dieser Photonenenergie $\beta \approx 1,4$ [Abbildung 9.1], und es ergibt sich $E_{\beta} \sim 9$ %. Es gelangen also um einen Faktor 1,2 mehr Elektronen in die E-Optik als bei isotroper Verteilung zu erwarten wäre. Bei der XUV Intensität von $I_{\text{XUV}} \approx 1,6 \cdot 10^7$ W/cm² sollten nicht-lineare Effekte keine Rolle spielen. Wegen $\sigma_{\text{Ne},2p}^{(1)}(92\text{eV}) \approx 10 \cdot \sigma_{\text{Ne},2s}^{(1)}(92\text{eV})$ ist aber die Emission von Photoelektronen aus dem 2s Zustand des Neons ($E_{\text{bind},2s} = 48,5$ eV) nicht zu vernachlässigen. Da für diese Elektronen $E_{\text{kin},0} \leq |U_{\text{ret}}|$ gilt, können sie nicht detektiert werden. Folglich sollten in der Wechselwirkungszone 10 % mehr Elektronen erzeugt werden als es die ermittelte Elektronenzahl auf dem Leuchtschirm suggeriert.

Mit diesen Angaben und unter Berücksichtigung aller in Kapitel 6.3.4 beschriebenen Punkte, insbesondere der geringen Transmission der E-Optik aufgrund der 1 mm Winkelblende, die Zahl der insgesamt in der Wechselwirkungszone emittierten Elektronen pro XUV Puls zu 5700 abschätzen. Dies entspricht einer Ladung von $\sim 9 \cdot 10^{-15}$ C. Mit der bestimmten geometrischen Abmessung des XUV Fokus von 160×340 μm^2 (FWHM) lässt sich unter der Annahme einer homogenen Verteilung der Elektronen und einer Kanallänge von 1 mm in Ausbreitungsrichtung der XUV Strahlung die Ladungsdichte abschätzen zu $\rho \sim 1,7 \cdot 10^{-11}$ C/cm³. Diese Ladungsdichte ist dem Wert von 10^{-11} C/cm³ sehr ähnlich, ab welchem Raumladungseffekte eine Rolle spielen sollten [Kapitel 3.4.7.2]. Obwohl diese Abschätzung mehrere grobe Annahmen macht, wie Vernachlässigung der Effekte magnetischer Streufelder, Extrapolation bei der Blob Analyse, Annahme einer homogenen Verteilung der Elektronen im Ionisationskanal und grobe Abschätzung der Verstärkung der MCP deutet das Ergebnis darauf hin, dass Effekte der Coulomb-Wechselwirkungen wichtig werden. Das steht in guter Übereinstimmung zu dem Auftreten der einzelnen, intensiven Signalpeaks im Delayscan in Abbildung 6.20 (a).

Mit der fokussierten monochromatischen XUV Strahlung sind pro Mikropuls um einen Faktor $\sim 7,5$ mehr Elektronen produziert worden als mit der unfokussierten nicht-monochromatischen XUV Strahlung. Während die Wirkungsquerschnitte $\sigma_{\text{Ne},2p}^{(1)}(92\text{eV})$ und $\sigma_{\text{Kr},4p}^{(1)}(39\text{eV})$ eine ähnliche Größe haben [vgl. Abbildung 9.2 und 9.1], ist die abgeschätzte XUV Intensität der fokussierten Strahlung um einen Faktor von ~ 20 größer

als bei der unfokussierten Strahlung. Folglich müsste die abgeschätzte Elektronenzahl im Wechselwirkungsvolumen in der 2. Ordnung des Monochromators an der PG2 um einen Faktor 2,5 größer oder an der BL3 entsprechend kleiner sein, wenn man einen linearen Zusammenhang zwischen I_{xuv} und der Zahl der ausgelösten Elektronen annimmt. Es ist aber bei den Abschätzungen deutlich die richtige Tendenz zu erkennen.

6.5.6 Die Aufnahme eines orts aufgelösten Signals

Zur Bestimmung der Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH relativ zu den NIR Pulsen ist ein orts aufgelöstes Kreuzkorrelationssignal notwendige Voraussetzung. Im vorliegenden Fall ist dies aufgrund der langen Pulsdauer τ_{xuv} in der 2. Ordnung des Monochromators a priori nicht möglich.

6.6 Zusammenfassung der Messergebnisse und Ausblick

Mit dem XUV-NIR Kreuzkorrelator wurde laserunterstützte Photoionisation am FLASH auch im Einzelschussbetrieb ($n_{\text{mikro}} = 1$) nachgewiesen. Es konnte jedoch keine Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH von Schuss zu Schuss durchgeführt werden, da die Intensität des Seitenbandsignals für eine aussagekräftige Abbildung nicht ausreicht. Bei Pulsmittelung mit $n_{\text{mikro}} = 30$ fehlt ein Faktor ~ 5 in der Intensität des Seitenbandes, im Einzelschussbetrieb ist dieser Faktor entsprechend größer. Mit einem NIR Rundfokus konnte gegenüber einem Linienfokus und der damit verbundenen Erhöhung der NIR Intensität um einen Faktor ~ 6 die Effizienz der Seitenbänderzeugung um etwa eine Größenordnung gesteigert werden. Durch Kreuzkorrelationsmessungen mit dem Rundfokus ist eine obere Grenze für den zeitlichen Jitter von FLASH zu ~ 750 fs (FWHM) bestimmt worden. Eine Vergrößerung des Seitenbandsignals durch Erhöhung von I_{xuv} ist nicht gelungen, da für $I_{\text{xuv}} > \sim 2 \cdot 10^7$ W/cm² Effekte von Raumladungen die Photolinien verbreitern und die Trajektorien der Photoelektronen verschieben. Die maximal erreichte relative Intensität des Seitenbandsignals bezogen auf die Hauptphotolinie war 4 %. Dieser Wert beträgt nur einen Bruchteil der relativen Intensität, wie sie in Kreuzkorrelationsexperimenten mit kollinearere Geometrie beobachtet wurde [209]. Das liegt daran, dass in der hier verwendeten senkrechten Geometrie das Seitenbandsignal nur aus einem Bruchteil der gesamten Wechselwirkungszone stammt.

Bei den Experimenten mit Rundfokus wurde die damals maximal mögliche Intensität I_{nir} genutzt. Inzwischen gibt es ein neues NIR Lasersystem am FLASH (Modell Hydra-25 F, *Coherent*) [217]. Damit kann die Energie der NIR Pulse bei gleicher Pulsdauer τ_{nir} um etwa drei Größenordnungen gesteigert werden. Das Verstärkersystem ist allerdings auf eine Repetitionsrate von 10 Hz beschränkt, so dass nur Experimente mit $n_{\text{mikro}}=1$ möglich sind. Erste Kreuzkorrelationsmessungen am FLASH mit Hilfe dieser verstärkten Pulse zeigen für Intensitäten $I_{\text{nir}} \geq 2 \cdot 10^{14}$ W/cm² eine deutliche Erhöhung des Seitenbandsignals. Es werden so viele Photoelektronen in die Seitenbänder transferiert, dass sogar das Hauptliniensignal von Xenon (bei $\lambda_{\text{xuv}} = 13,7$ nm) reduziert wird. Außerdem sind hohe Ordnungen der Seitenbänder ($n_s > 10$) beobachtet worden [218].

Bei den aktuellen Experimenten mit dem XUV-NIR Kreuzkorrelator konnte durch Erhöhung von I_{nir} um einen Faktor 6 die relative Seitenbandintensität um eine Größenordnung gesteigert werden. Es ist daher zu erwarten, dass mit den intensiveren NIR Pulsen die Effizienz der Seitenbänderzeugung so gesteigert werden kann, dass auch im Einzelschussbetrieb eine aussagekräftige Abbildung möglich ist. Damit wäre die Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH von Schuss zu Schuss am Messplatz möglich.

7 Kreuzkorrelation durch laserinduzierte Reflektivitätsänderung an HL-Oberflächen

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurde ein drittes Kreuzkorrelationsexperiment zur Bestimmung der Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH durchgeführt, welches auf der XUV-induzierten Änderung der optischen Reflektivität beruht. Die physikalische Messgröße bei dieser Methode ist die Änderung $\Delta R/R$ der Reflektivität für Laserpulse an einem GaAs Kristall, wenn der XUV Puls von FLASH den Kristall unmittelbar vorher trifft. Dieses Schema unterscheidet sich insbesondere hinsichtlich des Wechselwirkungsmediums von den beiden anderen im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten Kreuzkorrelationsmethoden, da die Wechselwirkung auf einer Halbleiteroberfläche statt in einem Edelgas stattfindet.

Das Verhalten der Reflektivität für Laserstrahlung bei zeitlich verzögertem Einstrahlen eines XUV Pulses ist in Kapitel 3.3.4 diskutiert worden. Der experimentelle Aufbau des Experiments wurde in Kapitel 4.8 beschrieben. Wie mit diesem Aufbau ein Kreuzkorrelationssignal zur Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse aufgenommen werden kann, wird in Kapitel 7.1 erläutert. Daraufhin werden in Kapitel 7.2 die Kreuzkorrelationsmessungen präsentiert und interpretiert. Sämtliche Messergebnisse stammen von einer Strahlzeit im Januar/Februar 2007 an der fokussierten Beamline PG2 am FLASH.

7.1 Das Prinzip einer Kreuzkorrelationsmessung

Durch einen ultrakurzen Pumpuls können die dielektrischen Eigenschaften eines Halbleiters verändert werden. Wird diese Veränderung durch Reflektivitätsmessung mit einem um Δt verzögert eingestrahltten Probepuls abgefragt, erhält man ein zeitabhängiges Kreuzkorrelationssignal. Ist der Pumpuls zeitlich charakterisiert, so kann aus diesem Signal die Pulsdauer des reflektierten Probepulses extrahiert werden. Mit solch einem Schema lässt sich die Pulsdauer schwacher NIR und FIR Pulse bestimmen [219]. Das hier vorgestellte Kreuzkorrelationsexperiment ist vom Aufbau ähnlich wie das in [219] beschriebene Schema. Es dient der Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH relativ zu den Laserpulsen des zeitlich zu FLASH synchronisierten Ti:Sa Lasersystems. Das Wechselwirkungsmedium ist ein GaAs Kristall. Das Verhalten der XUV induzierten Reflektivitätsänderung $\Delta R/R$ als Funktion von Δt für 400nm/800nm Strahlung kann Abbildung 3.24 entnommen werden.

Umrechnung von Orts- in Zeitkoordinate

Abbildung 7.1 (a) zeigt schematisch das Prinzip des Experiments und die benutzte Geometrie. XUV und NIR/optischer Puls treffen auf die Oberfläche des GaAs Kristalls, der unter $\phi = 22,5^\circ$ verkippt zur x-Achse steht. Der Punkt örtlichen und zeitlichen Überlapps der beiden Pulse auf dem Substrat, in dessen Nähe die Änderung der Reflektivität für die Laserpulse auftritt, ist kenntlich gemacht. Punkte links davon auf der GaAs Oberfläche werden zuerst vom XUV Puls getroffen und die Reflektivität ist reduziert [Abbildung 3.24]. Punkte rechts von diesem Überlappunkt werden zuerst vom Laserpuls getroffen und die unbeeinflusste Reflektivität liegt vor.

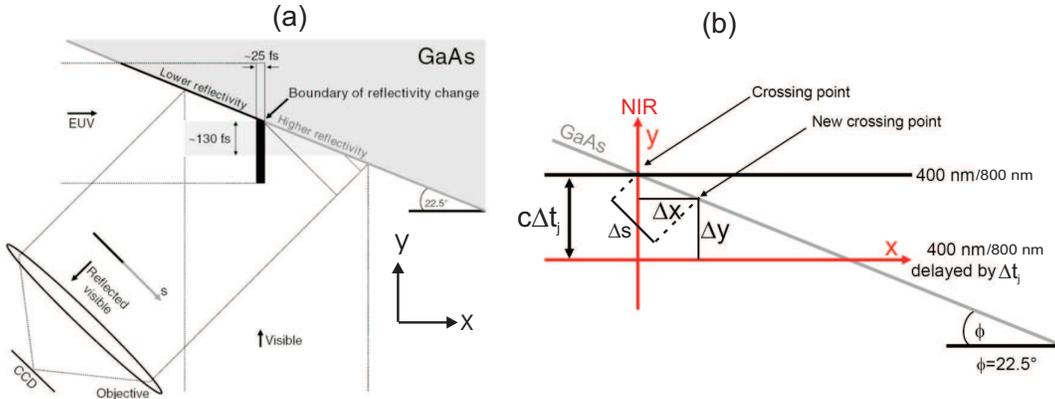


Abbildung 7.1: (a) Schematische Darstellung der Geometrie. Der optische/NIR Puls wird an einer GaAs Oberfläche reflektiert und in eine Kamera gelenkt. Der absorbierte XUV Puls von FLASH ändert die Reflektivität. Der Übergang von hoher zu geringer Reflektivität findet in der Nähe des örtlichen und zeitlichen Überlapps statt. Aus der Lage dieses Punktes entlang der Ortskoordinate s auf der Kamera lässt sich die relative Ankunftszeit der XUV Pulse relativ zu den Laserpuls extrahieren (aus [220]). (b) Skizze zur Umrechnung der Ortskoordinate s in eine Zeitkoordinate.

Tritt beim nächsten XUV Puls von FLASH aufgrund des zeitlichen Jitters eine relative Ankunftszeitdifferenz von Δt_j relativ zum NIR Puls auf, so verschiebt sich der Punkt der Reflektivitätsänderung entlang der GaAs Oberfläche. Die Koordinaten x und y auf der GaAs Oberfläche sind durch folgende Beziehung verknüpft [Abbildung 7.1 (b)]:

$$y = c\Delta t_j - x \cdot \tan \phi. \quad (7.1)$$

Offensichtlich gilt $\Delta x = \Delta y = \Delta s$, wobei Δs die Größe der örtlichen Verschiebung des Punktes der Reflektivitätsänderung auf der Kamera ist. Aus dieser Gleichheit folgt:

$$\Delta s = \frac{c\Delta t_j}{1 + \tan \phi}. \quad (7.2)$$

Gleichung (7.2) besagt, dass sich aus der gegenüber einem beliebig gewählten Referenzpunkt gemessenen örtlichen Verschiebung des Punktes der Reflektivitätsänderung um Δs

die Ankunftszeitdifferenz Δt_j bestimmen lässt.

Zeitfenster und Eichung der Kamera

Bei einer vollständigen Ausleuchtung des GaAs Kristalls durch die Laserstrahlung ist die Größe des Überlappgebiets auf dem Kristall durch die geometrische Höhe h_{xuv} der XUV Pulse von FLASH gegeben. Ist s_w die Projektion des Überlappgebiets auf die Kamera, so gilt nach Gleichung (7.2):

$$s_w = \frac{h_{\text{xuv}}}{\tan \phi} = \frac{ct_w}{(1 + \tan \phi)}. \quad (7.3)$$

Für das gesuchte Zeitfenster t_w gilt dann:

$$t_w = \frac{h_{\text{xuv}}(1 + \tan \phi)}{c \cdot \tan \phi}. \quad (7.4)$$

Von Bedeutung ist auch die Eichung der aufnehmenden Kamera 3. Da sich der GaAs Kristall ganz im Bildfeld der Kamera befindet [Abbildung 4.20 (b)] und seine Abmessungen, die Chipgröße und die Größe der Pixel der Kamera sowie die Abbildungseigenschaften des benutzten Makroobjektivs [Kapitel 4.9.1] bekannt sind, kann die Kamera unter Beachtung der Projektion geeicht werden zu $\sim 26,5 \text{ fs/Pixel}$.

7.2 Kreuzkorrelationsmessungen mit XUV induzierter Reflektivitätsänderung

Sämtliche nachfolgenden Kreuzkorrelationsmessungen wurden bei folgenden FLASH Parametern durchgeführt:

- $h\nu_{\text{xuv}} \approx 45 \text{ eV}$, 0. Ordnung an der PG2.
- Fokusgröße $70 \times 200 \mu\text{m}^2$ (FWHM), bestimmt über XUV induzierte Fluoreszenz [Abbildung 4.29]. Aus der geometrischen Höhe h_{xuv} ergibt sich ein Zeitfenster von $t_w \approx 2,3 \text{ ps}$ [Gleichung (7.4)].
- Pulsenergie mit Gasabsorber eingestellt auf $E_{\text{xuv}} \approx 10 \mu\text{J}$. Mit der Transmission der Beamline von ca. 47 % bei 45 eV ist die Pulsenergie auf der GaAs Oberfläche $\sim 4,7 \mu\text{J}$, was einem Fluss von $\sim 13 \text{ mJ/cm}^2$ auf der Probenoberfläche entspricht. Man beobachtet für XUV Flüsse $\geq 20 \text{ mJ/cm}^2$ eine dauerhafte lokale Zerstörung der Probe. Da man sich hierbei noch deutlich unterhalb der nominellen Zerstörschwelle für GaAs von 50 mJ/cm^2 befindet [119], wird diese Zerstörung den vereinzelt auftretenden intensiven XUV Pulsen zugeschrieben.

- Unter Annahme eines gaußförmigen zeitlichen Profils und $\tau_{\text{xuv}} = 25$ fs (FWHM) wird die Intensität zu $I_{\text{xuv}} \approx 5 \cdot 10^{11}$ W/cm² abgeschätzt.
- $n_{\text{mikro}} = 1$, $\nu_{\text{makro}} = 5$ Hz.

Als Probepulse zur Detektion der XUV induzierten Reflektivitätsänderung werden die NIR Pulse (800 nm) des zeitlich zu FLASH synchronisierten Ti:Sa Lasersystems benutzt. Alternativ wird nach Frequenzverdopplung die 2. Harmonische dieser Strahlung bei 400 nm eingesetzt.

Kreuzkorrelationsmessungen mit 400 nm Strahlung

Abbildung 7.2 zeigt eine typische Aufnahme des reflektierten Lichts bei $\lambda_{\text{opt}} = 400$ nm an der GaAs Oberfläche ohne Einstrahlung der XUV Pulse. Die Aufnahme der Bilder bei 400 nm erfolgte statt mit der The Imaging Source Kamera (Kamera 3) mit der Q Imaging Kamera (Kamera 1). Letztgenannte kann für jeden Makropuls mit $\nu_{\text{makro}} = 5$ Hz Bilder mit voller Auflösung aufnehmen und mit dem zugehörigen Zeitstempel abspeichern.

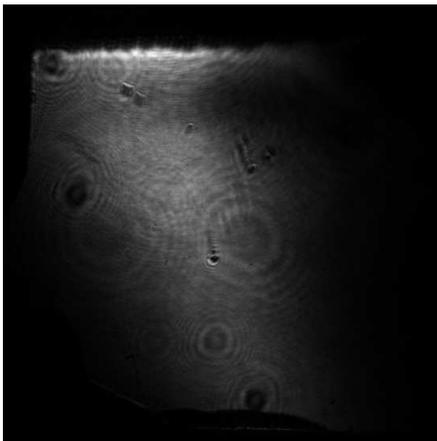


Abbildung 7.2: An dem GaAs Kristall reflektierte Strahlung ($\lambda_{\text{opt}} = 400$ nm), aufgenommen vor der Bildbearbeitung mit der Q Imaging Kamera (Kamera 1). Deutlich zu sehen sind Interferenzringe und die inhomogene Beleuchtung des Kristalls.

Das in Abbildung 7.2 gezeigte Bild stellt den Untergrund für nachfolgenden Kreuzkorrelationsmessungen dar. Im Idealfall zeigt ein Signaltbild mit XUV Puls die gleiche Abhängigkeit von den Interferenzringen und der inhomogenen Beleuchtung des Kristalls. Auf beide Bilder wird dann eine Low Pass Filterung angewandt und die resultierenden Bilder werden voneinander subtrahiert. Das dann verbleibende Signal ist das gesuchte Kreuzkorrelationssignal.

Abbildung 7.3 (a) zeigt die Aufnahme der reflektierten 400 nm Strahlung an der GaAs Oberfläche bei zusätzlichem Einstrahlen der XUV Pulses von FLASH in einem ROI. Dabei sind die beschriebenen Bildkorrekturen vorgenommen worden. Die Ortskoordinate kann in eine Zeitkoordinate umgerechnet werden [Gleichung (7.2)], wobei der Nullpunkt dieser Zeitskala willkürlich an das obere Ende des Bildes gesetzt worden ist. Entlang der vertikalen Achse ist eine XUV induzierte Änderung der Reflektivität zu beobachten [vgl. Abbildung 3.24] Der Übergang von geringer zu höherer Reflektivität ist bei $\sim 1,6$ ps zu sehen. Hier liegt örtlicher und zeitlicher Überlapp vor. Entsprechend der Geometrie [Abbildung

7.1] werden Regionen auf dem GaAs Kristall oberhalb dieses Punktes zuerst vom XUV Puls getroffen. Dagegen werden Regionen unterhalb dieses Punktes zuerst vom optischen Puls getroffen, so dass hier keine Änderung der Reflektivität auftritt. Zur quantitativen Analyse wird ein Intensitätsplot entlang der vertikalen Achse vorgenommen; dieser ist in Abbildung 7.3 (b) zu sehen. Die ansteigende Flanke besitzt eine Breite von ~ 130 fs, was der Pulsdauer der reflektierten optischen Pulse entspricht.

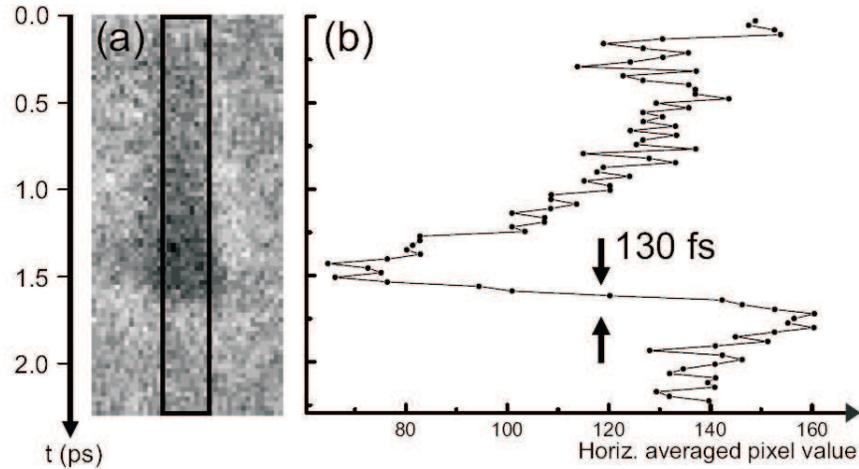


Abbildung 7.3: (a) Aufnahme der am GaAs Kristall reflektierten 400 nm Strahlung (Einzelschuss). Entlang des örtlichen Überlappgebiets von XUV und optischem Puls ist eine ortsabhängige Änderung der optischen Reflektivität zu sehen. Das Gebiet, in welchem der XUV Puls den GaAs Kristall zuerst trifft, erscheint dunkler. Der Nullpunkt der ermittelten Zeitachse wird willkürlich auf das obere Ende des Bildes gesetzt. (b) Intensitätsplot entlang der vertikalen Achse des Bildes aus (a). Am Ort des zeitlichen Überlapps tritt ein steiler Anstieg der Reflektivität auf. Die Breite der zugehörigen Flanke entspricht der Pulsdauer des optischen Pulses. Der Wendepunkt der Flanke wird als "Zeitmarker" benutzt (aus [220]).

Durch einen Gaußfit kann der Wendepunkt der Flanke bestimmt werden; dieser Punkt dient dann als "Zeitmarker". Für viele hintereinander folgende Schüsse von FLASH muss dieser Wendepunkt jeweils bestimmt werden. Eine örtliche Verschiebung Δs dieses Wendepunkts entlang der Vertikalen resultiert aus einer relativen Ankunftszeitdifferenz beider Pulse an der Probe aufgrund des zeitlichen Jitters. Mit dieser Methode kann daher die relative Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH von Schuss zu Schuss am Messplatz gemessen werden.

Die Zeitauflösung wird vorgegeben durch die Genauigkeit der Bestimmung des Wendepunkts. Aus dem Signal-zu-Rausch Verhältnis kann diese abgeschätzt werden zu ~ 40 fs (RMS). Eine Messreihe über 5 Minuten, bei welcher die Ankunftszeit der FLASH Pulse relativ zu den optischen Pulsen für viele hintereinander folgende Schüsse von FLASH einzeln bestimmt worden ist, zeigt Abbildung 7.4 (a).

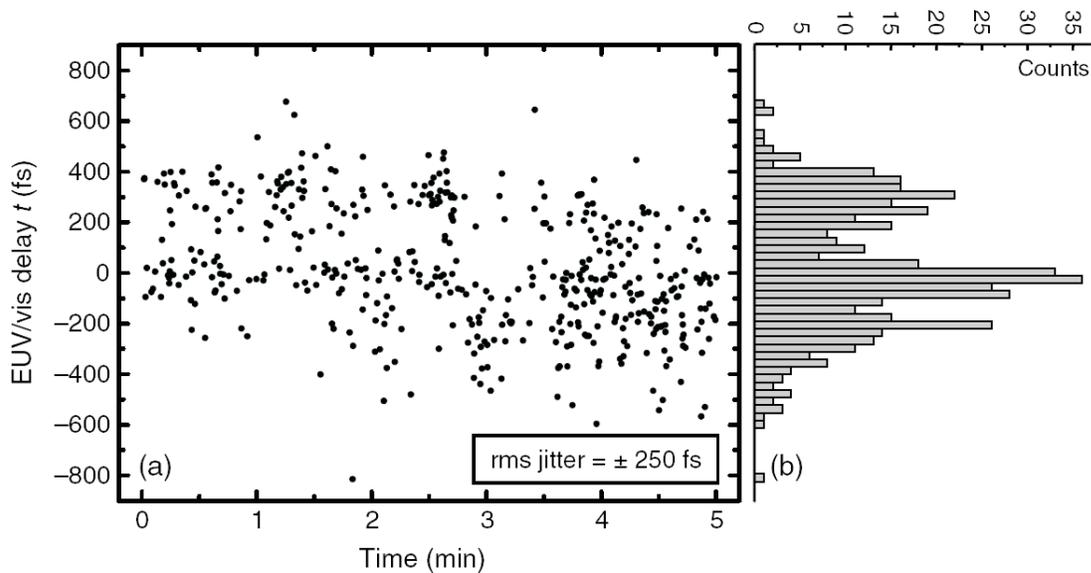


Abbildung 7.4: (a) Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH im Vergleich zu den optischen Pulsen ($\lambda_{\text{opt}}=400$ nm) von Schuss zu Schuss. Der Nullpunkt der Zeitachse ist willkürlich gewählt worden. Der RMS-Wert der Ankunftszeitfluktuationen beträgt ± 250 fs. (b) Messergebnisse aus (a) als Histogramm (aus [220]).

Es traten Ankunftszeitunterschiede bis zu 1,5 ps auf, der aus den Daten ermittelte RMS-Wert beträgt ± 250 fs. Dieser Wert ist in der gleichen Größenordnung wie der RMS-Wert des Jitters ermittelt über das Timing Electro-Optical Sampling, welcher über eine Messzeit von 1 h zu ± 400 fs bestimmt worden ist [Abbildung 3.20 (b)]. Abbildung 7.4 (b) zeigt ein Histogramm der gemessenen relativen Ankunftszeiten der beiden Pulse. Es zeigt sich, dass Ankunftszeitdifferenzen von 0 fs und ~ 300 fs häufiger auftreten als andere Werte. Diese "Quantisierung" ist in der Vergangenheit auch bei den TEO Messungen beobachtet worden, ihre Herkunft ist jedoch bislang unbekannt.

Parallel zu diesen Messungen ist die relative Ankunftszeit der Elektronenpaketen bezogen auf die Laserpulse von Schuss zu Schuss mit TEO gemessen worden. Abbildung 7.5 zeigt für eine Messzeit von 1 Minute die dabei ermittelten Werte aufgetragen gegen die relativen Ankunftszeiten gemessen am Experimentierplatz über die XUV induzierte Änderung der optischen Reflektivität. Die über beide Methoden gemessenen Werte zeigen eine eindeutige Korrelation, die Abweichung der Ergebnisse beider Methoden liegt bei ~ 160 fs (RMS). Dieser Wert stellt eine obere Grenze für den Beitrag der Strahlerzeugung im Undulator beim SASE Prozess sowie der Weglängenfluktuationen in der Beamline zum zeitlichen Jitter [Jitterquellen 2 und 3 in Abbildung 2.5] dar, da diese Beiträge bei den Messungen am Experimentierplatz im Gegensatz zum TEO Experiment erfasst werden.

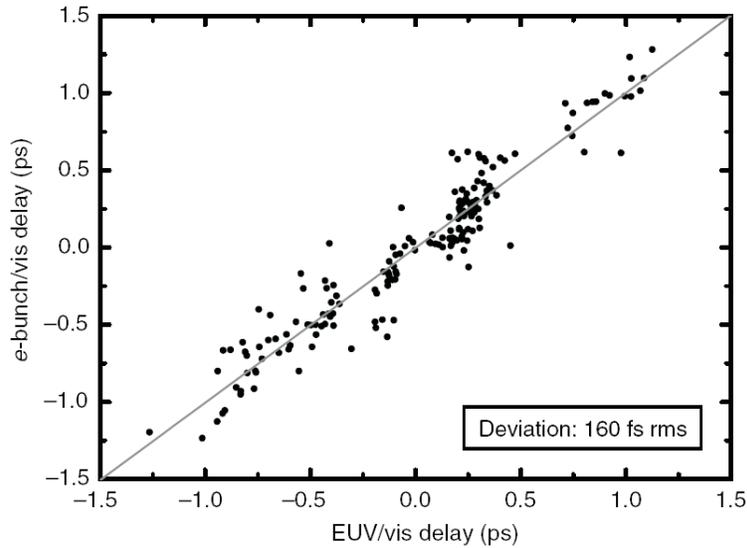


Abbildung 7.5: Relative Ankunftszeit der Elektronenpakete relativ zu den Laserpulsen gemessen von Schuss zu Schuss mit TEO aufgetragen gegen die relative Ankunftszeit der FLASH Pulse am Messplatz gemessen von Schuss zu Schuss mit der XUV induzierten Änderung der optischen Reflektivität. Die Messergebnisse beider Methoden zeigen eine eindeutige Korrelation, die Abweichung liegt bei ~ 160 fs (RMS)(aus [220]) .

Eine weitere Konsistenzprüfung kann mit einem Delayscan erfolgen, indem die Ankunftszeit der frequenzverdoppelten optischen Pulse an der GaAs Oberfläche variiert wird. Solch eine Messreihe ist in Abbildung 7.6 zu sehen. Aufgrund des späteren Eintreffens der optischen Pulse wandert der Bereich der Reflektivitätsänderung vertikal nach unten und der dunkle Schweif wird länger. Man sieht aber auch, dass diese Abwärtsbewegung nicht kontinuierlich ist, sondern in manchen Fällen trotz zunehmenden Delays der Punkt der Reflektivitätsänderung "hoch springt". Das liegt an der Ankunftszeitfluktuation der FLASH Pulse von Schuss zu Schuss aufgrund des zeitlichen Jitters. Dieser Fluktuation überlagert die gewollte Variation der Ankunftszeit durch die optische Delayline. Für relative Delays $> 2,5$ ps wird die Reflektivitätsänderung auf dem GaAs Kristall nicht mehr beobachtet. Das steht in guter Übereinstimmung mit dem ermittelten Zeitfenster von $t_w = 2,3$ ps. Für die 400 nm Strahlung ist ein ausreichender Kontrast nur vorhanden, wenn der XUV Fluss über einem Wert von ~ 10 mJ/cm² liegt. Andererseits tritt für XUV Flüsse ≥ 20 mJ/cm² eine bleibende lokale Schädigung des GaAs Kristalls auf. Nur ein Bruchteil (typischerweise ≤ 50 %) der Bilder zeigt ausreichenden Kontrast zur Bestimmung der Ankunftszeit der XUV Pulse. Das ist nicht nur bedingt durch das Absinken des XUV Flusses unter den Minimalwert, sondern liegt insbesondere auch an einer zeitabhängigen Form der Interferenzringe auf dem Kristall [Abbildung 7.2], was die Bildbearbeitungsroutinen erschwert.

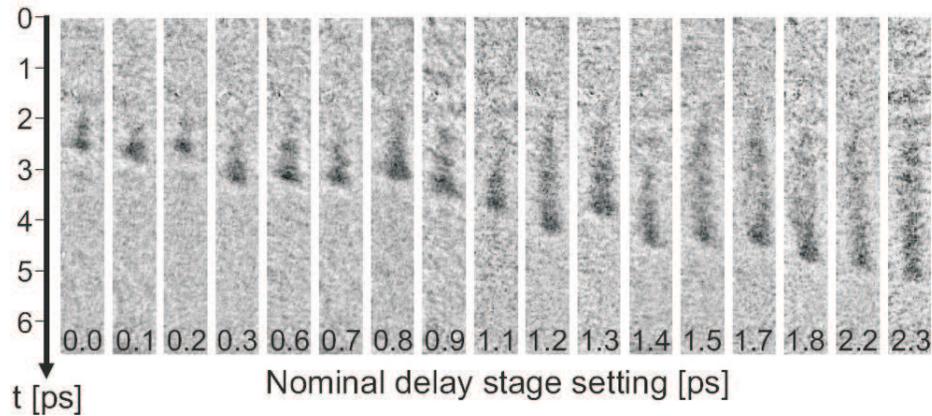


Abbildung 7.6: Einzelschussaufnahmen bei Variation der Ankunftszeit der optischen Pulse ($\lambda_{\text{opt}} = 400 \text{ nm}$) mit der optischen Delayline. Der Nullpunkt der Zeitachse ist willkürlich auf das obere Ende des Bildes gelegt worden. Am unteren Ende jedes Bildes ist jeweils die nominelle zeitliche Verschiebung eingetragen, wobei der optische Puls im Vergleich zum XUV Puls mit zunehmendem Delay immer später die Probe erreicht (aus [220]).

Kreuzkorrelationsmessungen mit 800 nm Strahlung

Die Messungen mit NIR Strahlung bei $\lambda_{\text{nir}} = 800 \text{ nm}$ sollte einen besseren Kontrast liefern, da der Effekt der Reflektivitätsänderung $\Delta R/R$ um etwa eine Größenordnung höher ist als für 400 nm Strahlung [Abbildung 3.24]. Bei dieser Wellenlänge sind die Bilder mit der The Imaging Source Kamera (Kamera 3) aufgenommen worden. Auch mit ihr ist die Aufnahme von Bildern mit einer Wiederholrate von 5 Hz möglich, jedoch konnten zu den Bildern nicht die zugehörigen Zeitstempel abgespeichert werden.

Abbildung 7.7 zeigt im Einzelschuss die Aufnahme der am GaAs reflektierten 800 nm Strahlung bei zusätzlichem Einstrahlen der XUV Pulse von FLASH in einem ROI. Der Ort der Reflektivitätsänderung ist deutlich zu erkennen. Bei Variation des Delays Δt wandert dieser Punkt aufgrund des späteren Eintreffens der NIR Pulse vertikal nach unten. Diese Bewegung ist überlagert durch die Fluktuation in der Ankunftszeit der XUV Pulse. Für große Delays ($\Delta t > 5 \text{ ps}$) ist ein heller Fleck entlang des Überlappgebietes auf dem GaAs Kristall zu sehen. Dieser stammt von der XUV induzierten Erhöhung der Reflektivität ($\Delta R/R > 0$), die dem anfänglichen Abfall der Reflektivität nachfolgt [Abbildung 3.24].

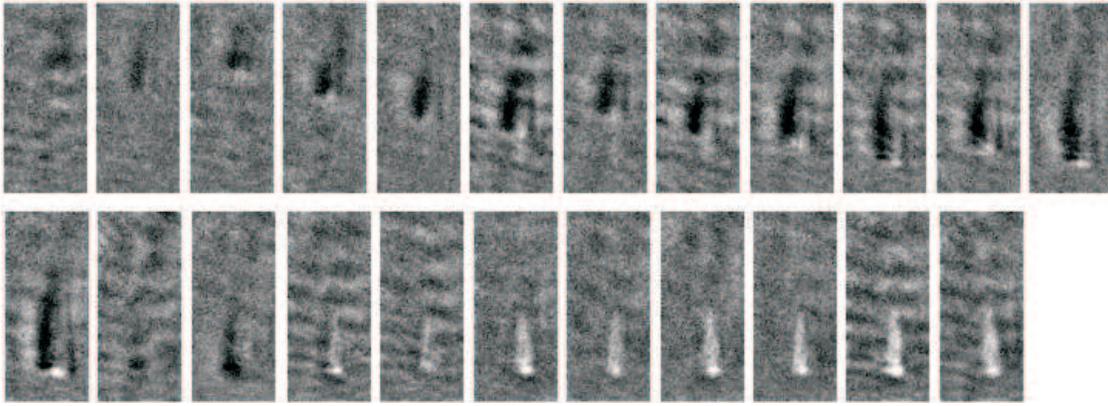


Abbildung 7.7: Einzelschussaufnahmen bei Variation der Ankunftszeit der NIR Pulse ($\lambda_{\text{nir}} = 400 \text{ nm}$) mit der optischen Delayline. Mit fortschreitender Bildnummer treffen die NIR Pulse immer später auf die Probe. In dieser Messreihe ist die Ankunftszeit über insgesamt 30 ps variiert worden. Aufgrund der fehlenden Zeitstempel ist an die Bilder keine Zeitskala gesetzt worden.

7.3 Zusammenfassung der Ergebnisse und Ausblick

Es wurden Ankunftszeitmessungen der FLASH Pulse von Schuss zu Schuss am Messplatz mit der XUV induzierten Änderung der Reflektivität eines Referenzpulses bei 400 nm vorgestellt. Über 5 Minuten ist ein RMS Wert des zeitlichen Jitters von ± 250 fs bestimmt worden. Die Zeitauflösung in dem aktuellen Aufbau ist zu ~ 40 fs (RMS) abgeschätzt worden. Parallel zu den Reflektivitätsmessungen sind TEO Messungen durchgeführt worden. Dabei wurde eine Korrelation zwischen beiden Verfahren nachgewiesen. Die Abweichungen der Messwerte von ~ 160 fs (RMS) liefern eine obere Grenze für den Beitrag des SASE Prozesses und der Beamline zum zeitlichen Jitter. Für eine detaillierte Analyse muss zukünftig parallel zu den Ankunftszeitmessungen mit der hier beschriebenen Methode und dem TEO Experiment ein Pump-Probe Experiment durchgeführt werden. Dann können die gewonnen Pump-Probe Daten mit den Ergebnissen beider Methoden sortiert und die beiden Methoden damit verglichen werden.

In Zukunft kann durch Raumfilterung die Abbildungsqualität deutlich verbessert und damit die Zahl an auswertbaren Bildern erhöht werden. Die örtliche Auflösung kann durch ein Makroobjektiv mit stärkerer Vergrößerung erhöht werden werden. Dadurch kommen mehr Messpunkte in die ansteigende Flanke, was die Bestimmung des Wendepunktes und damit die Zeitauflösung verbessert. Eine Verbesserung der Zeitauflösung ist auch durch kürzere Laserpulse zu erwarten, da die Anstiegszeit der Flanke durch die Pulsdauer gegeben ist, sofern die Methode nicht an ihre physikalische Grenze stößt. Ein Verfahren zur Verkürzung der NIR Pulse des Ti:Sa Lasersystems am DESY, welches auf Frequenzmischung und Selbstphasenmodulation beruht, ist erfolgreich getestet worden [221]. Außerdem sollte zukünftig zur Detektion eine **Zeilenkamera** verwendet werden. Solche Kameras haben Pixelfrequenzen von typischerweise ≥ 10 MHz, so dass mit ihnen Signale bei der vollen Repetitionsrate von FLASH aufgenommen werden können.

8 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit ist ein Kreuzkorrelator zur Messung der von Schuss zu Schuss auftretenden statistischen Ankunftszeitfluktuationen der XUV Pulse des Frei-Elektronen-Lasers in Hamburg (FLASH) aufgebaut worden. Zukünftig können Daten von parallel durchgeführten Pump-Probe Experimenten nach diesen Ankunftszeiten sortiert werden. Dadurch kann die Zeitauflösung der Pump-Probe Experimente deutlich gesteigert werden. Mit dem Kreuzkorrelator wurden drei voneinander unabhängige Kreuzkorrelationsexperimente durchgeführt. Während diese drei Kreuzkorrelationsschemata auf verschiedenen physikalischen Effekten beruhen, können sie alle am Messplatz beim eigentlichen Pump-Probe Experiment durchgeführt werden. Damit sind alle Jitterquellen, beruhend auf Ankunftszeitfluktuationen der beschleunigten Elektronenpakete, der statistischen Natur des SASE Prozess bei der Strahlerzeugung im Undulator und der Strahlführung in der XUV Beamline erfassbar.

Das erste Kreuzkorrelationsexperiment beruht auf der laserinduzierten Erzeugung mehrfach geladener Ionen, die Detektion geschieht dabei über ein Flugzeitspektrometer. Die Anwendbarkeit des Spektrometers zur Aufnahme von separaten XUV und NIR Flugzeitspektren ist demonstriert worden. Eine Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH ist dagegen bis jetzt nicht gelungen, da in der aktuellen Konfiguration eine Mittelung über mehrere Pulse erforderlich war und die NIR induzierte Signaländerung in den Delayscans keine eindeutige Abhängigkeit vom Delay zwischen den Pulsen zeigt. Die bisherigen Messungen deuten darauf hin, dass für eine Messung der relativen Ankunftszeit von Schuss zu Schuss insbesondere eine Verbesserung der Normierung der Spektren auf die XUV Intensität bei gleichzeitiger Vergrößerung des Kreuzkorrelationssignals erforderlich ist. In zukünftigen Messungen sollte durch die XUV Strahlung ein kurzlebiger Zustand des Edelgases resonant angeregt werden. Die Methode ist nicht-invasiv für beide Pulse und daher auch vor einem Pump-Probe Experiment positioniert werden.

Die zweite Kreuzkorrelationsmethode beruht auf der laserunterstützten Photoionisation. Dabei wird auf einem Detektor eine 2D Abbildung der Wechselwirkungszone zwischen XUV und NIR Puls über die von dort emittierten Photoelektronen mittels einer E-Optik erzeugt. Mit Hilfe eines Energiefilters wird das energetisch modulierte Seitenbandsignal vom Hintergrund separiert und aus dessen Lage kann die relative Ankunftszeit der XUV Pulse bestimmt werden. In der aktuellen Konfiguration war für einzelne Schüsse von FLASH kein ausreichender Kontrast zur Erzeugung einer aussagekräftigen Abbildung zu erzielen, so dass eine Mittelung über viele Schüsse notwendig war. Für den zeitlichen Jitter über 1200 Schüsse von FLASH mit jeweils 30 Mikropulsen ist eine Obergrenze von ~ 750 fs bestimmt worden. Die relative Seitenbandintensität beträgt ~ 4 % der Hauptphotolinie, was bedingt durch die Intensität der NIR Strahlung und der gekreuzten Geometrie des Aufbaus nicht weiter zu steigern war. Es hat sich aber in den Messungen gezeigt, dass die

Effizienz der Seitenbänderzeugung und damit auch die Absolutzahl der energetisch modulierten Seitenbandelektronen durch eine Erhöhung der NIR Intensität gesteigert werden kann. Mit einer Verstärkung der NIR Pulse um drei Größenordnungen durch Benutzung eines neuen Ti:Sa Lasersystems hat der Aufbau das Potential zur nicht-invasiven Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH von Schuss zu Schuss. Dieses Kreuzkorrelationsschema hat den Vorteil, dass es nicht an bestimmte atomare Übergänge im benutzten Edelgas gebunden ist. Die Effizienz der Seitenbänderzeugung sollte bei gleichem Wirkungsquerschnitt für Photoionisation mit zunehmender XUV Photonenenergie zunehmen, so dass der Aufbau bis in den Bereich harter Röntgenstrahlung benutzt werden kann. Jedoch ist das Experiment stark anfällig gegenüber externen magnetischen Felder und Coulomb-Wechselwirkungen der Photoelektronen untereinander, da es auf der orts aufgelösten Abbildung mit Elektronen beruht. Die Coulomb-Wechselwirkungen sind auch der Grund dafür, weshalb die Effizienz der Seitenbänderzeugung durch Erhöhung der XUV Intensität nicht verbessert werden konnte.

Die dritte im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Kreuzkorrelationsmethode basiert auf der XUV induzierten Änderung der optischen Reflektivität an einer GaAs Oberfläche. Ähnlich wie bei den Messungen unter Ausnutzung der laserunterstützten Photoionisation wird die Information über die relative Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH aus der Lage des Kreuzkorrelationssignals in einer orts aufgelösten Abbildung gewonnen. Mit diesem Verfahren ist die Messung der relativen Ankunftszeit der XUV Pulse von FLASH mit einer Genauigkeit von ~ 40 fs (RMS) von Schuss zu Schuss am Messplatz gelungen. Über eine Messzeit von 5 Minuten ist ein RMS Wert des zeitlichen Jitters von ± 250 fs bestimmt worden. Parallel dazu ist die Ankunftszeit der Elektronenpakete, die die XUV Strahlung erzeugen, relativ zu den Laserpulsen vor dem Undulator von Schuss zu Schuss mit dem TEO Experiment gemessen worden. Dabei wurde eine Korrelation zwischen beiden Verfahren nachgewiesen. Die Abweichungen der Messwerte liefern eine obere Grenze für den Beitrag des SASE Prozesses und der Beamline zum zeitlichen Jitter. Das Verfahren ist jedoch invasiv für beide Pulse und es besteht die Gefahr einer Zerstörung der Probe durch die fokussierte XUV Strahlung von FLASH. Ob die Methode für beliebige Photonenenergien bis in den Bereich harter Röntgenstrahlung einsetzbar ist, wie es die Theorie vorhersagt [117], muss in zukünftigen Experimenten verifiziert werden.

9 Anhang

9.1 Tabellen

Tabelle 9.1: Einordnung der Spektralbereiche in das elektromagnetische Spektrum.

Bezeichnung Spektralbereich	Wellenlänge λ (nm)	Photonenenergie $h\nu$ (eV)
Mittleres/Fernes Infrarot (MIR/FIR)	1400 - 10^6	$1,2 \cdot 10^{-3}$ - 0,9
Nahes Infrarot (NIR)	780 - 1400	0,9 - 1,6
Sichtbarer Bereich	400 - 780	1,6 - 3,1
Ultraviolett (UV)	200 - 400	3,1 - 6,2
Vakuum Ultraviolett (VUV)	50 - 200	6,2 - 25
Extrem Ultraviolett (XUV)	1 - 50	25 - 1240
EUV	12,4 - 20	62 - 100
Weiche Röntgenstrahlung	2,4 - 4,4	282 - 516
Harte Röntgenstrahlung	$5 \cdot 10^{-3}$ - 1	1240 - $2,5 \cdot 10^5$

Tabelle 9.2: Zusammenstellung der Strahlungseigenschaften von FLASH bei $\lambda_{FEL} = 13,7$ nm für die Fundamentale, die dritte und die fünfte Harmonische (aus [36]).

	Fundamentale	3. Harmonische	5. Harmonische
Emissionswellenlänge	13,7 nm	4,6 nm	2,75 nm
Pulsdauer	~ 10 fs	k.A.	k.A.
durchschnittliche Pulsenergie	40 μ J	$0,25 \pm 0,1$ μ J	10 ± 4 nJ
Spitzenleistung	≤ 10 GW	40 MW	2 MW
Durchschnittsleistung	20 mW	120 μ W	6 μ W
Brillanz	$(6 \pm 3) \cdot 10^{29}$	$(2 \pm 1) \cdot 10^{28}$	$(2 \pm 1) \cdot 10^{27}$
Winkeldivergenz	90 ± 10 μ rad (FWHM)	k.A.	k.A.
Kohärenzzeit	$4,2 \pm 0,5$ fs	k.A.	k.A.

9.2 Berechnung wichtiger Parameter ultrakurzer Pulse

Bandbreiteprodukt

Ist ein kurzer Puls bandbreitebegrenzt, so ist die Pulsdauer $\Delta\tau$ mit der Bandbreite $\Delta\nu$ über das **Bandbreiteprodukt** verknüpft:

$$\Delta\tau \cdot \Delta\nu = \kappa. \quad (9.1)$$

Dabei ist κ eine Konstante, die von der Form des Pulses abhängt.

Mittlere Ausgangsleistung

$$P_{\text{mit}} = E_{\text{puls}} \cdot \nu_{\text{puls}}, \quad (9.2)$$

mit E_{puls} = Energie jedes individuellen Pulses, ν_{puls} = Repetitionsrate der Pulse.

Maximale Ausgangsleistung und Intensität

$$P_{\text{max}} \approx a \cdot \frac{E_{\text{puls}}}{\tau}, \quad (9.3)$$

mit τ = Pulsdauer jedes individuellen Pulses, a = Konstante, die von der Pulsform abhängt.

Die Pulsform kann zumeist beschrieben werden durch eine Gaußfunktion $y(t) = y_0 \exp[-4\ln 2(t/\tau)^2]$, oder durch eine Sekans Hyperbolikus - Funktion $y(t) = y_0 \operatorname{sech}^2(t/\tau')$, wobei $\operatorname{sech}(x) = 2/e^x + e^{-x}$. Die Größen τ und τ' sind die Halbwertsbreiten der beiden zeitlichen Profile.

Für die Konstante a in Gleichung (9.3) gilt: $a = 0,94$ (Gauß Puls) und $a = 0,88$ (Sekans Hyperbolikus Puls).

Intensität:

$$I = \langle |\vec{S}| \rangle_t = P_{\text{max}}/F_{\text{eff}} \propto |\vec{E}|^2, \quad (9.4)$$

wobei $\langle |\vec{S}| \rangle_t$ = zeitliche Mittelung über den Poynting-Vektor, F_{eff} = effektive Querschnittsfläche der Strahlung, \vec{E} = elektrischer Feldvektor der Strahlung.

Zahl der Photonen pro Puls

$$N_{\text{ph}} = E_{\text{puls}}/h\nu. \quad (9.5)$$

Der quadratische Mittelwert

Für Messreihen wird häufig der quadratische Mittelwert oder *Root Mean Square* (RMS) angegeben, um die Größe von Abweichungen von einem Mittelwert quantitativ zu beschreiben.

Für n Messwerte $\{x_1, x_2, \dots, x_n\}$ berechnet sich dieser über die folgende Formel:

$$x_{\text{rms}} = \sqrt{\frac{1}{n} \sum_{i=1}^n x_i^2}. \quad (9.6)$$

9.3 Physikalische Eigenschaften ausgewählter Edelgase

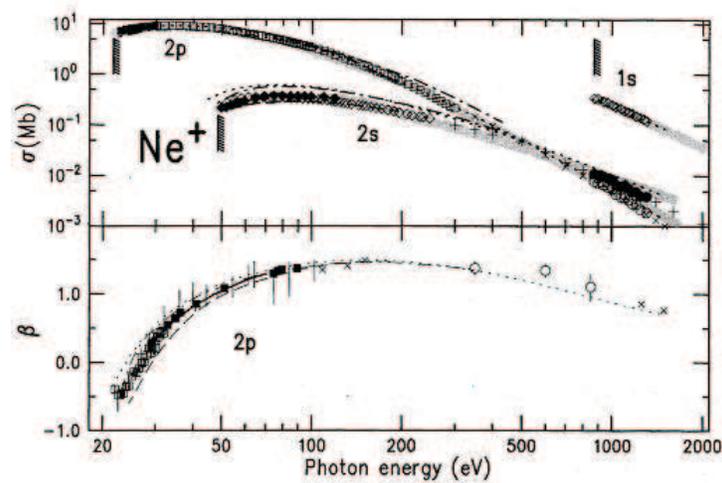


Abbildung 9.1: Partielle Wirkungsquerschnitt σ und Asymmetrieparameter β für die $1s, 2s$ und $2p$ Hauptlinien beim Neon als Funktion der einfallenden Photonenenergie (aus [123]). Die ersten Ionisationspotentiale sind: $IP_1 = 21,56 \text{ eV}$ [222]; $IP_2 = 40,96 \text{ eV}$ [223]; $IP_3 = 63,45 \text{ eV}$.

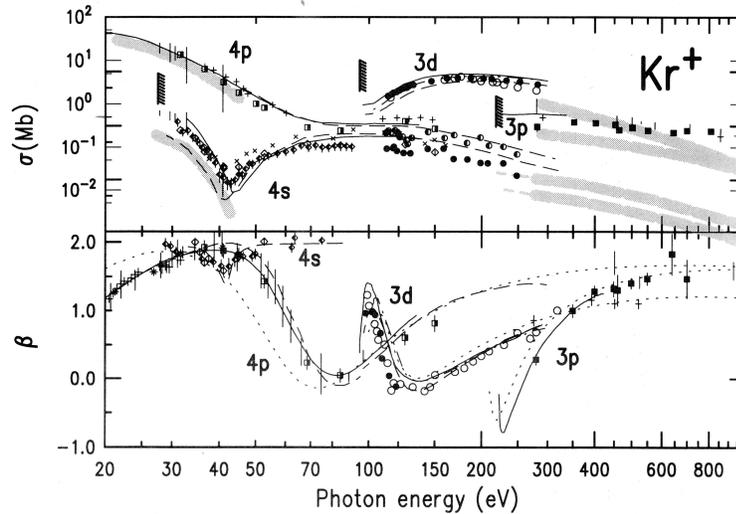


Abbildung 9.2: Partieller Wirkungsquerschnitt σ und Asymmetrieparameter β für die 4p, 4s, 3d und 3p Unterschalen beim Krypton als Funktion der einfallenden Photonenenergie (aus [123]). Die ersten Ionisationspotentiale sind: $IP_1 = 14,00$ eV [224]; $IP_2 = 24,36$ eV [225]; $IP_3 = 36,95$ eV [226]; $IP_4 = 52,5$ eV [227]. Eine Auflistung der energetischen Zustände und Spektrallinien für das Kr Atom und die Ionen Kr^+ , Kr^{2+} und Kr^{3+} findet sich in Referenz [228].

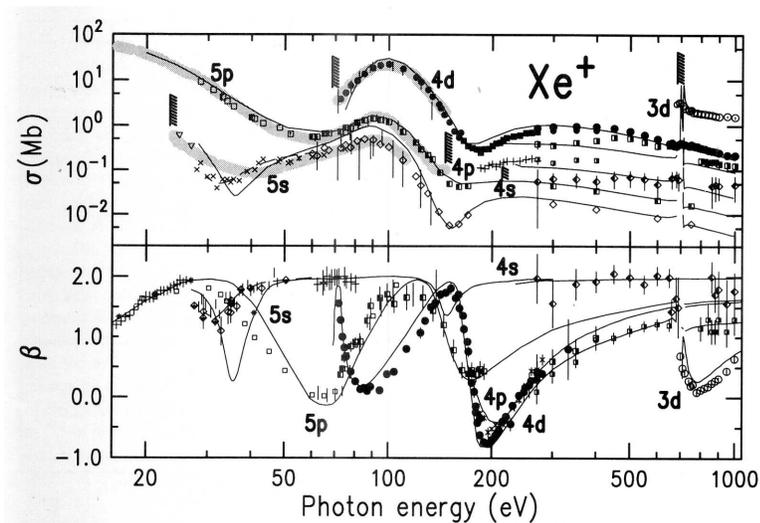


Abbildung 9.3: Partieller Wirkungsquerschnitt σ und Asymmetrieparameter β für die 5p, 5s, 4d, 4p, 4s und 3d Unterschalen beim Xenon als Funktion der einfallenden Photonenenergie (aus [123]). Die ersten Ionisationspotentiale sind: $IP_1 = 12,13$ eV [229]; $IP_2 = 20,98$ eV [230]; $IP_3 = 31,05$ eV [231]; $IP_4 = 40,9$ eV [232]. Eine detaillierte Auflistung der energetischen Zustände und Spektrallinien für das neutrale Xe Atom und die Ionen Xe^+ , Xe^{2+} und Xe^{3+} findet sich in Referenz [233].

Literaturverzeichnis

- [1] Internetquelle. Eadweard Muybridge. http://de.wikipedia.org/wiki/Eadweard_Muybridge, 2007.
- [2] M. Drescher. Time-resolved ESCA: a novel probe for chemical dynamics. *Zeitschrift für Physikalische Chemie*, 218(10):1147–1168, 2004.
- [3] M. Krumrey, E. Tegeler, J. Barth, M. Krisch, F. Schäfers, and Reinhard Wolf. Schottky type photodiodes as detectors in the VUV and soft x-ray range. *Applied Optics*, 27(20):4336–4341, 1988.
- [4] Hamamatsu Photonics K.K. Guide to streak cameras. <http://www.hamamatsu.com>, 2002.
- [5] F. Tavella, Y. Nomura, L. Veisz, V. Pervak, A. Marcinkevičius, and F. Krausz. Dispersion management for a sub-10-fs, 10 TW optical parametric chirped-pulse amplifier. *Optics Letters*, 32(15):2227–2229, 2007.
- [6] S.A. Crooker, F.D. Betz, J. Levy, and D.D. Awschalom. Femtosecond synchronization of two passively mode-locked Ti:sapphire lasers. *Review of Scientific Instruments*, 67(6):2068–2071, 1996.
- [7] T.R. Schibli, J. Kim, O. Kuzucu, J.T. Gopinath, S.N. Tandon, G.S. Petrich, L.A. Kolodziejski, J.G. Fujimoto, E.P. Ippen, and F.X. Kaertner. Attosecond active synchronization of passively mode-locked lasers by balanced cross correlation. *Optics Letters*, 28(11):947–949, 2003.
- [8] A.H. Zewail. Femtochemistry: atomic-scale dynamics of the chemical bond. *Journal of Physical Chemistry A*, 104(24):5660–5694, 2000.
- [9] T.A. Carlson. *Photoelectron and Auger Spectroscopy*. Plenum Press, New York - London, 1975.
- [10] H.H. Madden. Chemical information from Auger electron spectroscopy. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 18(3):677–689, 1981.
- [11] A. Pietzsch, A. Föhlisch, F. Hennies, S. Vijayalakshmi, and W. Wurth. Interface photovoltage dynamics at the buried BaF₂/Si interface: Time resolved laser-pump/synchrotron-probe photoemission. *Applied Physics A*, 88(3):587–592, 2007.

- [12] P. Siffalovic, M. Drescher, and U. Heinzmann. Femtosecond time-resolved core-level photoelectron spectroscopy tracking surface photovoltage transients on p-GaAs. *Europhysics Letters*, 60(6):924–930, 2002.
- [13] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, M. Uiberacker, Th. Westerwalbesloh, U. Kleineberg, U. Heinzmann, and F. Krausz. Time-resolved electron spectroscopy of atomic inner-shell dynamics. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 137-140:259–264, 2004.
- [14] A.M. Kondratenko and E.L. Saldin. Generation of coherent radiation by a relativistic electron beam in an undulator. *Particle Accelerators*, 10:207–216, 1980.
- [15] V. Ayvazyan et al. First operation of a free-electron laser generating GW power radiation at 32 nm wavelength. *The European Physical Journal D*, 37(2):297–303, 2006.
- [16] The technical design report of the european XFEL. <http://xfel.desy.de/tdr>.
- [17] J.-C. Diels and W. Rudolph. *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press San Diego New York, 1996.
- [18] S. Düsterer. Synchronization and pump-probe experiments. *VUV-FEL User workshop*, 23./24.8.2004.
- [19] B. Buras and G. Materlik. The european synchrotron radiation facility - an overview. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 246(1-3):21–31, 1986.
- [20] R. Bonifacio, C. Pellegrini, and L.M. Narducci. Collective instabilities and high-gain regime in a free electron laser. *Optics Communications*, 50(6):373–378, 1984.
- [21] K.J. Kim. Three-dimensional analysis of coherent amplification and self-amplified spontaneous emission in free-electron lasers. *Physical Review Letters*, 57(15):1871–1874, 1986.
- [22] V. Ayvazyan et al. A new powerful source for coherent VUV radiation: demonstration of exponential growth and saturation at the TTF free-electron laser. *The European Physical Journal D*, 20(1):149–156, 2002.
- [23] S. Krinsky and L.H. Yu. Output power in guided modes for amplified spontaneous emission in a single-pass free-electron laser. *Physical Review A*, 35(8):149–156, 1987.
- [24] D.A.G. Deacon, L.R. Elias, J.M.J Madey, G.J. Ramian, H.A. Schwettman, and T.I. Smith. First operation of a free-electron laser. *Physical Review Letters*, 38(16):892–894, 1977.
- [25] Y.U. Jeong et al. First lasing of the KAERI compact far-infrared free-electron laser driven by a magnetron-based microtron. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 475(1-3):47–50, 2001.

- [26] S.V. Milton et al. Exponential gain and saturation of a self-amplified spontaneous emission free-electron laser. *Science*, 292(5524):2037–2041, 2001.
- [27] T. Shintake et al. Status of SPring-8 compact SASE source FEL project. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 507(1-2):382–387, 2003.
- [28] P. Emma, R. Iverson, P. Krejcik, P. Raimondi, and J. Safrarek. Particle Accelerator Conference, Chicago, Illinois, edited by P. Lucas and S. Webber. *IEEE, New York*, 2001.
- [29] C. Limborg. Design considerations for the LCLS. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 507(1-2):378–381, 2003.
- [30] R. Brinkmann et al. TESLA XFEL: first stage of the x-ray laser laboratory - technical design report, DESY 2002-167 (unpubliziert). <http://xfel.desy.de>, 2002.
- [31] H. Franz, O. Leupold, R. Röhlsberger, S.V. Roth, O.H. Seeck, J. Spengler, J. Stremper, M. Tischer, J. Viefhaus, E. Weckert, and T. Wroblewski. Technical report: PETRA III: DESY's new high brilliance third generation synchrotron radiation source. *Synchrotron Radiation News*, 19(6):25–29, 2006.
- [32] J. Larsson. Laser and synchrotron radiation pump-probe x-ray diffraction experiments. *Measurement Science and Technology*, 12(11):1835–1840, 2001.
- [33] A.A. Zholents and M.S. Zolotarev. Femtosecond x-ray Pulses of synchrotron radiation. *Physical Review Letters*, 76(6):912–915, 1996.
- [34] R.W. Schoenlein, S. Chattopadhyay, H.H.W. Chong, T.E. Glover, P.A. Heimann, C.V. Shank, A.A. Zholents, and M.S. Zolotarev. Generation of femtosecond pulses of synchrotron radiation. *Science*, 287(5461):2237–2240, 2000.
- [35] S. Khan, K. Holldack, T. Kachel, R. Mitzner, and T. Quast. Femtosecond undulator radiation from sliced electron bunches. *Physical Review Letters*, 97(7):074801/1–4, 2006.
- [36] W. Ackermann et al. Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window. *Nature Photonics*, 1(6):336–342, 2007.
- [37] A. McPherson, G. Gibson, H. Jara, U. Johann, T.S. Luk, I.A. McIntyre, K. Boyer, and C. K. 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.
- [38] M. Lewenstein, Ph. Balcou, M.Yu. Ivanov, A. L'Huillier, and P.B. Corkum. Theory of high-harmonic generation by low-frequency laser fields. *Physical Review A*, 49(3):2117–2132, 1994.

- [39] D.J. Jones, S.A. Diddams, J.K. Ranka, A. Stentz, R.S. Windeler, J.L. Hall, and S.T. Cundiff. Carrier-envelope phase control of femtosecond mode-locked lasers and direct optical frequency synthesis. *Science*, 288(5466):635–639, 2000.
- [40] T. Brabec and F. Krausz. Intense few-cycle laser fields: frontiers of nonlinear optics. *Review of modern physics*, 72(2):545–591, 2000.
- [41] M. Drescher, M. Hentschel, R. Kienberger, G. Tempea, Ch. Spielmann, G.A. Reider, P.B. Corkum, and F. Krausz. X-ray pulses approaching the attosecond frontier. *Science*, 291(5510):1923–1927, 2001.
- [42] M. Hentschel, R. Kienberger, Ch. Spielmann, G.A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Attosecond metrology. *Nature*, 414:509–513, 2001.
- [43] R. Kienberger, M. Hentschel, Ch. Spielmann, G.A. Reider, N. Milosevic, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz. Sub-femtosecond x-Ray pulse generation and measurement. *Applied Physics B*, 74:S3–S9, 2002.
- [44] I.P. Christov, M.M. Murnane, and H.C. Kapteyn. High-harmonic generation of attosecond pulses in the "single-cycle" regime. *Physical Review Letters*, 78(7):1251–1254, 1997.
- [45] E. Seres, J. Seres, F. Krausz, and Ch. Spielmann. Generation of coherent soft-x-ray radiation extending far beyond the titanium L edge. *Physical Review Letters*, 92(16):163002/1–3, 2004.
- [46] D. von der Linde. Generation of high order optical harmonics from solid surfaces. *Applied Physics B*, 68(3):315–319, 1999.
- [47] S.V. Bulanov, N.M. Naumova, and F. Pegoraro. Interaction of an ultrashort, relativistically strong laser pulse with an overdense plasma. *Physics of Plasmas*, 1(3):745–757, 1994.
- [48] N.M. Naumova, J.A. Nees, I.V. Sokolov, B. Hou, and G.A. Mourou. Relativistic generation of isolated attosecond pulses in a λ^3 focal volume. *Physical Review Letters*, 92(6):063902/1–4, 2004.
- [49] G.D. Tsakiris, K. Eidmann, J. Meyer ter Vehn, and F. Krausz. Route to intense single attosecond pulses. *New Journal of Physics*, 8(1):1–19, 2006.
- [50] J. Feldhaus and B. Sonntag. The vacuum ultraviolet free-electron-laser at DESY. *Synchrotron Radiation News*, 11(1):14–21, 1998.
- [51] I. Will and G. Koss and I. Templin. The upgraded photocathode laser of the TESLA Test Facility. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 541(3):467–477, 2005.

- [52] M. Krasilnikov et al. Optimizing the PITZ Electron Source for the VUV FEL. *Proc. EPAC 2004 Conference, Lucerne, Switzerland*, pages 360–362, 2004.
- [53] T. Limberg, H. Weise, A. Molodozhentsev, and V. Petrov. The bunch compression system at the TESLA test facility FEL. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 375(1-3):322–324, 1996.
- [54] H. Weise. Superconducting RF structures - test facilities and results. *Proc. of the 2003 Europ. Part. Acc. Conf., Portland, Oregon*, pages 673–675, 2003.
- [55] J. Pflüger. Undulators for SASE FELs. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 445(1-3):366–372, 2000.
- [56] R. Gehrke and J. Feldhaus. Operation of the free-electron laser FLASH at DESY and first scientific experiments. *Synchrotron Radiation News*, 19(6):20–24, 2006.
- [57] K. Tiedtke. Layout of the user facility. *VUV-FEL User workshop*, 23./24.8.2004.
- [58] P. Nicolosi, L. Poletto, M.G. Pelizzo, L. Epulande, P. Zambolin, J. Feldhaus, U. Jastrow, U. Hahn, E. Plönjes, and K. Tiedtke. Grazing-incidence spectrometer for the monitoring of the VUV FEL beam at DESY. *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena*, 144-147:1055–1058, 2005.
- [59] S. Düsterer, P. Radcliffe, G. Geloni, U. Jastrow, M. Kuhlmann, E. Plönjes, K. Tiedtke, R. Treusch, J. Feldhaus, P. Nicolosi, L. Poletto, P. Yeates, H. Luna, J. T. Costello, P. Orr, D. Cubaynes, and M. Meyer. Spectroscopic characterization of vacuum ultraviolet free electron laser pulses. *Optics Letters*, 31(11):1750–1752, 2006.
- [60] E.L. Saldin, E.A. Schneidmiller, and M.V. Yurkov. Statistical properties of radiation from VUV and x-ray free electron laser. *Optics Communications*, 148(4-6):383–403, 1998.
- [61] E.L. Saldin, E.A. Schneidmiller, and M.V. Yurkov. Statistical properties of the radiation from VUV FEL at DESY operating at 30 nm wavelength in the femtosecond regime. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 562(1):472–486, 2006.
- [62] E.L. Saldin, E.A. Schneidmiller, and M.V. Yurkov. Properties of the third harmonic of the radiation from self-amplified spontaneous emission free electron laser. *Physical Review Special Topics - Accelerators and Beams*, 9:030702/1–9, 2006.
- [63] M. Richter, A. Gottwald, U. Kroth, A. A. Sorokin, S. V. Bobashev, L. A. Shmaenok, J. Feldhaus, Ch. Gerth, B. Steeg, K. Tiedtke, and R. Treusch. Measurement of gigawatt radiation pulses from a vacuum and extreme ultraviolet free-electron laser. *Applied Physics Letters*, 83(14):2970–2972, 2003.
- [64] T. Núñez. Computing at the VUV-FEL. *VUV-FEL User workshop*, 23./24.8.2004.

- [65] K. Tiedtke, N. von Bargen, M. Hesse, U. Jastrow, and U. Hahn. The gas attenuator of FLASH. *Hasylab Annual Report*, 2006.
- [66] R. Treusch, T. Lokajczyk, W. Xu, U. Jastrow, U. Hahn, L. Bittner, and J. Feldhaus. Development of photon beam diagnostics for VUV radiation from a SASE FEL. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 445(1-3):456–462, 2000.
- [67] R. Follath and F. Senf. New plane-grating monochromators for third generation synchrotron radiation light sources. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 390(3):388–394, 1997.
- [68] M. Martins, M. Wellhöfer, J. T. Hoeft, W. Wurth, J. Feldhaus, and R. Follath. Monochromator beamline for FLASH. *Review of Scientific Instruments*, 77(11):115108/1–6, 2006.
- [69] A.A. Sorokin, A. Gottwald, A. Hoehl, U. Kroth, H. Schöppe, G. Ulm, M. Richter, S.V. Bobashev, I.V. Domracheva, D.N. Smirnov, K. Tiedtke, S. Düsterer, J. Feldhaus, U. Hahn, U. Jastrow, M. Kuhlmann, T. Nunez, E. Plönjes, and R. Treusch. Method based on atomic photoionization for spot-size measurement on focused soft x-ray free-electron laser beams. *Applied Physics Letters*, 89(22):221114/1–1, 2006.
- [70] M. Wellhöfer, M. Martins, W. Wurth, A. Sorokin, and M. Richter. Performance of the PG beamline at FLASH. *Hasylab Annual Report*, 2006.
- [71] M. Wellhöfer, M. Martins, W. Wurth, A.A. Sorokin, and M. Richter. Performance of the monochromator beamline at FLASH. *Journal of Optics A*, 9(7):749–756, 2007.
- [72] D.E. Spence, P.N. Kean, and W. Sibbett. 60-fsec pulse generation from a self-mode-locked Ti:sapphire laser. *Optics Letters*, 16(1):42–44, 1991.
- [73] J. Zhou, G. Taft, C.P. Huang, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn, and I.P. Christov. Pulse evolution in a broad-bandwidth Ti:sapphire laser. *Optics Letters*, 19(15):1149–1151, 1994.
- [74] J. Feldhaus. Development of a pump-probe facility with sub-picosecond time resolution combining a high-power optical laser and a soft x-ray free electron laser. 5th *Annual Report*, 2005.
- [75] A. Dubietis, G. Jonušauskas, and A. Piskarskas. Powerful femtosecond pulse generation by chirped and stretched pulse parametric amplification in BBO crystal. *Optics Communications*, 88(4):437–440, 1992.
- [76] R.A. Baumgartner and R.L. Byer. Optical Parametric Amplification. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 15(6):432–444, 1979.
- [77] G. Cerullo and S. De Silvestri. Ultrafast optical parametric amplifiers. *Review of Scientific Instruments*, 74(1):1–18, 2003.

- [78] I.N. Ross and P. Matousek and M. Towrie and A.J. Langley and J.L. Collier. The prospect for ultrashort pulse duration and ultrahigh intensity using optical parametric chirped pulse amplifiers. *Optics Communications*, 144(1-3):125–133, 1997.
- [79] A. Galvanauskas, A. Hariharan, D. Harter, M.A. Arbore, and M.M. Fejer. High-energy femtosecond pulse amplification in a quasi-phase-matched parametric amplifier. *Optics Letters*, 23(3):210–212, 1998.
- [80] J.E. Murray. Pulsed gain and thermal lensing of Nd:LiYF₄. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 19(4):488–491, 1983.
- [81] J. Feldhaus. Development of a pump-probe facility with sub-picosecond time resolution combining a high-power optical laser and a soft x-ray free electron laser. *3rd Annual Report*, 2003.
- [82] P.M.W. French. The generation of ultrashort laser pulses. *Reports on Progress in Physics*, 58(2):169–267, 1995.
- [83] D. Marcuse. Pulse distortion in single-mode fibers. *Applied Optics*, 19(10):1653–1660, 1980.
- [84] C.V. Shank, R.L. Fork, R. Yen, R.H. Stolen, and W.J. Tomlinson. Compression of femtosecond optical pulses. *Applied Physics Letters*, 40(9):761–763, 1982.
- [85] D. Shimizu. Frequency broadening in liquids by a short light pulse. *Physical Review Letters*, 19(19):1097–1100, 1967.
- [86] F.B. Kiewiet, A.H. Kemper, O.J. Luiten, G.J.H. Brussaard, and M.J. van der Wiel. Femtosecond synchronization of a 3 GHz RF oscillator to a mode-locked Ti:sapphire laser. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 484(1-3):619–624, 2002.
- [87] G.M.H. Knippels, M.J. van de Pol, H.P.M. Pellemans, P.C.M. Planken, and A.F.G. van der Meer. Two-color facility based on a broadly tunable infrared free-electron laser and a subpicosecond-synchronized 10-fs-Ti:sapphire laser. *Optics Letters*, 23(22):1754–1756, 1998.
- [88] S. Düsterer. Diagnostics and synchronization for short-wavelength FEL experiments. *Research courses for x-ray science*, 2005.
- [89] B. Bradley and W. Sibbett. Subpicosecond chronoscopy. *Applied Physics Letters*, 27(1):382–384, 1975.
- [90] M.M. Murnane, H.C. Kapteyn, and R.W. Falcone. X-ray streak camera with 2 ps response. *Applied Physics Letters*, 56(20):1948–1950, 1990.
- [91] Ronnie Shepherd, Rex Booth, Dwight Price, Mark Bowers, Don Swan, Jim Bonlie, Bruce Young, Jim Dunn, Bill White, and Richard Stewart. Ultrafast x-ray streak

- camera for use in ultrashort laser-produced plasma research. *Review of Scientific Instruments*, 66(1):719–721, 1995.
- [92] S. Düsterer, H. Redlin, A. Azima, F. van den Berghe, H. Schlarb, S. Kapitzki, and E. Plönjes-Palm. The pump-probe facility : an optical laser system synchronized to the FEL. *Hasylab Annual Report*, 2005.
- [93] S. Toleikis, Th. Tschentscher, B. Zielbauer, R.W. Lee, D. Schneider, F. Weber, and Th. Schenkel. First Tests of an X-ray Streak Camera at FLASH. *Hasylab Annual Report*, 2006.
- [94] J.A. Valdmanis, G. Mourou, and C.W. Gabel. Picosecond electro-optic sampling system. *Applied Physics Letters*, 41(3):211–212, 1982.
- [95] M.J. Fitch, A.C. Melissinos, P.L. Colestock, J.-P. Carneiro, H.T. Edwards, and W. H. Hartung. Electro-optic Measurement of the Wake Fields of a Relativistic Electron Beam. *Physical Review Letters*, 87(3):034801/1–4, 2001.
- [96] I. Wilke, A.M. MacLeod, W.A. Gillespie, G. Berden, G.M.H. Knippels, and A.F.G. van der Meer. Single-shot electron-beam bunch length measurements. *Physical Review Letters*, 88(12):124801/1–4, 2002.
- [97] J. Shan, A.S. Weling, E. Knoesel, L. Bartels, M. Bonn, A. Nahata, G.A. Reider, and T.F. Heinz. Single-shot measurement of terahertz electromagnetic pulses by use of electro-optic sampling. *Optics Letters*, 25(6):426–428, 2000.
- [98] A.L. Cavalieri et al. Clocking femtosecond x rays. *Physical Review Letters*, 94(11):114801/1–4, 2005.
- [99] A.A. Azima, S. Düsterer, H. Schlarb, J. Feldhaus, A. Cavalieri, D. Fritz, and K. Sengstock. Jitter measurement by spatial electro-optical sampling at the flash free electron laser. *Proceedings of the EPAC, Edinburgh, Scotland*, pages 71–73, 2006.
- [100] S.H. Lee, A.L. Cavalieri, D.M. Fritz, M. Myaing, and D.A. Reis. Adaptive dispersion compensation for remote fiber delivery of near-infrared femtosecond pulses. *Optics Letters*, 29(22):2602–2604, 2004.
- [101] T. Baumert, T. Brixner, V. Seyfried, M. Strehle, and G. Gerber. Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback. *Applied Physics B*, 65(6):779–782, 1997.
- [102] A.A. Azima, B. Steffen, S. Düsterer, and H. Schlarb. Timing by electro optical sampling. *Hasylab Annual Report*, 2006.
- [103] D.M. Fritz et al. Ultrafast bond softening in bismuth: mapping a solid’s interatomic potential with x-rays. *Science*, 315(1-3):633–636, 2007.

- [104] H.O. Jeschke, M.E. Garcia, M. Lenzner, J. Bonse, J. Krüger, and W. Kautek. Laser ablation thresholds of silicon for different pulse durations: theory and experiment. *Applied Surface Science*, 197-198:839–844, 2002.
- [105] A. Rousse, C. Rischel, S. Fourmaux, I. Uschmann, S. Sebban, G. Grillon, Ph. Balcou, E. Förster, J.P. Geindre, P. Audebert, J.C. Gauthier, and D. Hulin. Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution. *Nature*, 410:65–68, 2001.
- [106] A.H. Chin, R.W. Schoenlein, T.E. Glover, P. Balling, W.P. Leemans, and C.V. Shank. Ultrafast structural dynamics in InSb probed by time-resolved x-ray diffraction. *Physical Review Letters*, 83(2):336–339, 1999.
- [107] C. Kittel. *Introduction to solid state physics - 7th edition*. John Wiley and Sons, Inc., 1996.
- [108] O. Synnergren, M. Harbst, T. Missalla, J. Larsson, G. Katona, R. Neutze, and R. Wouts. Projecting picosecond lattice dynamics through x-ray topography. *Applied Physics Letters*, 80(20):3727–3729, 2002.
- [109] C. Rischel, A. Rousse, I. Uschmann, P.A. Albouy, J.P. Geindre, P. Audebert, J.C. Gauthier, E. Förster, J.L. Martin, and André Antonetti. Femtosecond time-resolved x-ray diffraction from laser-heated organic films. *Nature*, 410:65–68, 2001.
- [110] K. Sokolowski-Tinten, C. Blome, C. Dietrich, A. Tarasevitch, M. Horn von Hoegen, D. von der Linde, A. Cavalleri, J. Squier, and M. Kammler. Femtosecond x-ray measurement of ultrafast melting and large acoustic transients. *Physical Review Letters*, 87(22):225701/1–4, 2001.
- [111] A.M. Lindenberg et al. Atomic-Scale Visualization of Inertial Dynamics. *Science*, 308(5720):392–395, 2005.
- [112] H. Ibach and H. Lüth. *Festkörperphysik (4. Auflage)*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1995.
- [113] C.H. Gooch. *Gallium Arsenide Lasers*. John Wiley and Sons Ltd., London - New York - Sydney - Toronto, 1969.
- [114] D. Gordon-Smith and D.H. Lowe. Surface damage assessment of nanometre finish substrates using differential reflectance spectroscopy. *Nanotechnology*, 9(2):54–60, 1998.
- [115] J.P. Greenaway. Fundamental reflectivity of GaAs at low temperature. *Physical Review Letters*, 9(3):97–98, 1962.
- [116] J.P. Callan, A.M.-T. Kim, L. Huang, and E. Mazur. Ultrafast electron and lattice dynamics in semiconductors at high excited carrier densities. *Chemical Physics*, 251(1-3):167–179, 2000.

- [117] C. Gahl, A. Azima, M. Beye, M. Deppe, K. Döbrich, U. Hasslinger, F. Hennies, A. Melnikov, M. Nagasono, A. Pietzsch, M. Wolf, W. Wurth, and A. Föhlisch. A femtosecond X-ray/optical cross-correlator. *Nature Photonics*, 2(3):165–169, 2008.
- [118] L. Huang, J.P. Callan, E.N. Glezer, and E. Mazur. GaAs under Intense Ultrafast Excitation: Response of the Dielectric Function. *Physical Review Letters*, 80(1):185–188, 1998.
- [119] A. Cavalleri, C.W. Siders, C. Rose-Petruck, R. Jimenez, Cs. Tóth, J.A. Squier, C.P.J. Barty, K.R. Wilson, K. Sokolowski-Tinten, M. Horn von Hoegen, and D. von der Linde. Ultrafast x-ray measurement of laser heating in semiconductors: Parameters determining the melting threshold. *Physical Review B*, 63(19):193306/1–4, 2001.
- [120] H. Haken and C. Wolf. *Atom- und Quantenphysik (8. Auflage)*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2004.
- [121] W. Demtröder. *Laserspektroskopie*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2000.
- [122] G.V. Marr. *Photoionization processes in gases*. Academic Press Inc. New York London, 1967.
- [123] U. Becker and D.A. Shirley. *VUV and soft x-ray photoionization*. Plenum Press, New York - London, 1996.
- [124] D. Briggs. *Handbook of x-ray and ultraviolet photoelectron spectroscopy*. Heyden and Son, Ltd., 1977.
- [125] L. Keldysh. Titel der englischen Übersetzung: Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Englische Übersetzung: Soviet Physics JETP*, 20(5):1307–1314, 1965.
- [126] V.P. Krainov, W. Xiong, and S.L. Chin. An introductory overview of tunnel ionization of atoms by intense lasers. *Laser Physics*, 2(4):467–474, 1992.
- [127] M. Protopapas, C.H. Keitel, and P.L. Knight. Atomic physics with super-high intensity lasers. *Reports on Progress in Physics*, 60(4):389–486, 1997.
- [128] M. Göppert-Mayer. Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen. *Annalen der Physik*, 401(3):273–294, 1931.
- [129] G.S. Hurst, M.G. Payne, S.D. Kramer, and J.P. Young. Resonance ionization spectroscopy and one-atom detection. *Review of modern physics*, 51(4):767–818, 1979.
- [130] A. l’Huillier, L.A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption in rare gases at 0.53 μm . *Physical Review A*, 27(5):2503–2512, 1983.
- [131] N.B. Delone and V.P. Krainov. *Multiphoton processes in atoms*. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 1994.

- [132] B. Walker, B. Sheehy, L.F. DiMauro, P. Agostini, K.J. Schafer, and K.C. Kulander. Precision measurement of strong field double ionization of helium. *Physical Review Letters*, 73(9):1227–1230, 1994.
- [133] M.D. Perry, A. Szoke, O.L. Landen, and E.M. Campbell. Nonresonant multiphoton ionization of noble gases: theory and experiment. *Physical Review Letters*, 60(13):1270–1273, 1988.
- [134] H. Maeda, M. Dammasch, U. Eichmann, W. Sandner, A. Becker, and F.H.M. Faisal. Strong-field multiple ionization of Krypton. *Physical Review A*, 62(3):035402/1–4, 2000.
- [135] A. Becker, R. Dörner, and R. Moshhammer. Multiple fragmentation of atoms in femtosecond laser pulses. *Journal of Physics B*, 38(9):S753–S772, 2005.
- [136] S. Laroche, A. Talebpour, and S.L. Chin. Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a Ti:Sapphire laser field. *Journal of Physics B*, 31(6):1201–1214, 1998.
- [137] D.N. Fittinghoff, P.R. Bolton B. Chang, and K.C. Kulander. Observation of nonsequential double ionization of helium with optical tunneling. *Physical Review Letters*, 69(18):2642–2645, 1992.
- [138] P.B. Corkum. Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization. *Physical Review Letters*, 71(13):1994–1997, 1993.
- [139] D.N. Fittinghoff, P.R. Bolton B. Chang, and K.C. Kulander. Polarization dependence of tunneling ionization of helium and neon by 120-fs pulses at 614 nm. *Physical Review A*, 49(3):2174–2177, 1994.
- [140] R. Moshhammer et al. Few-photon multiple ionization of Ne and Ar by strong free-electron-laser pulses. *Physical Review Letters*, 98(20):203001/1–4, 2007.
- [141] M.A. Kornberg and P. Lambropoulos. Photoelectron energy spectrum in 'direct' two-photon double ionization of helium. *Journal of Physics B*, 32(20):L603–L613, 1999.
- [142] H. Hasegawa, E.J. Takahashi, Y. Nabekawa, K.L. Ishikawa, and K. Midorikawa. Multiphoton ionization of He by using intense high-order harmonics in the soft-x-ray region. *Physical Review A*, 71(2):023407/1–5, 2005.
- [143] H. Wabnitz, A.R.B. de Castro, P. Gürtler, T. Laarmann, W. Laasch, J. Schulz, and T. Möller. Multiple ionization of rare gas atoms irradiated with intense VUV radiation. *Physical Review Letters*, 94(2):023001/1–4, 2005.
- [144] A.A. Sorokin, S.V. Bobashev, K. Tiedtke, and M. Richter. Multi-photon ionization of molecular nitrogen by femtosecond soft x-ray FEL pulses. *Journal of Physics B*, 39(14):L299–L304, 2006.

- [145] A.A. Sorokin, M. Wellhöfer, S.V. Bobashev, K. Tiedtke, and M. Richter. X-ray-laser interaction with matter and the role of multiphoton ionization: free-electron-laser studies on neon and helium. *Physical Review A*, 75(5):051402/1–4, 2007.
- [146] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N.K. Rahman. Free-free transitions following six-photon ionization of Xenon atoms. *Physical Review Letters*, 42(17):1127–1130, 1979.
- [147] G. Petite, P. Agostini, and F. Yergeau. Intensity, pulse width, and polarization dependence of above-threshold-ionization electron spectra. *Journal of the Optical Society of America B*, 4(5):765–769, 1987.
- [148] M. Bashkansky, P.H. Bucksbaum, and D.W. Schumacher. Above-threshold ionization with elliptically polarized light. *Physical Review Letters*, 59(3):274–277, 1987.
- [149] P.H. Bucksbaum, M. Bashkansky, and T.J. McIlrath. Scattering of electrons by intense coherent light. *Physical Review Letters*, 58(4):349–352, 1987.
- [150] T.W.B. Kibble. Mutual refraction of electrons and photons. *The Physical Review*, 150(4):1060–1069, 1966.
- [151] M. Gavrilă, A. Maquet, and V. Vénierd. Two-photon free-free transitions in a Coulomb potential. *Physical Review A*, 32(4):2537–2540, 1985.
- [152] M. Gavrilă, A. Maquet, and V. Vénierd. Stimulated two-photon free-free transitions in a Coulomb potential: Formalism. *Physical Review A*, 42(1):236–247, 1990.
- [153] N. Miyamoto, M. Kamei, D. Yoshitomi, T. Kanai, T. Sekikawa, T. Nakajima, and S. Watanabe. Observation of two-photon above-threshold ionization of rare gases by XUV harmonic photons. *Physical Review Letters*, 93(8):083903/1–4, 2004.
- [154] L.A.A. Nikolopoulos and P. Lambropoulos. Multichannel theory of two-photon single and double ionization of helium. *Journal of Physics B*, 34(4):545–564, 2001.
- [155] T.E. Glover, R.W. Schoenlein, A.H. Chin, and C.V. Shank. Observation of laser assisted photoelectric effect and femtosecond high order harmonic radiation. *Physical Review Letters*, 76(14):2468–2471, 1996.
- [156] J.M. Schins, P. Breger, P. Agostini, R.C. Constantinescu, H.G. Muller, G. Grillon, A. Antonetti, and A. Mysyrowicz. Observation of laser-assisted auger decay in Argon. *Physical Review Letters*, 73(16):2180–2183, 1994.
- [157] L. Miaja-Avila, C. Lei, M. Aeschlimann, J.L. Gland, M.M. Murnane, H.C. Kapteyn, and G. Saathoff. Laser-assisted photoelectric effect from surfaces. *Physical Review Letters*, 97(11):113604/1–4, 2006.
- [158] H.G. Muller, H.B. van den Heuvel, and M.J. van der Wiel. Dressing of continuum states after MPI of Xe in a two-colour experiment. *Journal of Physics B*, 19(21):L733–L739, 1986.

- [159] P. O’Keeffe, R. López-Martens, J. Mauritsson, A. Johansson, A. L’Huillier, V. Vénier, R. Taïeb, A. Maquet, and M. Meyer. Polarization effects in two-photon nonresonant ionization of argon with extreme-ultraviolet and infrared femtosecond pulses. *Physical Review A*, 69(5):051401/1–4, 2004.
- [160] Simulationsergebnisse freundlicherweise zur Verfügung gestellt von Prof. Dr. M. Drescher.
- [161] N.M. Kroll and K.M. Watson. Charged-particle scattering in the presence of a strong electromagnetic wave. *Physical Review A*, 8(2):804–809, 1973.
- [162] A. Cionga, V. Florescu, A. Maquet, and R. Taïeb. Target dressing effects in laser-assisted x-ray photoionization. *Physical Review A*, 47(3):1830–1839, 1993.
- [163] E. Harting and F.H. Read. *Electrostatic lenses*. Elsevier Scientific Publishing Company - Amsterdam, 1976.
- [164] D.W.O. Heddle. *Electrostatic lens systems (2. Auflage)*. Institute of Physics Publishing, London, 2000.
- [165] B. Paszkowski. *Electron optics*. American Elsevier Publishing Company - New York, 1968.
- [166] J. Orloff. *Handbook of charged particle optics*. CRC Press LLC - Boca Raton New York, 1997.
- [167] K. Engel. Bemerkungen über das Raumladungsfeld des gaskonzentrierten Elektronenstrahls. *Zeitschrift für Physik*, 79(3/4):231–234, 1932.
- [168] S. Passlack, S. Mathias, O. Andreyev, D. Mittnacht, M. Aeschlimann, and M. Bauer. Space charge effects in photoemission with a low repetition, high intensity femtosecond laser source. *Journal of Applied Physics*, 100(2):024912/1–8, 2006.
- [169] Leybold Vakuum. *Ionivac ITR 90 PB*. Operating Manual, 2006.
- [170] SNLO nonlinear optics code. *Smith AV, Sandia National Laboratories, Albuquerque*. NM 87185-1423.
- [171] D.J. Kane and R. Trebino. Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency-resolved optical gating. *Optics Letters*, 18(10):823–825, 1993.
- [172] M. Maier, W. Kaiser, and J.A. Giordmaine. Intense light bursts in the stimulated Raman effect. *Physical Review Letters*, 17(26):1275–1277, 1966.
- [173] D.T. Reid, M. Padgett, C. McGowan, W.E. Sleat, and W. Sibbett. Light-emitting diodes as measurement devices for femtosecond laser pulses. *Optics Letters*, 22(4):233–235, 1997.

- [174] G. Steinmeyer. A review of ultrafast optics and optoelectronics. *Journal of optics A*, 5:R1–R15, 2003.
- [175] L. Gallmann, D.H. Sutter, N. Matuschek, G. Steinmeyer, and U. Keller. Techniques for the characterization of sub-10-fs optical pulses: a comparison. *Applied Physics B*, 70:S67–S75, 2000.
- [176] S. Akturk, X. Gu, M. Kimmel, and R. Trebino. FROG für extrem kurze und relativ lange Ultrakurzpulse. *Photonik*, 2:54–56, 2005.
- [177] A. Brodeur and S.L. Chin. Ultrafast white-light continuum generation and self-focusing in transparent condensed media. *Journal of the Optical Society of America B*, 16(4):637–650, 1999.
- [178] G. Yang and Y.R. Shen. Spectral broadening of ultrashort pulses in a nonlinear medium. *Optics Letters*, 9(11):510–512, 1984.
- [179] R.R. Alfano and S.L. Shapiro. Observation of self-phase modulation and small-scale filaments in crystals and glasses. *Physical Review Letters*, 24(11):592–594, 1970.
- [180] R.L. Fork, C.V. Shank, C. Hirlimann, R. Yen, and W.J. Tomlinson. Femtosecond white-light continuum pulses. *Optics Letters*, 8(1):1–3, 1983.
- [181] P.B. Corkum, C. Rolland, and T. Srinivasan-Rao. Supercontinuum generation in gases. *Physical Review Letters*, 57(18):2268–2271, 1986.
- [182] R. Paschotta, J. Aus der Au, G.J. Spühler, F. Morier-Genoud, R. Hövel, M. Moser, S. Erhard, M. Karszewski, A. Giesen, and U. Keller. Diode-pumped passively mode-locked lasers with high average power. *Applied Physics B*, 70:S25–S31, 2000.
- [183] OSLO. *Optics software for layout and optimization*. Light Edition, Version 6.1, 2006.
- [184] W.J. Smith. *Modern optical engineering - the design of optical systems, third edition*. McGraw Hill Companies, Inc., 2000.
- [185] SIMION 3D Version 7.0. David A. Dahl. *Idaho National Engineering and Environmental Laboratory; INEEL-95/0403, Formerly EGG-CS-7233*, February 2000.
- [186] R. Kalms. *Aufbau einer dispersiven Elektronenlinsen-Systems für Experimente mit FEL-Strahlung*. Diplomarbeit, Universität Bielefeld, Juni 2005.
- [187] H. Liebl. A new emission lens. *Optik*, 53:69–72, 1979.
- [188] G. Martinez, M. Sancho, and F.H. Read. Four-cylinder electrostatic lens II: energy scanning at constant image position and magnification. *Journal of Physics E: Scientific Instruments*, 16(7):631–635, 1983.

- [189] J.L. Wiza. Microchannel plate detectors. *Nuclear Instruments and Methods*, 162(1-3):587–601, 1979.
- [190] S. Matsuura, S. Umebayashi, C. Okuyama, and K. Oba. Characteristics of the newly developed MCP and its assembly. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 32(1):350–354, 1985.
- [191] F.J. Grunthaner, P.J. Grunthaner, R.P. Vasquez, B.F. Lewis, J. Maserjian, and A. Madhukar. Local atomic and electronic structure of oxide/GaAs and SiO₂/Si interfaces using high-resolution XPS. *Journal of Vacuum Science and Technology*, 16(5):1443–1453, 1979.
- [192] P.A. Franken, A.E. Hill, C.W. Peters, and G. Weinreich. Generation of optical harmonics. *Physical Review Letters*, 7(4):118–119, 1961.
- [193] K.B. Blagoev. Radiative lifetimes of excited Kr II states. *Journal of Physics B*, 14(24):4743–4746, 1981.
- [194] Internetquelle. Periodensystem der Elemente. <http://www.ktf-split.hr/periodni/de/>, 2003.
- [195] N. Saito and I.H. Suzuki. Shake-off processes in photoionization and auger transition for rare gases irradiated by soft x-rays. *Physica Scripta*, 49(1):80–85, 1994.
- [196] N. Saito and I.H. Suzuki. Multiple photoionization in Ne, Ar, Kr and Xe from 44 to 1300 eV. *International Journal of Mass Spectrometry and Ion Processes*, 115(2-3):157–172, 1994.
- [197] Th.M. El-Sherbini and M.J. van der Wiel. Oscillator strength for multiple ionization in the outer and first inner shells of Kr and Xe. *Physica*, 62(1):119–138, 1972.
- [198] N. Saito, I.H. Suzuki, H. Onuki, and M. Nishi. Angular distribution measurement of fragment ions from a molecule using a new beamline consisting of a Grasshopper monochromator. *Review of Scientific Instruments*, 60(7):2190–2192, 1989.
- [199] E.P. Benis, D. Charalambidis, T.N. Kitsopoulos, G.D. Tsakiris, and P. Tzallas. Two-photon double ionization of rare gases by a superposition of harmonics. *Physical Review A*, 74(5):051402/1–4, 2006.
- [200] Y. Nabekawa, T. Shimizu, T. Okino, K. Furusawa, H. Hasegawa, K. Yamanouchi, and K. Midorikawa. Conclusive Evidence of an Attosecond Pulse Train Observed with the Mode-Resolved Autocorrelation Technique. *Physical Review Letters*, 96(8):083901–1–4, 2006.
- [201] A. Ehresmann, F. Vollweiler, H. Schmoranzler, V.L. Sukhorukov, B.M. Lagutin, I.D. Petrov, G. Mentzel, and K.-H. Scharfner. Photoionization of Kr 4s: III. Detailed and extended measurements of the Kr 4s-electron ionization cross section. *Journal of Physics B*, 27(8):1489–1496, 1994.

- [202] A. l'Huillier and G. Wendin. Linear and nonlinear screening effects in two-photon ionization of xenon. *Physical Review A*, 36(10):4747–4758, 1987.
- [203] A.C. Thompson et al. *X-ray data booklet*. Center for x-ray optics and advanced light source, 2001.
- [204] J. Viefhaus, M. Braune, A. Reinköster S. Korica, D. Rolles, and U. Becker. Auger cascades versus direct double Auger: relaxation processes following photoionization of the Kr 3d and Xe 4d, 3d inner shells. *Journal of Physics B*, 38(21):3885–3903, 2005.
- [205] A. Ehresmann, H. Schäffer, F. Vollweiler, G. Mentzel, B. Magel, K.-H. Schartner, and H. Schmoranzner. Alignment of Xe II and Xe III ionic states after the decay of the Xe I $4d_{5/2}^9 6p^1 P_1$ autoionization resonance. *Journal of Physics B*, 31(7):1487–1501, 1998.
- [206] M. Meyer, A. Marquette, A.N. Grum-Grzhimailo, U. Kleiman, and B. Lohmann. Polarization analysis of fluorescence probing the alignment of Xe^+ ions in the resonant Auger decay of the $Xe^* 4d_{5/2}^{-1} 6p$ photoexcited state. *Physical Review A*, 64(2):022703/1–14, 2001.
- [207] S.I. Themelis, P. Lambropoulos, and M. Meyer. Ionization dynamics in double resonance involving autoionizing states in helium: the effect of pulse shapes. *Journal of Physics B*, 37(21):4281–4293, 2004.
- [208] Th. Uphues, M. Schultze, M.F. Kling, M. Uiberacker, S. Hendel, U. Heinzmann, N.M. Kabachnik, and M. Drescher. Ion-charge-state chronoscopy of cascaded atomic auger decay. *New Journal of Physics*, 10(2):025009/1–12, 2008.
- [209] P. Radcliffe, S. Düsterer, A. Azima, H. Redlin, J. Feldhaus, J. Dardis, K. Kavanagh, H. Luna, J. Pedregosa Gutierrez, P. Yeates, E.T. Kennedy, J.T. Costello, A. Delse-rieys, C.L.S. Lewis, R. Taïeb, A. Maquet, D. Cubaynes, and M. Meyer. Single-shot characterization of independent femtosecond extreme ultraviolet free electron and infrared laser pulses. *Applied Physics Letters*, 90(13):131108/1–3, 2007.
- [210] O. Guyétand, M. Gisselbrecht, A. Huetz, P. Agostini, R. Taïeb, V. Véniard, A. Maquet, L. Antonucci, O. Boyko, C. Valentin, and D. Douillet. Multicolour above-threshold ionization of helium: quantum interference effects in angular distributions. *Journal of Physics B*, 38(22):L357–L363, 2005.
- [211] M. Meyer, D. Cubaynes, P. O’Keeffe, H. Luna, P. Yeates, E.T. Kennedy, J.T. Costello, P. Orr, R. Taïeb, A. Maquet, S. Düsterer, P. Radcliffe, H. Redlin, A. Azima, E. Plönjes, and J. Feldhaus. Two-color photoionization in XUV free-electron and visible laser fields. *Physical Review A*, 74(1):011401/1–4, 2006.

- [212] S. Cunovic, N. Müller, R. Kalms, M. Krikunova, M. Wieland, M. Drescher, Th. Maltezopoulos, U. Frühling, H. Redlin, E. Plönjes-Palm, and J. Feldhaus. Time-to-space mapping in a gas medium for the temporal characterization of vacuum-ultraviolet pulses. *Applied Physics Letters*, 90(12):121112/1–3, 2007.
- [213] A. Pietzsch, A. Föhlisch, M. Beye, M. Deppe, F. Hennies, M. Nagasono, E. Suljoti, W. Wurth, C. Gahl, K. Döbrich, and A. Melnikov. Towards time resolved core level photoelectron spectroscopy with femtosecond x-ray free-electron lasers. *New Journal of Physics*, 10(3):033004/1–10, 2008.
- [214] G. Scoles and D. Bassi and U. Buck and D. Laine. *Atomic and molecular beam methods - Volume 1*. Oxford Iniversity Press, Oxford - New York, 1988.
- [215] Gy. Farkas and Cs. Tóth. Energy spectrum of photoelectrons produced by picosecond laser-induced surface multiphoton photoeffect. *Physical Review A*, 41(7):4123–4126, 1990.
- [216] C. Girardeau-Montaut and J.P. Girardeau-Montaut. Space-charge effect on the energy spectrum of photoelectrons produced by high-intensity short-duration laser pulses on a metal. *Physical Review A*, 44(2):1409–1411, 1991.
- [217] Internetquelle. Homepage der Firma Coherent Inc. . <http://www.coherent.com>, 2008.
- [218] S. Düsterer et al. Unpublizierte Messergebnisse. 2008.
- [219] L. Zheng and D.D. Meyerhofer. Cross-correlation technique for single-shot measurements of weak light pulses. *Optics Letters*, 20(4):407–409, 1995.
- [220] Th. Maltezopoulos, S. Cunovic, M. Wieland, M. Beye, A. Azima, H. Redlin, M. Krikunova, R. Kalms, U. Frühling, F. Budzyn, W. Wurth, A. Föhlisch, and M. Drescher. Single-shot timing measurement of extreme-ultraviolet free-electron laser pulses. *New Journal of Physics*, 10(3):033026/1–9, 2008.
- [221] M. Wiedemann. *Effiziente zeitliche Kompression eines optisch-parametrisch verstärkten Titan:Saphir-Laserpulses durch eine Kaskade von Konversion-Rückkonversion der Zweiten Harmonischen Nichtlinearität mit negativem chirp*. Diplomarbeit, Department Physik, Hamburg, 2006.
- [222] V. Kaufman and L. Minnhagen. Accurate ground-term combinations in Ne I. *Journal of the Optical Society of America*, 62(1):92–95, 1972.
- [223] W. Persson. The spectrum of singly ionized Neon, Ne II. *Physica Scripta*, 3(3):133–155, 1971.
- [224] F. Brandi, W. Hogervorst, and W. Ubachs. High-resolution vacuum-ultraviolet and ultraviolet photoionization spectroscopy of Krypton. *Journal of Physics B*, 35(4):1071–1084, 2002.

- [225] L. Minnhagen, H. Strihed, and B. Petersson. Revised and extended analysis of singly ionized Krypton, Kr II. *Arkiv för Fysik*, 39(34):471–493, 1969.
- [226] C.J. Humphreys. The third spectrum of Krypton. *Physical Review*, 47(10):712–717, 1935.
- [227] W. Finkelnburg and W. Humbach. Ionisierungsenergien von Atomen und Atomionen. *Naturwissenschaften*, 42(2):35–37, 1955.
- [228] E.B. Saloman. Energy levels and observed spectral lines of Krypton, Kr I through Kr XXXVI. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 36(1):215–386, 2007.
- [229] F. Brandi, I. Velchev, W. Hogervorst, and W. Ubachs. Vacuum-ultraviolet spectroscopy of Xe: hyperfine splittings, isotope shifts, and isotope-dependent ionization energies. *Physical Review A*, 64(3):032505/1–6, 2001.
- [230] J.E. Hansen and W. Persson. Revised analysis of singly ionized Xenon, Xe II. *Physica Scripta*, 36(4):602–643, 1987.
- [231] W. Persson, C.-G. Wahlström, G. Bertuccelli, H.O. Di Rocco, J.G. Reyna Almandos, and M. Gallardo. Spectrum of doubly ionized Xenon (Xe III). *Physica Scripta*, 38(3):347–369, 1988.
- [232] D.C. Gregory, P.F. Dittner, and D.H. Crandall. Absolute cross-section measurements for electron-impact ionization of triply charged inert-gas ions: Ne^{3+} , Ar^{3+} , Kr^{3+} , and Xe^{3+} . *Physical Review A*, 27(2):724–736, 1983.
- [233] E.B. Saloman. Energy levels and observed spectral lines of Xenon, Xe I through Xe LIV. *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, 33(3):765–921, 2004.

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. In erster Linie gilt mein Dank Herrn Prof. Dr. Markus Drescher, der es mir ermöglicht hat, in seiner Arbeitsgruppe an einer modernen und zukunftssträchtigen Großanlage, nämlich dem FLASH in Hamburg, zu arbeiten. Auch nach seinem Umzug von Bielefeld nach Hamburg war immer eine gute Betreuung der Arbeit gewährleistet. Für die Übernahme des Zweitgutachtens danke ich Herrn Prof. Dr. Andreas Hütten.

Für die gute Zusammenarbeit während der Messzeiten danke ich der gesamten Arbeitsgruppe "Femtosecond X-ray Physics" an der Universität Hamburg. Aufgrund der kollegialen Atmosphäre haben die Messzeiten immer Spass gemacht, auch wenn an einzelnen Messtagen die Ergebnisse ausgeblieben sind. Sehr große Unterstützung erhielt ich insbesondere von Herrn Dr. Theophilos Maltezopoulos. Neben vielen Auswertungen der Messergebnisse kümmerte er sich um die eingesetzten Kameras und um die Software zu deren Ansteuerung. Außerdem realisierte er die Online Normierung und sorgte dafür, dass die aufgenommenen Bilder mit Zeitstempeln versehen und damit eindeutig gekennzeichnet werden konnten. Darüber hinaus war er bereit, diese Arbeit mehrfach zu lesen und viele nützliche Korrekturvorschläge zu unterbreiten. Von zentraler Bedeutung für das Experiment war auch die Arbeit von Herrn Roland Kalms, der sich im Rahmen seiner Diplomarbeit mit dem Aufbau der hier eingesetzten E-Optik beschäftigt hatte und während der Messzeiten zu einem großen Teil deren Bedienung übernahm. Frau Ulrike Frühling hat sich insbesondere mit der Realisierung der Gasdüse, mit welcher das Targetgas definiert in das Wechselwirkungsvolumen eingelassen werden konnte, beschäftigt. Frau Dr. Maria Krikunova realisierte die erste Version der Zeitsonde, mit welcher die zeitliche Vorjustage von XUV und NIR Pulsen gelungen ist. Des weiteren war sie beteiligt an der Simulation der Fokusgeometrien der NIR Strahlung und an der Justage der NIR Strahlung im Experiment. Ein besonderer Dank gilt auch Herrn Dr. Marek Wieland. Neben der Justage der NIR Strahlung und auch deren Charakterisierung übernahm er während der Messzeiten viele organisatorische Aufgaben. Außerdem war er zum Korrektur lesen dieser Arbeit bereit und gab einige Verbesserungsvorschläge. Mein Dank gilt auch Herrn Filip Budzyn, Herrn Thomas Klee und Herrn Marc Wiedemann, die nicht zuletzt zu der guten Atmosphäre bei den Messzeiten beitrugen und die Messungen auch tatkräftig unterstützten. Lobend zu erwähnen sind nicht zuletzt die Maschinengruppe am DESY, die die Erzeu-

gung der benötigten XUV Strahlung von FLASH sicher gestellt hat, sowie diverse DESY Mitarbeiter für die intensive Betreuung und die Hilfestellungen bei den Messzeiten. Namentlich erwähnt werden sollen hier Herr Dr. Stefan Düsterer, Herr Dr. Harald Redlin, Herr Armin Azima und Frau Dr. Elke Plönjes-Palm.

Im Rahmen dieser Arbeit ist ein Kreuzkorrelator ganz neu aufgebaut worden. Das erforderte die Fertigung vieler mechanischer Bauteile (Wechselwirkungskammer, Gestell, MFT usw.) sowie diverser elektronischer Bauteile (z.B. Ansteuerung für die E-Optik). Mein Dank gilt daher insbesondere der Mechanik- und der Elektronikwerkstatt der Fakultät für Physik an der Universität Bielefeld für ihre schnelle und fachkundige Arbeit. Auch der Mechanikwerkstatt an der Universität Hamburg bin ich zu großem Dank verpflichtet für die Fertigung einiger mechanischer Bauteile und die zügige Durchführung von notwendigen Modifikationen an einigen Bauteilen während der Messzeiten.

Ich bedanke mich bei Herrn Prof. Dr. Ulrich Heinzmann für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe "Festkörper- und Oberflächenphysik" an der Universität Bielefeld und für die Bereitstellung von Labor- und Bürofläche während der Arbeit. Allen Mitarbeitern danke ich für die freundliche Aufnahme in ihren Arbeitskreis. Namentlich erwähnt werden sollen an dieser Stelle Herr Martin Michelswirth und insbesondere Herr Dr. Norbert Müller, die sich zum Korrektur lesen dieser Arbeit bereit erklärten und auch sonst für viele lehrreiche Diskussionsrunden bereitstanden. Für die tolle Büroatmosphäre während des Schreibens dieser Arbeit danke ich den Herrn Christian Strüber, Herrn Dominik Differt, Herrn Joachim Cerny und Herrn Christian Sander. Erwähnt werden soll an dieser Stelle auch Frau Erika Lütkehölter, die beim ersten Zusammenbau des mechanischen Gestells beteiligt war und mit der ich diverse Fahrten nach Hamburg getätigt habe.

Für ihre moralische Unterstützung danke ich meinen vielen Freunden, insbesondere Herrn Dr. Robert Gerke, der leider aus beruflichen Gründen Bielefeld in Richtung Süddeutschland verlassen hat, Frau Christiane Winkels, die ich während der Arbeit kennengelernt habe und die eine wichtige Bezugsperson geworden ist, und Frau Helen Menges, die diese Arbeit im Hinblick auf Rechtschreibung und Grammatik durchgelesen hat. Des weiteren danke ich Frau Romy Bergmann, Herrn Andreas Branding, Herrn Nils Bruning, Herrn Tomislav Cunovic, Herrn Dr. Matthias Döring, Frau Sabrina Haas, Frau Maria Harde, Herrn Stefan Hendel, Herrn Tim Kollmeier, Frau Anja Kollmeier, Herrn Daniel Krause, Herrn Marco Lang, Frau Susanne Lulic, Herrn Torsten Mußmann, Frau Daniela Paul, Frau Svenja Paul, Frau Stefanie Selle, Herrn Jawad Slied, Herrn Ralf Steins, Frau Sandra Steins, Herrn Sven Tesch, Herrn Christian Wein, Frau Verena Witt und Herrn Dr. Klaus Wojczykowski.

Abschließend möchte ich meiner Mutter danken, die mich immer sowohl finanziell als auch moralischem bei meinem Studium unterstützt hat. Diese Arbeit ist meinem Vater gewidmet, welcher während des Schreibens dieser Arbeit nach schwerer Krankheit unerwartet plötzlich verstorben ist.

Selbständigkeitserklärung

Hiermit versichere ich, die vorliegende Dissertationsarbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt zu haben.

Stefan Cunovic

Bielefeld, den 01.08.2008