

Lichtfeld getriebene Streak-Kamera zur
Einzelschuss Zeitstrukturmessung der
XUV-Pulse eines Freie-Elektronen
Lasers

Dissertation

zur Erlangung des Doktorgrades
des Fachbereichs Physik
der Universität Hamburg

vorgelegt von

Ulrike Frühling
aus Hamburg

Hamburg
2009

Gutachter der Dissertation	Prof. Dr. Markus Drescher Prof. Dr. Jörg Roßbach
Gutachter der Disputation	Prof. Dr. Markus Drescher Prof. Dr. Klaus Sengstock
Datum der Disputation	28. September 2009
Vorsitzender des Prüfungsausschusses	Dr. Georg Steinbrück
Vorsitzender des Promotionsausschusses	Prof. Dr. Robert Klanner
Dekan der Fakultät für Mathematik, Informatik und Naturwissenschaften	Prof. Dr. Heinrich H. Graener

Light field driven streak-camera for single-shot measurements of the temporal profile of XUV-pulses from a free-electron laser

The Free Electron Laser in Hamburg (FLASH) is a source for highly intense ultra short extreme ultraviolet (XUV) light pulses with pulse durations of a few femtoseconds. Due to the stochastic nature of the light generation scheme based on self amplified spontaneous emission (SASE), the duration and temporal profile of the XUV pulses fluctuate from shot to shot. In this thesis, a THz-field driven streak-camera capable of single pulse measurements of the XUV pulse-profile has been realized. In a first XUV-THz pump-probe experiment at FLASH, the XUV-pulses are overlapped in a gas target with synchronized THz-pulses generated by a new THz-undulator. The electromagnetic field of the THz light accelerates photoelectrons produced by the XUV-pulses with the resulting change of the photoelectron momenta depending on the phase of the THz field at the time of ionisation. This technique is intensively used in attosecond metrology where near infrared streaking fields are employed for the temporal characterisation of attosecond XUV-Pulses. Here, it is adapted for the analysis of pulse durations in the few femtosecond range by choosing a hundred times longer far infrared streaking wavelengths. Thus, the gap between conventional streak cameras with typical resolutions of hundreds of femtoseconds and techniques with attosecond resolution is filled. Using the THz-streak camera, the time dependent electric field of the THz-pulses was sampled in great detail while on the other hand the duration and even details of the time structure of the XUV-pulses were characterized.

Zusammenfassung

Der Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH) ist eine Quelle für hochintensive ultrakurze extrem-ultraviolette (XUV)-Lichtpulse mit Pulslängen von einigen Femtosekunden. Die stochastische Natur der zur Erzeugung der Strahlung benutzten Methode der selbstverstärkten spontanen Emission (SASE) führt zu Schuss zu Schuss Fluktuationen der Länge und Zeitstruktur der XUV-Pulse. Im Rahmen dieser Arbeit wurde eine THz-Feld getriebene Streak-Kamera zur Einzelschussmessung der Zeitstruktur der XUV-Pulse entwickelt. In diesem ersten XUV-THz Pump-Probe- Experiment bei FLASH werden die XUV-Pulse in einem Edelgas mit synchronisierten THz-Pulsen aus einem neuen THz-Undulator überlagert. Das elektrische Feld des THz-Lichts wird benutzt, um von den XUV-Pulsen erzeugte Photoelektronen zu beschleunigen, wobei die daraus resultierende Energieänderung von der Pha-

se des elektrischen Feldes zum Ionisationszeitpunkt abhängt. Diese Messmethode stammt aus der Attosekunden-Metrologie, in der nah-infrarot-Licht zur zeitlichen Charakterisierung von Attosekunden-XUV Pulsen verwendet wird. Durch die Wahl einer etwa 100-fach längeren fern-infraroten Wellenlänge des Lichtfeldes wird die Methode hier auf Zeitmessungen im Femtosekundenbereich übertragen. Dadurch wird die Lücke zwischen Messmethoden im Attosekundenbereich und konventionellen Streak-Kameras mit typischen Auflösungen von einigen hundert Femtosekunden geschlossen. Mit der THz-Streak-Kamera konnte zum einen das THz-Lichtfeld detailliert abgetastet, zum anderen die Pulslängen und z. T. auch die detaillierte Zeitstruktur einzelner XUV-Pulse charakterisiert werden.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	2
2	Experimentier Umfeld	5
2.1	Freie-Elektronen-Laser	5
2.1.1	Undulatorstrahlung	7
2.1.2	SASE	8
2.1.3	Freier-Elektronen-Laser in Hamburg	10
2.1.4	Eigenschaften der Strahlung	14
2.1.5	Vergleich mit anderen Quellen	19
2.2	THz-Undulator	22
2.2.1	Der Undulator	22
2.2.2	Eigenschaften der Strahlung	24
3	Prinzip der Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera	27
3.1	Klassische Beschreibung	29
3.2	Quantenmechanische Beschreibung	34
3.3	Rekonstruktion von Gaußpulsen mit linearem Chirp	36
3.4	Alternative Methoden zur Messung ultra kurzer XUV-Pulse	40
4	Aufbau einer THz-Feld getriebenen Streak-Kamera bei FLASH	42
4.1	XUV-Strahlführung	42
4.2	THz-Strahlführung	45
4.2.1	Delayline und Ankunftszeitmessung	46
4.2.2	Simulation der THz-Strahlung	47
4.2.3	Gouy-Phasenverschiebung	48
4.3	Diagnostik	50
4.4	Gasdüse	51
4.5	Elektronen-Flugzeitspektrometer	53
5	Charakterisierung des THz-Feldes	57
5.1	Messungen ohne Bandpassfilter	58

5.2	Messungen mit Bandpassfilter	60
5.3	Fluktuation der Ankunftszeit und Feldstärke der THz-Pulse .	63
6	Messung der Zeitstruktur der FLASH-XUV-Pulse	68
6.1	Mittlere Pulslänge und mittlerer Chirp	69
6.2	Zeitstruktur einzelner XUV-Pulse	76
6.3	XUV-Spektrum und Pulsenergieverteilung	85
7	Zusammenfassung und Ausblick	88

Abbildungsverzeichnis

2.1	Vergleich der Spitzenbrillanz einiger FELs und moderner Synchrotrons [SDR08].	6
2.2	Elektronentrajektorie und Lichtwelle im Undulator bei dauerhaftem Energietransfer vom Elektron an das Lichtfeld.	9
2.3	Schematische Darstellung der selbstverstärkten spontanen Emission (SASE) im Undulator.	11
2.4	Schematischer Aufbau von FLASH.	12
2.5	Simulierter Strom und mittlere Energie eines Elektronenpaketes bei FLASH.	13
2.6	Pulsfolge bei FLASH.	14
2.7	Verteilung von Einzelschusspulsenergien bei FLASH.	16
2.8	Einzelschussspektren des TTF-FELs.	17
2.9	Simulierte Zeitstruktur dreier FLASH-Pulse mit einer Wellenlänge von 13,7 nm.	18
2.10	Berechnete Pulsenergie der THz-Strahlung.	24
2.11	Simuliertes elektrisches Feld und Spektrum der THz-Strahlung.	25
2.12	THz-Spektrum.	26
3.1	Schematische Darstellung einer konventionellen Streak-Kamera.	28
3.2	Schematische Darstellung einer Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera.	30
3.3	Schematische Darstellung der Projektion der Zeitstruktur des XUV-Pulses auf Impulsänderungen von Photoelektronen.	33
3.4	Lichtfeldgetriebene Streak-Kamera für einen XUV-Puls mit linearem Chirp.	37
4.1	Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus.	43
4.2	Mit GMD gemessene XUV-Pulsenergien.	45
4.3	Schematischer Aufbau der THz-Beamline.	47
4.4	Gouy-Phasenverschiebung.	49

4.5	Schirm und Detektor zur Justage der THz- und XUV-Foki; Bild des XUV-Fokus, der von der sichtbaren Undulatorstrahlung überlagert ist.	51
4.6	Gasdichteverteilung in der Wechselwirkungszone.	52
4.7	Transmission der Elektronenspektrometer.	55
4.8	Auflösungsvermögen der Elektronenspektrometer.	56
5.1	Messung des THz-Vektorpotentials ohne Bandpassfilter.	59
5.2	Elektrisches Feld und Spektrum der THz-Pulse, ohne Bandpassfilter.	60
5.3	Messung des THz-Vektorpotentials mit Bandpassfilter.	61
5.4	Vektorpotentialfit	62
5.5	Schematische Darstellung der Messung der Ankunftszeit- und THz-Feld-Fluktuationen.	64
5.6	Histogramme von mittleren Photoelektronenenergien, aufgenommen zur Messung des Jitters.	65
5.7	Histogramm von mittleren Photoelektronenenergien, aufgenommen zur Messung der THz-Feldstärkefluktuation.	67
6.1	Photoelektronenspektren von drei einzelnen XUV-Pulsen, parallel und senkrecht zur THz-Polarisation aufgenommen.	70
6.2	Histogramme der rms-Breiten von Photoelektronenspektren.	71
6.3	Histogramm der rms-Pulslängen von 1000 einzelnen XUV-Pulsen.	75
6.4	Photoelektronenspektren von drei einzelnen XUV-Pulsen.	78
6.5	Schematische Darstellung der benutzten Fitparameter.	81
6.6	Rekonstruktion der Zeitstruktur zweier XUV-Pulse.	82
6.7	Spektren einzelner XUV-Schüsse, aufgenommen mit einem Gitterspektrometer.	86
6.8	Histogramm von normierten Einzelschusspulsenenergien.	87
1	Schematische Darstellung von Lichtpulsen mit Chirp.	91
2	Schematische Darstellung eines Gaußstrahls.	93
3	Experimenteller Aufbau.	95
4	Transmission des THz-Bandpassfilters.	96

Tabellenverzeichnis

2.1	THz-Undulatorparameter [FIR05].	22
4.1	Simulierte Fokusgrößen und Rayleighlängen der THz-Strahlung bei unterschiedlichen Fokussierspiegelbrennweiten.	48
4.2	Gouy-Phasen bei unterschiedlichen Fokussierspiegelbrennweiten.	50
5.1	Streak-Geschwindigkeit bei unterschiedlichen THz-Spiegelbrennweiten.	63

Kapitel 1

Einleitung

Freie-Elektronen-Laser (FELs) sind neue Quellen für hochintensive ultrakurze Lichtpulse im XUV bis Röntgenbereich, deren Spitzenintensität um mehrere Größenordnungen über denen anderer Quellen liegt. Der Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH) ist dabei der erste FEL, mit dem sich Lichtpulse im extrem ultravioletten (XUV) Wellenlängenbereich erzeugen lassen [A⁺07]. Mehrere FELs mit denen Röntgenlicht mit Wellenlängen bis zu 1 Angström erzeugt werden sollen, werden zurzeit gebaut [A⁺06a, A⁺06b, S⁺08a]. Die hochintensive FEL-Strahlung ermöglicht neue Experimente in vielen Gebieten der Physik, so konnten bei FLASH unter Anderem bereits Experimente in der Röntgenbeugung [B⁺08], Plasma- [Z⁺], Cluster- [W⁺02, B⁺], Atom- [S⁺, R⁺, E⁺, M⁺c], Molekül- und Festkörperphysik durchgeführt werden. Neben der extrem hohen Intensität zeichnen sich die FEL-Pulse durch sehr kurze Pulslängen im Femtosekunden ($1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$) Bereich aus, so dass sie zeitaufgelöste Pump-Probe Experimente mit fs-Auflösung ermöglichen. Bei diesen Experimenten wird ein System durch einen sogenannten Pump-Lichtpuls angeregt und der angeregte Zustand mit einem zweiten Lichtpuls, dem Probe-Puls, untersucht. Durch Wiederholen der Messung bei unterschiedlichen Zeitabständen zwischen Pump- und Probe-Puls lässt sich so die zeitliche Entwicklung des angeregten Zustands untersuchen [Zew, Dre]. Dabei ist die zeitliche Auflösung durch die Länge der Lichtpulse begrenzt.

Auf Grund der bei FLASH zur Erzeugung der XUV-Pulse verwendeten Methode der Verstärkung spontaner Strahlung, fluktuieren die Pulsparameter wie Spektrum, Pulsenergie und Zeitstruktur von Puls zu Puls. Eine Möglichkeit, die Auflösung von Experimenten, die empfindlich von diesen Parametern abhängen, zu verbessern, ist es, die Pulsparameter für jeden einzelnen XUV-Puls zu messen und im Experiment die gemessenen Daten danach zu sortieren. Um erstmals die Zeitstruktur der FLASH-XUV Pulse in ei-

nem Einzelschussverfahren zu messen, wurde im Rahmen dieser Arbeit eine THz-Feld getriebene Streak-Kamera entwickelt. Diese Zeitstrukturmessung wird es ermöglichen, z.B. für Pump-Probe-Experimente nur die kürzesten Lichtpulse auszuwählen und so ihre Zeitauflösung zu verbessern. Auch die Auflösung von Experimenten, die empfindlich von der Intensität der XUV-Pulse abhängen, kann durch eine die Zeitstrukturmessung verbessert werden.

Das Experiment beruht auf der Idee, durch Photoionisation Elektronenpakete zu erzeugen, die die gleiche Zeitstruktur wie die XUV-Pulse haben. Das elektrische Feld eines überlagerten Lichtpulses wird dann verwendet, um die Photoelektronen zu beschleunigen und die Zeitstruktur der XUV-Pulse auf Photoelektronenenergien zu projizieren. Diese Messmethode wurde zur Charakterisierung von Attosekunden-Pulsen aus Höheren-Harmonischen Quellen entwickelt [K⁺04, I⁺02], wobei die XUV-Pulse mit Laserpulsen im nah-infraroten Wellenlängenbereich überlagert wurden. Auf diese Art konnten die kürzesten je erzeugten Lichtpulse mit Pulslängen von nur wenigen hundert Attosekunden ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) charakterisiert werden. Eine Voraussetzung für diese Messungen ist, dass die Periodendauer des zur Beschleunigung der Elektronen verwendeten Lichts viel länger sein muss, als die Pulsdauer der XUV-Pulse. Um die Messmethode auf die FLASH-XUV-Pulse, deren Pulslängen bis zu einige zehn Femtosekunden betragen, übertragen zu können, wird daher extrem langwellige Strahlung im THz-Bereich mit Periodendauern von einigen hundert fs benötigt. Diese Strahlung kann seit letztem Jahr bei FLASH mit einem neuen THz-Undulator erzeugt werden.

Durch diese Kombination von intensiven XUV und THz-Pulsen konnte so im Rahmen dieser Arbeit erstmalig die Zeitstruktur von XUV-Pulsen mit Pulslängen im fs-Bereich in einem Einzelschussverfahren gemessen werden. Außerdem war es erstmals möglich, den linearen Chirp der FLASH-XUV-Pulse zu bestimmen.

Diese Arbeit ist wie folgt aufgebaut: im zweiten Kapitel werden zunächst die Funktionsweise von FLASH und die Eigenschaften der FLASH XUV-Pulse zusammengefasst sowie die benutzte THz-Quelle beschrieben. Im dritten Kapitel wird ausführlich die Methode der lichtfeldgetriebenen Streak-Kamera und die Möglichkeit der Pulslängenrekonstruktion vorgestellt, außerdem wird kurz auf mögliche alternative Pulslängenmessungen bei FLASH eingegangen. In Kapitel vier folgt eine ausführliche Beschreibung des experimentellen Aufbaus. Das Experiment kann benutzt werden, um detailliert das zeitabhängige elektrische Feld des THz-Pulses zu messen. Diese Messergebnisse werden in Kapitel fünf vorgestellt. In Kapitel sechs folgen die Messungen der Länge und Zeitstruktur der FLASH-Pulse und schließlich werden in

Kapitel sieben die Ergebnisse kurz zusammengefasst.

Kapitel 2

Experimentier Umfeld

2.1 Freie-Elektronen-Laser

Freie-Elektronen-Laser sind eine Weiterentwicklung der bereits seit mehreren Jahrzehnten zur Erzeugung von intensivem Röntgenlicht benutzten Synchrotron-Quellen. Bei Synchrotrons werden Elektronen in Ringbeschleunigern auf relativistische Geschwindigkeiten beschleunigt und durch periodische Magnetstrukturen, sogenannte Undulatoren oder Wiggler, abgelenkt. Durch die Lorentzkraft werden die Elektronen senkrecht zu ihrer Flugrichtung beschleunigt und emittieren Synchrotronstrahlung. Die ausgesandte Strahlung ist in der Regel nicht kohärent und die abgestrahlte Leistung ist proportional zur Anzahl der Elektronen $P \propto N_e$. Die Idee bei den Freie-Elektronen-Lasern ist es, die Elektronen dazu zu zwingen kohärent Licht auszusenden. Dies führt dazu, dass die abgestrahlte Leistung proportional zum Quadrat der Elektronenanzahl wird $P \propto N_e^2$, was bei typischen Zahlen von $N_e \sim 10^6$ Elektronen in einem Kohärenzbereich zu einem enormen Anstieg der Strahlungsleistung führt. Die Leuchtstärke von Synchrotron-Quellen wird in der Regel durch ihre Brillanz beschrieben, die die Anzahl monochromatischer Photonen pro Zeit, Fläche und Raumwinkel angibt. Abb. 2.1 zeigt die Spitzenbrillanz des Freie-Elektronen-Lasers in Hamburg, sowie zweier geplanter Röntgen-FELs im Vergleich zu einigen modernen Synchrotron-Quellen. Die Spitzenbrillanz der Freie-Elektronen-Laser ist um bis zu acht Größenordnungen größer als die der Synchrotronstrahlungsquellen.

Neben der hohen Brillanz zeichnen sich die Röntgen-FELs durch ihre extrem kurzen Pulslängen aus. Diese liegen im Femtosekunden-Bereich und sind damit um drei Größenordnungen kürzer als die Pulslängen an Synchrotrons, die im Bereich zwischen einigen zehn und einigen hundert Pikosekunden liegen. Diese kurzen Pulse ermöglichen es mit Pump-Probe-Experimenten

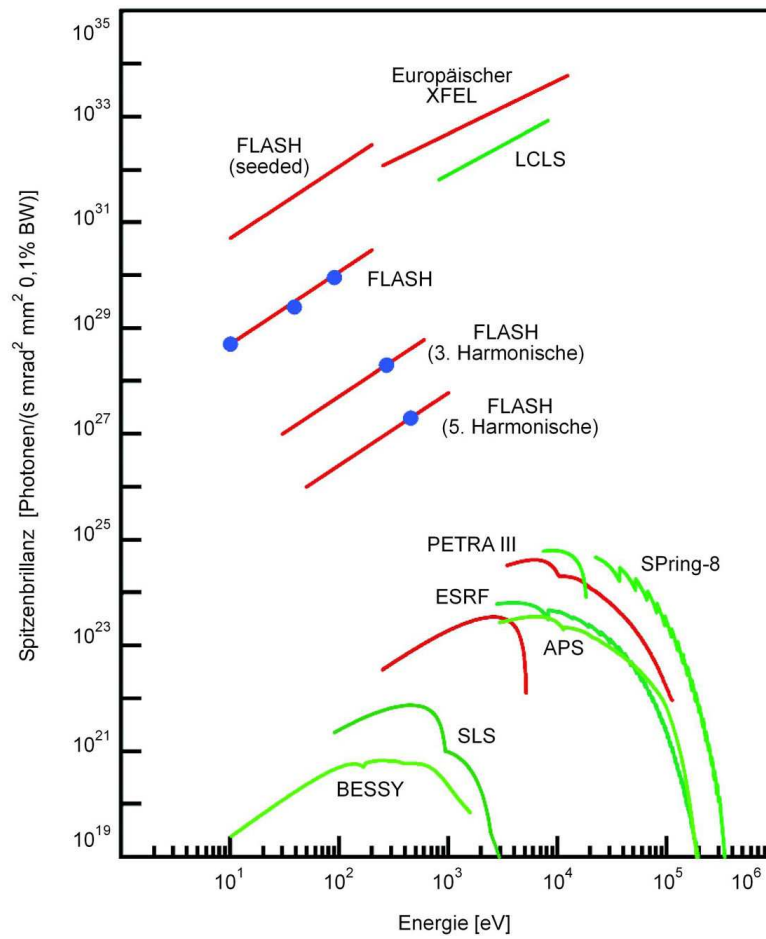


Abbildung 2.1: Vergleich der Spitzenbrillanz einiger FELs und moderner Synchrotrons [SDR08].

zeitaufgelöste Messungen im XUV- bis Röntgenbereich durchzuführen. Solche Messungen im XUV-Bereich mit Femtosekunden-Auflösung waren bisher nur mit Strahlung aus Höheren Harmonischen Quellen oder Laser induzierten Plasmen möglich. Allerdings haben diese Quellen nur eine sehr geringe Intensität (siehe Kap. 2.1.5).

In diesem Kapitel wird zunächst auf die in Undulatoren erzeugte Synchrotronstrahlung eingegangen. Danach wird in Kap. 2.1.2 beschrieben, wie beim Freie-Elektronen-Laser die Wechselwirkung der Elektronen mit dem von ihnen ausgesandten Strahlungsfeld dazu führt, dass die Elektronen ihre Strahlung kohärent abgeben. In Kap. 2.1.3 wird der Freie-Elektronen-Laser in Hamburg vorgestellt, Kap. 2.1.4 gibt einen Überblick über die wichtigsten Eigenschaften der bei FLASH erzeugten XUV-Strahlung. In Kap. 2.1.5 werden unterschiedliche XUV-Quellen verglichen.

2.1.1 Undulatorstrahlung

Undulatoren bestehen aus einer Reihe von Dipolmagneten, die in wechselnder Nord-Süd-Ausrichtung periodisch hintereinander angeordnet sind (siehe Abb. 2.3, oben). Wenn schnelle Elektronen durch den Undulator fliegen, werden sie durch die Lorentzkraft senkrecht zu ihrer Flugrichtung beschleunigt, so dass sie sich auf einer wellenförmigen Bahn durch den Undulator bewegen. In jeder Periode emittieren sie Synchrotronstrahlung in einen schmalen Kegel in Vorwärtsrichtung. Die Strahlung, die in den einzelnen Undulatorperioden abgegeben wird, überlappt und interferiert. Die Wellenlänge der ersten Harmonischen der Strahlung λ_{ph} ist abhängig von dem Magnetfeld und der Energie der Elektronen [Ma01]:

$$\lambda_{ph} = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right), \quad (2.1)$$

wobei $\gamma = \frac{E}{m_e c^2}$ der relativistische Faktor, λ_u die Periode des Undulators und $K = \frac{eB_0\lambda_u}{2\pi m_e c}$ der Undulatorparameter ist. Dabei bezeichnet B_0 das maximale magnetische Feld des Undulators auf der Undulatorachse. Der Undulatorparameter gibt das Verhältnis zwischen dem mittleren Ablenkwinkel der Elektronen und dem typischen Öffnungswinkel der Synchrotronstrahlung an. Die Wellenlänge lässt sich durch Änderung der Elektronenenergien oder des Magnetfeldes beliebig einstellen.

Die Strahlung der einzelnen Elektronen hat keine feste Phasenbeziehung zueinander, sondern überlagert sich inkohärent. Die Intensität der Strahlung ist daher proportional zur Anzahl der Elektronen $\propto N_e$. Die Undulatorstrahlung

ist in der Regel linear polarisiert, wobei die Polarisationsrichtung senkrecht zum Magnetfeld liegt.

2.1.2 SASE

Alle bisher realisierten FELs im Wellenlängenbereich kleiner als UV-Licht werden nach dem sogenannten SASE-Prinzip betrieben. SASE bedeutet „Self-Amplified-Spontaneous-Emission“, also selbst verstärkte spontane Emission. In einem SASE-FEL wird ein räumlich und zeitlich stark komprimiertes Elektronenpaket durch einen langen Undulator geschossen. Im Undulator überlagert sich die von den Elektronen am Anfang des Undulators spontan emittierte Synchrotronstrahlung mit den Elektronen. Während die Elektronen durch den Undulator oszillieren, wechselwirken sie mit dieser Strahlung. Dadurch wird die Dichte des Elektronenpakets so moduliert, dass das Strahlungsfeld verstärkt wird.

Das Lichtfeld, in dem sich die Elektronen bewegen, sei gegeben durch $E_x(z, t) = E_0 \cos(k_l z - \omega t + \psi_0)$. Damit das Feld verstärkt wird, müssen die Elektronen Energie an das Lichtfeld abgeben. Die Änderung der Energie eines sich mit der Geschwindigkeit \vec{v} bewegendes Elektrons durch die Wechselwirkung mit dem Lichtfeld ist gegeben durch:

$$\frac{dW}{dt} = \vec{v} \cdot \vec{F} = -e v_x(t) E_x(t). \quad (2.2)$$

Das Elektron gibt Energie an das Lichtfeld ab, wenn gilt $dW/dt < 0$. Dies ist immer dann der Fall, wenn v_x und E_x in die gleiche Richtung zeigen. Das Licht breitet sich mit Lichtgeschwindigkeit c in z -Richtung aus. Die mittlere Geschwindigkeit der Elektronen in z -Richtung beträgt nur $\bar{v}_z = c(1 - \frac{2+K^2}{4\gamma^2})$. Die Elektronen bewegen sich also langsamer und werden von dem Lichtfeld überholt. Wenn das Lichtfeld pro halber Undulatorperiode die Elektronen um eine halbe optische Wellenlänge überholt, ist es möglich, dass permanent Energie von den Elektronen an das Lichtfeld abgegeben wird (siehe Abb. 2.2). Es lässt sich zeigen ([SDR08]), dass diese Bedingung erfüllt ist für Licht mit einer Wellenlänge von:

$$\lambda_{ph} = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right). \quad (2.3)$$

Dies ist genau die Wellenlänge der ersten Harmonischen der Undulatorstrahlung (Gleichung 2.1). Neben der ersten Harmonischen können auch alle ungeraden höheren Harmonischen des Lichtes ($\lambda = \lambda_{ph}/3, \lambda_{ph}/5, \dots$) verstärkt werden. Bei den geraden höheren Harmonischen ($\lambda = \lambda_{ph}/2, \lambda_{ph}/4, \dots$)

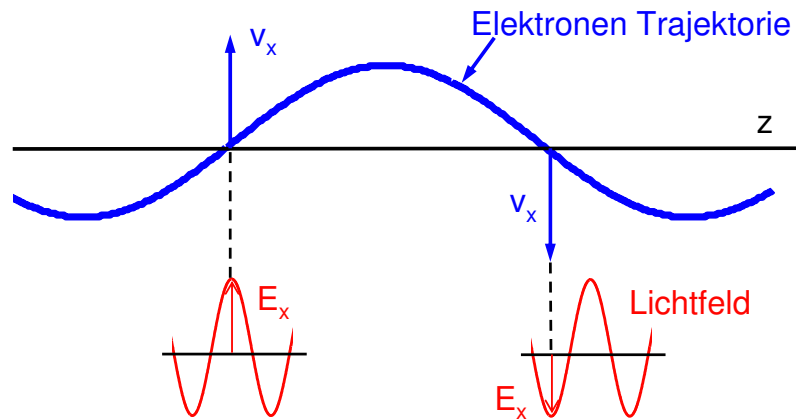


Abbildung 2.2: Elektronentrajektorie und Lichtwelle im Undulator bei dauerhaftem Energietransfer vom Elektron an das Lichtfeld.

dagegen wird die vom Elektron in einer halben Undulatorperiode abgegebene Energie in der folgenden Undulatorperiode immer wieder an das Elektron zurückgegeben, so dass kein Nettoenergieübertrag an das Lichtfeld stattfindet und die geraden Harmonischen nicht verstärkt werden können.

Wie in Abb. 2.2 zu sehen ist, gibt es Elektronen, die während der Propagation durch den Undulator dauerhaft Energie an das Lichtfeld abgeben. Elektronen, die bezüglich dieser Elektronen um eine halbe Periode des Lichtfeldes verschoben sind, werden hingegen dauerhaft Energie vom Lichtfeld aufnehmen, so dass bei einem Elektronenpaket, das länger ist als eine Lichtwellenlänge, der Energieübertrag zwischen Lichtfeld und Elektronen zunächst im Mittel null ist. Es lässt sich zeigen ([SDR08]), dass sich durch Wahl einer leicht längeren Wellenlänge des Lichtfeldes als der Resonanz-Wellenlänge aus Gleichung 2.3 ein leichter mittlerer Energietransfer von den Elektronen an das Lichtfeld erreichen lässt. Diese Methode wird in den sogenannten Low-Gain-FELs benutzt, bei denen sich der Undulator zwischen zwei Resonatorspiegeln befindet und sich nach vielen Durchläufen des Elektronenpakets langsam ein intensives Lichtfeld im Undulator aufbaut. Bei kurzweilliger Strahlung jenseits des UV-Bereiches gibt es jedoch keine Spiegel, deren Reflektivität ausreicht, um einen Resonator zu bauen, so dass diese Methode hier nicht anwendbar ist, sondern das Lichtfeld in einem einzigen Durchlauf durch einen sehr langen Undulator erzeugt wird. Beim Durchlauf durch diesen langen Undulator geben die Elektronen, abhängig von ihrer relativen Phase zum Lichtfeld, entweder Energie an das Lichtfeld ab oder nehmen Energie von diesem auf. Das heißt, sie werden entweder beschleunigt oder abgebremst. Dies führt dazu, dass die longitudinale Geschwindigkeit \bar{v}_z der Elektronen mit der

Wellenlänge λ_{ph} des Lichtes moduliert wird. Diese Geschwindigkeitsmodulation führt zu einer Dichtemodulation des Elektronenpaketes, dem sogenannten Micro-Bunching. Die longitudinale Verteilung der Elektronen entspricht dann dünnen, sehr dichten Scheiben (Micro-Bunches) deren Abstand einer Wellenlänge des Lichtes λ_{ph} entspricht. Dies führt dazu, dass mehr und mehr Elektronen in Phase strahlen und sich damit ihre Strahlung kohärent überlagert, was zu einem dramatischen Anstieg der Strahlungsintensität führt. Am Anfang des Prozesses strahlen alle N_e Elektronen unabhängig voneinander und die Intensität der spontanen Emission ist proportional zu Anzahl der Elektronen $P \propto N_e$. Bei vollständigem Micro-Bunching strahlen alle Elektronen in Phase und die Strahlungsintensität ist proportional zum Quadrat der Elektronenanzahl $P \propto N_e^2$.

Abb. 2.3 zeigt schematisch die selbstverstärkte spontane Emission (SASE) im Undulator. Im unteren Teil sind die Modulation der Elektronendichte und der daraus resultierende Anstieg der Strahlungsleistung dargestellt. Im sogenannten Exponentiellen-Gain-Regime ist die Dichtemodulation der Elektronenpakete noch unvollständig und die Strahlungsleistung wächst exponentiell mit der im Undulator zurückgelegten Strecke z :

$$P(z) \propto \exp\left(\frac{z}{L_G}\right), \quad (2.4)$$

wobei L_G eine Gain-Länge bezeichnet. Für eine Wellenlänge von 13,7 nm wurde bei Flash eine Gainlänge von etwa 2,5 m bestimmt. Bei vollständiger Dichtemodulation des Elektronenpakets sättigt die Strahlungsleistung. In der Regel ist es immer das Ziel, den FEL in Sättigung zu betreiben, dies ist aber auf Grund der extrem hohen Anforderungen an den Elektronenstrahl, nicht immer möglich.

2.1.3 Freier-Elektronen-Laser in Hamburg

Der Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH) ist ein High-Gain-SASE-FEL bei dem Elektronen in einem Linearbeschleuniger beschleunigt werden und in einem einzigen Durchgang durch einen langen Undulator nach dem SASE-Prinzip extrem intensive ultrakurze Lichtblitze erzeugen. Die Wellenlänge der Strahlung liegt im XUV-Bereich und lässt sich zwischen 6,5 und 60 nm einstellen. Abb. 2.4 zeigt einen schematischen Aufbau von FLASH. Die Elektronenpakete werden in einer RF-Elektronenkanone erzeugt. Dabei werden kurze UV-Laserpulse auf eine Photokathode geschossen. Die Photokathode befindet sich in einer Radiofrequenz (RF) Kavität, in der die freigesetzten Elektronen sofort beschleunigt werden. Die Elektronenpakete werden

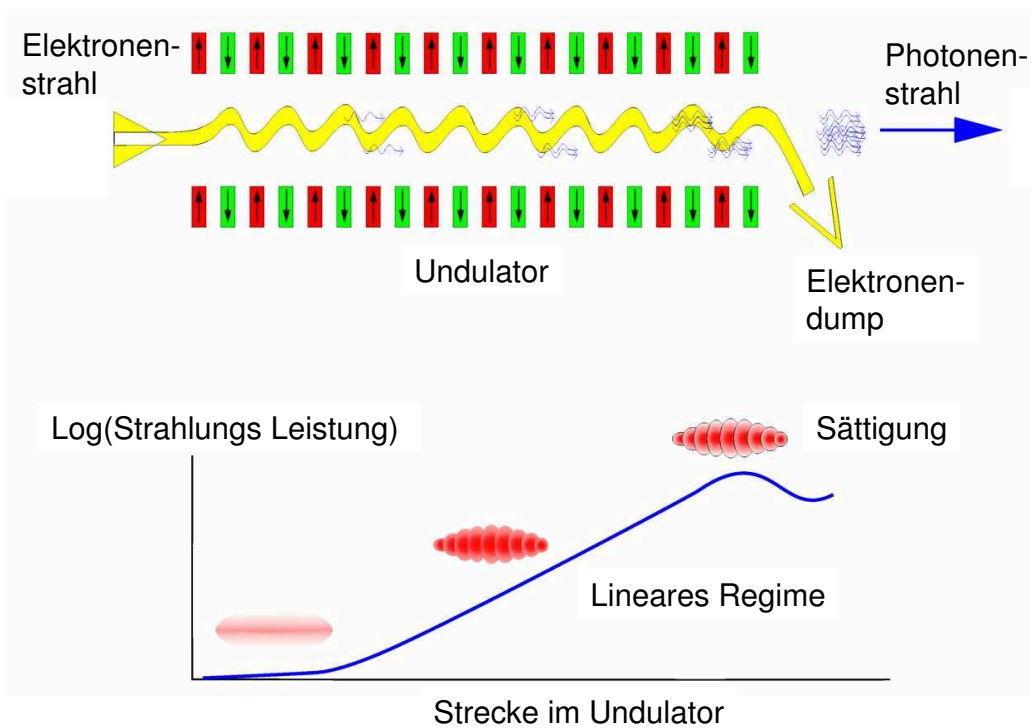


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der selbstverstärkten spontanen Emission (SASE) im Undulator. Im unteren Teil sind die Modulation der Elektronendichte und der daraus resultierende exponentielle Anstieg der Strahlungsleistung im Undulator dargestellt. Bei maximaler Modulation sätigt die Strahlungsleistung [A⁺02b].

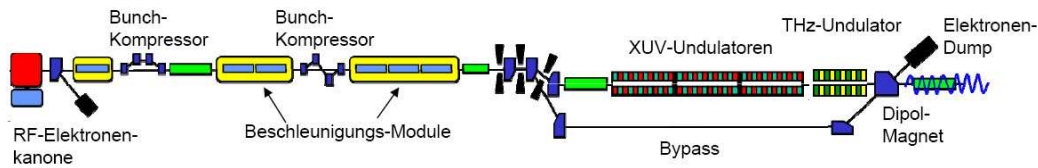


Abbildung 2.4: Schematischer Aufbau des Freien-Elektronen-Lasers in Hamburg [A⁺02b].

dann mit insgesamt sechs weiteren, je 12 m langen supraleitenden Beschleunigungsmodulen auf Energien von bis zu 1 GeV beschleunigt.

Zwischen den Beschleunigungsmodulen befinden sich zwei aus magnetischen Schikanen bestehende Bunch-Kompressoren, mit denen sich die Elektronenpakete longitudinal komprimieren lassen. Die Kompression läuft in zwei Schritten ab, zuerst wird in den Beschleunigungsmodulen eine Energievariation entlang des Elektronenpaketes erzeugt, so dass die Elektronen am Anfang des Elektronenpaketes eine leicht geringere Energie haben als die Elektronen am Ende. In der magnetischen Schikane ist die Weglänge der hinteren Elektronen mit höherer Energie etwas kürzer als die der vorderen Elektronen, so dass sie diese einholen können. Die Form der so komprimierten Elektronenpakete bei FLASH setzt sich im aktuellen Betriebsmodus zusammen aus einer stark komprimierten Pulsspitze, die weniger als 100 fs lang ist und einem mehrere ps langen Ausläufer. In Abb. 2.5 ist die simulierte Form eines Elektronenpaketes, das zur Erzeugung von 13,7 nm Strahlung benutzt wird, dargestellt. Die durchgezogene Linie gibt den Strom an, der proportional zur Dichte des Elektronenpaketes ist, die gestrichelte Linie gibt die mittlere Energie der Elektronen an. Der Kopf des Elektronenpaketes befindet sich auf der rechten Seite.

Hinter den Beschleunigungsmodulen befinden sich die FLASH-Undulatoren. Es gibt insgesamt sechs baugleiche, je 4,5 m lange XUV-Undulatoren, die aus periodisch angeordneten Permanentmagneten bestehen. Die Periode des Undulatormagnetfeldes beträgt 27,3 mm und das maximale Magnetfeld 0,45 T. Der Abstand zwischen den Magneten ist fest und das Undulatormagnetfeld lässt sich daher nicht verändern. Die Wellenlänge der Strahlung (Gleichung 2.3) lässt sich daher nur durch Ändern der Elektronenenergie einstellen. Hinter den XUV-Undulatoren befindet sich noch ein THz-Undulator, mit dem intensive THz-Strahlung erzeugt werden kann (siehe Kap. 2.2). Kurz hinter dem THz-Undulator wird der Elektronenstrahl mit einem Dipolmagneten abgelenkt und im Elektronendump vernichtet.

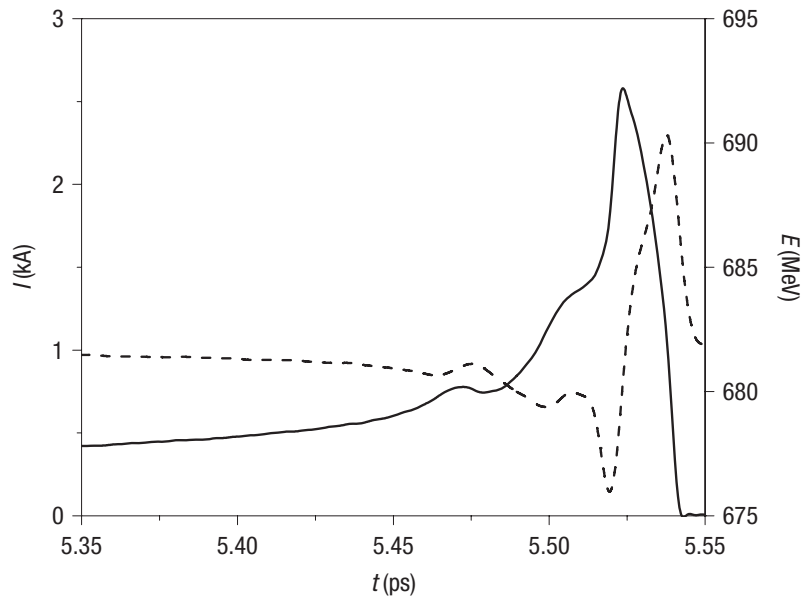


Abbildung 2.5: Simulierter Strom (durchgezogene Linie) und mittlere Energie (gestrichelte Linie) eines Elektronenpaketes bei FLASH. Die FEL-Strahlung wird nur von dem Teil des Elektronenpaketes mit der höchsten Elektronen Dichte, also dem höchsten Strom erzeugt. Die Energie der Elektronen steigt in diesem Bereich kontinuierlich an. Der Kopf des Pulses befindet sich auf der rechten Seite (aus [A⁺07]).

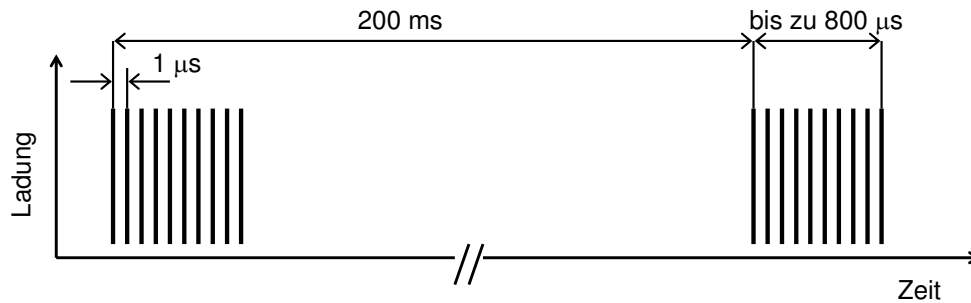


Abbildung 2.6: Zeitliche Abfolge der Elektronenpakete bei FLASH. Die Elektronenpakete werden in Pulszügen, von bis zu 800 einzelnen Pulsen im Abstand je einer μs erzeugt. Der Abstand der Pulszüge beträgt 200 ms.

Um das RF-Feld in den Beschleunigungsmodulen möglichst effektiv auszunutzen, werden die Elektronenpakete bei FLASH in Pulszügen, sogenannten Makropulsen erzeugt. Jeder Makropuls setzt sich zusammen aus bis zu 800 einzelnen Elektronenpaketen, wobei die einzelnen Elektronenpakete jeweils einen Abstand von einer μs zueinander haben (siehe Abb. 2.6). Der Abstand der Makropulse beträgt 200 ms. Da jedes Elektronenpaket einen XUV-Puls erzeugt, entspricht die zeitliche Abfolge der Elektronenpakete auch der zeitlichen Abfolge der XUV-Pulse.

2.1.4 Eigenschaften der Strahlung

Die Strahlung von Freien-Elektronen-Lasern (FELs) ist der Strahlung von konventionellen Lasern in einigen Eigenschaften sehr ähnlich. So ist sie intensiv, hat eine relativ schmale Bandbreite, sowie eine große räumliche Kohärenz. Der Hauptunterschied zwischen konventionellen Lasern und FELs im Wellenlängenbereich kürzer als UV ist, dass die FELs keinen Resonator haben, sondern wie oben beschrieben spontane Undulatorstrahlung verstärkt wird. Diese Strahlung kann zum einen spektral und räumlich fluktuieren, außerdem können, wenn das Elektronenpaket länger als eine sog. Kooperationslänge oder Kohärenzlänge ist, mehrere sog. longitudinale Moden verstärkt werden. Nur innerhalb einer Kooperationslänge besteht eine Korrelation zwischen den Elektronen und damit auch dem Strahlungsfeld. Ist das Elektronenpaket länger, können mehrere von einander unabhängige Lichtpulse, die longitudinalen Moden, erzeugt werden, die jeweils unabhängig voneinander spektral und in ihren Amplituden fluktuieren. Insgesamt können alle Puls-

parameter von Schuss zu Schuss fluktuieren und zum Teil eine komplizierte Struktur haben. Im Folgenden wird auf die wichtigsten Parameter der XUV-Pulse bei FLASH genauer eingegangen.

Energie

Bei FLASH lassen sich extrem hohe Pulsenergien im Wellenlängenbereich zwischen 6,5 und 60 nm erzeugen. So wurden bei einer Wellenlänge von 13,7 nm Pulsenergien von bis zu 170 μJ gemessen, was bei einer Pulslänge von unter 50 fs zu Spitzenleistungen im GW-Bereich führt [A⁺07].

Die erreichte Pulsenergie schwankt von Schuss zu Schuss, wobei die statistische Verteilung der Pulsenergien davon abhängt, ob der FEL im exponentiellen Gain-Regime betrieben wird oder gesättigt ist. Im exponentiellen Gain-Regime fluktuiert die Pulsenergie E gemäß einer Gamma-Verteilung [SDR08] [SSY98]:

$$p(E) = \frac{M^M}{\Gamma(M)} \left(\frac{E}{\langle E \rangle} \right)^{M-1} \frac{1}{\langle E \rangle} \exp\left(-M \frac{E}{\langle E \rangle}\right), \quad (2.5)$$

wobei Γ die Gammafunktion, und $\langle E \rangle$ die mittlere Pulsenergie ist. Der Parameter M ist gegeben durch $M = 1/\sigma_E^2 = \langle E \rangle / \langle (E - \langle E \rangle)^2 \rangle$, wobei σ_E die Varianz der Pulsenergie ist. M lässt sich interpretieren als die Anzahl der Moden des Lichtpulses. Abb. 2.7 zeigt links ein Histogramm von bei FLASH im linearen Gain Regime gemessenen Pulsenergien. Die Wellenlänge betrug 13,7 nm. In blau ist die nach Gleichung 2.5 berechnete Pulsverteilung eingezeichnet, sie stimmt sehr gut mit den gemessenen Werten überein. Die Modenanzahl M betrug hier 1,9. Die Varianz der Einzelschusspulsenergie betrug 72 %. Wenn der FEL gesättigt ist, ist die Gammaverteilung nicht mehr gültig und die Schwankung der Pulsenergie nimmt stark ab. In Abb.2.7 rechts ist eine bei FLASH in Sättigung gemessene Pulsenergieverteilung aufgetragen. Die Varianz beträgt hier nur noch 18 %.

Spektrum

Das Spektrum des FEL-Lichtes ist im Wesentlichen durch das Spektrum der am Anfang des Undulators entstandenen spontanen Strahlung und durch die Bandbreite der FEL-Verstärkung bestimmt, so dass sich eine von Schuss zu Schuss leicht fluktuierende Wellenlänge ergibt. Ein über viele Schüsse gemitteltes Spektrum hat eine glatte Form, die der Verstärkungsfunktion des FELs entspricht [SDR08]. Abb. 2.8 zeigt drei beim TTF Freien-Elektronen-Laser, dem Vorläufer von FLASH, aufgenommene XUV Spektren, das über 100 Schüsse gemittelte Spektrum ist als dicke Linie dargestellt. Bei FLASH

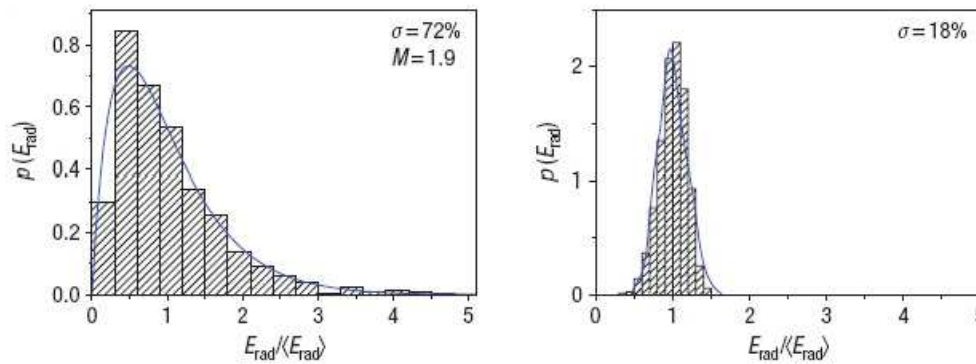


Abbildung 2.7: Verteilung von Einzelschusspulsenergien bei FLASH. Die Messungen links wurden im linearen Gain-Regime durchgeführt, die Messungen rechts in Sättigung (aus [A⁺07]).

beträgt die Bandbreite des Spektrums zwischen 0,5 und wenigen Prozent. Sie ist in der Regel schmäler, wenn der FEL in Sättigung betrieben wird und breiter im linearen Gain-Regime. Das zur Erzeugung der Strahlung benutzte Elektronenpaket kann einen Energiechirp, das heißt eine Änderung der Elektronenenergie über der Elektronenpaketlänge aufweisen (siehe Abb. 2.5). Es wird erwartet, dass dieser Chirp des Elektronenpakets auch zu einem Chirp der FEL-Strahlung führt [A⁺07].

Wenn das benutzte Elektronenpaket länger als die Kooperationslänge des FELs ist, können mehrere zeitlich nicht überlappende Strahlungspulse entstehen, die sich in ihren Wellenlängen unterscheiden können. Wenn sich die Spektren zweier Subpulse überlagern, entstehen Interferenzen und es können mehrere Spitzen im Spektrum auftreten.

Neben der fundamentalen Strahlung im Bereich der Resonanzwellenlänge λ_{ph} werden zu einem geringen Anteil auch ungerade höhere Harmonische dieser Strahlung erzeugt, wobei die Leistung zu höheren Harmonischen hin stark abnimmt. Bei einer Fundamentalen Wellenlänge von $\lambda_{ph} = 13,7$ wurde für die dritte Harmonische 0,6 % der Strahlung der Fundamentalen gemessen und für die fünfte 0,03 % [A⁺07]. Gerade Harmonische sind in der Regel stark unterdrückt.

Zeitstruktur

Wie oben beschrieben ist es, wenn die Elektronenpaketlänge größer als die Kooperationslänge ist, möglich, dass der FEL-Puls aus mehreren zeitlich ge-

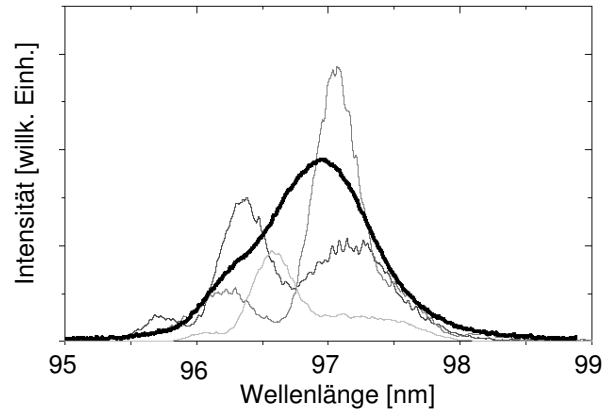


Abbildung 2.8: Drei Einzelpulsspektren des TTF-FELs und als dicke Linie dargestellt das über 100 Schüsse gemittelte Spektrum [A⁺02a].

trennten Subpulsen besteht. Abb. 2.9 zeigt die simulierte Zeitstruktur von drei einzelnen FLASH-Pulsen bei einer Wellenlänge von 13,7 nm. Es sind zum Teil deutlich mehrere Subpulse zu erkennen. Die über viele Pulse gemittelte Pulsform ist als dicke Linie dargestellt, sie hat eine FWHM-Breite von ca. 15 fs. Die Einzelschussmessung dieser Zeitstruktur ist Gegenstand dieser Arbeit.

Nach der FEL-Theorie wird erwartet, dass die mittlere Anzahl von Subpulsen mit der mittleren Anzahl der spektralen Moden und auch mit der aus der Energiefluktuation bestimmten mittleren Modenzahl übereinstimmt [SDR08]. Die Kohärenzzeit τ_c der Pulse lässt sich abschätzen durch

$$\tau_c \approx \frac{L_G \lambda}{\lambda_u c}, \quad (2.6)$$

wobei L_G wieder die Gain-Länge bezeichnet. Für eine Wellenlänge von 13,7 nm wurde aus einer gemessenen Gainlänge von 2,5 m eine Kohärenzzeit von $\tau_c \approx 4,2 \pm 0,5$ fs abgeschätzt [A⁺07]. Es wird erwartet, dass diese Kohärenzzeit in etwa mit der Länge der einzelnen Subpulse übereinstimmt, so dass sich bei einer mittleren Anzahl von M zeitlichen Moden eine untere Grenze der mittleren Gesamtpulslänge von $T \leq M \tau_c$ abschätzen lässt.

Die über viele Pulse gemittelte Kohärenzlänge der FLASH-Pulse wurde gemessen, indem der FEL-Strahl in zwei Teilstrahlen, die gegeneinander zeitlich verzögert wurden, geteilt wurde. Die Teilstrahlen wurden auf einer CCD-Kamera überlagert und die entstehenden Interferenzmuster in Abhängigkeit der Verzögerung der Teilstrahlen aufgezeichnet [M⁺08b]. Dabei wurde

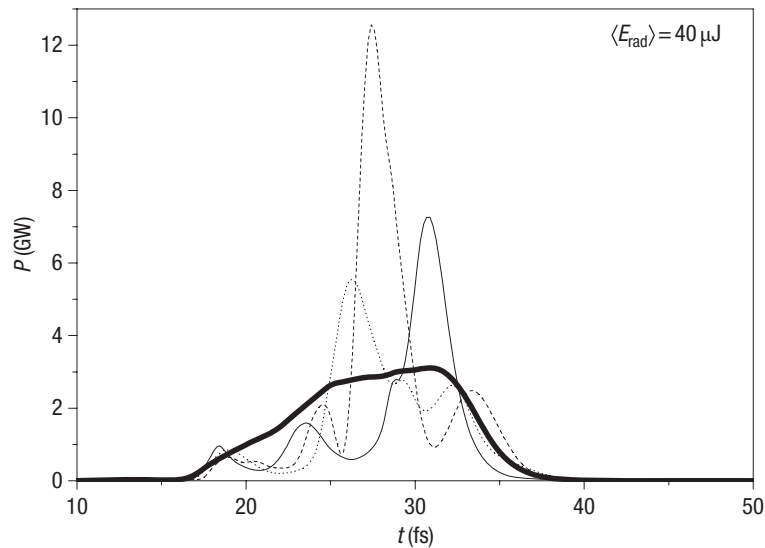


Abbildung 2.9: Simulierte Zeitstruktur dreier FLASH-Pulse mit einer Wellenlänge von 13,7 nm [A⁺07]. Die dicke Linie zeigt die über viele Schüsse gemittelte Pulsform.

bei einer Wellenlänge von 23,9 nm eine Kohärenzzeit von 6 fs gemessen, was gut mit dem für diese Wellenlänge erwarteten Wert übereinstimmt. Die beobachteten Interferenzmuster nahmen nicht monoton mit der zeitlichen Verzögerung der Pulse ab, sondern es gab nach 12,3 und 40 fs Nebenmaxima. Dies wird dadurch erklärt, dass die FLASH-Pulse aus drei Subpulsen im Abstand von 12 und 40 fs bestanden. Da bei diesen Messungen über viele Pulse gemittelt wurde, muss diese Pulsstruktur bei vielen Pulsen aufgetreten sein und kann nicht wie zunächst erwartet völlig zufällig von Schuss zu Schuss fluktuiert haben.

Strahlprofil und räumliche Kohärenz

Das Strahlprofil von FELs lässt sich gut durch Gaußmoden beschreiben (siehe Anhang B). Es ist möglich, dass sich das Strahlprofil am Anfang des Undulators aus einer Überlagerung von mehreren Gaußmoden zusammensetzt, allerdings ist bei der fundamentalen TEM_{00} Gaußmode die Intensität auf der Strahlachse am größten. Daher wird diese Mode, dank des besseren Überlapps mit dem Elektronenstrahl, effektiver als andere Moden verstärkt und ist in der Regel bei einem gesättigten FEL dominant [SDR08]. Für eine Wellenlänge von 13,7 nm wurde ein Strahlprofil, das einer fast perfekten TEM_{00} -Mode mit einer Divergenz von $90 \pm 10 \mu\text{rad}$ gemessen [A⁺07].

Wie nach der FEL-Theorie erwartet zeichnen sich die FEL-Pulse durch eine sehr hohe räumliche Kohärenz aus. Dies wurde mit Young-Doppelspaltexperimenten für unterschiedliche Wellenlängen bestätigt [I⁺][S⁺08b].

Fluktuation der Ankunftszeit

Die Ankunftszeit der FEL-Pulse am Experiment relativ zu elektronisch synchronisierten Laserpulsen fluktuiert bei FLASH im Bereich von 250 fs rms. Diese Fluktuation, auch „Jitter“ genannt, hat ihre Hauptursache in den Bunch-Kompressoren, in denen leichte Energiefluktuationen der Elektronenpakete zu Änderungen der Weglängen und damit Änderungen der Ankunftszeit der Elektronenpakete am Undulator führen. Damit ist ein relativ großer Jitter eine Eigenschaft aller SASE-FELs. Dieser Jitter verschlechtert die zeitliche Auflösung von Pump-Probe-Experimenten mit synchronisierten Lasern entscheidend. Eine Möglichkeit die Auflösung zu verbessern ist es, die Ankunftszeit jedes einzelnen FEL-Pulses zu messen und die Pump-Probe-Daten nach den gemessenen Zeiten zu sortieren. Die Ankunftszeit lässt sich bei FLASH zum einen indirekt durch elektrooptisches Abtasten, bei dem das elektrische Feld der Elektronenpakete die Brechungseigenschaften eines Kristalls ändert, welche mit einem optischen Laserpuls abgetastet werden, messen [C⁺05, A⁺09]. Zum anderen kann die Ankunftszeit der XUV-Pulse auch direkt am Experiment durch Kreuzkorrelation mit einem optischen Laser gemessen werden. Dazu werden beide Strahlen auf der Oberfläche eines Halbleiters überlagert und ausgenutzt, dass die Reflektivität der Oberfläche für den optischen Laser durch die Bestrahlung mit dem XUV-Puls geändert wird [M⁺08a, G⁺08a]. Mit dieser Methode ließ sich die Zeitauflösung von Pump-Probe-Experimenten mit einem synchronisierten Laser auf bis zu 40 fs verbessern [M⁺08a].

Eine Methode, den Jitter der FLASH-Pulse zu minimieren, ist an mehreren Stellen im Beschleuniger die Ankunftszeit der Elektronenpakete zu messen und durch Regelung der Beschleunigungsmodulparameter zu stabilisieren [Löh09]. Dadurch konnte bei ersten Messungen der Jitter der Elektronenpakete auf bis zu 25 fs rms reduziert werden.

2.1.5 Vergleich mit anderen Quellen

Neben Freie-Elektronen-Lasern gibt es im Wesentlichen noch drei Möglichkeiten Strahlung im XUV- bis weichen Röntgenlicht-Bereich zu erzeugen. Dies ist zum einen die Synchrotronstrahlung aus Undulatoren und zum anderen die Erzeugung von höheren Harmonischen eines Lasers in einem Gas sowie Strahlung aus einem Laser induzierten Plasma.

Synchrotronstrahlung wird in der Regel in Undulatoren an Ringbeschleunigern erzeugt. Sie haben den Vorteil, dass sie technisch weniger aufwändig und leichter zu realisieren sind als FELs, da hier die Anforderungen an die Elektronenpakete geringer sind. In den Ringbeschleunigern laufen viele Elektronenpakete für eine lange Zeit immer wieder im Kreis, dadurch lassen sich hohe Pulsraten im MHz-Bereich einfach realisieren, wohingegen die mittlere Pulsrate bei FLASH höchstens im kHz-Bereich liegt. Die Wellenlängen von Synchrotronquellen sind über einen weiten Bereich kontinuierlich durchstimmbar und es können alle Wellenlängen vom XUV- bis zum harten Röntgenbereich erzeugt werden. Der Nachteil von Synchrotronquellen gegenüber FELs ist zum einen ihre viel geringere Spitzenintensität und geringere Kohärenz. Außerdem liegen die Pulslängen bei Synchrotronquellen in der Regel im Bereich zwischen einigen zehn und einigen hundert ps, also etwa 1000-fach länger als bei FLASH, so dass zeitaufgelöste Experimente mit Auflösungen im fs Bereich hier in der Regel nicht möglich sind. Durch sogenanntes Slicing, bei dem mit Hilfe eines Laser die Energie des Elektronenpakets moduliert wird, können auch bei Synchrotronquellen Pulslängen im Bereich von 100 fs erzeugt werden [KHK⁺06], allerdings wird dabei die Intensität noch einmal drastisch reduziert. Außerdem ist hier die Pulsrate begrenzt durch die Pulsrate des zum Slicing verwendeten Lasers, die in der Regel im kHz-Bereich liegt.

Bei der Erzeugung von höheren Harmonischen (HHG) wird ein kurzer, intensiver Laserpuls mit einer Wellenlänge im sichtbaren bis nah-infraroten Bereich in ein Gas fokussiert. Die Atome des Gases werden ionisiert und die dabei entstehenden Photoelektronen werden vom elektromagnetischen Feld des Lasers beschleunigt. Die Elektronen können mit den Atomen, aus denen sie ionisiert wurden, rekombinieren, dabei werden ungerade höhere Harmonische des Laserlichts ausgesandt [Cor93, PSG06]. Mit dieser Methode können kohärente, gut kollimierte Lichtpulse mit Photonenenergien bis zu mehreren hundert eV erzeugt werden. Ein großer Vorteil dieser Quellen ist, dass sie auf einem Labortisch realisiert werden können und keine aufwändigen Elektronenbeschleuniger benötigt werden. Ihr Hauptnachteil gegenüber FELs ist ihre viel geringere Intensität, so liegen die Pulsenergien hier nur im nJ-Bereich und die erreichbare Spitzenbrillanz ist um fünf bis zehn Größenordnungen niedriger als bei FELs [PSG06]. Die Längen der an diesen Quellen erzeugten Pulse können extrem kurz sein, so wurden die kürzesten bisher je erzeugten Lichtpulse mit Pulslängen von 130 bis wenigen hundert as ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) durch HHG erzeugt [H⁺01, S⁺06]. Die HHG-Pulse sind mit dem zu ihrer Erzeugung verwendeten Laser perfekt synchronisiert, so dass an HHG-Quellen

mit beiden Strahlen Pump-Probe-Experimente mit as Zeitaufösung durchgeföhrt werden können [D⁺02, U⁺07].

Durch Fokussierung eines hochintensiven, kurzen Laserpulses in einen Festkörper lassen sich dichte heiße Plasmen erzeugen. In den Plasmen können die Elektronen untereinander und an den Ionen streuen. Während der Streuung können sie Laserphotonen absorbieren, wodurch sie stark beschleunigt werden. Ihre hohe kinetische Energie kann bei einer Streuung an den Ionenrümpfen als Bremsstrahlung im Röntgenbereich emittiert werden [PSG06]. Das Emissionsspektrum ist zum einen durch das Schwarzkörperspektrum bei der Elektronentemperatur gegeben. Bei sehr hohen Laserintensitäten und damit sehr hohen Elektronenenergien ist es zum anderen auch möglich, dass Elektronen aus inneren Atomschalen durch nicht elastische Streuung ionisiert werden. Die dabei entstehenden Innerschalleerstellen führen bei Rekombination zu charakteristischer Linienstrahlung. Insgesamt reicht der Spektralbereich der Laser induzierten Plasmen Quellen bis hin zu mehreren keV, es lassen sich also mit diesen Quellen im Labor sehr hohe Photonenenergien erzeugen. Die Plasmen kühlen in der Regel innerhalb von einigen hundert fs ab, so dass auch die Pulslängen der erzeugten Strahlung im Bereich einiger hundert fs liegen. Die Röntgenpulse sind perfekt zu den für ihre Erzeugung verwendeten Laserpulsen synchronisiert, so dass beide Pulse für Pump-Probe-Experimente verwendet werden können. Das Röntgenlicht dieser Quellen ist nicht gerichtet sondern wird in alle Raumwinkel abgestrahlt, so dass die für Experimente nutzbaren Photonenzahlen im Vergleich zu den gerichteten HHG-Quellen gering sind.

Eine geplante Weiterentwicklung von FLASH ist es, den FEL-Prozess nicht mit spontaner Undulatorstrahlung starten zu lassen, sondern das Elektronenpaket im Undulator mit einem HHG-Puls der Resonanzwellenlänge zu überlagern. Dieser sogenannte Seedpuls moduliert das Elektronenpaket und wird kohärent von diesem verstärkt. In diesem Fall definiert der Seedpuls die spektralen und zeitlichen Eigenschaften des FEL-Lichtes und die Fluktuationen verschwinden. Solch ein Seeding eines SASE-FELs wurde bereits an SPring-8 bei einer Wellenlänge von 160 nm realisiert [L⁺08] und es ist bei mehreren SASE-FELs geplant. Ein Nachteil dieser Methode ist, dass sich die Wellenlänge der FEL-Strahlung nicht kontinuierlich einstellen lässt und man auf Wellenlängenbereiche, in denen effektiv höhere Harmonische erzeugt und mit Spiegeln transportiert werden können, beschränkt ist, so dass Röntgen-FELs nicht mit dieser Methode betrieben werden können.

2.2 THz-Undulator

Seit 2007 gibt es bei FLASH einen THz-Undulator, mit dem intensive, kohärente, lineare polarisierte THz-Lichtpulse im Wellenlängenbereich von etwa 20 bis 300 μm erzeugt werden können. Die THz-Lichtpulse werden in einer neuen Beamline in die Experimentierhalle transportiert und können dort zusammen mit den FLASH-XUV-Pulsen für Pump-Probe-Experimente genutzt werden. Der THz-Undulator befindet sich direkt hinter den FEL-Undulatoren und es werden die selben Elektronenpakete, die bereits zur Erzeugung der XUV-Pulse benutzt wurden, zur Erzeugung der THz-Pulse verwendet, wodurch beide Pulse automatisch sehr gut synchronisiert sind (siehe Abb. 2.4).

2.2.1 Der Undulator

Der FLASH-THz-Undulator ist ein planarer, elektromagnetischer Undulator. Er hat neun volle Perioden und je zwei halbe Perioden am Anfang und Ende des Undulators (siehe Tabelle 2.1 [FIR05]). Der K-Wert des Undulators lässt sich durch ändern des Magnetstroms kontinuierlich zwischen 0 und 44 einstellen.

Typ	Elektromagnetisch
Gap	40 mm
Periodenlänge	40 cm
Periodenanzahl	9
Gesamtlänge	4,455 m
Maximaler K-Wert	44
Maximales Feld	1,18 T

Tabelle 2.1: THz-Undulatorparameter [FIR05].

Die Wellenlänge der Fundamentalen des auf der Undulatorachse abgestrahlten Lichtes ist nach Kap. 2.1.1 gegeben durch

$$\lambda_{ph} = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right). \quad (2.7)$$

Die Wellenlänge der XUV-Strahlung bei FLASH wird durch Ändern der Elektronenenergie, also ändern von γ in Gleichung 2.7 eingestellt, so dass bei einem Experiment die maximal erreichbare THz-Wellenlänge von der eingestellten XUV-Wellenlänge abhängt. Bei der für diese Arbeit benutzten XUV-Wellenlänge von 13,5 nm betrug die Elektronenenergie 700 MeV bzw.

$\gamma = 1370$. Damit ergibt sich bei einem maximalen K-Wert von 44 ein einstellbarer Wellenlängenbereich von 0 bis etwa $100 \mu\text{m}$.

Die abgestrahlte Leistung des THz-Undulators hängt stark von der eingestellten THz-Wellenlänge ab. Für Wellenlängen die länger sind als die Länge des Elektronenpakets, strahlen alle Elektronen des Elektronenpakets in Phase und die abgestrahlte Leistung steigt quadratisch mit der Anzahl der Elektronen. Bei Wellenlängen, die kürzer sind als das Elektronenpaket, überlagern sich die von den Elektronen abgegebenen elektromagnetischen Felder inkohärent und die Leistung wächst nur linear mit der Anzahl der Elektronen. Allgemein ist die Leistung in Abhängigkeit der Frequenz ω gegeben durch:

$$P(\omega) = p(\omega)[N + N(N - 1)|\tilde{F}(\omega)|^2], \quad (2.8)$$

wobei $p(\omega)$ die von einem einzelnen Elektron abgestrahlte Leistung und $\tilde{F}(\omega)$, der sogenannte Formfaktor, die Fouriertransformierte des Elektronenpaketprofils ist [F⁺01, GSSY02]. Für Wellenlängen kleiner als die Elektronenpaketlänge geht $|\tilde{F}(\omega)|$ gegen null, für Wellenlängen länger als die Elektronenpaketlänge geht $|\tilde{F}(\omega)|$ gegen eins. In Abb. 2.10 ist die Pulsenergie der THz-Strahlung, die unter Annahme einer simulierten Elektronenpaketform wie in Abb. 2.5 berechnet wurde, in Abhängigkeit der Wellenlänge dargestellt [G⁺08b]. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Energie bei Wellenlängen kleiner als $50 \mu\text{m}$ stark abnimmt, so dass der bei einer XUV-Wellenlänge von $13,5 \text{ nm}$ erreichbare THz-Wellenlängenbereich etwa zwischen 50 und $100 \mu\text{m}$ liegt. Bei der Berechnung der Pulsenergien in Abb. 2.10 wurde von einer zu großen Ladung des Elektronenpaktes ausgegangen und damit die Pulsenergien überschätzt. Neue Berechnungen haben um ca. einen Faktor vier kleinere Pulsenergien ergeben, wobei die Form der in Abb. 2.10 dargestellten Kurve aber weitgehend unverändert blieb [G⁺].

Eine wichtige Anwendung des THz-Undulators ist die Charakterisierung des zeitlichen Profils der Elektronenpakete bei FLASH. Wie in Gleichung 2.8 zu sehen ist, ist es möglich, das Betragsquadrat des Elektronenpaketformfaktors $|\tilde{F}(\omega)|^2$ zu messen, indem die THz-Leistung in Abhängigkeit der Resonanzfrequenz ω des Undulators gemessen wird [GSSY02, Wil08]. Da die Phase von $\tilde{F}(\omega)$ nicht gemessen wird, ist eine eindeutige Rekonstruktion des Elektronenpaketprofils aus diesen Messungen nicht möglich. Unter Berücksichtigung einiger A-priori Kenntnisse über das Profil, lassen sich aber die wichtigsten Parameter des Profils aus dem gemessenen $|\tilde{F}(\omega)|^2$ bestimmen [GSSY02].

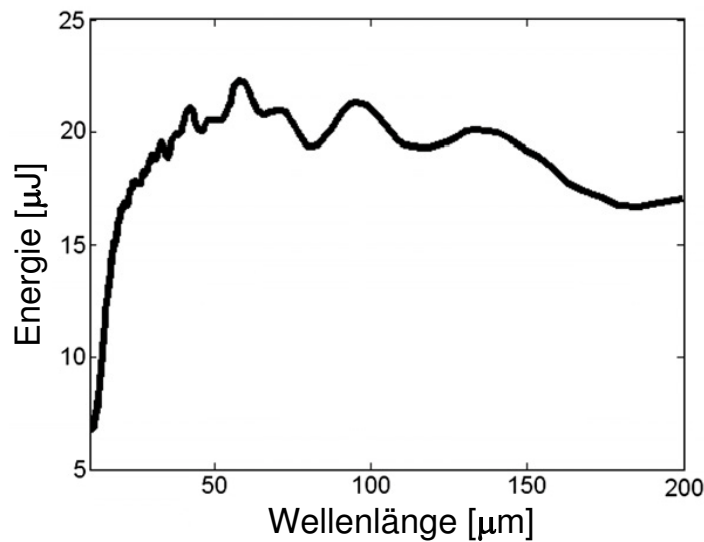


Abbildung 2.10: Berechnete Pulsenergie der THz Strahlung berechnet mit der Elektronenpaketform aus Abb. 2.5 [G⁺08b].

2.2.2 Eigenschaften der Strahlung

Pulsform

Die THz-Strahlung besteht aus kurzen Pulsen mit zehn Oszillationen und einer kastenförmigen Einhüllenden. Die zehn Oszillationen ergeben sich aus den neun vollen Undulatorperioden zusammen mit den zwei halben Perioden am Anfang und Ende des Undulators. Abb. 2.11 zeigt links eine Simulation des auf der Undulatorachse abgestrahlten elektrischen Feldes bei einer Resonanzwellenlänge von $192 \mu\text{m}$ [Gri]. Rechts ist das Spektrum der THz-Strahlung dargestellt. Wie zu erkennen ist, beträgt die Pulslänge zehn Periodendauern der Strahlung bei der Resonanzwellenlänge λ_{ph} , also $T = 10 \lambda_{ph}/c$. Für die in dieser Arbeit verwendete Wellenlänge von etwa $90 \mu\text{m}$ ergibt sich damit eine Pulsdauer von 3 ps.

Spektrum

Das Spektrum der THz-Strahlung ist gegeben durch das Spektrum, das von einem einzelnen Elektron abgestrahlt wird multipliziert mit dem Formfaktor des Elektronenpakets [FIR05]. Es setzt sich im Wesentlichen zusammen aus der Fundamentalen bei der eingestellten Resonanzwellenlänge und ungeraden höheren Harmonischen davon (gerade höhere Harmonische sind stark unterdrückt, vergl. Kap. 2.1.2). Da der Formfaktor zu kürzeren Wellenlängen hin

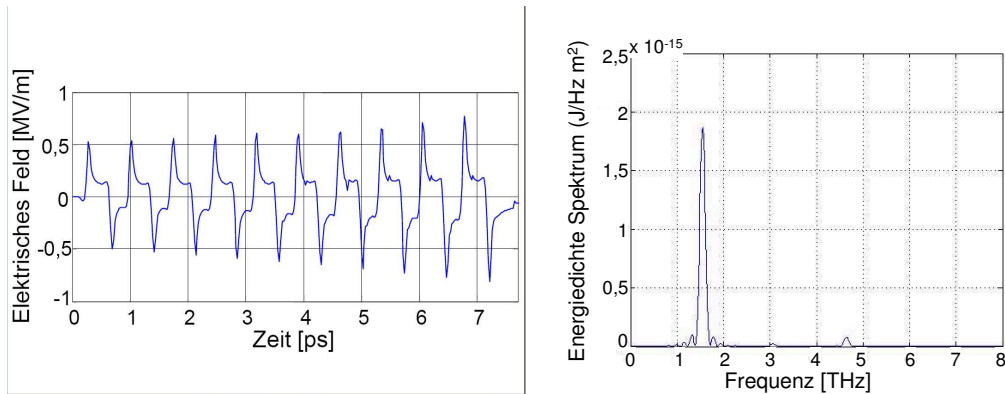


Abbildung 2.11: Simuliertes Elektrisches Feld (links) und Spektrum(rechts), der THz-Strahlung die von einem 1nC Elektronenpaket beim Durchgang durch den Undulator bei einer eingestellten Resonanzwellenlänge von $192 \mu\text{m}$ ($1,56 \text{ THz}$) abgestrahlt wird [Gri].

stark ab nimmt sind die höheren Harmonischen im Vergleich zur Fundamentalen in der Regel stark unterdrückt (siehe Abb. 2.11 links).

Die relative spektrale FWHM-Breite der fundamentalen Strahlung ist gegeben durch

$$\frac{\Delta\omega}{\omega} = \frac{0,89}{N_u} \approx 10\%, \quad (2.9)$$

wobei N_u die Anzahl der Undulatorperioden bezeichnet [GSSY02]. Abb. 2.12 zeigt ein mit einem Gitterspektrometer gemessenes Spektrum der Fundamentalen bei einer Wellenlänge von etwa $90 \mu\text{m}$. Die gemessene Breite des Spektrums stimmt gut mit der erwarteten Breite von etwa 10% überein.

Pulsenergie

Die Pulsenergie der THz-Strahlung wurde mit einem kalibrierten Pyrodetektor in der FLASH-Experimentierhalle gemessen [G⁺]. Für eine XUV-Wellenlänge von $13,5 \text{ nm}$ und eine THz-Wellenlänge von etwa $90 \mu\text{m}$ wurden dabei Pulsenergien von bis zu $1,8 \pm 0,2 \mu\text{J}$ bestimmt. Dabei wurde ein Bandpassfilter, der nur einen etwa 15% breiten Bereich um die zentrale Wellenlänge durchlässt, verwendet (siehe Anhang D). Wenn die simulierten Verluste beim Transport der Strahlung in die Experimentierhalle und Reflektionsverluste an Fenstern berücksichtigt werden, entspricht eine Pulsenergie von $1,8 \mu\text{J}$ in der Experimentierhalle einer Pulsenergien von etwa $3 \mu\text{J}$ am Undulatorausgang. Dies ist etwas geringer, als der aus der Elektronenpaketsform

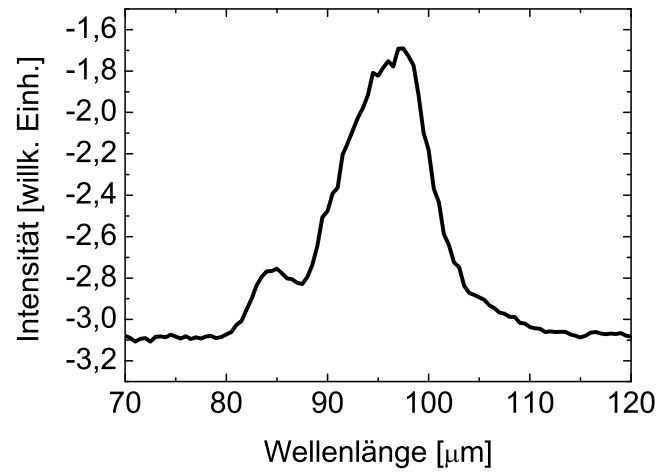


Abbildung 2.12: Mit einem Gitterspektrometer gemessenes Spektrum der Fundamentalen des THz-Undulators bei einer Wellenlänge von etwa $90 \mu\text{m}$ [G^+].

berechnete Wert, der bei etwa $5 \mu\text{J}$ liegt.

Die Pulsenergie blieb während einer Messschicht im Wesentlichen konstant, konnte aber an unterschiedlichen Tagen um bis zu 50% Schwanken. Es ist nicht vollständig geklärt woher diese Schwankungen kommen, aber bei hohen Pulsenergien der SASE-XUV-Strahlung war in der Regel auch die THz-Pulsenergie hoch.

Kapitel 3

Prinzip der Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera

Zur Messung der Zeitstruktur der FLASH XUV-Pulse wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Lichtfeld getriebene Streak-Kamera¹ entwickelt. Lichtfeld getriebene Streak-Kameras sind von der Messmethode her konventionellen Streak-Kameras, die bereits seit einigen Jahrzehnten zur zeitlichen Charakterisierung von kurzen XUV-Pulsen benutzt werden, ähnlich. Bei den konventionellen Streak-Kameras treffen die XUV-Pulse auf eine Photokathode und erzeugen dort ein Photoelektronenpaket, das dieselbe Zeitstruktur wie der XUV-Puls hat. Die Photoelektronen werden beschleunigt und durch ein sich schnell änderndes elektrisches Feld transversal abgelenkt (siehe Abb. 3.1). Wenn sich das elektrische Feld schnell genug ändert, wird sich die transversale Ablenkung der Photoelektronen am Anfang des Elektronenpaketes deutlich von der der Elektronen am Ende des Elektronenpakets unterscheiden, so dass das Elektronenpaket transversal ausgeschmiert wird. Wenn die Elektronen auf einen Fluoreszenzschirm treffen, wird dort ein transversal ausgedehnter Streifen, das Streak-Bild, erzeugt. Wenn das ablenkende Feld gut bekannt ist, lässt sich aus der Länge dieses Streifens die Länge des XUV-Pulses berechnen.

Die besten bisher mit Streak-Kameras erreichten Auflösungen liegen im Bereich von wenigen hundert Femtosekunden [SC05, F⁺07]. Die Auflösung ist im Wesentlichen begrenzt durch die Verteilung der Anfangsenergien der Photoelektronen und Raumladungseffekte, die zu einer zeitlichen Verbreiterung des Elektronenpakets führen. Ein weiterer limitierender Faktor ist die Synchronisation zwischen den XUV-Pulsen und dem ablenkenden elektrischen Feld. Dies stellt insbesondere bei SASE-FELs mit großer Fluktuation der

¹„Streak-Camera“: Englisch für „Schmierbildkamera“

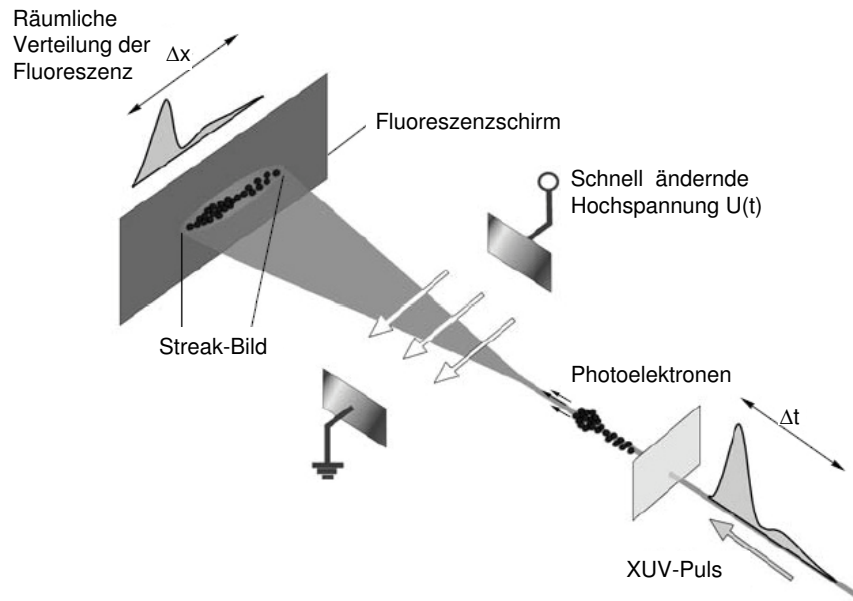


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung einer konventionellen Streak-Kamera. Ein Lichtblitz trifft auf eine Photokathode und erzeugt ein Photoelektronenpaket. Die Photoelektronen werden durch ein sich schnell änderndes elektrisches Feld transversal abgelenkt. Sie treffen auf einen Fluoreszenzschirm, auf dem das Streak-Bild entsteht. Aus der räumlichen Breite Δx dieses Fluoreszenzbildes lässt sich die Länge Δt des Lichtblitzes rekonstruieren (Abbildung entnommen aus [U⁺05]).

Pulsankunftszeit (vergl. Kap. 2.1.4) ein Problem dar.

Für die zeitliche Charakterisierung der FLASH XUV-Pulse wird eine Auflösung von wenigen fs benötigt, konventionelle Streak-Kameras sind daher nicht geeignet. Mit einer Lichtfeld getriebenen Streak-Kameras hingegen lässt sich eine solche Auflösung erreichen. Lichtfeldgetriebene Streak-Kameras wurden vor einigen Jahren entwickelt, um die Pulslängen von extrem kurzen XUV-Pulsen aus HHG-Quellen zu messen. Die Pulslängen dieser HHG-Pulse liegen im Bereich von wenigen Femtosekunden bis zu wenigen hundert Attosekunden. Um sie zeitlich zu charakterisieren, werden also um drei bis vier Größenordnungen bessere Auflösungen als mit konventionellen Streak-Kameras erreichbar benötigt. Die Idee der Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera ist, das sich schnell ändernde elektrische Feld der Streak-

Kameras durch das sich um Größenordnungen schneller ändernde elektromagnetische Feld eines infraroten (IR) Lichtpulses zu ersetzen. Dazu werden die XUV-Pulse mit infraroten Lichtpulsen kollinear überlagert und in ein Edelgas fokussiert (siehe Abb. 3.2). Die Edelgasatome ersetzen die Photokathode und es wird durch Photoionisation ein Elektronenpaket mit der gleichen Zeitstruktur wie der des XUV-Pulses erzeugt. Dieses Elektronenpaket wird durch das elektrische Feld des IR-Pulses beschleunigt. Die Impuls- und damit auch Energieänderung der Elektronen hängt von der Phase des IR-Pulses zum Ionisationszeitpunkt ab, so dass die Zeitstruktur des ionisierenden XUV-Pulses auf Energieänderungen der Elektronen projiziert wird. Gemessen wird die Energie der Photoelektronen und nicht mehr eine räumliche Ablenkung durch das elektrische Feld. Die Photoelektronen werden direkt im IR-Feld erzeugt, so dass es kein zeitliches Auseinanderlaufen des Elektronenpaketes auf dem Weg zum ablenkenden Feld mehr gibt. Mit Hilfe dieser Technik wurden Auflösungen im Bereich von unter 100 as erreicht [K⁺04].

Eine Voraussetzung für die Lichtfeld getriebene Streak-Kamera ist, dass die Periodendauer des IR-Streak-Feldes viel größer sein muss, als die Pulsdauer der zu untersuchenden XUV-Pulse. Bei allen bisher realisierten Streak-Kameras wurden XUV-Pulse mit Pulslängen kleiner als eine fs untersucht und Laserpulse mit Wellenlängen im nah-infrarotbereich als Streak-Feld verwendet. Die FLASH XUV-Pulse haben Pulslängen von einigen zehn fs, so dass entsprechend längere Periodendauern und damit auch Wellenlängen des Streak-Feldes benötigt werden. Für diese Arbeit wurden daher Lichtpulse im THz-Bereich verwendet. Alle hier dargestellten Überlegungen sind aber unabhängig von der Streak-Wellenlänge gültig.

Die Lichtfeld getriebene Streak-Kamera lässt sich sowohl klassisch als auch quantenmechanisch gut beschreiben. In Kap. 3.1 wird die klassische Beschreibung zusammengefasst, in Kap. 3.2 folgt die quantenmechanische Beschreibung. In Kap. 3.3 wird gezeigt, wie sich mit Hilfe einiger Annahmen über den XUV-Puls analytisch aus einem Streak-Spektrum zusammen mit dem XUV-Spektrum die Pulslänge des XUV-Pulses rekonstruieren lässt. In Kap. 3.4 werden kurz alternative Methoden zur Pulslängenmessung vorgestellt.

3.1 Klassische Beschreibung

Wir betrachten ein Elektron, das in der Gegenwart eines kohärenten infraroten Lichtpulses von einem XUV-Puls durch Photoionisation eines Atoms

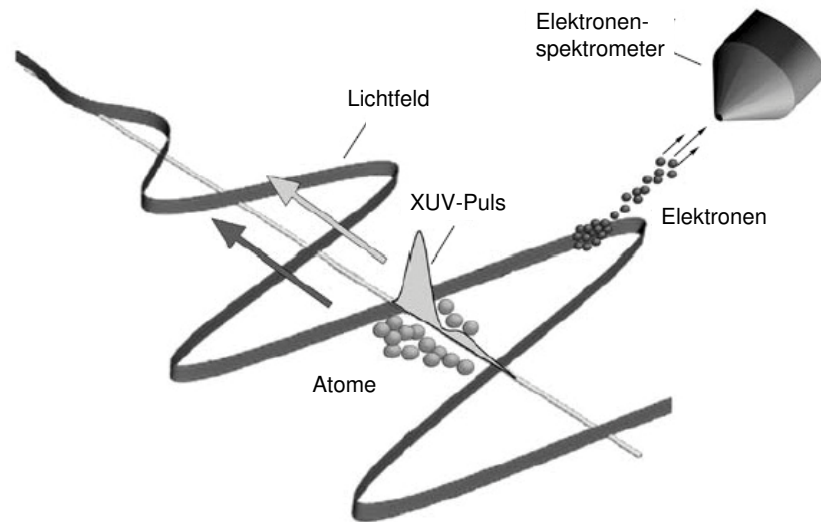


Abbildung 3.2: Schematische Darstellung einer Lichtfeld getriebenen Streak-Kamera. Ein mit einem infraroten Lichtpuls überlagerter XUV-Puls trifft auf Edelgasatome und erzeugt Photoelektronen. Die Photoelektronen werden durch das elektrische Feld des IR-Lichts beschleunigt, wobei ihre Impulsänderung von der Phase des IR-Lichts zum Ionisationszeitpunkt abhängt. Die Energie der Photoelektronen wird mit einem Flugzeitspektrometer gemessen (Abbildung entnommen aus [U⁺05]).

erzeugt wurde. Auf Grund des großen Frequenzunterschiedes zwischen dem XUV- und IR-Licht lässt sich der Prozess in zwei Schritte unterteilen, zunächst Ionisation durch ein XUV-Photon, dann Beschleunigung des freien Elektrons durch das elektrische Feld des IR-Lichtpulses. Sei

$$\vec{E}_{IR}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0(\vec{r}, t) \cos(\omega_{IR}t + \varphi) \quad (3.1)$$

das elektrische Feld des linear polarisierten Infrarotlichtes. Die durch die Beschleunigung in diesem Feld hervorgerufene Änderung des Impulses eines Elektrons, das zum Zeitpunkt t am Ort \vec{r} ionisiert wurde, ist gegeben durch

$$\Delta\vec{p}(r, t) = e \int_t^\infty \vec{E}_{IR}(\vec{r}, t') dt' = e\vec{A}_{IR}(r, t), \quad (3.2)$$

wobei $\vec{A}_{IR}(\vec{r}, t)$ das Vektorpotential des elektrischen Feldes in Coulomb-Eichung ist. Der Gesamtimpuls des Elektrons beträgt dann $\vec{p} = \vec{p}_0 + \Delta\vec{p}$, wobei \vec{p}_0 der Anfangsimpuls ohne Infrarotlicht ist. Abhängig vom Winkel zwischen dem Anfangsimpuls und dem elektrischen Feld wird das Elektron beschleunigt und abgelenkt, so dass auch die Änderung der kinetischen Energie $W_{kin.} = \frac{\vec{p}^2}{2m_e}$ winkelabhängig ist. Experimentell interessant ist die kinetische Energie in Abhängigkeit des Winkels Θ zwischen dem End-Impuls des Elektrons, nachdem der Lichtpuls vorbei ist und dem elektrischen Feld des IR-Lichts [I⁺02]:

$$W_{kin.} = W_0 + 2U_p \cos 2\Theta \sin^2 \varphi_i \pm \sqrt{1 - \frac{2U_p}{W_0} \sin^2 \Theta \sin^2 \varphi_i} \sqrt{8W_0U_p} \cos \Theta \sin \varphi_i, \quad (3.3)$$

wobei φ_i die Phase des IR-Feldes zum Ionisationszeitpunkt und W_0 die kinetische Energie der Elektronen ohne IR-Feld ist. $U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m_e \omega_{IR}^2}$ beschreibt das ponderomotive Potential des Infrarotfeldes. Für Elektronen mit einem Impuls parallel oder senkrecht zum elektrischen Feld lässt sich Gleichung 3.3 vereinfachen zu

$$W_{kin.\parallel} = W_0 + 2U_p \sin^2 \varphi_i \pm \sqrt{8W_0U_p} \sin \varphi_i \quad (3.4)$$

$$W_{kin.\perp} = W_0 - 2U_p \sin^2 \varphi_i \quad (3.5)$$

Bei den meisten Streak-Kamera-Experimenten ist das ponderomotive Potential viel kleiner als die Anfangsenergie der Photoelektronen ($U_p \ll W_0$), so dass die zweiten Terme in den Gleichungen (3.4, 3.5), in der Regel vernachlässigt werden können. Senkrecht zum IR-Feld kann daher ein vom IR-Feld im Wesentlichen unbeeinflusstes Photoelektronenspektrum gemessen werden.

Parallel zum IR-Feld wird die kinetischen Energie der Elektronen abhängig von der Phase des IR-Feldes zum Ionisationszeitpunkt verändert. Im Bereich des Nulldurchgangs von $\sin \varphi_i$ wird die Ionisationszeit direkt auf eine Änderung der kinetischen Energie projiziert. Unter der Bedingung, dass die Pulsdauer des ionisierenden XUV-Pulses τ_{XUV} viel kleiner ist, als die Periodendauer des Infrarotfeldes, wird damit auch die Pulsdauer auf Änderungen von kinetischen Energien der Photoelektronen projiziert (siehe Abb. 3.3). Wenn alle Photoelektronen genau die gleiche Anfangsenergie W_0 haben, lässt sich aus Streak-Spektren daher direkt die Zeitverteilung des XUV-Pulses rekonstruieren. In der Regel haben aber die Photoelektronen eine Verteilung von Anfangsenergien, die die spektrale Breite und auch einen möglichen Chirp² des XUV-Pulses widerspiegelt. Daher bestehen die Spektren der gestreakten Photoelektronen aus einer Mischung der projizierten Zeitstruktur und des Spektrums des XUV-Pulses, so dass eine eindeutige Rekonstruktion der Zeitstruktur nur aus einem Streak-Spektrum nicht möglich ist. Bei reproduzierbaren XUV-Pulsen lässt sich aus Streak-Spektren, die zu unterschiedlichen Phasen des Infrarotfeldes gemessen wurden, mittels einer tomographischen Rekonstruktion die Zeitstruktur eindeutig bestimmen [YBS05, MQ05]. Bei Einzelschussmessungen ist es jedoch sehr schwierig, Streak-Spektren des gleichen Pulses bei mehreren unterschiedlichen Phasen des Infrarotpulses zu messen. Unter der Annahme, dass es höchstens einen konstanten linearen Chirp des XUV-Pulses gibt, lässt sich die Zeitdauer aber auch aus einem Streak-Spektrum und einem gleichzeitig gemessenen, ungestörten XUV-Spektrum berechnen (siehe Kap. 3.2).

Für jede Rekonstruktion einer XUV-Pulslänge aus Streak-Photoelektronenspektren muss das zeitabhängige IR-Streak-Feld gut bekannt sein. Wenn der infrarote Lichtpuls reproduzierbar und die Fluktuation der relativen Ankunftszeit zwischen IR- und XUV-Puls klein ist, kann das zeitabhängige Vektorpotential des IR-Feldes durch Abrastern der relativen Ankunftszeit der beiden Pulse und Messen der mittleren Energieänderung der Photoelektronen bestimmt werden [G⁺04]. Wenn der zweiten Term in Gl. 3.4 vernachlässigt wird, kann die Energieänderung von Elektronen mit einem Impuls parallel zur Polarisation des Lichtfeldes umformuliert werden zu

$$\Delta W_{\parallel} = \sqrt{8W_0 U_p} \sin \phi_i = e \sqrt{\frac{2W_0}{m_e}} \frac{E_0(t_i)}{\omega_{Ir}} \sin \phi_i = e \sqrt{\frac{2W_0}{m_e}} A_{Ir}(t_i). \quad (3.6)$$

Die Energieänderung der Photoelektronen ist also direkt proportional zum

²Chirp: Siehe Anhang A

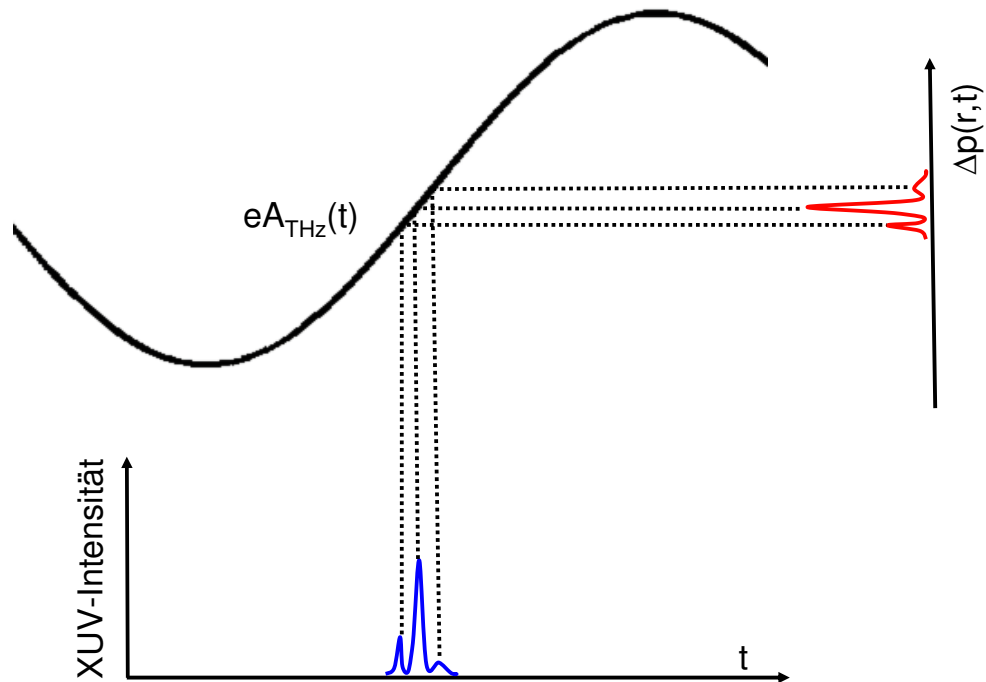


Abbildung 3.3: Vom XUV-Puls wird ein Photoelektronenpaket, dessen Zeitstruktur identisch zu der des XUV-Pulses ist, erzeugt. Die Elektronen werden vom IR-Feld beschleunigt, wobei die Impulsänderung vom IR-Vektorpotential $A_{IR}(t)$ zum Ionisationszeitpunkt abhängt. Dadurch wird die XUV-Zeitstruktur auf Änderungen von Elektronenimpulsen projiziert.

Vektorpotential zum Ionisationszeitpunkt t_i .

3.2 Quantenmechanische Beschreibung

Die Idee bei der quantenmechanischen Beschreibung der Streak-Kamera ist, durch Einphotonenionisation eines Atoms ein Elektronenwellenpaket zu erzeugen, das ein Replik des zu untersuchenden XUV-Pulses ist und alle Eigenschaften dieses Pulses, wie die Zeitstruktur, die Phase und das (um die Bindungsenergie der Elektronen verschobene) Spektrum übernimmt. Die Wechselwirkung mit dem Infrarotfeld bewirkt eine zeitabhängige Phasenmodulation des Elektronenwellenpaketes. Die hier wiedergegebene quantenmechanische Beschreibung ist eng angelehnt an [QMI05].

Betrachten wir zunächst die Ionisation eines Atoms durch ein XUV-Feld \vec{E}_{XUV} , wobei atomare Einheiten ($\hbar = m_e = e = 1$) benutzt werden und von der Single-Active-Electron-Näherung ausgegangen wird, bei der nur ein Elektron des Atoms betrachtet wird und eventuelle Wechselwirkungen mit anderen Elektronen vernachlässigt werden. Die Übergangsamplitude vom Grundzustand in einen Kontinuumszustand des Elektrons mit Impuls \vec{p} ist dann gegeben durch

$$a_{\vec{p}} = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \vec{d}_{\vec{p}} \vec{E}_{XUV}(t) \exp[i(W + I_p)t], \quad (3.7)$$

wobei $\vec{d}_{\vec{p}}$ das Dipolübergangsmatrixelement, $W = \frac{\vec{p}^2}{2}$ die Energie des Kontinuumszustands und I_p das Ionisationspotential des Atoms ist. Das Dipolmatrixelement $\vec{d}_{\vec{p}}$ ist in der Regel gut bekannt. In allen von uns betrachteten Fällen ist die Änderung von $\vec{d}_{\vec{p}}$ über der spektralen Bandbreite des XUV-Feldes vernachlässigbar und $\vec{d}_{\vec{p}}$ kann als konstant angenommen werden. Daraus folgt, dass das Photoelektronenspektrum $a_{\vec{p}}$ sich sowohl in Amplitude als auch Phase direkt aus dem XUV-Spektrum ergibt und wir das Photoelektronenwellenpaket als Replik des XUV-Pulses ansehen können.

Bei der Beschreibung der Ionisation in Gegenwart eines Infrarotfeldes wird die Strong-Field-Approximation benutzt. Das heißt, dass der Einfluss des Ionenpotentials auf das Elektron nach der Ionisation vernachlässigt wird. Das ist bei Ionisation mit XUV-Photonen, bei der in der Regel die Photonenenergie viel größer als das Ionisationspotential ist, gut gerechtfertigt. Nachdem die Lichtpulse vorbei sind ist dann die Übergangsamplitude $a_{\vec{p}_f}(\tau)$ in einen

Kontinuumszustand mit Impuls \vec{p}_f für einen Zeitabstand τ zwischen XUV- und IR-Puls gegeben durch

$$a_{\vec{p}_f}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \vec{d}_{\vec{p}(t)} \vec{E}_{XUV}(t - \tau) \exp[i(I_p t - \int_t^{\infty} dt' \vec{p}^2(t')/2)], \quad (3.8)$$

wobei $\vec{p}(t) = [\vec{p}_0(t) + \vec{A}(t_i)] - \vec{A}(t)$ der Impuls des freien Elektrons im Infrarotfeld ist. Wenn der IR-Puls vorbei ist, ist $\vec{A}(t) = 0$ und der Elektronenimpuls ist wie in der klassischen Beschreibung gegeben durch $\vec{p}_f = [\vec{p}_0(t) + \vec{A}(t_i)]$. $a_{\vec{p}_f}(\tau)$ ist zu verstehen als die Summe aller Wahrscheinlichkeitsamplituden aller möglichen Elektronentrajektorien, die zum gleichen Endimpuls $\vec{p}_f(\tau)$ führen. Das Photoelektronenspektrum ist dann gegeben durch $S = |a_{\vec{p}_f}|^2$. Das Integral über t in Gleichung 3.8 berücksichtigt, dass das Elektron zu jeder Zeit t ins Kontinuum freigesetzt werden kann; die Wahrscheinlichkeit dafür ist gleich der Amplitude des XUV-Feldes multipliziert mit dem Dipolübergangsmatrixelement. Durch die Exponentialfunktion wird die Phase des Prozesses berücksichtigt, diese setzt sich zusammen aus der im Grundzustand bis zur Zeit t akkumulierten Phase $I_p t$ und der Phase, die danach im Kontinuum akkumuliert wurde.

Gleichung 3.8 kann umgeformt werden zu

$$a_{\vec{p}_f}(\tau) = -i \int_{-\infty}^{\infty} dt \exp[i\phi(t)] \vec{d}_{\vec{p}(t)} \vec{E}_{XUV}(t - \tau) \exp[i(W + I_p)t] \quad (3.9)$$

mit der Phase

$$\phi(t) = - \int_{-t}^{\infty} dt' (\vec{p}_f \vec{A}(t') + \vec{A}^2(t')/2), \quad (3.10)$$

wodurch deutlich wird, dass die Auswirkung des Infrarotfeldes im Wesentlichen aus einer zeitabhängigen Phasenmodulation des Elektronenwellenpaketes besteht. Wenn wieder von einem Infrarotfeld wie in Gleichung 3.1 ausgegangen wird, kann die zusätzliche Phase $\phi(t)$ dargestellt werden als:

$$\phi(t) = \phi_1(t) + \phi_2(t) + \phi_3(t) \quad (3.11)$$

$$\phi_1(t) = - \int_t^{\infty} dt U_p(t) \quad (3.12)$$

$$\phi_2(t) = \frac{\sqrt{8WU_p(t)}}{\omega_{IR}} \cos \Theta \cos \omega_{IR}t \quad (3.13)$$

$$\phi_3(t) = -\frac{U_p(t)}{2\omega_{IR}} \sin(2\omega_{IR}t) \quad (3.14)$$

ϕ_1 ändert sich nur langsam auf der Zeitskala der IR-Pulsdauer, während ϕ_2 und ϕ_3 sich mit der IR Frequenz, bzw. der zweiten Harmonischen ändern. Bei den meisten Streakingexperimenten ist $U_p \ll W$, so dass ϕ_2 dominant ist und ϕ_1 und ϕ_3 in der Regel vernachlässigt werden können.

Physikalisch bewirkt eine lineare Phasenmodulation des Elektronenwellenpaketes eine Verschiebung des Spektrums, die gegeben ist durch

$$\delta W = W - W_0 = -\partial\phi/\partial t \quad (3.15)$$

Wenn der XUV-Puls im Verhältnis zur Periode des IR-Feldes kurz ist, kann ϕ linear angenähert werden. Aus Gleichung (3.15) folgt dann direkt derselbe Ausdruck für die Energie wie im klassischen Fall (Gl. 3.5). Die durch die Phasenmodulation hervorgerufene Verbreiterung des Spektrums hängt von der Zeitstruktur und der spektralen Phase des XUV-Pulses ab. Daher ist es nicht möglich, einen beliebigen XUV-Puls aus einem gemessenen Streak-Spektrum zu rekonstruieren, sondern es müssen einige vereinfachende Annahmen gemacht werden. Dies wird im folgenden Kapitel ausführlicher dargestellt.

3.3 Rekonstruktion von Gaußpulsen mit linearem Chirp

Im Allgemeinen ist es aus oben genannten Gründen nicht möglich, die Zeitstruktur eines beliebigen XUV-Pulses mit beliebiger spektraler Phase eindeutig aus einem Streak-Spektrum zu rekonstruieren. Wenn allerdings nur ein konstanter linearer Chirp³ des XUV-Pulses angenommen wird und ein eventueller Chirp höherer Ordnung vernachlässigt wird, kann für einen gaußförmigen Puls das Streak-Spektrum analytisch berechnet werden [Geb, I⁺02] und es kann aus einem Streak-Spektrum und einem gleichzeitig gemessenen XUV-Spektrum die Pulsdauer des XUV-Pulses rekonstruiert werden. Der lineare Chirp der Pulse kann durch einen Vergleich von Streak-Spektren, die mit umgekehrter Richtung des Streak-Feldes aufgenommen wurden, bestimmt werden.

³Chirp: Siehe Anhang A

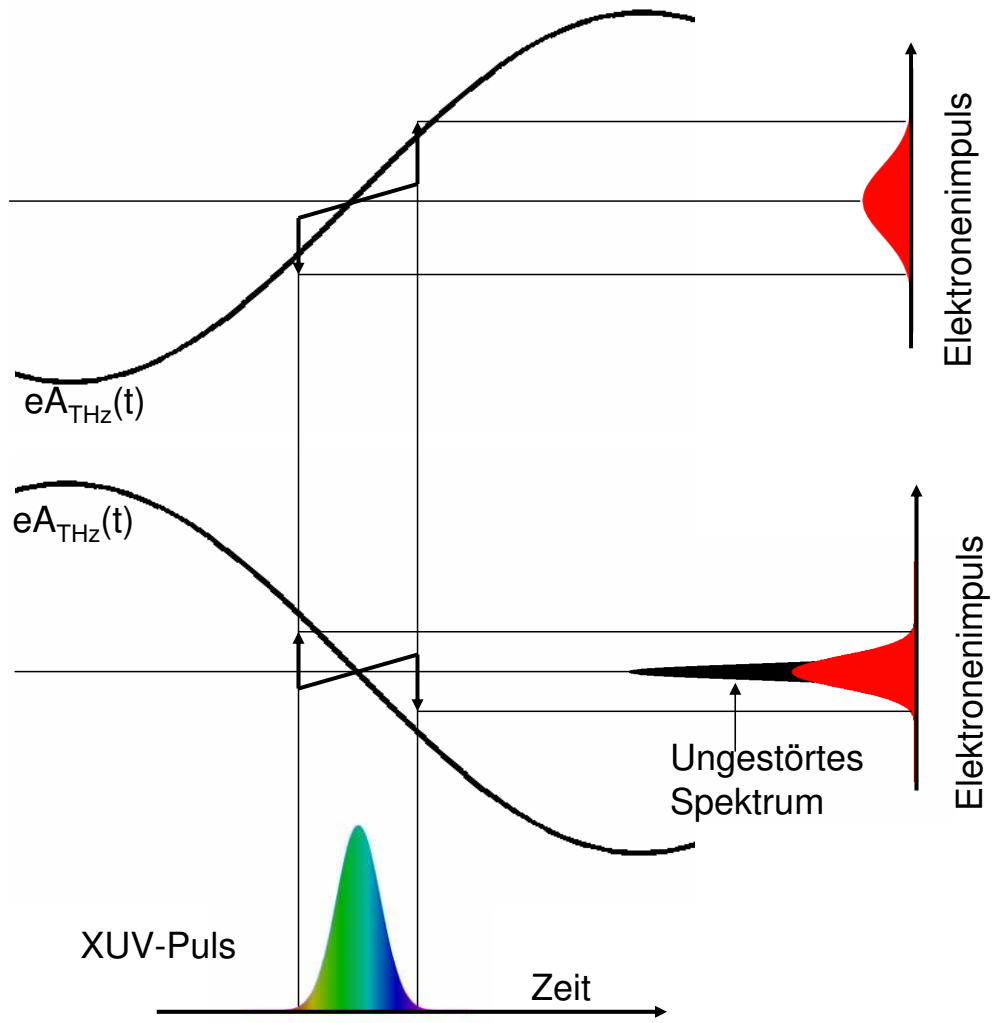


Abbildung 3.4: Lichtfeldgetriebene Streak-Kamera für einen XUV-Puls mit linearem Chirp (als Farbverlauf dargestellt). Die Verbreiterung des Photoelektronenspektrums hängt von der Richtung des Streak-Feldes ab. Im oberen Fall werden die höherenergetischen Elektronen, die vom Kopf des XUV-Pulses erzeugt wurden, vom Streak-Feld noch zusätzlich beschleunigt und die niederenergetischen Elektronen, die vom Ende des Pulses erzeugt wurden, werden noch weiter abgebremst. Dadurch wird das Streak-Spektrum sehr breit. Im unteren Fall ist es umgekehrt und das Streak-Spektrum wird schmaler.

Wir gehen von einem Gaußpuls mit einem linearen Chirp c aus. Das elektrische Feld des XUV-Pulses sei

$$E_{XUV}(t) = Ae^{-a(t-t_0)^2} e^{i(\omega_0(t-t_0)+c(t-t_0)^2)}. \quad (3.16)$$

Die rms-Pulslänge der XUV-Intensität $I_{XUV} = |\vec{E}_{XUV}|^2$ ist dann gegeben durch $\tau_{XUV} = \frac{1}{2\sqrt{a}}$ und die spektrale Bandbreite ist $\sigma_{XUV-Spektrum} = \sqrt{\frac{a^2+c^2}{a}}$. Der XUV-Puls sei überlagert von einem kohärenten, linear polarisierten Infrarotpuls mit einem elektrischen Feld wie in Gl. 3.1, wobei die Ankunftszeit des IR-Pulses so gewählt wird, dass das Maximum der XUV-Feldstärke mit einem Nulldurchgang des IR-Vektorpotentials zusammenfällt.

Das Spektrum der Photoelektronen ergibt sich nach Gl. 3.9 zu

$$S(\omega) = |a_{\vec{p}_f}|^2 = \left| - \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\phi(t)} E_{XUV}(t) e^{-i\omega t} \right|^2, \quad (3.17)$$

wobei $\vec{d}_{\vec{p}} = 1$ angenommen wurde. Wir gehen weiter davon aus, dass $U_p \ll W$ erfüllt ist und setzen daher $\phi(t) = \phi_2(t)$ (siehe Gl. 3.11). Für kleine t kann außerdem genähert werden:

$$\phi_2(t) \approx \sqrt{8\omega_0 U_p(0)/\omega_{IR}^2} \cos \theta (1 - \omega_{IR}^2 t^2/2) \quad (3.18)$$

Damit ist Gl. 3.17 analytisch lösbar und wir erhalten für Photoelektronen mit einem Impuls parallel zum IR-Feld ($\Theta = 0$):

$$S(\omega) \propto \exp \frac{-a(\omega - \omega_0)^2}{2(a^2 + (c \pm s/2)^2)}, \quad (3.19)$$

wobei $s = (\partial\delta W)/\partial t = \pm\sqrt{8U_p(0)\omega_0\omega_{IR}}$ ein Maß für die Streak-Geschwindigkeit ist (siehe auch [I⁺02]). Dieses Spektrum ist wieder gaußförmig mit einer Breite von

$$\begin{aligned} \sigma_S &= \sqrt{\frac{a^2 + (c \pm s/2)^2}{a}} \\ &= \sqrt{\sigma_{XUV-Spektrum}^2 + \tau_{XUV}^2 (s^2 \pm 4cs)} \end{aligned} \quad (3.20)$$

Das Streak-Spektrum besteht also aus einer Faltung des XUV-Spektrums mit der auf Energien projizierten Zeitstruktur. Der lineare Chirp c ändert die effektive Streak-Geschwindigkeit $s_{eff} = \sqrt{s^2 \pm 4cs}$. Das Vorzeichen von s hängt von der Richtung des elektrischen Streak-Feldes ab und kehrt sich für aufeinanderfolgende Nulldurchgänge des IR-Vektorpotentials A_{IR} um.

Damit ändert sich bei gleichbleibendem Chirp auch die effektive Streak-Geschwindigkeit und damit die Breite der Streak-Spektren für jeden aufeinanderfolgenden Nulldurchgang von A_{IR} . Abb. 3.4 zeigt schematisch das Prinzip der lichtfeldgetriebenen Streak-Kamera für einen XUV-Puls mit linearem Chirp.

Wenn die Streak-Geschwindigkeit s und der Chirp c des XUV-Pulses bekannt sind, lässt sich aus der Breite σ_S eines gemessenen Streak-Spektrums und der Breite des XUV-Spektrums $\sigma_{XUV-Spektrum}$ mit Hilfe von Gl. 3.20 die Pulslänge des XUV-Pulses berechnen:

$$\tau_{XUV} = \sqrt{\frac{\sigma_s^2 - \sigma_{XUV-Spektrum}^2}{s^2 \pm 4cs}}. \quad (3.21)$$

Der Effekt einer von der Streak-Richtung abhängigen effektiven Streak-Geschwindigkeit, kann ausgenutzt werden, um den linearen Chirp c der XUV-Pulse zu bestimmen. Dazu werden zwei Streak-Spektren, die mit unterschiedlicher Streak-Richtung aufgenommen wurden und das XUV-Spektrum benötigt. Bei dem Experiment dieser Arbeit war es nicht möglich, für einen XUV-Puls gleichzeitig zwei Streak-Spektren mit umgekehrter Streak-Richtung aufzunehmen, sondern es wurden an zwei aufeinanderfolgenden Nulldurchgängen von A_{IR} jeweils mehrere Streak-Spektren und die zugehörigen XUV-Spektren gemessen. Dies erlaubt eine Bestimmung des über viele XUV-Pulse gemittelten linearen Chirps \bar{c} . Dazu werden die gemessenen Streak- und XUV-Spektren einzeln entfaltet

$$\sigma_{entf.} = \sqrt{\sigma_s^2 - \sigma_{XUV-Spektrum}^2} \quad (3.22)$$

und dann jeweils für jeden A_{IR} -Nulldurchgange 1,2 gemittelt. Daraus lässt sich dann die mittlere Pulsdauer

$$\bar{\tau}_{XUV} = \sqrt{\frac{(\bar{\sigma}_{entf.}^2)_1 + (\bar{\sigma}_{entf.}^2)_2}{2s^2}} \quad (3.23)$$

berechnen. Der mittlere Chirp ergibt sich dann durch

$$\bar{c} = \frac{(\bar{\sigma}_{entf.}^2)_1 - (\bar{\sigma}_{entf.}^2)_2}{8s\bar{\tau}_{XUV}^2} \quad (3.24)$$

Wenn man annimmt, dass der Chirp für jeden Einzelschuss gleich ist, dass also alle XUV-Pulse den mittleren Chirp \bar{c} haben, lässt sich nach Gl. 3.21 die Pulsdauer für durch Gaußpulse angenäherte Einzelschüsse rekonstruieren.

3.4 Alternative Methoden zur Messung ultra kurzer XUV-Pulse

Eine Alternative zur Pulslängenmessung mit einer Streak-Kamera bieten Kreuz- oder Autokorrelationsexperimente. Dabei wird entweder der XUV-Puls mit einem anderen Lichtpuls in einem Medium überlagert (Kreuzkorrelation) oder der XUV-Puls wird geteilt und die beiden Teilpulse werden in einem Medium überlagert (Autokorrelation). Wenn in dem Medium ein Effekt stattfindet, der nur auftritt, wenn beide Lichtpulse gleichzeitig da sind, ist es durch Ändern der relativen Ankunftszeit beider Pulse und Messen des Effekts möglich, das Zeitprofil des XUV-Pulses abzutasten. Da diese Messungen mehrmals bei unterschiedlichen relativen Ankunftszeiten durchgeführt werden müssen, kann nur die über viele Pulse gemittelte XUV-Pulsform bestimmt werden und eine Einzelschussmessung ist nicht möglich. Im sichtbaren bis nah-ultravioletten Wellenlängenbereich können durch Autokorrelationsmessungen in Kristallen, sogenannte FROG-Messungen [TK93, KT93], Lichtpulse in einem Einzelschussverfahren vollständig charakterisiert werden. Bei Strahlung im XUV-Bereich sind Kristalle nicht transparent, daher können diese Messmethoden nicht ohne weiteres auf den XUV-Bereich übertragen werden.

Bei FLASH wurde bereits mit Hilfe einer zwei-Photonen-Doppelionisation von Helium eine Autokorrelationsmessung durchgeführt [M⁺a]. Dazu wurden XUV-Pulse mit einer Wellenlänge von 24 nm in zwei Teilstrahlen aufgeteilt und in ein Heliumgas fokussiert. Bei der benutzten Wellenlänge können zweifach geladene Heliumionen nur erzeugt werden, wenn gleichzeitig zwei Photonen von einem Heliumatom absorbiert werden. Die Anzahl der erzeugten He²⁺-Ionen hängt deshalb quadratisch von der XUV-Intensität ab. Damit steigt die Ionenanzahl stark an, wenn sich die beiden Teilstrahlen überlagern und es lässt sich durch Verzögern des einen Pulses gegenüber dem anderen bei gleichzeitigem Messen der He²⁺-Ionenanzahl die mittlere Länge der XUV-Pulse bestimmen. In einem anderen Experiment wurde bei FLASH die mittlere Kohärenzlänge der XUV-Pulse gemessen, indem zwei Teilstrahlen auf einer Kamera überlagert wurden und Interferenzbilder in Abhängigkeit der relativen Ankunftszeit der Pulse gemessen wurden (siehe Kap. 2.1.4) [M⁺08b].

Auf Grund des sehr großen zeitlichen Jitters der FLASH-Pulse (siehe Kap. 2.1.4) sind Kreuzkorrelationsexperimente, bei denen ein zu den FLASH-Pulsen synchronisierter Laser mit den FLASH XUV-Pulsen überlagert wird,

nicht geeignet, um die Pulslänge der FLASH-Pulse zu messen. Stattdessen werden sie z.T. benutzt, um den Jitter der FLASH-Pulse zu messen (siehe Kap. 2.1.4).

Eine weitere Methode zur Charakterisierung ultrakurzer Lichtpulse ist die Messung von spektralen Interferenzen. Diese sogenannten SPIDER⁴ Messungen [IW98] werden häufig im sichtbaren Wellenlängenbereich benutzt. Dabei wird der Lichtpuls in zwei Hälften geteilt und das Spektrum des einen Teilpulses, mit Hilfe eines nicht linearen Effekts in einem Kristall, verschoben. Danach werden die Teilpulse leicht zeitlich gegeneinander versetzt wieder überlagert. Im Spektrum treten dann Interferenzen auf, aus denen sich das elektrische Feld des Lichtpulses vollständig rekonstruieren lässt. Da es im XUV-Bereich keine Möglichkeit gibt, das Spektrum eines Teilpulses zu verschieben lässt sich diese Methode nicht direkt auf den XUV-Bereich übertragen. Allerdings könnten, wie bei Streak-Kameras, Elektronenwellenpakete für SPIDER-Messungen benutzt werden [Q⁺03]. Dazu müsste der XUV-Strahl in zwei Teile geteilt werden, die relativ zueinander zeitlich verzögert werden. Mittels Photoionisation könnten aus diesen zwei Lichtpulsen zwei Elektronenwellenpakete erzeugt werden, die die gleiche Zeitstruktur und Phase wie die XUV-Pulse haben. Durch Streaking mit einem überlagerten THz-Feld ließen sich die beiden Elektronenwellenpakete spektral gegeneinander verschieben und aus Interferenzen im Photoelektronenspektrum könnte wieder das elektrische Feld des XUV-Pulses rekonstruiert werden. Dies wäre eine Möglichkeit in einem Einzelschussverfahren die XUV-Pulse vollständig zu rekonstruieren. Allerdings wären diese Messungen sehr anspruchsvoll, da sehr hoch aufgelöste Photoelektronenspektren benötigt werden. Bisher wurden noch keine SPIDER Messungen im XUV-Bereich durchgeführt.

⁴SPIDER: Abkürzung für „Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction“.

Kapitel 4

Aufbau einer THz-Feld getriebenen Streak-Kamera bei FLASH

Zur Messung der Zeitstruktur der FLASH XUV-Pulse wurde im Rahmen dieser Arbeit eine THz-Feld getriebene Streak-Kamera aufgebaut. Im Experiment werden die XUV-Pulse von FLASH mit THz-Pulsen aus dem FLASH THz-Undulator kollinear überlagert (siehe Abb. 4.1, Detailzeichnung siehe Anhang C) und in die Wechselwirkungszone fokussiert. In der Wechselwirkungszone befinden sich Edelgasatome (Krypton oder Xenon) die von den XUV-Photonen ionisiert werden. Die dabei entstehenden Photoelektronen werden durch das elektrische Feld des THz-Pulses beschleunigt. Die Energien der Photoelektronen werden mit zwei Elektronen-Flugzeitspektrometern gemessen, eines der Spektrometer ist parallel zur Polarisation des THz-Pulses ausgerichtet, das andere senkrecht dazu. Der gesamte Aufbau befindet sich in einer Ultrahochvakuumkammer, die direkt mit den Vakuumröhren der XUV- und THz-Beamlines verbunden ist. Im Folgenden wird auf die einzelnen Elemente des Experimentes genauer eingegangen.

4.1 XUV-Strahlführung

Das Streak-Kamera Experiment wurde in der FLASH-Experimentierhalle am Messplatz der Beamline¹ 3 durchgeführt. Die XUV-Strahlung wird in dieser Beamline mit fünf Planspiegeln zum Messplatz transportiert, so dass am Messplatz der unfokussierte Strahl ankommt [T⁺09]. Im Experiment wird der XUV-Strahl mit einem sphärischen Silizium-Molybdän-Multilagenspiegel mit

¹„Beamline“: Englisch für „Strahlröhre“

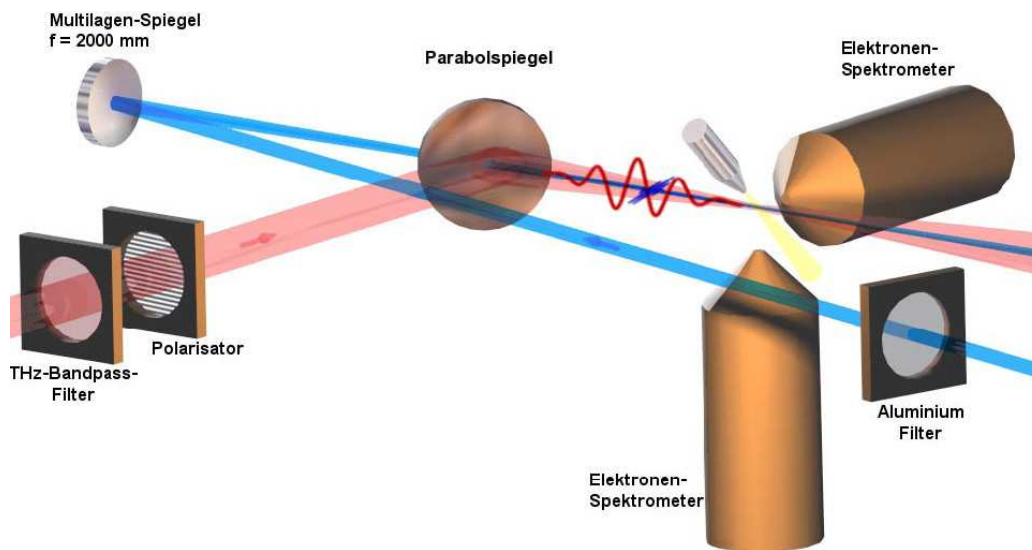


Abbildung 4.1: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus. Der XUV-Strahl (blau) und der THz-Strahl (rot) werden kollinear überlagert und in die Wechselwirkungszone fokussiert. In die Wechselwirkungszone wird mit einer Gasdüse Edelgas eingelassen. Der XUV-Puls ionisiert die Atome. Die Photoelektronen werden vom THz-Feld beschleunigt. Die Polarisation des XUV-Pulses ist horizontal, die des THz-Pulses vertikal. Die Energie der Photoelektronen wird mit zwei Spektrometern gemessen, eines parallel und eines senkrecht zur THz-Polarisation. In den THz-Strahl können ein Polarisator und ein Bandpassfilter gefahren werden. Der XUV-Strahl kann mit einem Aluminiumfilter abgeschwächt werden.

einer Brennweite von 2 m fokussiert. Der Spiegel ist optimiert für die Reflexion von 13,5 nm Strahlung. Der XUV-Strahl trifft mit einem Winkel von ca. einem Grad gegenüber der Normalen auf den Spiegel. Mit Hilfe von Motoren lässt sich der Spiegel in alle Raumrichtungen und Winkel im Vakuum justieren. Die Fokussierung des XUV-Strahls wurde mit dem Programm Zemax [Zem] für eine Wellenlänge von 13,5 nm simuliert, wobei für den einfallenden Strahl die Parameter aus [A⁺07] verwendet wurden (23,5 m nach dem Undulator: 2,1 mm FWHM Strahlgröße und 90 μ rad Divergenz). Der simulierte Fokus hatte bei einem angenommenen Gaußstrahl eine volle Halbwertsbreite (FWHM) von 25 μ m und eine Rayleighlänge² von 50 mm. Der XUV-Fokus wurde mit Hilfe eines phosphoreszierenden Schirms und einer Kamera gemessen (siehe Kap. 4.3), wobei eine Halbwertsbreite von etwa 100 μ m bestimmt wurde. Dies ist deutlich größer als der simulierte Wert. Es ist möglich, dass auf Grund von Sättigung des Schirms und nicht ausreichender Auflösung der optischen Abbildung ein zu großer Wert bestimmt wurde. Damit gewährleistet ist, dass das THz-Feld für alle vom XUV-Puls erzeugten Photoelektronen gleich ist, ist es wichtig, dass der Strahldurchmesser des XUV-Strahls in der Wechselwirkungszone deutlich kleiner ist, als der Strahldurchmesser des THz-Strahls. Dies ist auch bei einem XUV-Fokus von 100 μ m noch gut erfüllt.

Die Energie der einzelnen XUV-Pulse kann bei FLASH mit einem in der Beamline fest installierten Gasmonitordetektor gemessen werden [T⁺08]. In dem Detektor wird ein Gas bei geringem Druck ionisiert und die Anzahl der entstehenden Elektronen und Ionen gemessen. Abb. 4.2 zeigt eine Gasmonitordetektor Messung der Pulsenergie über mehrere Minuten. In blau dargestellt sind die jeweils über die 25 s gemittelten Pulsenergien in μ J. Die grüne Kurve zeigt die über mehrere Minuten gemittelte Pulsenergie, die bei etwas über 22 μ J liegt. Diese Pulsenergien waren typisch für alle Messtage des Streak-Kamera-Experimentes.

Die Pulsenergien werden vor der Einkopplung der XUV-Strahlen in die Beamline gemessen. Auf Grund von Verlusten von 41 % bei der Strahlführung [T⁺09] und ~ 30 % bei der Reflexion am Multilagenspiegel entsprechen die $\approx 22 \mu$ J Pulsenergie im Gasdetektor einer Pulsenergie von etwa 9 μ J in der Wechselwirkungszone. Bei einer minimalen Pulslänge von 8 fs [A⁺07] entspricht das einer maximalen Intensität von $\sim 1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Bei solch hohen Intensitäten treten sehr schnell Schäden an den zur Justage notwendigen Phosphorschirmen auf. Außerdem ist es möglich, dass Raumladungseffekte auftreten, die zu einer Verbreiterung der Photoelektronenspektren führen. Daher ist es z.T. notwendig, den XUV-Strahl abzuschwächen. Dazu können

²Definition der Rayleighlänge: siehe Anhang B

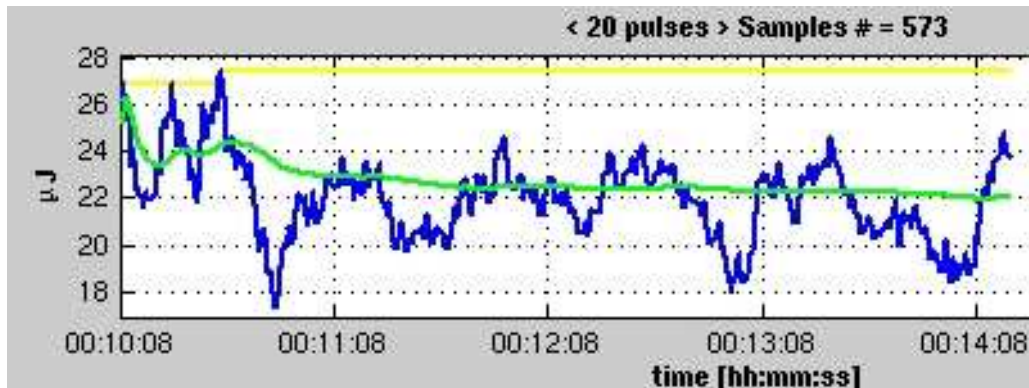


Abbildung 4.2: Mit dem Gasmonitordetektor über mehrere Minuten gemessene XUV-Pulsenergie. In blau dargestellt sind die jeweils über 25 s gemittelten Pulsenergien, in grün dargestellt ist der über mehrere Minuten gebildete Mittelwert der Kurve.

zwei Aluminium Folien in den Strahl gefahren werden. Die eine hat eine Dicke von 200 nm und damit bei einer XUV-Wellenlänge von 13,5 nm eine Transmission von $4 \cdot 10^{-3}$ [cxr], die andere hat eine Dicke von 137 nm und eine Transmission von $23 \cdot 10^{-3}$. In der Regel wurde die 200 nm Folie zum Justieren und die 137 nm Folie zum Messen der Photoelektronenspektren verwendet, so dass bei der Messung der Photoelektronenspektren die mittlere Pulsenergie in der Wechselwirkungszone etwa $\approx 0,5 \mu\text{J}$ und die maximale Intensität etwa $\sim 3 \cdot 10^{11} \text{W}/\text{cm}^2$ betrug. Eine andere Möglichkeit den XUV-Strahl abzuschwächen, bietet der Gasabsorber, der fest in der XUV-Beamline bei FLASH installiert ist [TBH⁺06]. Der Gasabsorber besteht aus einer 15 m langen Gaszelle, die mit unterschiedlichen Gasen gefüllt werden kann. Je nach eingestelltem Gasdruck verringert sich die XUV-Pulsenergie durch Photoabsorption im Gas. Dadurch lässt sich bei einer XUV-Wellenlänge von 13,5 nm die Pulsenergie um bis zu 10^{-4} abschwächen, ohne dabei andere Strahlparameter zu ändern.

4.2 THz-Strahlführung

Die Strahlung des THz-Undulators wird bereits wenige Meter hinter dem THz-Undulator von der kollinear laufenden XUV-Strahlung getrennt und in einer eigens dafür gebauten THz-Beamline zum BL-3 Messplatz transportiert (siehe Abb. 4.3) [G⁺08b]. Um die XUV- und THz-Strahlen zu trennen, wird ein Planspiegel mit einer zentralen Apertur von 10 mm Durchmesser verwendet. Der XUV-Strahl geht durch die Apertur, während auf Grund

des größeren Strahldurchmessers der größte Teil der THz-Strahlung von dem Spiegel reflektiert und in die THz-Beamline eingekoppelt wird. Da die langwellige THz-Strahlung stark divergent ist und sich zwischen THz-Undulator und Messplatz mehrere Aperturen befinden, muss die Strahlung in der Beamline mehrfach refokussiert werden. Dies geschieht mit insgesamt sechs fokussierenden Toroidspiegeln. Außerdem befinden sich noch insgesamt sieben Planspiegel in der Beamline. Es ist an mehreren Stellen möglich, die THz-Strahlung durch Fenster auszukoppeln um etwa das Spektrum oder die Pulsenenergie zu messen. Um das Vakuum im Beschleuniger vom Vakuum in der Beamline zu trennen befindet sich ein Diamantfenster in der Beamline. Im Rahmen dieser Doktorarbeit wurde die Propagation der Strahlung durch die Beamline mit dem Programm Zemax [Zem] simuliert (siehe Kap. 4.2.2) und die THz-Beamline mit aufgebaut.

Im Experiment werden die THz-Pulse mit einem Parabolspiegel um 90° umgelenkt und fokussiert. Dabei wurden drei unterschiedliche Fokussierspiegel mit Brennweiten von 100, 150 und 200 mm benutzt. In der Mitte der Parabolspiegel befindet sich jeweils eine Apertur mit einem Durchmesser von 2 mm. Dadurch können die XUV-Strahlen, die von hinten durch die Apertur gehen, kollinear mit den THz-Strahlen überlagert werden (siehe Abb. 4.1). Die Parabolspiegel können mit Hilfe von Motoren im Vakuum in alle drei Raumrichtungen und in zwei Winkeln justiert werden. Um das Spektrum des THz-Pulses einzuschränken und damit den zeitlichen Verlauf des elektrischen Feldes zu glätten wurde bei einigen Messungen ein Bandpassfilter (QMC Instruments Ltd.) in den THz-Strahl gefahren, der nur Wellenlängen zwischen 82 und 107 μm transmittiert (siehe Anhang D). Die THz-Strahlung ist am Undulator horizontal linear polarisiert. In der THz-Beamline befindet sich ein Periskop, das die Polarisation dreht, so dass die Strahlung im Experiment vertikal polarisiert ist. Zur Verbesserung der Polarisationseigenschaften wurde bei den meisten Messungen ein Drahtgitterpolarisator (Microtech, G25) verwendet.

4.2.1 Delayline und Ankunftszeitmessung

Um die Ankunftszeit der THz-Pulse am Messplatz einzustellen, wurde eine Delayline³ in der THz-Beamline installiert. Sie besteht aus vier Spiegeln, von denen sich zwei (P5 und P6 in Abb. 4.3) gegenüber den anderen parallel verschieben lassen, womit sich die Weglänge für die THz-Pulse einstellen lässt. Die Spiegel lassen sich in Schritten von 5 μm verstellen, was einer Weg-

³„Delayline“: Englisch für „Verzögerungsstrecke“

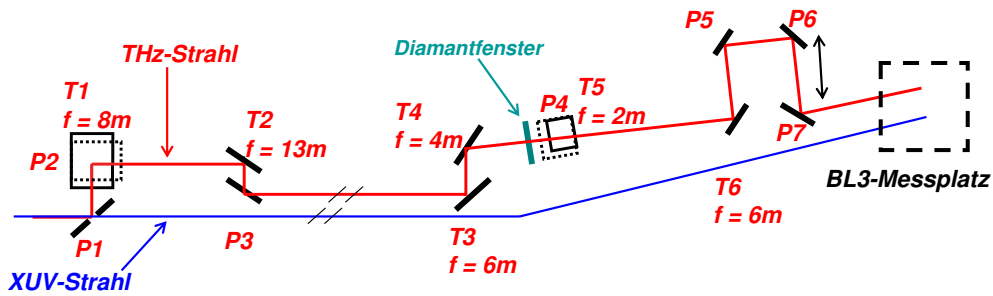


Abbildung 4.3: Schematischer Aufbau der THz-Beamline. Wenige Meter hinter dem THz-Undulator wird die THz-Strahlung mit einem Spiegel mit einer zentralen Apertur (P1) von der kollinear laufenden XUV-Strahlung getrennt und in die THz-Beamline eingekoppelt. In der THz-Beamline wird die Strahlung mit sechs Toroidspiegeln (T1-6) und sieben Planspiegeln (P1-7) zum BL3 Messplatz transportiert. Die Spiegel P5 und P6 können verschoben werden, um die Weglänge der THz-Strahlung einzustellen [G⁺08b].

längenänderung von $\Delta s = 10 \mu\text{m}$ und damit einer Änderung der Ankunftszeit der THz Pulse von $\Delta t = \Delta s/c = 33 \text{ fs}$ entspricht. Um den zeitlichen Überlapp der XUV- und THz-Pulse zu finden, wurde ein gepulster Laser (Edinburgh Instruments EPL-635) mit einer Pulslänge von $\sim 100 \text{ ps}$ vor dem THz-Undulator in die Strahlröhre eingekoppelt. Der Laserstrahl wurde so aufgeweitet, dass die Hälfte des Strahls durch die Apertur des ersten THz-Spiegels und damit in die XUV-Beamline ging und die andere Hälfte in die THz-Beamline eingekoppelt wurde. Im Experiment wurden die beiden Laserstrahlen räumlich in der Wechselwirkungszone überlagert, so dass der eine Laserstrahl dem XUV-Strahlweg und der andere dem THz-Strahlweg folgt. In der Wechselwirkungszone wurden die Ankunftszeiten der beiden Laserstrahlen mit Hilfe einer schnellen Photodiode (Alphas UPD 200) mit einer Anstiegszeit von $< 170 \text{ ps}$ gemessen und mit Hilfe der Delayline so eingestellt, dass sie gleichzeitig ankamen. Die Genauigkeit des Verfahrens wurde durch mehrmaliges Wiederholen auf $\pm 20 \text{ ps}$ bestimmt.

4.2.2 Simulation der THz-Strahlung

Sowohl die Propagation der THz-Strahlung durch die THz-Beamline als auch die Fokussierung im Experiment wurden mit dem Programm Zemax [Zem] simuliert. Zemax erlaubt es, beliebige Wellenfronten, die durch eine Matrix von Amplituden und Phasen des elektrischen Feldes beschrieben werden, zu

propagieren. Man kann für Undulatorstrahlung eine virtuelle Quelle auf einer transversalen Ebene im Undulator definieren, so dass in jeder beliebigen Entfernung vom Undulator die Undulatorstrahlung identisch zur Strahlung dieser Quelle ist. In der Regel wird diese Quelle in der Mitte des Undulators definiert. Das elektromagnetische Feld innerhalb des Undulators weicht von dem der Quelle ab, daher ist sie als virtuelle Quelle zu verstehen [GSSY06].

Die virtuelle Quelle hat in der Undulatormitte eine ebene Wellenfront und ihre FWHM-Breite ist ungefähr gegeben durch

$$d = 2 * 0,7 * \sqrt{\frac{\lambda L_U}{2\pi}}, \quad (4.1)$$

wobei λ die Wellenlänge der Strahlung und L_U die Länge des Undulators ist. In unserem Fall lässt sich Gleichung 4.1 gut annähern durch $d \approx \sqrt{\lambda * 1 m}$.

Bei den Simulation wurde die virtuelle Quelle durch Gaußstrahlen deren Taille in der Mitte des Undulators lag und deren Breite $\sqrt{\lambda * 1 m}$ betrug, angenähert. Die so simulierten Fokusgrößen und Rayleighlängen von $91 \mu\text{m}$ -Strahlung sind in Tabelle 4.1 für alle im Experiment verwendeten Fokussierspiegel angegeben.

Brennweite	Fokusgröße (Waist)	Rayleighlänge
100 mm	0,23 mm	1,8 mm
150 mm	0,35 mm	4,2 mm
200 mm	0,47 mm	7,4 mm

Tabelle 4.1: Simulierte Fokusgrößen und Rayleighlängen der THz-Strahlung bei unterschiedlichen Fokussierspiegeln. Die Wellenlänge betrug $91 \mu\text{m}$.

4.2.3 Gouy-Phasenverschiebung

Konvergierende Lichtwellen erfahren bei der Propagation durch ihren Fokus von $-\infty$ bis ∞ eine Phasenverschiebung von $n\pi$ gegenüber einer ebenen Welle. Dieser Effekt ist bekannt als „Gouy-Phasenverschiebung“ [Sie86, Boy80, FW01]. Für die für uns besonders relevanten Gaußstrahlen ist $n = 1$ und die zusätzliche Phase auf der Strahlachse lässt sich ausdrücken als

$$\phi(z) = \arctan\left(\frac{z}{z_0}\right), \quad (4.2)$$

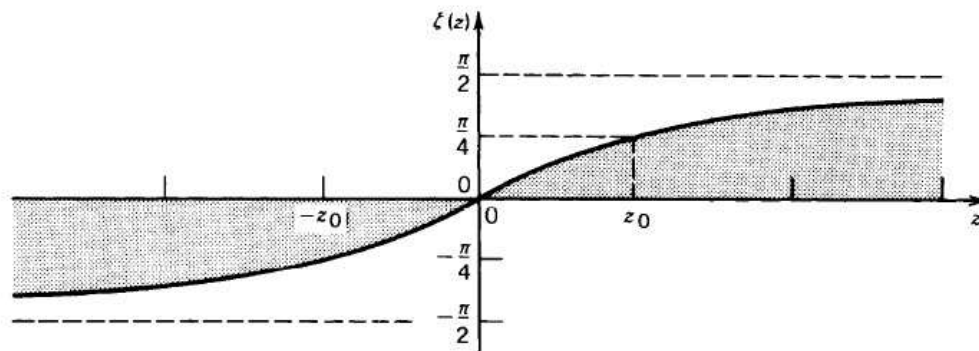


Abbildung 4.4: Gouy-Phase eines fokussierten Gaußstrahls auf der Strahlachse. z_0 ist die Rayleighlänge (Bild aus [ST91]).

wobei sich bei $z = 0$ der Fokus befindet und z_0 die Rayleighlänge ist (siehe auch Abb. 4.4).

Diese Gouy-Phasenverschiebung des THz-Feldes bedeutet, dass sich, während sich die THz- und XUV-Pulse kollinear durch die Wechselwirkungszone bewegen, die THz-Phase bezüglich dem XUV-Puls ändert. Die Messung der XUV-Zeitstruktur im Streak-Kamera-Experiment beruht darauf, dass Photoelektronen abhängig von der THz-Phase zum Ionisationszeitpunkt beschleunigt werden. Eine Änderung der THz-Phase über die Wechselwirkungszone ist daher gleichbedeutend mit einer Verschmierung der Zeitstrukturmessung. Die Länge der Wechselwirkungszone ist im Wesentlichen gegeben durch die Ausdehnung des Gasvolumens, aus dem die Photoelektronen erzeugt werden. Diese Ausdehnung wurde auf 1,1 mm abgeschätzt (siehe Kap.4.4). Bei den meisten Experimenten wurde THz-Strahlung mit einer Wellenlänge von $\lambda = 91 \mu\text{m}$ und damit einer Periodendauer von $T = \lambda/c = 303 \text{ fs}$ verwendet. Wenn sich die Phase des THz-Pulses über die Wechselwirkungszone um $\Delta\phi$ verändert, entspricht das im Streak-Kamera-Experiment einer Zeitänderung von

$$\Delta t = \frac{\Delta\phi}{360^\circ} T \quad (4.3)$$

Die im Experiment gemessene Zeitstruktur besteht dann aus einer Faltung der XUV-Zeitstruktur mit einer Funktion der Breite Δt (siehe Kap. 6.1).

Tabelle 4.2 zeigt die berechneten Gouy-Phasenverschiebungen und daraus resultierenden Verschmierungen der Zeitmessung bei unterschiedlichen THz-Fokussierspiegelbrennweiten. Dabei wurde von den simulierten Rayleighlängen

gen (siehe Tab. 4.1) und einer FWHM-Länge der Wechselwirkungszone von 1,1 mm ausgegangen.

Die Auswirkung der Gouy-Phasenverschiebung ist weitgehend unabhängig von der THz-Wellenlänge. Bei längeren Wellenlängen ist zwar bei gleicher Fokussierspiegelbrennweite die Rayleighlänge größer und damit die Gouy-Phasenverschiebung in der Wechselwirkungszone geringer, aber auf Grund der größeren Periodendauer T nimmt die Verschmierung der Zeitmessung Δt nicht ab.

Brennweite	$\Delta\phi$	Δt
100 mm	35,1°	29,5 fs
150 mm	15,5°	13,0 fs
200 mm	8,8°	7,4 fs

Tabelle 4.2: Gouy-Phasenverschiebung über die Wechselwirkungszone und daraus resultierende Verschmierung der Zeitmessung bei unterschiedlichen Fokussierspiegelbrennweiten. Die Wellenlänge betrug $91 \mu\text{m}$.

4.3 Diagnostik

Im Streak-Kamera-Experiment müssen die THz- und XUV-Pulse fokussiert und räumlich und zeitlich überlagert werden. Um dies zu erreichen, gibt es in der Experimentierkammer insgesamt drei mit Ce:YAG-Pulver beschichtete Schirme, die grün phosphoreszieren, wenn der XUV-Puls auf sie trifft und ihn damit sichtbar machen. Der erste Ce:YAG-Schirm kann direkt vor den zur XUV-Fokussierung benutzten Multilagenspiegel gefahren werden, um den Auftreffort der Strahlung auf dem Spiegel zu überprüfen. Der zweite Schirm ist an der Rückseite des zur THz-Fokussierung benutzten Parabolspiegels angebracht. Er dient dazu, das Durchfädeln des XUV-Strahls durch die Apertur im Parabolspiegel zu erleichtern. Der dritte Schirm kann mit Hilfe eines XYZ-Manipulators unter 45° zur Strahlachse in die Wechselwirkungszone gefahren werden (siehe Abb.4.5). Dieser Schirm wird mit zwei CCD-Kameras abgebildet, wobei die eine direkt unter 45° den Schirm abbildet und die andere lediglich zur Ausrichtung des Schirms bezüglich der Spektrometer dient. Zur Justage des THz-Pulses wurde hauptsächlich sichtbare Undulatorstrahlung, die im THz-Undulator entsteht und kollinear mit dem THz-Licht läuft, verwendet. Abb. 4.5 zeigt rechts ein Bild des Ce:YAG-Schirms in der Wechselwirkungszone. Es ist als ausgedehnter heller Fleck die sichtbare Undulatorstrahlung zu sehen. In der Mitte leuchtet hell der XUV-Fokus. Die THz-Strahlung wurde außerdem mit einem Pyrodetektor direkt gemessen. Der

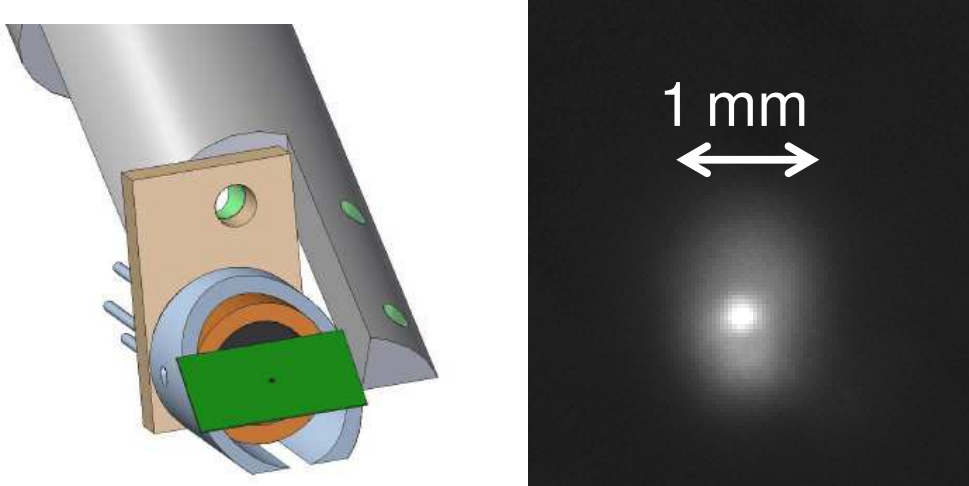


Abbildung 4.5: links: Schirm und Detektor zur Justage der THz- und XUV-Foki, rechts: Bild des XUV-Fokus, der von der sichtbaren Undulatorstrahlung überlagert ist.

Ce:YAG-Schirm in der Wechselwirkungszone hat eine Bohrung mit 0,4 mm Durchmesser hinter der der Pyrodetektor (Spectrum Detector, SPH-43) angebracht ist. Er liefert, wenn der THz-Puls ihn trifft, einen zur Intensität proportionalen Spannungspuls. Durch Verfahren des Detektors und Messen des Spannungssignals kann daher der Fokus der THz-Strahlung abgetastet werden. Es hat sich dabei gezeigt, dass das Maximum der THz-Strahlung (bei Benutzung des Bandpassfilters) immer mit dem Maximum der sichtbaren Undulatorstrahlung übereinstimmt.

4.4 Gasdüse

Das im Experiment benötigte Edelgas wird als effusiver Strahl aus einer Gasdüse in die Wechselwirkungszone gelassen. Die Gasdüse besteht aus einem Edelstahlrohr, das mit einer Kapillare verbunden ist. Der Gasfluss in das Edelstahlrohr lässt sich mit einem Feindosierventil regeln. Die Gasdüse ist mit einem XYZ-Manipulator in allen drei Raumrichtungen positionierbar. Die Kapillare ist aus Edelstahl, hat einen Innendurchmesser von $250\ \mu\text{m}$ und ist 50 mm lang. Die Dichteverteilung des Gasstroms in der Wechselwirkungszone bestimmt das Gebiet, in dem die Photoelektronen erzeugt werden. Dabei ist ein möglichst kleines Gebiet erstrebenswert, da dann die Auflösung der Photoelektronenspektrometer besser und die Gouy-Phasenverschmierung

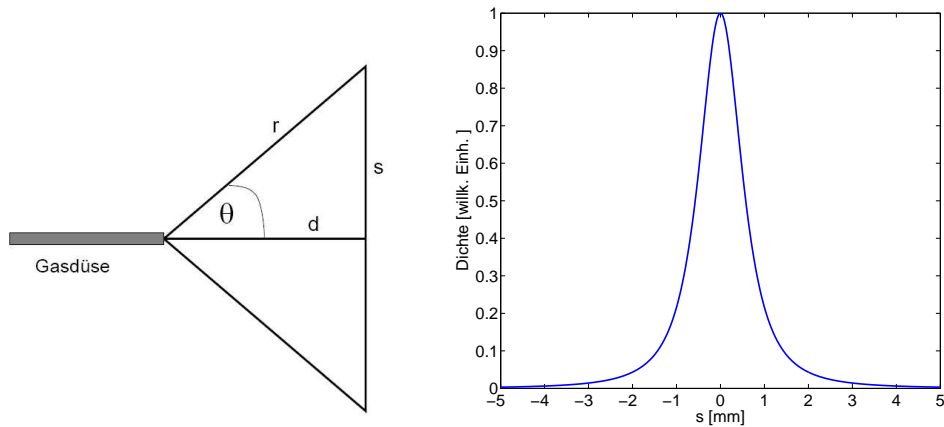


Abbildung 4.6: Links: Geometrie der Gasdüse, d ist der Abstand zur Wechselwirkungszone, s die XUV- und THz-Strahlrichtung. Rechts: Berechnete Dichteverteilung des Gases in der Wechselwirkungszone.

der Zeitstrukturmessung geringer ist (siehe Kap. 4.2.3). Die Dichteverteilung eines Gasstroms aus einer dünnwandigen Öffnung ist

$$\rho(\Theta) \propto \frac{\cos \Theta}{r^2} \quad (4.4)$$

[Sco88]. Gasströme aus dünnen Röhren sind in der Regel kollimierter daher ist die $\cos \Theta$ -Verteilung eine Abschätzung einer oberen Grenze der Winkelverteilung des ausströmenden Gases. Abbildung 4.6 links zeigt die Geometrie der Gasdüse. Der Abstand d der Gasdüse zur Wechselwirkungszone betrug etwa 0,75 mm. Die XUV- und THz-Strahlrichtung ist die s -Achse. Gleichung 4.4 lässt sich umformen zu

$$\rho(s) = \frac{1}{\left(\frac{s^2}{d^2} + 1\right)^{3/2}} \quad (4.5)$$

Diese Dichteverteilung ist in Abbildung 4.6 rechts aufgetragen. Die volle Halbwertsbreite der Verteilung beträgt 1,14 mm.

Der Druck in der Vakuumkammer betrug ohne Gasstrom etwa $8 \cdot 10^{-7}$ mbar, mit Gas etwa $4 \cdot 10^{-6}$ mbar.

4.5 Elektronen-Flugzeitspektrometer

Die Elektronen-Flugzeitspektrometer messen die Flugzeit und damit indirekt die Energie von Photoelektronen. Sie bestehen aus sechs elektrostatischen Linsen, die die Photoelektronen kollimieren, einem Flugrohr und einem Detektor. Die Eintrittsapertur der Spektrometer hat einen Durchmesser von 4 mm, die Flugstrecke von der Wechselwirkungszone, die etwa 5 mm vor der Eintrittsapertur liegt, zum Detektor beträgt 445 mm. Der Detektor besteht aus zwei übereinanderliegenden Mikrokanalplatten (MCP)⁴, in denen für jedes auftreffende Elektron $10^6 - 10^7$ Sekundärelektronen erzeugt werden [Wiz79]. Diese Sekundärelektronen treffen auf eine Anode, der daraus resultierende Anodenstrom wird mit Hilfe eines Widerstands in ein Spannungssignal umgewandelt, so dass der Detektor schnelle, zur Anzahl der auf ihn treffenden Photoelektronen proportionale Spannungssignale liefert, die mit einem Oszilloskop aufgezeichnet werden.

An das Flugrohr kann eine Abbremsspannung angelegt werden. Durch das Abbremsen der Elektronen kann bei höherenergetischen Elektronen die Auflösung der Energiemessung verbessert werden. Die Abbremsspannung wird dabei in der Regel so gewählt, dass die Driftenergie der Elektronen $W_{Drift} = W_0 - eU_{Abbrems}$ im Bereich zwischen 10 und 30 eV liegt. Elektronen mit einer Anfangsenergie, die kleiner als die Abbremsspannung ist, können nicht nachgewiesen werden. Für die Messungen in diesem Experiment werden hauptsächlich Krypton-4p-Elektronen verwendet, die mit XUV-Photonen einer Energie von ~ 92 eV ionisiert wurden. Die Bindungsenergie der Elektronen beträgt 14 eV, so dass ihre kinetische Anfangsenergie etwa 78 eV beträgt. Die Elektronen werden durch das THz-Feld noch zusätzlich um bis zu ~ 10 eV beschleunigt oder abgebremst, so dass insgesamt Elektronen in einem Energiebereich von etwa 65 bis 90 eV mit dem Spektrometer gleichzeitig nachgewiesen werden müssen. Für diese Elektronen wurde mit dem Programm SIMION [Sim99] die Transmissionsfunktion, der Akzeptanzwinkel und die Auflösung der Spektrometer simuliert. SIMION ist ein Simulationsprogramm, das bei einer vorgegebenen Elektrodengeometrie durch Lösen der Laplace-Gleichung die elektrischen Felder berechnet. In diesen Feldern können die Trajektorien von Elektronen und Ionen berechnet werden.

Der Akzeptanzwinkel der Spektrometer ist der maximale Winkel zwischen dem Anfangsimpuls der Elektronen und der Spektrometerachse, mit dem die Elektronen den Detektor erreichen können. Um den Akzeptanzwin-

⁴Im Englischen „Micro-Channel-Plate“, deshalb auch mit „MCP“ abgekürzt

kel zu bestimmen, wurden die Trajektorien von 500 Elektronen simuliert und die Transmission zum Detektor in Abhängigkeit des Anfangswinkels Θ gemessen. Die Startpunkte der Elektronen waren 5 mm vor der Eintrittsapertur des Spektrometers zufällig auf einer 4 mm langen Linie angeordnet. Da der XUV-Strahl, der die Photoelektronen erzeugt stark fokussiert ist, wird eine sehr schmale, fast linienförmige Verteilung der Elektronenstartpunkte im Experiment erwartet. Bild 4.7 zeigt links die simulierte Transmission der Elektronen zum Detektor in Abhängigkeit des Anfangswinkels Θ . Es ist deutlich zu erkennen, dass die Transmission bei einem Winkel von 16° abbricht. Es hat sich gezeigt, dass die Winkelabhängigkeit der Transmission unabhängig von der räumlichen Anfangsverteilung ist. Die Energie der simulierten Elektronen betrug 75 eV und die Abbremsspannung betrug -50 V.

Die Transmissionsfunktion der Spektrometer gibt die Transmission der Elektronen zum Detektor in Abhängigkeit ihrer kinetischen Energie an. Zur Bestimmung der Transmissionsfunktion wurden 500 Elektronen mit zufällig verteilten Winkeln zwischen -16 und 16° erzeugt. Dabei war die Wahrscheinlichkeit für einen Winkel Θ proportional zu $\sin \Theta$. Dies entspricht einer kugelsymmetrischen Verteilung. Elektronen mit Winkeln größer als 16° erreichen den Detektor nicht, daher wurde die Winkelverteilung bei 16° abgebrochen. Die Startpunkte der Elektronen waren zufällig auf einer 2 mm langen Linie angeordnet und die Anzahl der Elektronen, die den Detektor erreicht, wurde in Abhängigkeit der kinetischen Energie der Elektronen bestimmt. Bild 4.7 zeigt rechts die so bestimmte prozentuale Transmission für eine Abbremsspannung von -50 V, die im Experiment meistens verwendet wurde. Die Transmissionsfunktion hat ein Maximum, bei etwa 76 eV, wo fast 100 % der in den betrachteten Raumwinkel emittierten Elektronen den Detektor erreichen. Das entspricht bei einer kugelsymmetrischen Emission von Elektronen einer Transmission von 2 % aller insgesamt emittierten Elektronen. Wichtig im Streak-Kamera-Experiment ist, dass die Transmissionsfunktion über den Energiebereich eines Streak-Spektrums im Wesentlichen konstant ist, so dass das gemessene Streak-Spektrum nicht verfälscht wird. Die Streak-Spektren haben eine zentrale Energie von etwa 78 eV und eine Breite von weniger als 10 eV. Für diesen Energiebereich ändert sich die Transmissionsfunktion nur um wenige Prozent.

Zur Bestimmung der **Auflösung** der Spektrometer wurden 500 Elektronen mit einer kinetischen Energie von genau 75 eV simuliert. Die Elektronen waren zufällig auf einer einen Millimeter langen Linie angeordnet, was ungefähr der Ausdehnung der Wechselwirkungszone entspricht (siehe 4.4). Die Anfangswinkel der Elektronentrajektorien waren wieder zufällig zwischen -16°

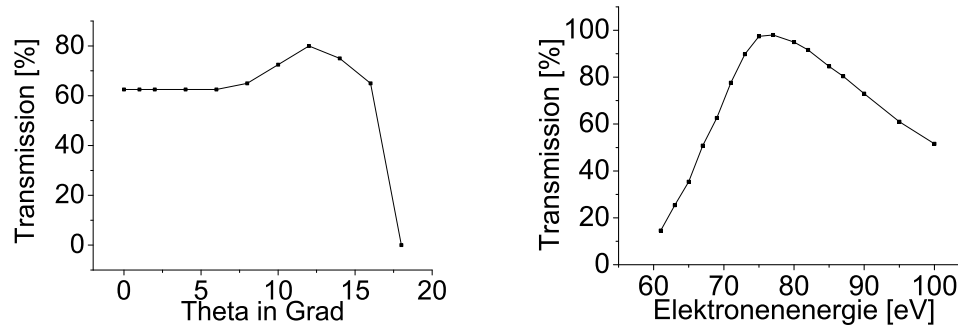


Abbildung 4.7: Simulierte Transmission der Elektronenspektrometer. Links: Transmission in Abhängigkeit des Anfangswinkels der Elektronentrajektorie zur Spektrometerachse für 75 eV Elektronen. Rechts: Transmission in Abhängigkeit der Elektronenenergie, bei zufälliger Winkelverteilung. Die Abbremsspannung betrug bei beiden Simulationen -50 V.

und $+16^\circ$ verteilt (s.o.). Die Trajektorien der Elektronen wurden simuliert und ihre Flugzeiten zum Detektor gemessen. Als Abbremsspannung wurde -50 V gewählt. Aus den einzelnen Flugzeiten wurde jeweils wieder, wie im Experiment, die kinetische Energie berechnet. Abb. 4.8 zeigt ein Histogramm der so berechneten kinetischen Energien der simulierten Elektronen. Die volle Halbwertsbreite der Verteilung beträgt 0,3 eV. Obwohl alle Elektronen mit genau der gleichen Energie gestartet sind, ergibt sich also eine gemessene Energieverteilung mit 0,3 eV Breite. Um im Experiment zwei Energien voneinander trennen zu können müssen sie sich um mindestens eine volle Halbwertsbreite unterscheiden. Das maximale Auflösungsvermögen der Spektrometer beträgt also ca. 0,3 eV. Simulationen mit einer höheren Abbremsspannung haben ergeben, dass die Auflösung nicht besser wird, aber die Transmission zum Detektor abnimmt.

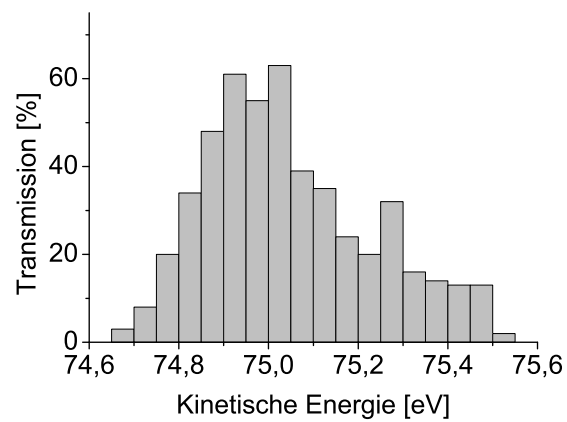


Abbildung 4.8: Simulation der vom Spektrometer gemessenen Energieverteilung von monoenergetischen Elektronen. Es wurden die Trajektorien von 500 zufällig angeordneten, mit zufälligen Winkeln startenden Elektronen simuliert und ihre Flugzeit zum Detektor gemessen.

Kapitel 5

Charakterisierung des THz-Feldes

Mit dem THz-Streak-Kamera-Experiment kann detailliert das zeitabhängige elektrische Feld der Lichtpulse des THz-Undulators bei FLASH gemessen werden. Dazu wurden FLASH-XUV-Pulse mit den THz-Pulsen überlagert und Edelgasatome in die Wechselwirkungszone gelassen. Die entstehenden Photoelektronen werden von dem THz-Feld beschleunigt. In Richtung des THz-Feldes ist die daraus resultierende mittlere Energieverschiebung der Photoelektronen proportional zum Vektorpotential des THz-Feldes zum Ionisationszeitpunkt der Photoelektronen (siehe Gleichung 3.6). Durch Ändern der relativen Ankunftszeit der XUV- und THz-Pulse und Messen der Photoelektronenenergien lässt sich daher das zeitabhängige THz-Vektorpotential abtasten.

Zunächst wurde direkt das THz-Undulatorlicht ohne jegliche Filter charakterisiert (Kap. 5.1). Für die Messungen der XUV-Pulslängen wird immer ein Bandpassfilter, der das THz-Spektrum einschränkt und damit den Verlauf des elektrischen Feldes des THz-Pulses glättet, verwendet. Die Messung des THz-Vektorpotentials mit Bandpassfilter folgt in Kap. 5.2. Diese Messungen sind insbesondere für die Rekonstruktion der Zeitstruktur der XUV-Pulse aus gemessenen Streak-Spektren wichtig. Durch Messung der Fluktuation der mittleren Photoelektronenenergien in vielen Einzelschusspektren lässt sich die Fluktuation der relativen Ankunftszeit der THz- und XUV-Pulse und die Fluktuation der THz-Intensität messen (siehe Kap. 5.3). Bei allen hier dargestellten Messungen betrug die XUV-Wellenlänge etwa 13,5 nm, und die THz-Wellenlänge etwa 92 μm .

5.1 Messungen ohne Bandpassfilter

Abb. 5.1 zeigt Serien von Photoelektronenspektren, die bei unterschiedlichen Ankunftszeiten der THz-Pulse aufgenommen wurden. Die Spektren im linken Bild wurden mit dem vertikalen Detektor, also parallel zur Polarisation des THz-Undulatorlichts, aufgenommen, die Spektren im rechten Bild mit dem Detektor senkrecht dazu. Die Ankunftszeit wurde in Schritten von 33 fs geändert, zu niedrigen Delayzeiten erreicht erst der THz- und dann der XUV-Puls die Wechselwirkungszone, zu hohen Delayzeiten ist es umgekehrt, so dass sich in Abb. 5.1 der Kopf des Pulses auf der rechten Seite befindet. Die Photoelektronenspektren wurden zu jeder Delayzeit jeweils über 25 Einzelschüsse gemittelt. Zur Fokussierung der THz-Strahlung wurde ein Parabolspiegel mit einer Brennweite von 100 mm verwendet. Das Gas in der Wechselwirkungszone bestand aus Xenon. Die Photoelektronenenergie ohne THz-Feld war $W_0 = \hbar\omega_{XUV} - E_{bind.}(Xe5p) \approx 79 \text{ eV}$.

Bei der Messung mit dem vertikalen Detektor sind deutlich die erwarteten zehn Perioden des THz-Pulses mit einer annähernd rechteckigen Einhüllenden zu erkennen (vergl. Kap. 2.2.2). In den Spektren die mit dem horizontalen Detektor aufgenommen wurden, ist zum einen zu Delayzeiten, die dem Anfang und Ende des Pulses entsprechen, ein starkes Streaking-Signal zu erkennen. Dies ist wahrscheinlich auf Kantenstrahlung, die beim Ein- und Austritt der Elektronen in den Undulator entsteht, zurückzuführen. Diese ist radial polarisiert, so dass auch Photoelektronen mit einem Impuls in horizontaler Richtung beschleunigt werden. Außerdem gibt es bei den mit dem horizontalen Detektor gemessenen Spektren bei Delayzeiten zwischen etwa 1,6 und 1,8 ps ein starkes Signal. Zu diesen Zeiten kommt der XUV-Puls nach dem THz-Undulatorpuls an und in den mit dem vertikalen Detektor aufgenommenen Spektren ist kein starkes Signal erkennbar. Diese Strahlung wird vermutlich in dem Dipolmagneten, der benutzt wird um hinter den Undulatoren den Elektronenstrahl von den Photonenstrahlen zu trennen, erzeugt. Die Polarisation dieser Strahlung ist senkrecht zu der des THz-Undulators.

Mit dem vertikalen Detektor wurde eine maximale Energieverschiebung der Photoelektronen (Abb. 5.1 links) von etwa 11 eV gemessen (Abb. 5.1 links), das entspricht einem Vektorpotential von

$$A = \frac{\Delta W}{e} \sqrt{\frac{m_e}{2W_0}} = 2,1 \cdot 10^{-6} \text{ Vs/m.} \quad (5.1)$$

Bei einer maximalen Pulsenergie von $1,8 \mu\text{J}$ (siehe Kap. 2.2.2) und einer simulierten Fokusgröße von $0,23 \text{ mm}$ erwartet man eine maximales Vektorpotential von $A = 2,8 \cdot 10^{-6} \text{ Vs/m}$ und eine maximale Verschiebung der Photoelektronenenergie von etwa 14 eV. Dies ist etwas höher als die hier gemessenen

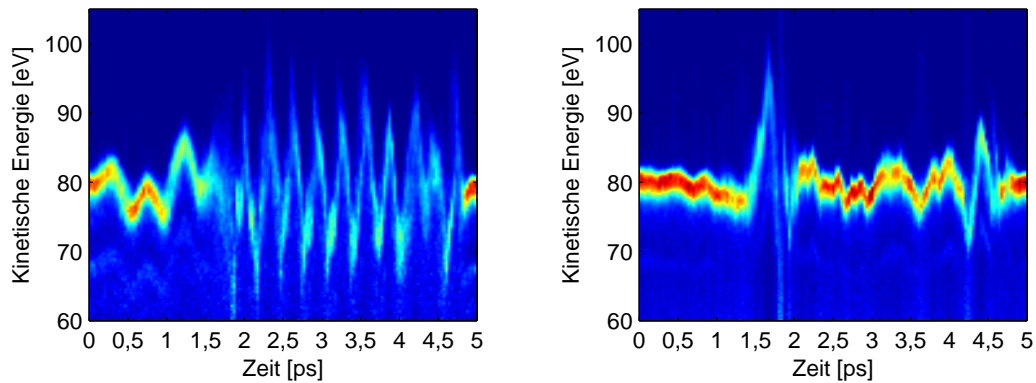


Abbildung 5.1: Serien von Photoelektronenspektren bei unterschiedlicher Ankunftszeit des THz-Pulses. Links: Mit dem vertikalen Detektor aufgenommene Spektren, rechts: mit dem horizontalen Detektor aufgenommene Spektren.

Werte. Es ist zum einen möglich, dass die THz-Pulsenergie in dieser Messschicht niedriger als $1,8 \mu\text{J}$ war. Außerdem ist es möglich, dass auf Grund nicht ganz optimaler Justage des Fokussierspiegel der THz-Fokus im Experiment etwas größer als der simulierte Fokus war.

Durch Ableiten des Vektorpotentials nach der Zeit ergibt sich das elektrische Feld des THz-Pulses. Abb. 5.2 zeigt links das so berechnete elektrische Feld des Pulses. Zur Berechnung wurden jeweils die Maxima der Spektren aus Abb. 5.1 links verwendet. Um die Kurve zu glätten, wurde jeweils über drei nebeneinander liegende Punkte gemittelt, bevor abgeleitet wurde. Die so berechnete Feldstärke betrug bis zu 30 MV/m . Durch das Glätten der Kurve wird der Betrag der Ableitung geringer, daher ist es möglich, dass die wirkliche Feldstärke z. T. größer ist als in Abb. 5.2 dargestellt.

Durch eine Fouriertransformation des Vektorpotentials lässt sich das Spektrum des THz-Pulses bestimmen. Dieses ist in Abb. 5.2 rechts aufgetragen. Die zentrale Frequenz der Fundamentalen betrug $(3,240 \pm 0,002) \text{ THz}$, was einer Wellenlänge von $(92,6 \pm 0,04) \mu\text{m}$ entspricht. Die volle Halbwertsbreite betrug etwa 10%. Dies stimmt gut mit den mit einem Gitterspektrometer gemessenen Werten überein (siehe Kap. 2.2.2). Wie nach Kap. 2.2.2 zu erwarten sind die zweite und dritte Harmonische des Spektrums, die bei 6,5 und 9,7 THz liegen, gegenüber der Fundamentalen stark unterdrückt.

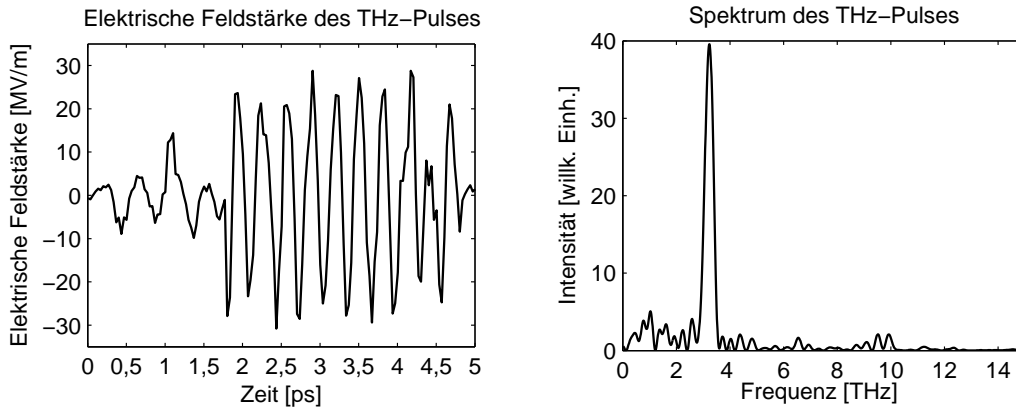


Abbildung 5.2: Links das Elektrische Feld und rechts das Spektrum der THz-Pulse aus Abb. 5.1, links.

5.2 Messungen mit Bandpassfilter

Um den Verlauf des elektrischen Feldes des THz-Pulses zu glätten wurde ein Bandpassfilter mit einer Transmission zwischen 82 und $107 \mu\text{m}$ in den THz-Strahl gefahren (siehe Anhang D). Außerdem wurde, um die Polarisations-eigenschaften des Lichts zu verbessern ein THz-Polarisator verwendet. Abb. 5.3 zeigt eine Serie von Photoelektronenspektren, die unter Verwendung des Bandpassfilters und Polarisators bei unterschiedlichen Ankunftszeiten des THz-Pulses parallel zur THz-Polarisation aufgenommen wurden. Das Gas in der Wechselwirkungszone bestand aus Kryptonatomen, so dass die Photoelektronenenergie ohne das THz-Feld $W_0 = \hbar\omega_{XUV} - E_{\text{bind.}}(\text{Kr}4p) \approx 77,7 \text{ eV}$ betrug. Zur Fokussierung der THz-Strahlen wurde ein Spiegel mit einer Brennweite von 100 mm verwendet. Es ist deutlich zu erkennen, dass der Feldverlauf wesentlich glatter ist, als bei der Messung ohne Bandpassfilter. Die Einhüllende des Pulses ist jetzt nicht mehr rechteckig, sondern fast gaußförmig.

In Abb. 5.4 sind die Maxima der Spektren aus Abb. 5.3 als schwarze Punkte dargestellt. Die blaue Kurve ist eine Sinus-Funktion multipliziert mit einer Gaußfunktion, die an die Messpunkte angepasst wurde:

$$f(x) = y_0 + B * e^{-2\left(\frac{x-x_c}{w}\right)^2} \sin\left(\frac{2\pi}{T}x + \varphi_0\right). \quad (5.2)$$

Bei der Kurve in Abb. 5.4 betrug die Periodendauer $T = 0,306 \pm 0,001 \text{ ps}$, was einer Wellenlänge von $(91,8 \pm 0,3) \mu\text{m}$ entspricht. Die Breite w betrug $1,88$

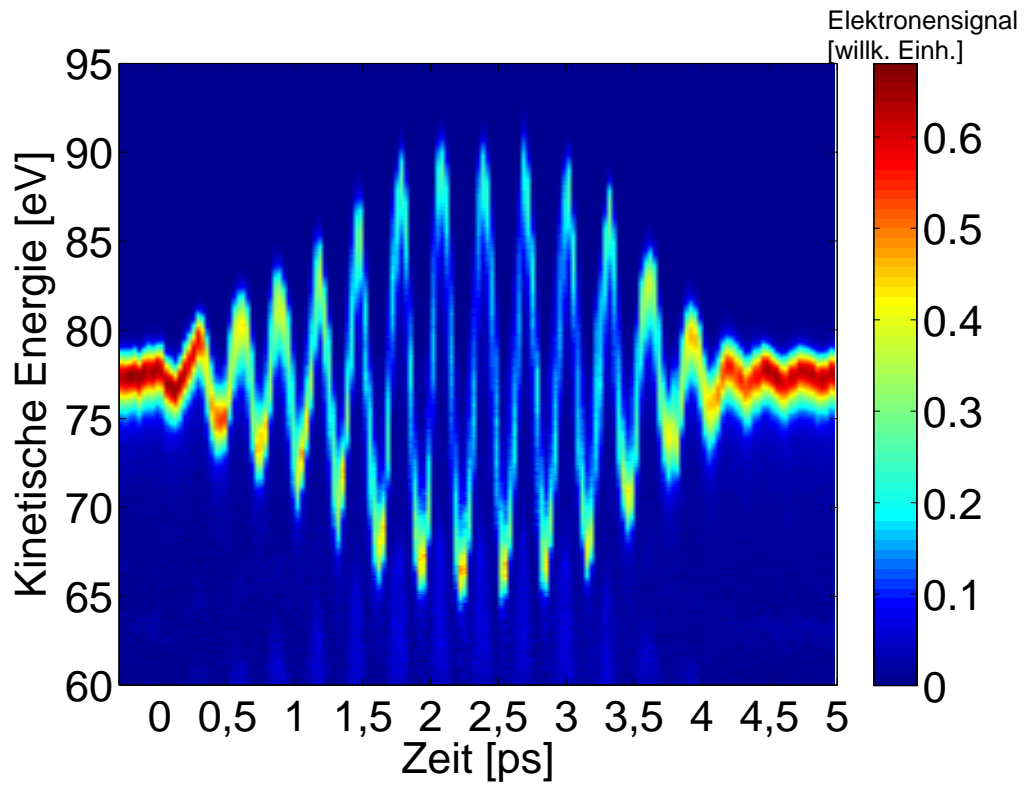


Abbildung 5.3: Serie von Photoelektronenspektren, die bei unterschiedlichen Ankunftszeiten des THz-Pulses mit THz-Bandpassfilter und Polarisator parallel zur THz-Polarisation aufgenommen wurden.

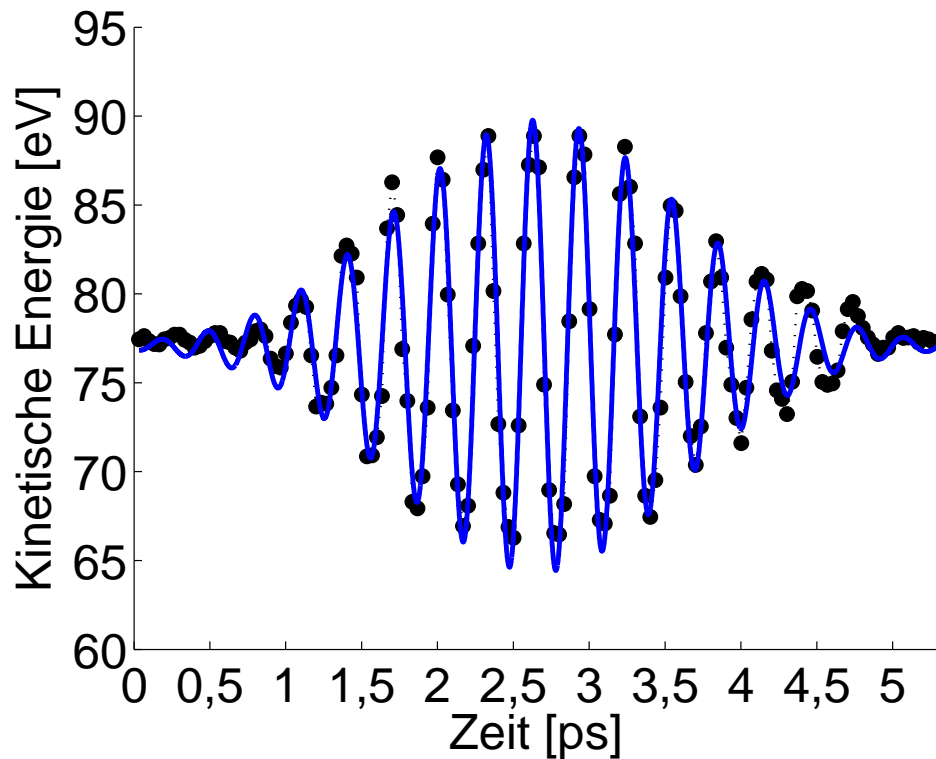


Abbildung 5.4: In schwarz dargestellt sind die Maxima der Photoelektronenspektren aus Abb. 5.3. In blau dargestellt ist eine mit einer Gaußfunktion multiplizierte Sinusfunktion, die an die Daten angepasst wurde.

ps, dies entspricht einer vollen Halbwertsbreite des THz-Pulses von 2,21 ps. Die maximale Amplitude B betrug $12,7 \pm 0,5$ eV. Daraus ergibt sich nach Gl. 5.1 ein maximales Vektorpotential von $A_{max} = (2,4 \pm 0,2) \cdot 10^{-6}$ Vs/m und ein maximales elektrisches Feld von etwa $E_{max.} \approx A_{max} \cdot \omega_{THz} = (49 \pm 4)$ MV/m, sowie ein maximales ponderomotives Potential von $U_p = 0,26$ eV. Aus der maximalen elektrischen Feldstärke lässt sich die maximale Intensität des THz-Feldes berechnen:

$$I_{max.} = \frac{c\varepsilon_0 n}{2} |E_{max.}|^2 = 332 \cdot 10^6 \text{ W/cm}^2, \quad (5.3)$$

wobei n der Brechungsindex und ε_0 die elektrische Feldkonstante ist.

Bei der Messung der XUV-Pulslänge wird die relative Ankunftszeit der XUV- und THz-Pulse so gewählt, dass der XUV-Puls mit einem Nulldurchgang des THz-Vektorpotentials zusammenfällt. Die Zeitstruktur des XUV-Pulses wird durch die Beschleunigung der Photoelektronen im THz-Feld

auf Änderungen der Photoelektronenenergien projiziert. Zur Rekonstruktion der XUV-Zeitstruktur aus gemessenen Photoelektronenspektren, muss die Streak-Geschwindigkeit $s = \partial(\delta W)/\partial t$ genau bekannt sein. Dies ist die Ableitung der blauen Kurve in Abb. 5.4 im Nulldurchgang der Sinusfunktion. Bei der Messung in Abb. 5.4 betrug die maximale Streak-Geschwindigkeit $0,26 \pm 0,01$ eV/fs. Die Streak-Geschwindigkeit wurde in jeder Messschicht neu bestimmt. Tabelle 5.1 gibt Streak-Geschwindigkeiten an, die jeweils für eine THz-Wellenlänge von etwa $92 \mu\text{m}$ und eine XUV-Wellenlänge von $13,5 \text{ nm}$ für Krypton-4p-Elektronen mit unterschiedlichen Fokussierspiegeln gemessen wurden. Zwischen einzelnen Messschichten änderte sich die Streak-Geschwindigkeit bei gleicher Spiegelbrennweite um bis zu 40%. Wenn die Justage des THz-Fokussierspiegels nicht verändert wurde, war keine Änderung der Streak-Geschwindigkeit während einer Messschicht zu erkennen. Die starke Änderung der Streak-Geschwindigkeit zwischen den Messschichten ist auf unterschiedliche Justagen des Fokussierspiegels und eine Schwankung der THz-Intensität zurückzuführen (siehe Kap. 2.2.2).

Brennweite	Streak-Geschwindigkeit
100 mm	0,26 eV/fs
150 mm	0,10 bis 0,11 eV/fs
200 mm	0,05 bis 0,07 eV/fs

Tabelle 5.1: Streak-Geschwindigkeit bei unterschiedlichen THz-Spiegelbrennweiten.

5.3 Fluktuation der Ankunftszeit und Feldstärke der THz-Pulse

Die THz- und XUV-Pulse werden bei FLASH von den gleichen Elektronenpaketen erzeugt und sind daher automatisch zueinander synchronisiert. Allerdings ist es möglich, dass sich die Trajektorie der Elektronenpakete vom XUV- zum THz-Undulator von Schuss zu Schuss leicht ändert, und damit auch der zeitliche Abstand der beiden Pulse leicht fluktuiert. Einige Meter hinter dem THz-Undulator werden die THz- und XUV-Strahlen voneinander getrennt und über getrennte Beamlines zum Experiment transportiert. Vibrationen der Beamlinespiegel können daher zu einer zusätzlichen Fluktuation der relativen Ankunftszeit der Pulse am Experiment führen.

Um die Fluktuation der relativen Ankunftszeit der THz- und XUV-Pulse am Experiment zu messen, wurde ihr Zeitabstand mit Hilfe der Delayli-

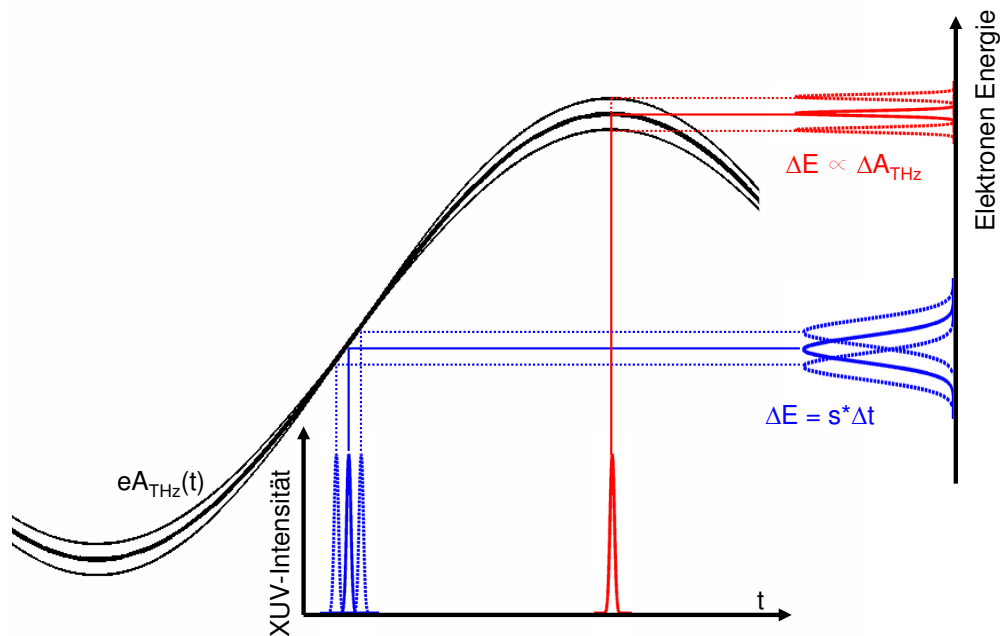


Abbildung 5.5: Schematische Darstellung der Messung der Ankunftszeit- und THz-Feld-Fluktuationen. Kommt der XUV-Puls etwa zeitgleich mit einem Nulldurchgang des THz-Vektorpotentials, so führt eine Fluktuation der relativen Ankunftszeit beider Pulse zu einer Fluktuation der mittleren Photoelektronenenergie (in blau dargestellt). Kommt der XUV-Puls etwa zeitgleich mit einem Maximum des THz-Vektorpotentials, so führt eine Fluktuation der THz-Feldstärke zu einer Fluktuation der Photoelektronenenergien (in rot dargestellt).

ne so eingestellt, dass der XUV-Puls etwa zeitgleich mit einem Nulldurchgang des THz-Vektorpotentials kam. Wenn der zeitliche Schwerpunkt der XUV-Intensität genau auf dem Vektorpotentialsnulldurchgang liegt, wird die mittlere Energie der durch den XUV-Puls erzeugten Photoelektronen durch das THz-Feld nicht verändert. Das Photoelektronenspektrum wird lediglich verbreitert. Ist der Schwerpunkt der XUV-Intensität um Δt gegenüber dem Vektorpotentialsnulldurchgang verschoben, wobei Δt viel kleiner als die THz-Periodendauer sei, so wird die mittlere Energie der Photoelektronen um $\Delta W = s \Delta t$ verschoben, wobei s die Streak-Geschwindigkeit ist (siehe Kap. 5.2). Die Fluktuation der relativen Ankunftszeit der THz-Pulse wird so auf eine Fluktuation der mittleren Energien der Photoelektronen übertragen. Dies ist in Abb. 5.5 in blau dargestellt.

Abb. 5.6 zeigt Histogramme der mittleren Energien von Einzelschuss-

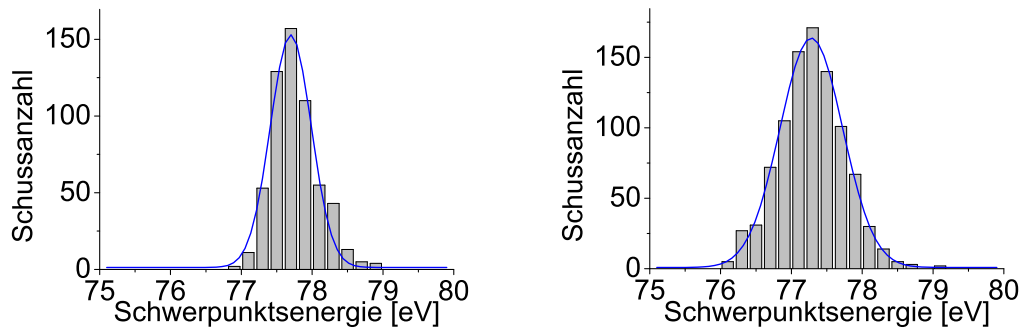


Abbildung 5.6: Histogramme von mittleren kinetischen Energien von Photoelektronen, die durch einzelne XUV-Pulse freigesetzt wurden. Links: ohne THz-Feld, rechts: mit THz-Feld, wobei die XUV-Pulse zeitgleich mit einem Nulldurchgang des THz-Vektorpotentials kamen.

photoelektronenspektren. Die Daten des linken Histogramms wurden ohne THz-Feld aufgenommen, die Daten des rechten Histogramms mit THz-Feld. Es wurden wieder Krypton-4p-Elektronen benutzt. Zur THz-Fokussierung wurde ein Spiegel mit einer Brennweite von 200 mm benutzt und die Streak-Geschwindigkeit betrug $s = 0,07 \text{ eV/fs}$. In blau dargestellt sind an die Daten angepasste Gaußkurven. Ohne THz-Feld betrug die FWHM-Breite der Verteilung $0,68 \text{ eV}$. Diese Fluktuationen der mittleren Energie der Photoelektronen ohne THz-Feld sind auf Fluktuationen des XUV-Spektrums und Messfehler zurückzuführen. Mit THz-Feld betrug die FWHM-Breite der Verteilung $1,05 \text{ eV}$. Wenn wir davon ausgehen, dass das Spektrum und die Ankunftszeit der Pulse unabhängig voneinander fluktuieren, dann besteht die mit THz-Feld gemessene Fluktuation aus einer Faltung der Fluktuation ohne THz-Feld mit der durch die Ankunftszeitfluktuation hervorgerufenen. Für gaußförmige Verteilungen gilt dann: $\sigma_{E_{THz-an}} = \sqrt{\sigma_{E_{THz-aus}}^2 + (s * \sigma_t)^2}$. Damit lässt sich die Breite der Ankunftszeitverteilung berechnen:

$$\sigma_t = \frac{\sqrt{\sigma_{E_{THz-an}}^2 - \sigma_{E_{THz-aus}}^2}}{s} = 11,4 \text{ fs.} \quad (5.4)$$

Dies ist die volle Halbwertsbreite der Verteilung, die rms-Breite beträgt 5 fs .

Zur Messung der Fluktuation der THz-Intensität wurde der Zeitabstand zwischen THz- und XUV-Puls so eingestellt, dass der XUV-Puls mit einem

Maximum des THz-Vektorpotentials zusammen fiel. Zu diesem Zeitpunkt werden alle Photoelektronen durch das THz-Feld maximal beschleunigt. Die daraus resultierende Energieänderung der Photoelektronen ist proportional zum Vektorpotential zum Ionisationszeitpunkt (siehe Gl. 3.6), so dass hier eine Fluktuation der THz-Feldstärke von Schuss zu Schuss zu einer Fluktuation der mittleren Energie der Photoelektronen führt. Dies ist in Abb. 5.5 in rot dargestellt. Die Ableitung des THz-Vektorpotentials nach der Zeit und damit auch die Ableitung der Energieänderung der Photoelektronen nach der Zeit $\partial(\delta W)/\partial t$ ist beim Maximum des Vektorpotentials null, so dass hier kleine Fluktuationen der relativen Ankunftszeit der Pulse nicht zu einer Fluktuation der Photoelektronenenergien führen.

Abb. 5.7 zeigt ein Histogramm von mittleren Energien der Einzelschuss-photoelektronenspektren, die bei einem Maximum des THz-Vektorpotentials aufgenommen wurden. In blau ist wieder eine angepasste Gaußkurve dargestellt. Im Mittel hatten die Photoelektronen eine Energie von 74,7 eV. Die Photoelektronenenergie ohne THz-Feld betrug 77,7 eV, so dass die mittlere Energieänderung durch das THz-Feld 3 eV betrug. Die FWHM-Breite der Verteilung beträgt 0,73 eV. Diese Energiefluktuation besteht wieder aus einer Faltung der Energiefluktuation ohne THz-Feld mit der durch die THz-Feldstärkeschwankung hervorgerufenen. Durch Entfalten erhalten wir:

$$\sigma_{THz-Feld} = \sqrt{\sigma_{E_{THz-an}}^2 - \sigma_{E_{THz-aus}}^2} = 0,27 \text{ eV}. \quad (5.5)$$

Bezogen auf die mittlere Energieänderung von 3 eV entspricht das einer Schwankung von 9%. Dies ist die relative Fluktuation der THz-Feldstärke. Die relative Fluktuation der THz-Intensität $I = E^2$ beträgt dann

$$\frac{\sigma_I}{I} = 2 \frac{\sigma_E}{E} = 2 * 9\% = 18\%. \quad (5.6)$$

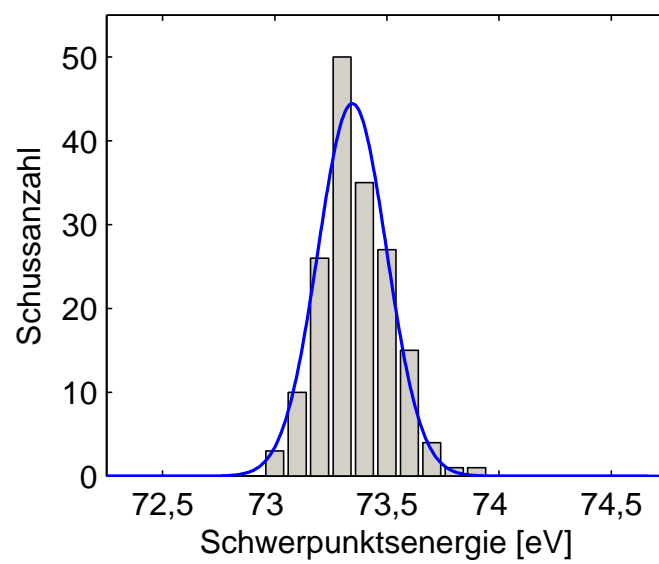


Abbildung 5.7: Histogramm von mittleren kinetischen Energien von Photoelektronen, die durch einzelne XUV-Pulse freigesetzt wurden. Aufgenommen bei maximalem THz-Vektorpotential.

Kapitel 6

Messung der Zeitstruktur der FLASH-XUV-Pulse

Zur Charakterisierung der Zeitstruktur der FLASH-XUV-Pulse wurden die XUV-Pulse mit den THz-Pulsen überlagert und ihre relative Ankunftszeit so eingestellt, dass die XUV-Pulse etwa gleichzeitig mit einem Nulldurchgang des THz-Vektorpotentials kamen. Es wurden Photoelektronenspektren von Krypton-4p-Elektronen, die von XUV-Pulsen mit einer Wellenlänge von 13,5 nm ionisiert wurden, aufgenommen. Die Krypton-4p-Elektronen wurden aus mehreren Gründen gewählt. Zum einen ist ihre Winkelverteilung bei Ionisation mit 13,5 nm Strahlung fast kugelsymmetrisch, so dass in beiden Photoelektronenspektrometern ein starkes Signal gemessen werden kann. Zum anderen ist ihre Bindungsenergie gering, so dass die Anfangsenergie der Photoelektronen groß ist. Dies führt zu einem großen Streak-Signal (vergl. Gleichung 3.4). Außerdem ist bei den Krypton-4p Elektronen die Spin-Bahn-Aufspaltung mit weniger als 0,1 eV vernachlässigbar klein.

Die Wellenlänge der THz-Strahlung betrug bei allen Messungen $\approx 92 \mu\text{m}$ und es wurde immer der THz-Bandpassfilter und Polarisator verwendet. Zur Fokussierung der THz-Strahlung wurden unterschiedliche Spiegelbrennweiten verwendet, die im Einzelnen angegeben werden.

In Kapitel 6.1 wird aus den Breiten von Einzelschussspektren die mittlere Pulslänge sowie ein mittlerer linearer Chirp der XUV-Pulse bestimmt. Außerdem werden unter der Annahme eines konstanten Chirps die Pulslängen der Einzelschüsse berechnet. In Kapitel 6.2 wird dann genauer auf die Zeitstruktur einiger einzelner XUV-Pulse eingegangen. In Kap.6.3 wird aus der gemessenen Pulsenergieverteilung und aus mit einem Gitterspektrometer gemessenen XUV-Spektren eine mittlere Modenanzahl der XUV-Pulse

abgeschätzt.

6.1 Mittlere Pulslänge und mittlerer Chirp

In diesem Abschnitt werden die Breiten von an zwei aufeinanderfolgenden Nulldurchgängen des THz-Vektorpotentials gemessenen Photoelektronenspektren benutzt, um die mittlere Pulslänge und den mittleren linearen Chirp der XUV-Pulse zu bestimmen. Dabei wird eine eventuelle Struktur in den Spektren vernachlässigt und nur ihre rms-Breite verwendet. Dies entspricht einer Annäherung der Spektren durch Gaußfunktionen. Zur Fokussierung der THz-Strahlung wurde hier ein Spiegel mit einer Brennweite von 200 mm benutzt und die Streak-Geschwindigkeit betrug $s = \partial(\delta W)/\partial t = \pm(0,070 \pm 0,003)$ eV/fs. Abb. 6.1 zeigt exemplarisch die Spektren von drei Einzelschüssen der hier benutzten Daten. Die senkrecht zur THz-Polarisation aufgenommenen Spektren werden durch das THz-Feld kaum beeinflusst und entsprechen den um die Bindungsenergie der Elektronen verschobenen XUV-Spektren. Die parallel zur THz-Polarisation aufgenommenen Spektren sind durch das Streaking deutlich verbreitert.

Abb. 6.2 zeigt Histogramme von berechneten rms-Breiten von Einzelschussspektren. Die Histogramme links zeigen jeweils die Daten der mit dem Detektor senkrecht zur THz-Polarisation aufgenommenen Spektren, die das XUV-Spektrum charakterisieren. Die Histogramme rechts zeigen die Daten der mit dem zur THz-Polarisation parallelen Detektor aufgenommenen Spektren, die durch das THz-Streaking verbreitert wurden. Die Daten der beiden Histogramme oben wurden simultan an einem Nulldurchgang des THz-Vektorpotentials aufgenommen. Die Daten der unteren beiden Histogramme wurden an einem direkt folgenden Nulldurchgang des THz-Vektorpotentials aufgenommen. Das heißt, die THz-Pulse wurden gegenüber den XUV-Pulsen um eine halbe THz-Periode verzögert (siehe Abb. 6.2, oben). Dies führt dazu, dass sich das Vorzeichen des elektrischen Feldes des THz-Pulses und damit auch das Vorzeichen der Streak-Geschwindigkeit umkehrt.

Mittlere Pulslänge

Der Mittelwert der rms-Breiten der Photoelektronenspektren, die senkrecht zur THz-Polarisation aufgenommen wurden (6.2 (a),(c)), beträgt 1,2 eV. Bei den parallel zur THz-Polarisation aufgenommenen Spektren beträgt der Mittelwert am ersten Nulldurchgang 1,7 eV, am zweiten Nulldurchgang 1,5 eV.

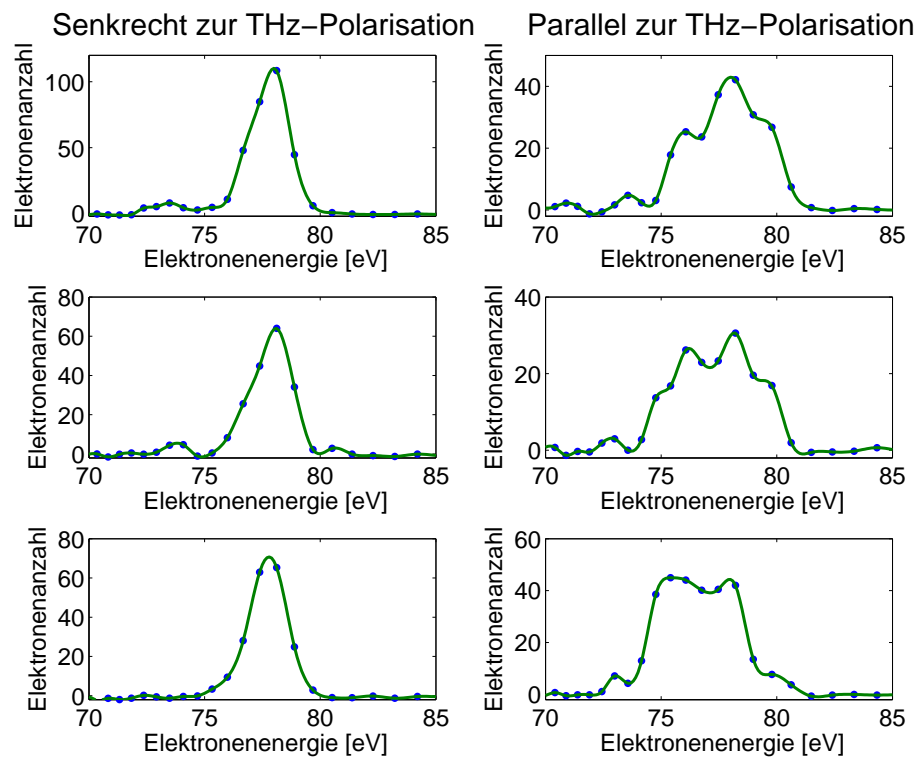


Abbildung 6.1: Photoelektronenspektren von drei einzelnen XUV-Pulsen. Die Spektren links wurden senkrecht zur THz-Polarisation aufgenommen, sie repräsentieren im Wesentlichen das XUV-Spektrum. Die Spektren rechts wurden simultan parallel zur THz-Polarisation aufgenommen, sie sind durch das THz-Streaking verbreitert.

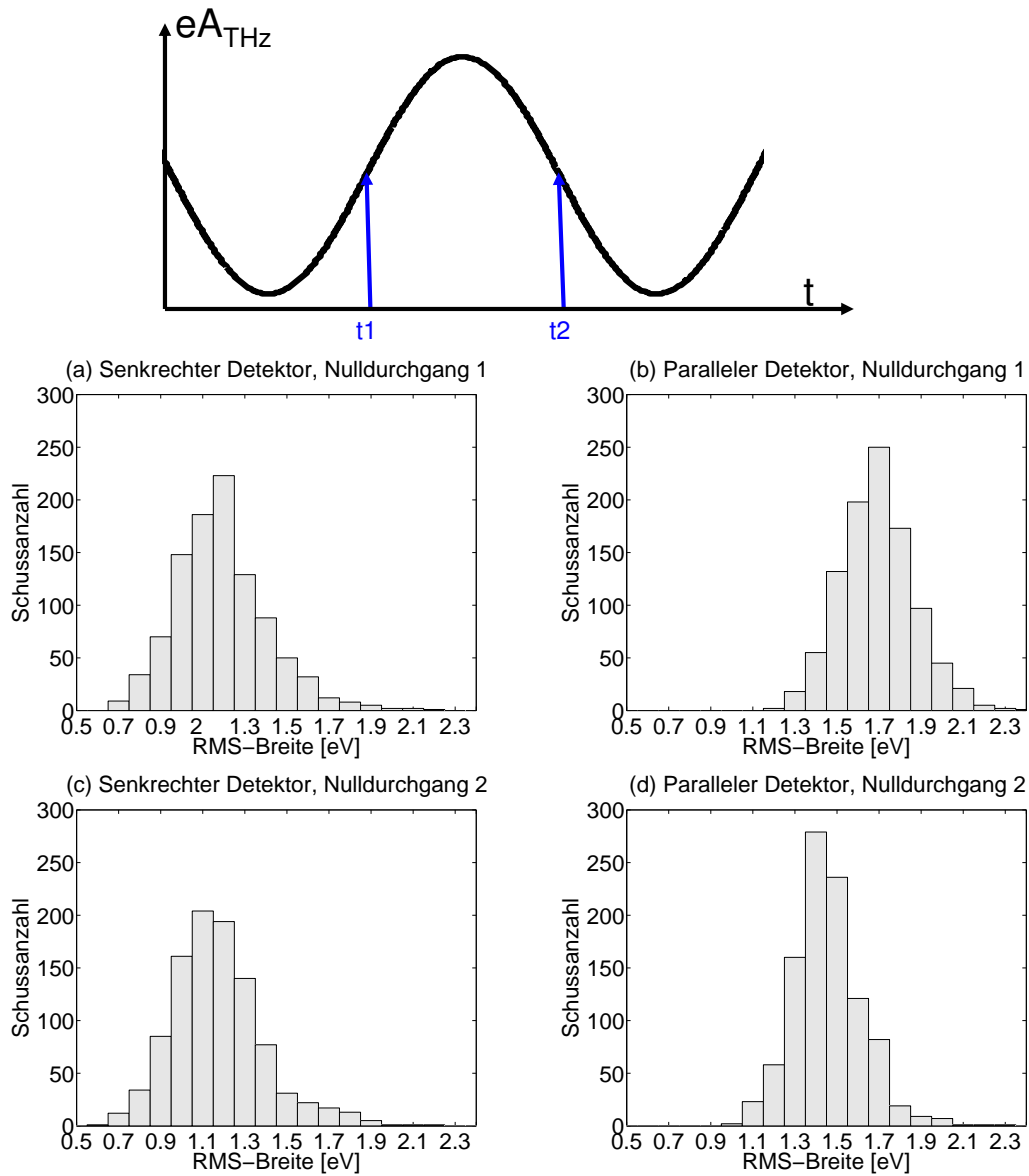


Abbildung 6.2: Oben: Skizze der verwendeten relativen Ankunftszeiten der THz- und XUV-Pulse. Unten: Histogramme der rms-Breiten von Photoelektronenspektren, die an zwei aufeinanderfolgenden Nulldurchgängen des THz-Vektorpotentials (siehe Bild oben) aufgenommen wurden. Die Daten links wurden senkrecht zur THz-Polarisation aufgenommen, die Daten rechts parallel zur THz-Polarisation.

Das heißt, die Verbreiterung der Spektren durch das THz-Streaking betrug an einem Nulldurchgang 0,5 eV, am darauffolgenden nur 0,3 eV. Diese unterschiedliche Breite der Photoelektronenspektren bei Umkehr der Streak-Richtung lässt sich durch das Vorhandensein eines linearen Chirps der XUV-Pulse erklären (siehe Kap. 3.3). Wenn die XUV-Pulse durch Gaußpulse angenähert werden, ist die Breite der parallel zur THz-Polarisation gemessenen Spektren gegeben durch eine Faltung der Breite des XUV-Spektrums, also der Breite der senkrecht zur THz-Polarisation gemessenen Spektren σ_{\parallel} , mit der durch das THz-Streaking auf Energieänderungen projizierten XUV-Zeitstruktur. Durch Entfalten erhalten wir die Verbreiterung durch das THz-Streaking:

$$\sigma_{Streak} = \sqrt{\sigma_{\parallel}^2 - \sigma_{\perp}^2}. \quad (6.1)$$

Diese Verbreiterung wurde für alle Einzelschüsse berechnet. Im Mittel betrug sie am ersten Nulldurchgang $\bar{\sigma}_{Streak,1} = (1, 2 \pm 0, 3)$ eV und am zweiten Nulldurchgang $\bar{\sigma}_{Streak,2} = (0, 9 \pm 0, 3)$ eV. Die hier angegebenen Fehler ergeben sich aus der statistischen Schwankung der Einzelschusswerte. Es lässt sich nun nach Kap. 3.3 die mittlere XUV-Pulsdauer berechnen:

$$\begin{aligned} \bar{\tau}_{XUV} &= \sqrt{\frac{(\bar{\sigma}_{Streak,1}^2) + (\bar{\sigma}_{Streak,2}^2)}{2s^2}} \\ &= (15 \pm 3) \text{ fs.} \end{aligned} \quad (6.2)$$

Dies ist die rms-Pulslänge, sie entspricht bei Gaußpulsen einer vollen Halbwertsbreite des Pulses von 35 ± 7 fs.

Einfluss der Gouy-Phasenverschiebung

Wie in Kapitel 4.2.3 beschrieben, ändert sich während der Propagation durch die Wechselwirkungszone auf Grund der Gouy-Phasenverschiebung die Phase des THz-Feldes gegenüber dem XUV-Puls. Da Elektronen aus der gesamten Wechselwirkungszone die Detektoren erreichen, bedeutet das, dass die gemessenen Spektren aus einer Überlagerung von Streak-Spektren $S(E, \phi)$ mit unterschiedlichen THz-Phasen ϕ bestehen:

$$H(E) = - \int_{-\pi/2}^{\pi/2} S(E, \phi) G(\phi) d\phi. \quad (6.3)$$

Die Amplitude der einzelnen Spektren ist dabei proportional zur Gasdichtefunktion $G(\phi)$, die angibt, wie viele Gasatome an einem bestimmten

Ort in der Wechselwirkungszone und damit auch zu einer bestimmten Phase ϕ vorhanden sind.

Eine Änderung der relativen Phase ist äquivalent zu einer Änderung der relativen Ankunftszeit t von THz- und XUV-Puls. In der Nähe des Nulldurchgangs des THz-Vektorpotentials bewirkt eine kleine Änderung der relativen Ankunftszeit eine Verschiebung des Photoelektronenspektrums um $\Delta E = s\Delta t$. Gleichung 6.3 kann daher umgeschrieben werden zu

$$H(E) = - \int_{-\infty}^{\infty} S(E - st)G(t)dt. \quad (6.4)$$

Dies ist eine Faltung von S mit der Gasdichtefunktion G . Wenn sowohl das Spektrum als auch die Gasdichtefunktion durch Gaußfunktionen angenähert werden, lässt sich Gleichung 6.4 analytisch berechnen:

$$\begin{aligned} H(E) &= - \int_{-\infty}^{\infty} e^{-\frac{(E_0-st)^2}{2\sigma_S^2}} e^{-\frac{t^2}{2\sigma_G^2}} dt \\ &= \frac{\sqrt{\pi}}{\sqrt{\frac{1}{(2\sigma_S)^2} + \frac{1}{(2\sigma_G)^2}}} e^{-\frac{E_0^2}{2(s^2\sigma_G^2 + \sigma_S^2)}}. \end{aligned} \quad (6.5)$$

Dies ist wieder eine Gaußfunktion mit Breite $\sigma_H = \sqrt{(s^2\sigma_G^2 + \sigma_S^2)}$. Durch Umformen und teilen durch s ergibt sich daraus die korrigierte Pulsdauer

$$\tau_{XUV,korrigiert} = \sigma_S/s = \sqrt{\sigma_H^2/s^2 - \sigma_G^2} = \sqrt{\tau_{XUV}^2 - \sigma_G^2}, \quad (6.7)$$

wobei τ_{XUV} hier die oben bestimmte XUV-Pulslänge ist, die sich ohne die Korrektur der Gouy-Phasenverschmierung ergibt. Die FWHM-Breite der Zeitverschmierung auf Grund der Gouy-Phase wurde für den Spiegel mit Brennweite von 200 mm auf 7,4 fs abgeschätzt (siehe Kap. 4.2.3), was einer rms-Breite von 3,1 fs entspricht. Damit ergibt sich:

$$\begin{aligned} \tau_{XUV,korrigiert} &= \sqrt{\tau_{XUV}^2 - \sigma_G^2} \\ &= 14,7 \text{ fs}. \end{aligned} \quad (6.8)$$

Die Abweichung dieses korrigierten Wertes vom nicht korrigierten Wert von τ_{XUV} ist weit geringer als der Fehler von 3 fs. Bei diesem langbrennweitigen Spiegel ist der Fehler der Zeitmessung, der durch die Gouy-Phasenverschmierung gemacht wird, also vernachlässigbar.

Mittlerer linearer Chirp

Unter Verwendung der mittleren Pulslänge τ_{XUV} lässt sich mit Gleichung 3.24 der mittlere lineare Chirp der XUV-Pulse bestimmen:

$$\begin{aligned}\bar{c} &= \frac{(\bar{\sigma}_{Streak,1}^2) - (\bar{\sigma}_{Streak,2}^2)}{8s\bar{\tau}_{XUV}^2} \\ &= (5 \pm 7)10^{-3} \text{ eV/fs.}\end{aligned}\quad (6.9)$$

Wie auf Grund des Chirps der zur Erzeugung der XUV-Pulse verwendeten Elektronenpakete erwartet wird (vergl. Abschnitt 2.1.4), haben die XUV-Pulse im Mittel einen linearen Chirp, wobei die Wellenlänge am Anfang des Pulses geringer ist, als am Ende des Pulses. Der sehr große Fehler ist hier bedingt durch die große Standardabweichung der Streak-Verbreiterungen $\bar{\sigma}_{Streak,1/2}$.

Pulslängen der Einzelschüsse

Wenn man davon ausgeht, dass der mittlere Chirp der XUV-Pulse während einer Messschicht konstant ist, das heißt, dass alle XUV-Pulse den mittleren linearen Chirp \bar{c} haben, kann auch für einzelne Gauß-artige XUV-Pulse eine Pulslänge angegeben werden:

$$\tau_{XUV} = \sqrt{\frac{\sigma_{\parallel}^2 - \sigma_{\perp}^2}{s^2 \pm 4\bar{c}s}} = \frac{\sigma_{Streak}}{\sqrt{s^2 \pm 4\bar{c}s}}. \quad (6.10)$$

Das Vorzeichen im Nenner hängt dabei von dem Vorzeichen des elektrischen Feldes der THz-Strahlung ab und ist im ersten hier betrachteten Nulldurchgang positiv und im zweiten negativ. Abb. 6.3 zeigt ein Histogramm so berechneter rms-Pulslängen von 1000 einzelnen, aufeinander folgenden XUV-Pulsen. Der Mittelwert beträgt 15 fs, die Standardabweichung 4 fs.

Die Annahme eines konstanten linearen Chirps ist sicherlich eine große Fehlerquelle, da davon ausgegangen werden muss, dass der Chirp, ebenso wie alle anderen Pulsparameter von Schuss zu Schuss schwankt. Wenn davon ausgegangen wird, dass der Chirp um den Fehler $\Delta c = 7 \cdot 10^{-3} \text{ eV/fs}$ schwankt, dann ändert sich die gemessene XUV-Pulslänge um

$$\frac{\Delta\tau}{\tau} = \frac{4s\Delta c}{s^2 \pm 4cs} = 31\%/56\%, \quad (6.11)$$

wobei der erste Wert für ein positives Zeichen im Nenner und der zweite für ein negatives gilt.

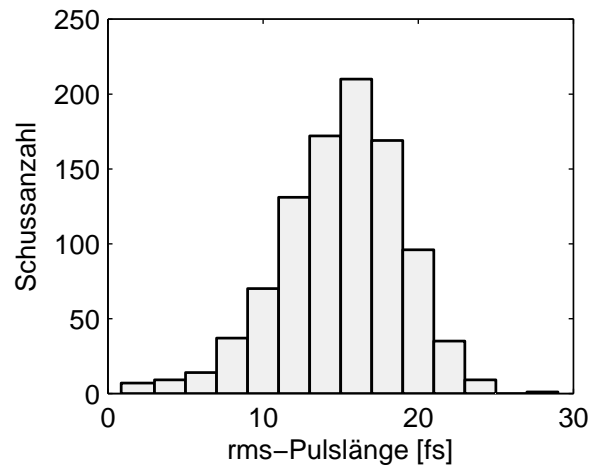


Abbildung 6.3: Histogramm der rms-Pulslängen von 1000 einzelnen XUV-Pulsen, die unter der Annahme eines konstanten linearen Chirps bestimmt wurden.

Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurden aus Photoelektronenspektren, die an zwei aufeinanderfolgenden Nulldurchgängen des THz-Vektorpotentials aufgenommen wurden, die mittlere Pulslänge und der mittlere lineare Chirp der XUV-Pulse bestimmt. Dabei wurden die XUV-Pulse durch Gaußpulse angenähert. Die mittlere rms-Pulslänge wurde bestimmt zu (15 ± 3) fs, was einer FWHM-Länge von (35 ± 7) fs entspricht. Dies ist erheblich länger als die in [A⁺07] abgeschätzte Pulslänge von 8 fs. Eine Erklärung dafür wäre, dass die zur Erzeugung der XUV-Pulse verwendeten Elektronenpakete während der Messschichten dieses Experiments länger waren als bei den Messungen in [A⁺07]. Dies würde dazu führen, dass die XUV-Pulse aus mehreren longitudinalen Moden bestehen und insgesamt länger sind. Diese Annahme wird auch durch die Verteilung der Einzelschusspulsenenergien bestätigt (siehe Kap. 6.3).

Der mittlere lineare Chirp der XUV-Pulse wurde bestimmt zu (5 ± 7) meV/fs. Wie erwartet haben die XUV-Pulse also einen leichten linearen Chirp, wobei die Photonenenergie am Anfang des Pulses höher ist als am Ende des Pulses. Der große Fehler bei der Bestimmung des Chirps folgt im Wesentlichen aus den großen Fehlern der mittleren Streak-Verbreiterungen der Spektren und ist damit eine Folge der Fluktuationen der XUV-Pulseigenschaften.

Der Fehler bei der Bestimmung des Chirps führt zu einem großen Fehler der Einzelschusspulslängenmessung. Um diese Pulslängenmessung zu verbes-

sern, gibt es im Wesentlichen zwei Möglichkeiten. Wie in Gleichung 6.11 zu erkennen ist, würde zum einen eine größere Streak-Geschwindigkeit s und zum anderen eine genaue Bestimmung des Chirps die Genauigkeit der Pulslängenmessung verbessern. Eine größere Streak-Geschwindigkeit lässt sich allerdings nur durch eine schärfere Fokussierung der THz-Strahlen mit einem kürzerbrennweitigen Spiegel erreichen. Dann wäre aber die Verschmierung der Streak-Spektren auf Grund der Gouy-Phasenverschiebung größer, und die Genauigkeit der Pulslängenmessung ließe sich nur dann wesentlich verbessern, wenn der genaue Effekt der Gouy-Phasenverschiebung bekannt wäre und bei der Berechnung der Pulslängen berücksichtigt werden könnte. Mit dem Spiegel mit einer Brennweite von 100 mm lässt sich z.B. eine Streak-Geschwindigkeit von $0,26 \text{ eV/fs}$ erreichen, womit der relative Fehler der Pulslängenmessung auf Grund der ungenauen Bestimmung des Chirps (Gl. 6.11) bei Verwendung dieses Spiegels nur noch etwa 12 % betragen würde. Dafür wäre hier bei einer mittleren Pulslänge von 35 fs FWHM die Pulslängenmessung auf Grund der Gouy-Phasenverschiebung um etwa 35 % verfälscht. Der gesamte Fehler der Messung der Einzelschusspulslängen ist also ohne eine Korrektur der Gouy-Phasenverschiebung nicht kleiner als bei der Messung mit dem längerbrennweitigen Spiegel. Um die Verschmierung auf Grund der Gouy-Phase bei der Berechnung der Pulslänge berücksichtigen zu können müsste zum einen die Gasdichteverteilung in der Wechselwirkungszone und zum anderen der exakte Verlauf der Gouy-Phase in der Wechselwirkungszone genau bekannt sein. Beides ist experimentell schwierig zu bestimmen und wurde nur näherungsweise abgeschätzt, um die Größenordnung der Auswirkungen der Gouy-Phasenverschiebung abschätzen zu können. Um die Pulslängenmessung zu verbessern ist es daher günstiger, weiterhin mit langbrennweitigen Spiegeln zu arbeiten und dafür die Messung des linearen Chirps zu verbessern. Z.B. wäre es mit einem dritten Photoelektronenspektrometer, das parallel zur THz-Polarisation ausgerichtet ist und dem bisherigen parallel ausgerichteten Spektrometer gegenüber liegt, möglich, den genauen linearen Chirp der einzelnen XUV-Pulse zu bestimmen. Die Implementierung eines dritten Spektrometers ist im THz-Streak-Kamera Experiment technisch möglich und für die Zukunft geplant.

6.2 Zeitstruktur einzelner XUV-Pulse

In Kapitel 6.1 wurden mit einem analytischen Modell die Pulslängen der XUV-Pulse bestimmt. Um automatisiert für sehr viele Pulse die Pulslänge messen zu können wurden dabei vereinfachende Annahmen gemacht und eine mögliche Substruktur der Pulse wurde nicht berücksichtigt. In diesem Kapi-

tel soll nun am Beispiel von drei einzelnen XUV-Pulsen gezeigt werden, dass es z.T. möglich ist, nicht nur die Pulslänge zu bestimmen sondern die Zeitstruktur der Pulse aufzulösen. Abb. 6.4 zeigt die Photoelektronenspektren der drei hier betrachteten XUV-Pulse. Sie wurden als Beispieldpulse ausgewählt, weil sie eine einfache, klar erkennbare Struktur haben. Die Spektren links wurden jeweils senkrecht zur THz-Polarisation, die Spektren rechts parallel dazu aufgenommen. Aufgetragen ist in blau die Anzahl n der gemessenen Photoelektronen, die Größe der Fehlerbalken beträgt \sqrt{n} . Für die Messungen wurde ein Spiegel mit einer Brennweite von 150 mm benutzt, mit dem sich eine größere Streak-Geschwindigkeit erreichen lässt.

Es ist sofort zu erkennen, dass die Photoelektronenspektren der drei Pulse sehr unterschiedlich sind. Die Spektren des ersten Schusses sind sehr schmal und es ist keine Substruktur zu erkennen. In den parallel zur THz-Polarisation aufgenommenen Spektren des zweiten und dritten Pulses sind hingegen deutlich zwei getrennte Peaks zu erkennen. Daher ist bei diesen XUV-Schüssen davon auszugehen, dass sie aus zwei zeitlich voneinander getrennten Subpulsen bestanden. Die Spektren des ersten XUV-Pulses ohne aufgelöste Substruktur sind typisch für etwa 90 % der betrachteten Spektren, während in ca. 8 % der Streak-Spektren zwei deutlich getrennte Peaks zu erkennen waren und ca. 2 % der Streak-Spektren aus drei oder mehr Peaks bestanden.

Zur Rekonstruktion der XUV-Zeitstruktur wird beim ersten Puls wieder der Ansatz gewählt, ihn durch einen Gaußpuls anzunähern. Beim zweiten und dritten Puls wird davon ausgegangen, dass sie jeweils aus zwei getrennten Pulsen bestehen und die Parameter der einzelnen Pulse werden durch Fitten von simulierten Photoelektronenspektren bestimmt.

XUV-Schuss ohne aufgelöste Substruktur

Die Photoelektronenspektren des ersten XUV-Pulses in Abb. 6.4 sind ein Beispiel für XUV-Spektren ohne Substruktur. Die Spektren lassen sich gut durch Gaußfunktionen annähern, die angepassten Gaußfunktionen sind in Abb. 6.4 in rot dargestellt. Die rms-Breite der Gaußfunktion im Spektrum, das senkrecht zur THz-Polarisation aufgenommen wurde beträgt $\sigma_{\perp} = (0,6 \pm 0,2) \text{ eV}$, die der Gaußfunktion im parallel aufgenommenen Spektrum $\sigma_{\parallel} = (1,2 \pm 0,2) \text{ eV}$. σ_{\perp} entspricht im Wesentlichen der Breite des XUV-Spektrums, σ_{\parallel} besteht aus einer Faltung von σ_{\perp} mit der Verbreiterung durch das THz-Streaking. Durch entfalten ergibt sich, analog zu Kapitel 6.1:

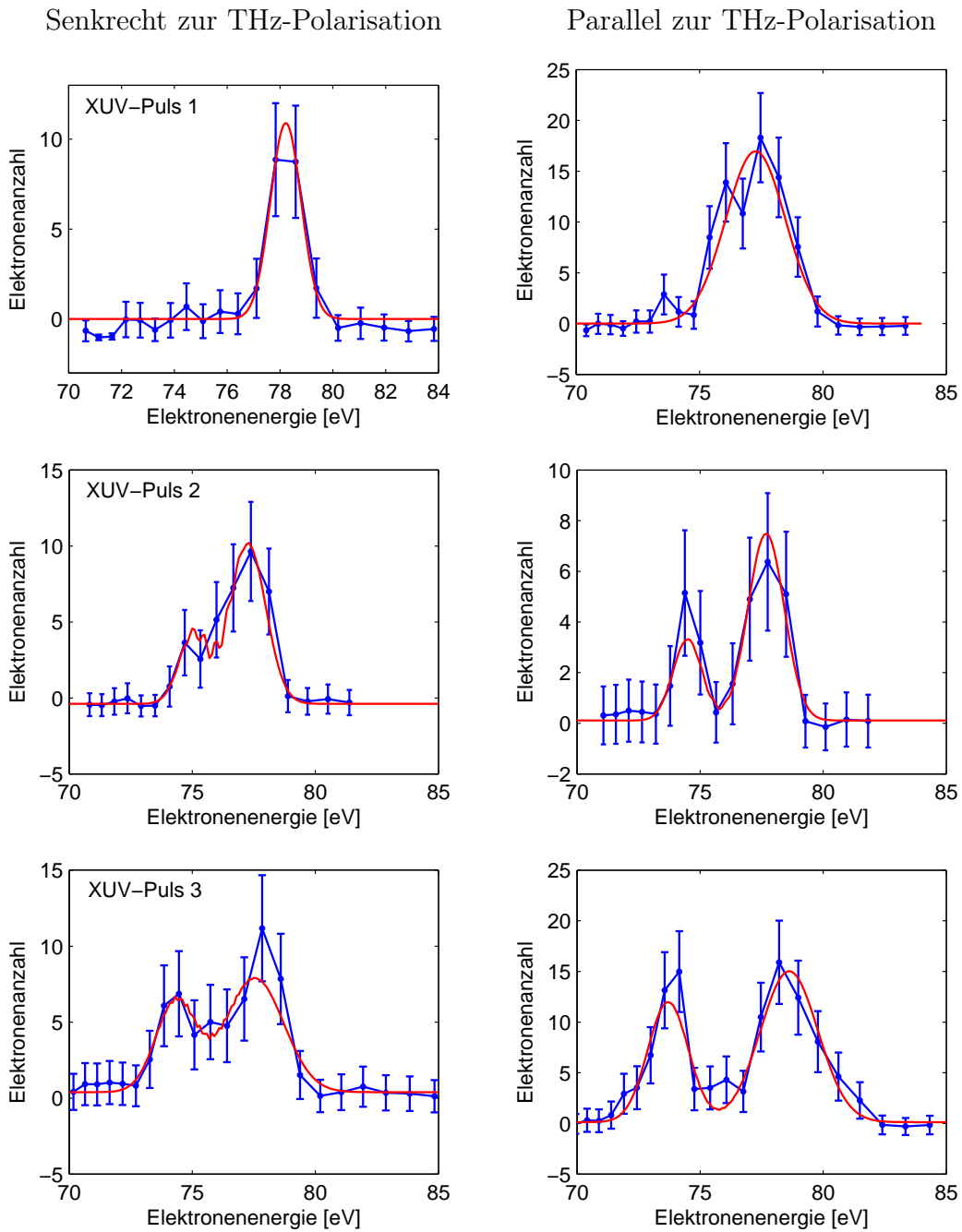


Abbildung 6.4: Photoelektronenspektren von drei einzelnen XUV-Pulsen. Die Spektren links wurden senkrecht zur THz-Polarisation aufgenommen, die Spektren rechts parallel dazu.

$$\sigma_{Streak} = \sqrt{\sigma_{\parallel}^2 - \sigma_{\perp}^2} = 1,0 \pm 0,3 \text{ eV}. \quad (6.12)$$

Daraus ergibt sich eine Pulslänge von

$$\begin{aligned} \tau &= \frac{\sigma_{Streak}}{\sqrt{s^2 - 4cs}} \\ &= (12 \pm 4) \text{ fs}, \end{aligned} \quad (6.13)$$

$$(6.14)$$

wobei für den Chirp c der in Kap. 6.1 bestimmte mittlere Chirp \bar{c} angenommen wurde und die Streak-Geschwindigkeit s 0,1 eV/fs betrug. Der Fehler von 4 fs stammt hauptsächlich aus der großen Ungenauigkeit der Breiten der Photoelektronenspektren σ_{\perp} und σ_{\parallel} , sowie dem großen Fehler des Chirps. Die begrenzte Auflösung der Elektronenspektrometer von ca. 0,3 eV führt zu einer Verbreiterung der beiden gemessenen Spektren. Diese Verbreiterung hebt sich bei der Berechnung der durch das Streaking hervorgerufenen Verbreiterung (Gleichung 6.12) auf, so dass die Spektrometerrauflösung nicht wesentlich zum Fehler bei der Pulslängenbestimmung beiträgt.

Die hier bestimmte rms-Pulslänge von (12 ± 4) fs entspricht einer FWHM-Pulslänge von (28 ± 9) fs.

Bei der Messung dieser Spektren wurde zur Fokussierung des THz-Lichtes ein Spiegel mit einer Brennweite von 150 mm verwendet. Für diesen Spiegel wurde die Zeitverschmierung auf Grund der Gouy-Phase auf 13 fs FWHM (5,5 fs rms) abgeschätzt (siehe Kap. 4.2.3). Durch Korrektur dieser Verbreiterung ergibt sich eine Pulslänge von

$$\begin{aligned} \tau_{XUV,korrigiert} &= \sqrt{\tau_{XUV}^2 - \sigma_G^2} \\ &= 11 \text{ fs}. \end{aligned} \quad (6.15)$$

Der Fehler der Pulslängenmessung auf Grund der Gouy-Phasenverschmierung ist also deutlich geringer als der Fehler auf Grund der ungenauen Bestimmung der Breiten der Spektren und der ungenauen Bestimmung des Chirps.

XUV-Schüsse mit aufgelöster Substruktur

In den parallel zur THz-Polarisation aufgenommenen Spektren der XUV-Pulse zwei und drei sind jeweils zwei deutlich voneinander getrennte Peaks zu

erkennen. Bei Puls drei finden sich diese Peaks auch im XUV-Spektrum wieder, allerdings mit einem geringeren relativen Abstand zueinander. Zur Rekonstruktion der XUV-Zeitstruktur wird ein Ansatz gewählt, bei dem davon ausgegangen wird, dass der XUV-Puls aus zwei zeitlich voneinander getrennten Gaußpulsen bestand. Das elektrische Feld des Pulses ist dann gegeben durch

$$E_{XUV} = (A_1 e^{-a_1(t-t_0)^2} e^{-i(\omega_{01}(t-t_0))}) + (A_2 e^{-a_2(t-(t_0+\Delta t))^2} e^{-i(\omega_{02}(t-(t_0+\Delta t)))}). \quad (6.16)$$

Bei beiden Gaußpulsen können die Amplitude $A_{1,2}$, die zeitliche Breite $\tau_{1,2} = 1/\sqrt{a_{1,2}}$, die zentrale Energie $E_{0-1,2} = \hbar\omega_{1,2}$ sowie ihr relativer zeitlicher Abstand Δt frei gewählt werden (vergl. Abb. 6.5). Das durch das THz-Feld nicht beeinflusste Photoelektronenspektrum ist durch das Quadrat der Fouriertransformierten von Gleichung 6.16 gegeben. Das Streak-Spektrum lässt sich nach Kap. 3.2 berechnen :

$$S(\omega) = \left| - \int_{-\infty}^{\infty} dt e^{i\phi(t)} E_{XUV}(t) e^{-i\omega t} \right|^2, \quad (6.17)$$

wobei die Phase ϕ wieder genähert wird durch

$$\phi(t) \approx \sqrt{8\omega_0 U_p(0)/\omega_{THz}^2} \cos\theta (1 - \omega_{THz}^2 t^2 / 2). \quad (6.18)$$

Um die Zeitstruktur der Pulse zu rekonstruieren, wurden die Spektren berechnet und mit den gemessenen Photoelektronenspektren verglichen. Die Parameter der Gaußpulse wurden optimiert, um die Spektren anzupassen. Dabei musste gleichzeitig das berechnete Streak-Spektrum an das parallel gemessene und das berechnete ungestörte Spektrum an das senkrecht gemessene Spektrum passen. Als Maß für die Güte des Fits dient der χ^2 -Wert, der die mit den Fehlern der Messpunkte gewichtete Summe der quadratischen Abweichungen der gefitteten von den gemessenen Punkten angibt [Tay88]:

$$\chi^2 = \sum \left(\frac{\text{gemessener Wert} - \text{Fit Wert}}{\text{Standardabw. des Messwerts}} \right)^2. \quad (6.19)$$

Zunächst interessant ist der zeitliche Abstand der beiden Pulse Δt und die Differenz ihrer Zentralenergien ΔE . Abb. 6.6 zeigt links jeweils die χ^2 -Werte der Fits in Abhängigkeit dieser zwei Parameter. Alle anderen Fitparameter wurden an jedem $\Delta t/\Delta E$ Punkt optimiert. Der Punkt mit dem kleinsten χ^2 -Wert, der dem besten Fit entspricht, ist jeweils durch ein weißes Kreuz gekennzeichnet. Beim zweiten XUV-Puls liegt dieser Punkt bei $\Delta t = 9$ fs und $\Delta E = 2,2$ eV. Das heißt, die gemessenen Spektren werden am besten

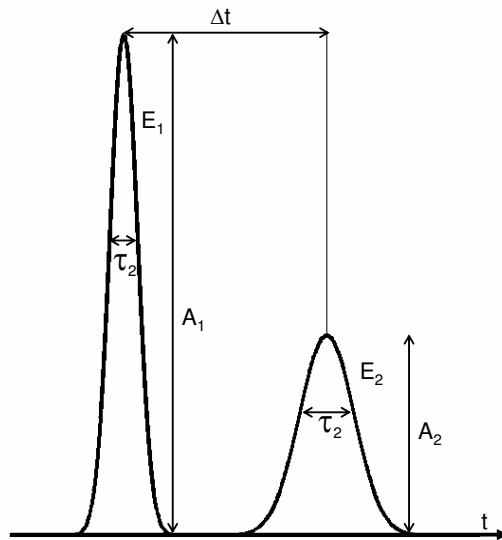


Abbildung 6.5: Schematische Darstellung der benutzten Fitparameter.

von den Spektren zweier Gaußpulse, die einen relativen Abstand von 9 fs hatten und deren zentrale Energien sich um 2,2 eV unterschieden, reproduziert. Beim dritten XUV-Puls liegt der Punkt mit dem niedrigsten χ^2 -Wert bei $\Delta t = 17$ fs und $\Delta E = 3,2$ eV. Die zugehörigen berechneten Spektren sind jeweils in Abb. 6.4 in rot eingezeichnet. Die zugehörige Zeitstruktur des XUV-Pulses ist jeweils in Abb. 6.6 rechts in Schwarz dargestellt.

Es ist möglich, mit Hilfe der berechneten χ^2 -Werte eine gemeinsame Konfidenzregion für die beiden Parameter Δt und ΔE anzugeben. Wenn χ_R^2 der niedrigste χ^2 -Wert ist, dann ist die gemeinsame $(1-\alpha)$ -Konfidenzregion durch eine Kontur mit Wert S eingeschlossen:

$$S = \chi_R^2 \left[1 + \frac{p}{n-p} F_\alpha(n, p) \right], \quad (6.20)$$

wobei p die Zahl der Parameter und n die Zahl der Messpunkte ist [BHH78]. Die Zahl der bestimmten Parameter betrug hier zwei, die der Messpunkte bei Schuss zwei 34 und bei Schuss drei 48. Die Werte der Funktion $F_\alpha(n, p)$ sind tabelliert in [BHH78]. Die so berechneten Konturen der 90%-Konfidenzregionen sind in Abb. 6.6 jeweils als rote Ellipse eingezeichnet. Diese Konfidenzregion ist so zu verstehen, dass mit 90%iger Sicherheit der XUV-Puls einen $(\Delta t, \Delta E)$ -Wert hatte, der in dem umrandeten Gebiet liegt. Durch rote Kreuze sind die zu den Extremwerten von Δt gehörenden Punkte eingezeichnet. Die Zeitstrukturen, die zu diesen Grenzen der Δt -Werte gehö-

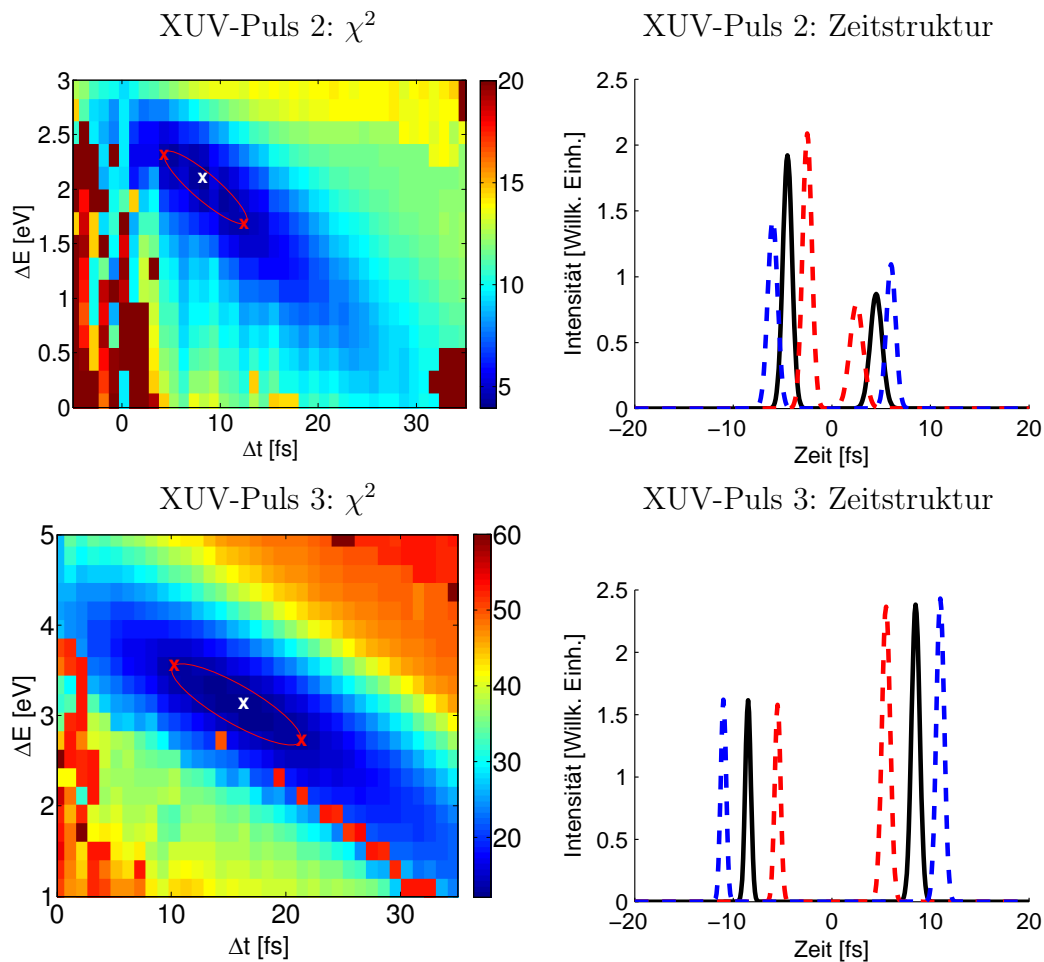


Abbildung 6.6: Links: χ^2 -Werte der Fits der berechneten Spektren zweier Gaußpulse an die gemessenen Spektren von XUV-Puls 2 und 3, in Abhängigkeit des relativen zeitlichen Abstands Δt und der Differenz ihrer Zentralfrequenzen ΔE . Das weiße x kennzeichnet den niedrigsten χ^2 -Wert, die rote Ellipse gibt die 90% Konfidenzregion von Δt und ΔE an. Rechts: Rekonstruierte Zeitstrukturen der XUV-Pulse. Die schwarze Linie gibt jeweils die Zeitstruktur des besten Fits an, die roten und blauen Linien die Zeitstrukturen der unteren und oberen Grenze des 90% Konfidenzintervalls von Δt (links als rote x gekennzeichnet).

ren sind in Abb. 6.6 jeweils in blau und rot dargestellt. Bei XUV-Puls zwei liegen diese Grenzen bei einem minimalen Δt Wert von $\Delta t_{min} = 5$ fs und einem maximalen Δt Wert von $\Delta t_{max} = 12$ fs. Die zugehörigen ΔE -Werte betragen 2,4 und 1,8 eV. Das heißt mit 90 % Konfidenz hatten die beiden XUV-Subpulse einen relativen Abstand von (9_{-4}^{+3}) fs. Bei Schuss drei liegen die Grenzen der Δt -Werte bei 11 und 22 fs mit zugehörigen ΔE -Werten von 3,2 und 2,8 eV.

Die zeitliche Breite der rekonstruierten Subpulse liegt zwischen 0,7 und 1,4 fs FWHM. Die rekonstruierte Breite ist im Wesentlichen durch die Bedingung bestimmt, dass die Fouriertransformierte der Pulse das gemessene Spektrum ergeben muss. Dabei wird weder ein möglicher Chirp der XUV-Subpulse, noch eine begrenzte Auflösung der Elektronenspektrometer, noch eine mögliche Verbreiterung des Photoelektronenspektrums durch Raumladungseffekte berücksichtigt. Daher muss davon ausgegangen werden, dass die zeitliche Breite der realen XUV-Subpulse länger als die der rekonstruierten ist.

Zusammenfassung und Diskussion

In diesem Kapitel wurde die Zeitstruktur von drei XUV-Pulsen untersucht. Beim ersten Puls war keine Struktur der Spektren erkennbar und die Spektren wurden durch Gaußfunktionen angenähert. Hier wurde eine rms Pulslänge von (12 ± 4) fs bestimmt. Das Streak-Spektrum des ersten XUV-Pulses ohne klar aufgelöste Struktur ist typisch für etwa 90 % der aufgenommenen Spektren. Es ist wahrscheinlich, dass viele dieser XUV-Pulse, auch wenn keine Struktur im Streak-Spektrum zu erkennen war, trotzdem aus mehreren zeitlich voneinander getrennten Subpulsen bestanden, die nur nicht aufgelöst werden konnten. Um zwei zeitlich um Δt voneinander getrennte XUV-Subpulse auflösen zu können, müssen die von ihnen erzeugten Elektronenpakete energetisch um mindestens ihre spektrale Breite ΔW zueinander verschoben werden. Die Energieverschiebung durch das Streaking ist gegeben durch $\Delta W_{Streak} = s\Delta t$. Bei einer spektralen Breite der einzelnen XUV-Moden von ca. einem Prozent und einer Streak-Geschwindigkeit von etwa 0,1 eV/fs ergibt das eine Auflösung von etwa 9 fs, der simulierte Abstand der Subpulse ist z.T. geringer (siehe Abb. 2.9). Um die Substruktur aller XUV-Pulse auflösen zu können, wird daher eine höhere Streak-Geschwindigkeit und damit eine höhere Intensität des THz-Lichtes benötigt. Leider kann die Auflösung nicht durch eine stärkere Fokussierung der THz-Strahlen verbessert werden. Mit dem Spiegel mit einer Brennweite von 100 mm lassen sich zwar

Streak-Geschwindigkeiten von $0,26 \text{ eV/fs}$ erreichen, allerdings ist dann die Verschmierung der Streak-Spektren auf Grund der Gouy-Phase sehr stark. Z.B. müssten zwei XUV-Pulse mit einer Pulslänge von 4 fs (siehe unten) nach Gleichung 6.9 einen zeitlichen Abstand von mindestens 30 fs haben, um getrennt aufgelöst zu werden.

Bei den Pulsen zwei und drei waren deutlich zwei Peaks in den Streak-Spektren zu erkennen. Hier wurde ein Ansatz von zwei voneinander unabhängigen Gaußpulsen gewählt um die Zeitstruktur zu rekonstruieren. Für den Abstand der beiden Subpulse wurde hier für Schuss zwei (9_{-4}^{+3}) fs und für Schuss drei (17_{-6}^{+5}) fs bestimmt. Die Breite der rekonstruierten Subpulse lag zwischen $0,7$ und $1,4 \text{ fs}$ FWHM. Diese Breite ist im Wesentlichen dadurch bestimmt, dass die Fouriertransformierte der Pulse das gemessene Spektrum ergeben muss und ist wahrscheinlich deutlich zu klein. Die Kohärenzzeit der XUV-Pulse bei einer Wellenlänge von $13,5 \text{ nm}$ wurde auf etwa 4 fs abgeschätzt (siehe Kap. 2.1.4). Es ist daher anzunehmen, dass die Subpulse mindestens eine Länge von 4 fs haben.

Beim zweiten XUV-Puls unterscheiden sich die Energien der rekonstruierten Subpulse um $\Delta E = 2,2 \text{ eV}$. Das entspricht, bei einem zeitlichen Abstand von $\Delta t = 9 \text{ fs}$, einem linearen Chirp des Gesamtpulses von $c = \Delta E/\Delta t = 240 \text{ meV/fs}$. Für den dritten XUV-Puls ergibt sich ein Chirp von 190 meV/fs . Diese Werte sind um mehrere Größenordnungen größer als der in Kapitel 6.1 bestimmte mittlere Chirp der XUV-Pulse der 5 meV/fs betrug. Allerdings wurden die in Kap. 6.1 zur Bestimmung des mittleren linearen Chirps und der mittleren Pulslänge benutzten XUV-Spektren nicht in der gleichen Messschicht wie die hier dargestellten Einzelpulsspektren aufgenommen. Es ist möglich, dass die Einstellungen des FLASH-Linearbeschleunigers an den beiden Messtagen unterschiedlich waren und sich der Chirp der zur Erzeugung der XUV-Pulse verwendeten Elektronenpakete und damit auch der mittlere Chirp der XUV-Pulse unterschied. Außerdem ist es möglich, dass sich die XUV-Pulse zwei und drei durch einen besonders großen Chirp auszeichnen. Sie wurden gezielt ausgewählt, weil in ihren Streak-Spektren deutlich zwei Subpulse aufgelöst sind, während bei 90% der betrachteten Spektren keine Substruktur zu erkennen war. Der lineare Chirp verstärkt, wenn er in die gleiche Richtung wie die Streak-Geschwindigkeit zeigt, das Streaking und führt zu einer noch stärkeren Verbreiterung des Streak-Spektrums. Darum konnten z. B. beim zweiten XUV-Puls die Subpulse, die mit einem zeitlichen Abstand von nur 9 fs an der Grenze des Auflösungsvermögens des Experiments liegen (s. o.), deutlich getrennt werden.

Die Struktur der Streak-Spektren der XUV-Pulse zwei und drei ist mit nur

zwei aufgelösten Peaks relativ einfach und es ist mit einem analytischen Ansatz möglich, ihre Zeitstruktur zu rekonstruieren. Bei Schüssen mit komplizierter Struktur in den Spektren, bei denen z.B. sowohl in den Streak-Spektren als auch in den XUV-Spektren mehrere Peaks zu erkennen sind, ist eine eindeutige Rekonstruktion nur aus diesen beiden Spektren nicht möglich. Insbesondere können, wenn sich die Spektren zweier Subpulse überschneiden, Interferenzen im Spektrum auftreten, die eine komplizierte Zeitstruktur vortäuschen. Mit einem dritten Detektor, der gleichzeitig Streak-Spektren mit umgekehrter Streak-Richtung aufnimmt, wird es einfacher sein, die Zeitstruktur komplizierter Pulse zu rekonstruieren. Aber auch dann wird wahrscheinlich nicht für alle Pulse eine eindeutige Rekonstruktion möglich sein.

Die Statistik der hier behandelten Photoelektronenspektren reicht zwar aus, um eindeutig Strukturen aufzulösen, ist aber mit nur einigen zehn Elektronen pro Spektrum recht gering. Bei der Messung der in diesem Kapitel dargestellten Spektren war es nicht möglich, die MCP-Detektoren mit optimalen Spannungen zu betreiben, so dass ihre Empfindlichkeit gegenüber dem Normalbetrieb deutlich reduziert war. Im Normalbetrieb lag die Elektronenanzahl pro Spektrum bei gleicher XUV-Intensität und Gasdichte im Bereich von etwa 100 bis 300 (siehe auch Abb. 6.1).

6.3 XUV-Spektrum und Pulsenergieverteilung

Bei FLASH ist es möglich, das Spektrum der einzelnen XUV-Pulse mit einem Gitterspektrometer zu messen [T⁺09]. Abb. 6.7 zeigt fünf so gemessene Einzelschussspektren von aufeinander folgenden XUV-Pulsen, die während einer Streak-Kamera-Messschicht aufgenommen wurden. Die FWHM-Breite der Spektren betrug Mittel etwa 1,5 eV, was einer relativen Breite von 1,7% entspricht. Dies ist deutlich breiter als bei einem gut gesättigten FEL erwartet wird (vergl. Kap. 2.1.4). Es wurden in jeder Messschicht FEL-Spektren gemessen, die hier gezeigten Spektren sind typisch für alle Messschichten.

Die mit der THz-Streak-Kamera gemessene mittlere Pulsdauer der FLASH-XUV-Pulse von 35 fs ist deutlich länger als die geschätzte Dauer einer einzelnen zeitlichen Mode von etwa 4 fs. Daher müssen die XUV-Pulse während dieser Messungen im Mittel aus mehreren zeitlichen Moden bestanden haben. Diese Beobachtung wird auch durch die Verteilung der Einzelschusspulsenenergien bestätigt. Wie in Kap. 2.1.4 beschrieben, lässt sich aus der Verteilung der Einzelschusspulsenenergie der XUV-Pulse auf die mittlere Anzahl der Lasermoden schließen. Wenn der FEL nicht gesättigt ist, fluktuiert die Pul-

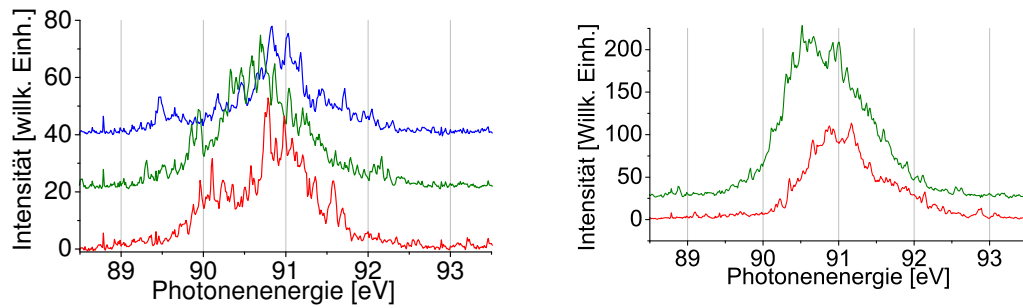


Abbildung 6.7: Spektren einzelner XUV-Schüsse, aufgenommen mit einem Gitterspektrometer. Zur besseren Sichtbarkeit wurden die Spektren in y-Richtung gegeneinander verschoben aufgetragen.

senergie nach Gleichung 2.5 entsprechend einer Gammadistribution. Abb. 6.8 zeigt ein Histogramm der Pulsenergien von 600 XUV-Schüssen. Die Pulsenergien wurden mit den Photoelektronenspektrometern gemessen, wobei angenommen wurde, dass die gemessenen Detektorsignale proportional zur XUV-Intensität sind. Die mittlere Modenzahl betrug 5,5. In rot dargestellt ist die erwartete Energieverteilung aus Gleichung 2.5. Diese Kurve passt gut zu den gemessenen Werten.

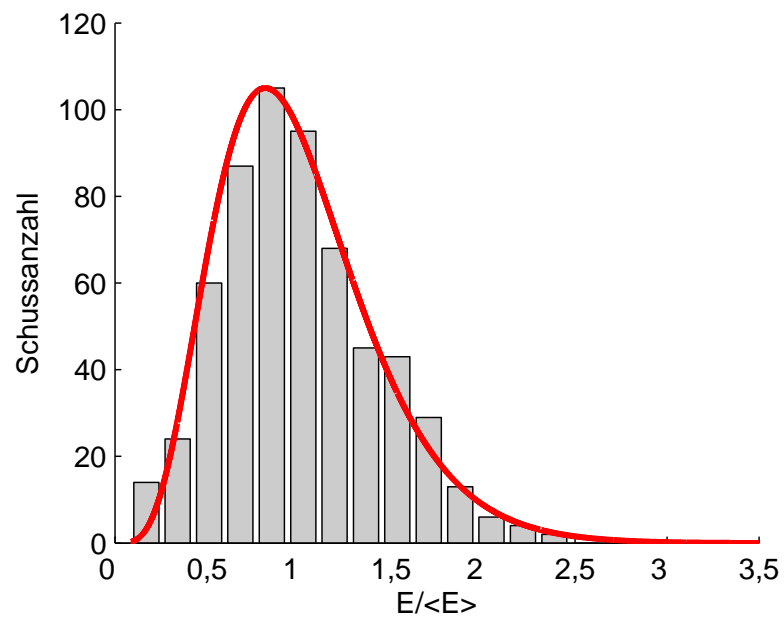


Abbildung 6.8: Histogramm von normierten Einzelschusspulsenergien. In rot dargestellt ist die erwartete Gammaverteilung der Pulsenergien bei einer FEL-Modenzahl von 5,5.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

Freie-Elektronen-Laser sind neue Quellen für hochintensive ultrakurze Lichtpulse mit Wellenlängen bis in den Röntgenbereich. Auf Grund der zur Erzeugung des Lichts verwendeten Methode fluktuiert unter Anderem die Zeitstruktur der Pulse, die z.T. aus mehreren zeitlich voneinander getrennten Subpulsen bestehen. Zur Einzelpulsmessung der Zeitstruktur der XUV-Pulse bei FLASH wurde im Rahmen dieser Arbeit eine THz-Feld getriebene Streak-Kamera entwickelt und aufgebaut. In dem Experiment werden Lichtpulse des neuen FLASH THz-Undulators benutzt, um von den XUV-Pulsen erzeugte Photoelektronen zu beschleunigen. Zunächst konnte damit das zeitabhängige elektrische Feld der THz-Lichtpulse detailliert vermessen werden. Da bei FLASH die XUV und THz-Pulse von den gleichen Elektronenpaketen erzeugt werden, sind beide Lichtpulse automatisch gut synchronisiert. Die Fluktuation der relativen Ankunftszeit beider Pulse am Experiment konnte mit dem Streak-Kamera-Experiment gemessen werden und betrug nur 5 fs rms.

Durch Vergleich von Photoelektronenspektren, die zu unterschiedlichen relativen Ankunftszeiten der THz- und XUV-Pulse aufgenommen wurden, konnte erstmals der mittlere lineare Chirp der XUV-Pulse gemessen werden, wobei bei einer Wellenlänge von 13,5 nm ein Wert von (5 ± 7) meV/fs bestimmt wurde. Unter Annahme eines konstanten Chirps konnten dann die Pulslängen der einzelnen XUV-Pulse gemessen werden. Dabei betrug die mittlere Pulslänge 35 fs FWHM mit einer Standardabweichung von 9 fs. Darüber hinaus war es z.T. möglich, nicht nur die Länge der XUV-Pulse zu bestimmen, sondern auch die Zeitstruktur detailliert zu rekonstruieren.

Die Genauigkeit der Pulslängenmessung wird zurzeit noch dadurch limitiert, dass nur der über viele Pulse gemittelte Chirp und nicht der genaue Chirp der einzelnen XUV-Pulse bekannt ist. Dies führt zu einem großen relativen Fehler der Pulslängenmessung von bis zu 50 %. Mit Hilfe eines dritten

Photoelektronenspektrometers wird es in Zukunft möglich sein, den linearen Chirp der einzelnen XUV-Pulse zu messen und so die Pulslängenmessung wesentlich zu verbessern. Außerdem wird es mit dem dritten Spektrometer einfacher die Zeitstruktur komplizierterer XUV-Pulse zu rekonstruieren.

Die XUV-Pulse werden, da nur ein sehr geringer Teil durch das Gas im Experiment absorbiert wird, von der Pulslängenmessung kaum beeinflusst und können, parallel zur Pulslängenmessung für andere Experimente benutzt werden. Damit wird es z.B. möglich für Pump-Probe-Experimente nur die kürzesten Lichtpulse auszuwählen und so die ihre Zeitauflösung zu verbessern. Auch die Auflösung von Experimenten, die empfindlich von der Intensität der XUV-Pulse abhängen, kann durch eine Zeitstrukturmessung bei gleichzeitiger Messung der Pulsenergie verbessert werden.

Neben der Pulslängenmessung ist eine mögliche Anwendung des THz-Streak-Kamera-Experiments, es in Zukunft direkt für zeitaufgelöste Experimente zu benutzen. Dabei kann etwa ein System durch den XUV-Puls angeregt werden. Wenn es unter Aussendung von Elektronen relaxiert, lässt sich mit Hilfe der Streak-Kamera direkt die Zeitkonstante dieses Zerfalls messen. Mit dieser Methode wurde z.B. an einer HHG-Quelle durch Streaking mit einem nah-infrarot-Laser erstmals direkt die Lebensdauer eines Augerzerfalls gemessen [D⁺02]. Eine Voraussetzung für diese Messungen ist, dass die Zeitkonstante des Zerfalls größer als die XUV-Pulslänge sein muss. Daher ist die THz-Streak-Kamera bei FLASH geeignet zur Charakterisierung von Zerfällen mit Zeitkonstanten zwischen ca. 15 fs und vielen ps. Interessante Prozesse mit Zeitkonstanten in diesem Bereich sind z.B. interatomare Augerzerfälle in Clustern [M⁺b]. Auf Grund des sehr geringen Wirkungsquerschnitts lassen sich diese Zerfälle kaum an HHG-Quellen studieren, aber dank der extrem hohen Photonenzahlen der FLASH-XUV Pulse können sie bei FLASH gemessen werden.

Anhang A - Chirp von Lichtpulsen

Die hier dargestellten Beschreibungen sind eng angelehnt an [Tre00]. Das elektrische Feld von kurzen Lichtpulsen wird häufig dargestellt als:

$$\varepsilon(t) = E(t)e^{i(\omega_0 t - \phi(t))} + c.c., \quad (1)$$

wobei $E(t)$ die Einhüllende des Pulses beschreibt und ω_0 und $\phi(t)$ die Trägerfrequenz und die zeitabhängige Phase sind. Durch eine Fouriertransformation von Gl. 2 ergibt sich das elektrische Feld im Frequenzraum:

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} \varepsilon(t)e^{-i\omega t} dt = \sqrt{S(\omega)}e^{i\varphi(\omega)}, \quad (2)$$

dabei ist $S(\omega)$ das Spektrum und $\varphi(\omega)$ die spektrale Phase.

Bei vielen kurzen Lichtpulsen ist die Frequenz des Pulses nicht konstant sondern ändert sich mit der Zeit. Diese Änderung der Frequenz wird durch die Phase $\phi(t)$ in Gleichung 2 beschrieben. Die instantane Phase des Pulses ergibt sich durch:

$$\omega(t) = \omega_0 + \frac{d\phi}{dt} \quad (3)$$

Die zeitabhängige Phase $\phi(t)$ wird häufig in eine Taylorreihe entwickelt:

$$\phi(t) = \phi_0 + \phi_1 t + \frac{1}{2!}\phi_2 t^2 + \frac{1}{3!}\phi_3 t^3 \dots \quad (4)$$

Eine Phase nullter Ordnung ϕ_0 führt nur zu einer Verschiebung der absoluten Phase in Gleichung 2, während eine lineare Änderung der Phase zu einer Verschiebung der Trägerfrequenz führt: $\omega'_0 = \omega_0 + \phi_1$. Eine quadratische Änderung der Phase bewirkt eine lineare Änderung der instantanen Frequenz: $\omega(t) = \omega_0 + \phi_2 t$. In diesem Fall spricht man von einem **linearen Chirp** des Pulses (siehe Abb. 1, mitte). Eine Phasenänderung dritter Ordnung bewirkt eine quadratische Änderung der instantanen Frequenz: $\omega(t) = \omega_0 + 1/2\phi_3 t^2$, dies wird als **quadratischer Chirp** bezeichnet (siehe Abb. 1, rechts).

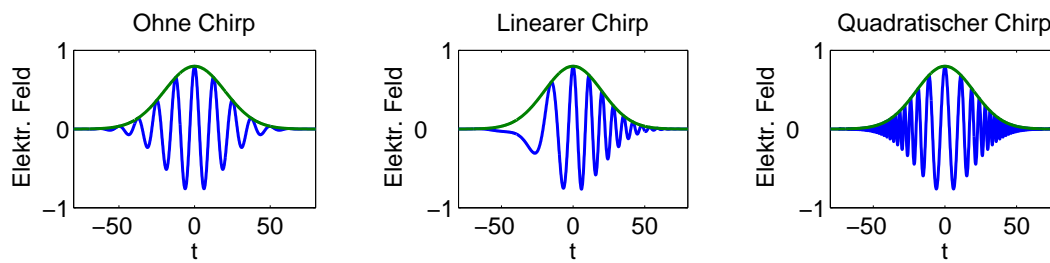


Abbildung 1: Links: elektrisches Feld eines Gaußpulses ohne Chirp. Mitte: elektrisches Feld eines Pulses mit linearem Chirp, die instantane Frequenz ändert sich linear mit der Zeit. Rechts: elektrisches Feld eines Pulses mit quadratischem Chirp, instantane Frequenz ändert sich quadratisch mit der Zeit.

Anhang B - Gaußstrahlen

Die räumliche Ausbreitung von Laserstrahlen lässt sich oft gut durch Gaußstrahlen beschreiben. Die hier dargestellten Beschreibungen sind eng angelehnt an [ST91]. Gaußstrahlen sind eine Lösung der der paraxialen Helmholtzgleichung und werden in der Regel mit Hilfe von Zylinderkoordinaten z, ρ dargestellt, wobei z die Strahlachse und ρ der Radius ist. Ihre komplexe Feldamplitude ist gegeben durch

$$E(\rho, z) = E_0 \frac{W_0}{W_z} \exp \left[-\frac{\rho^2}{W^2(z)} \right] \exp \left[-ikz - ik \frac{\rho^2}{2R(z)} + i\zeta(z) \right]. \quad (5)$$

Die zu dieser Feldstärke gehörende Intensität ist dann:

$$I(\rho, z) = I_0 \left(\frac{W_0}{W(z)} \right)^2 \exp \left[-\frac{2\rho^2}{W^2(z)} \right]. \quad (6)$$

Die Intensitätsverteilung ist also auf jeder beliebigen transversalen Ebene gegeben durch eine zylindersymmetrische Gaußfunktion mit einer rms-Breite von $\sigma = \frac{1}{2}W(z)$. W_0 bezeichnet den minimalen Strahlradius bei der Taille des Gaußstrahls (siehe Abb. 2). Ausgehend von der Taille weitet sich der Strahl in beide Richtung auf. Die **Rayleighlänge** $z_0 = \frac{\pi W_0^2}{\lambda}$ gibt den Abstand an, in dem sich ausgehend von der Taille der Strahlradius um $\sqrt{2}$ vergrößert hat:

$$W(\pm z_0) = W_0 \sqrt{2}. \quad (7)$$

Die **Divergenz** der Strahlen im Fernfeld ist gegeben durch $\Theta = \frac{2}{\pi} \frac{\lambda}{2W_0}$. Wie in Gleichung 5 zu sehen ist, ist die **Phase** auf der Strahlachse gegeben durch $\varphi(0, z) = kz - \zeta(z)$. Dabei ist $\zeta(z) = \arctan(\frac{z}{z_0})$ die Gouy-Phase.

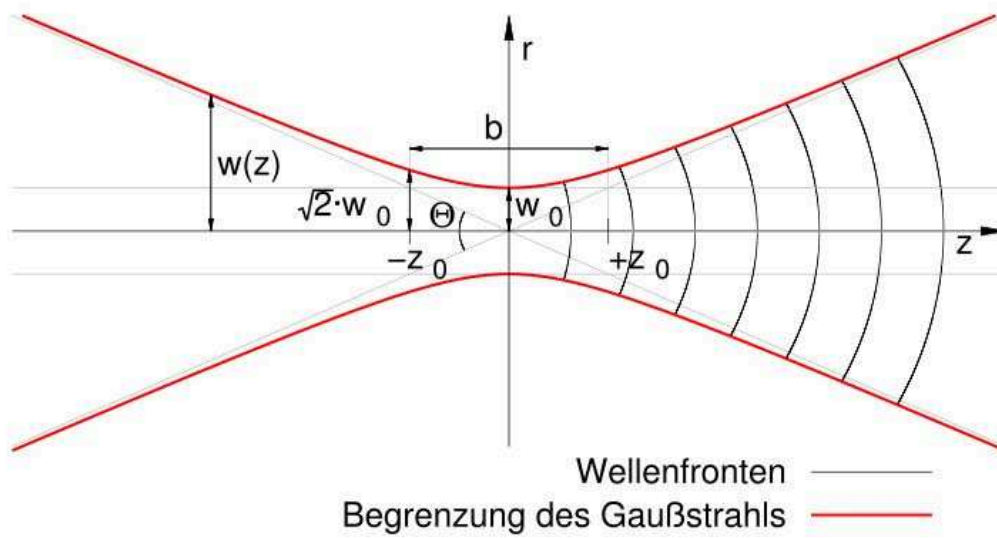
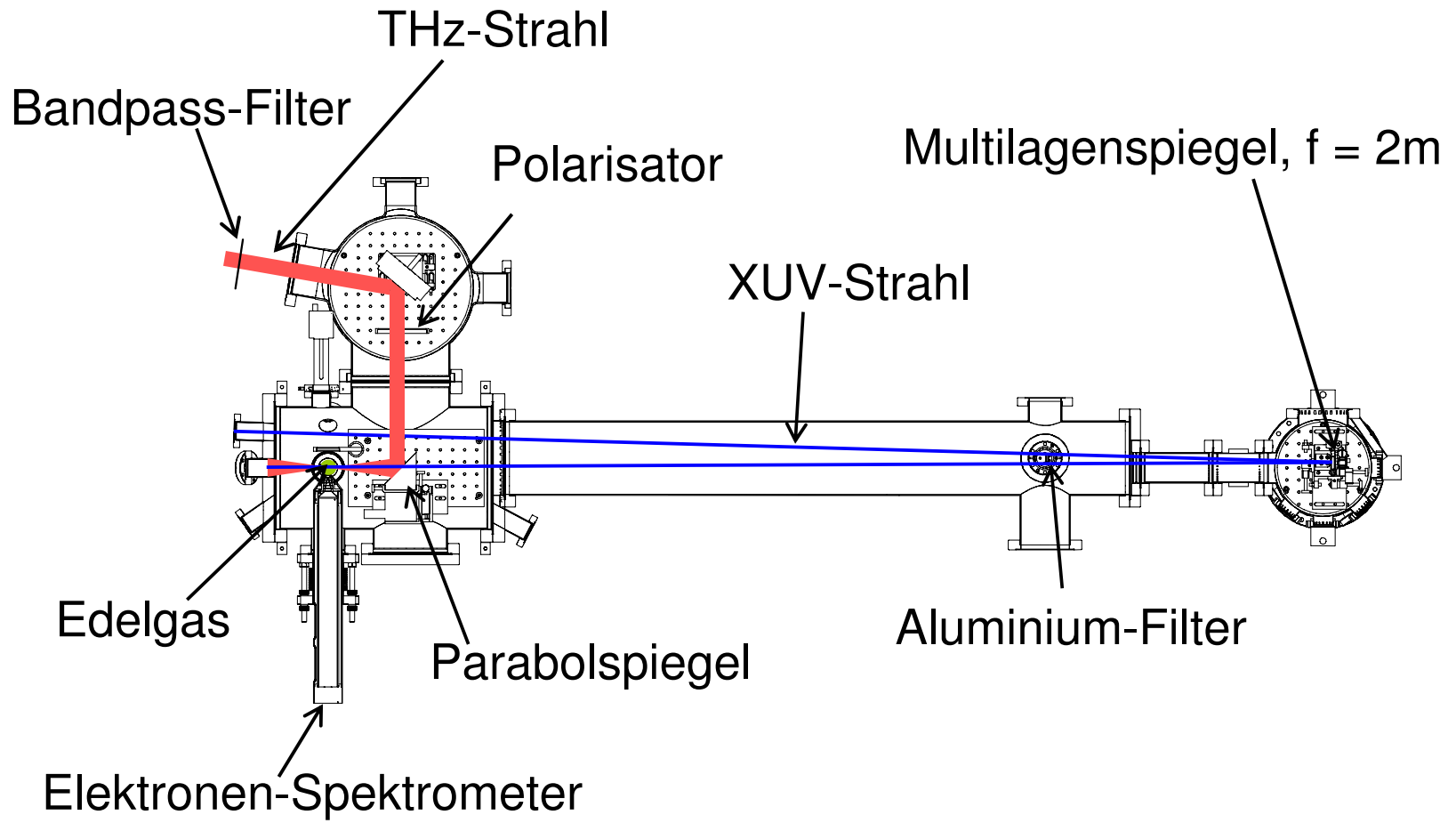


Abbildung 2: Schematische Darstellung eines Gaußstrahls [Wik].

Anhang C - Experimenteller Aufbau

Abbildung 3: Experimenteller Aufbau.



Anhang D - THz-Bandpassfilter

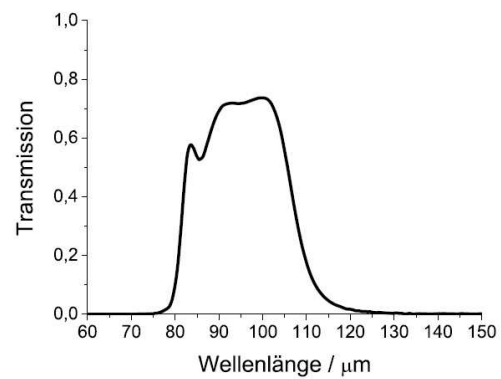


Abbildung 4: Transmission des THz-Bandpassfilters.

Literaturverzeichnis

- [Ma01] MATERLIK, G. AND TSCHENTSCHER, TH. (Hrsg.): *Tesla Technical Design Report Part V: The X-ray free electron laser*. 2001
- [A⁺02a] AYVAZYAN, V. u. a.: Generation of GW Radiation Pulses from a VUV Free-Electron Laser Operating in the Femtosecond Regime. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), S. 104802
- [A⁺02b] AYVAZYAN, V. u. a.: A new powerful source for coherent VUV radiation: Demonstration of exponential growth and saturation at the TTF free-electron laser. In: *Eur. Phys. J D* 20 (2002), S. 149–156
- [A⁺06a] ALTARELLI, M. u. a.: XFEL: The European X-Ray Free-Electron Laser. Technical Design Report. In: *Preprint Desy* (2006), Nr. 097
- [A⁺06b] ATHUR, J. u. a.: Linac Coherent Light Source (LCLS). Conceptual Design Report. In: *SLAC* (2006), Nr. R593
- [A⁺07] ACKERMANN, W. u. a.: Operation of a free-electron laser from the extreme ultraviolet to the water window. In: *Nature Photonics* 1 (2007), S. 336–342
- [A⁺09] AZIMA, A. u. a.: Time-resolved pump-probe experiments beyond the jitter limitations at FLASH. In: *Appl. Phys. Lett.* 94 (2009), S. 144102
- [B⁺] BOSTEDT, C. u. a.: Multistep Ionisation of Argon Clusters in intense femtosecond XUV pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 100, S. 133401
- [B⁺08] BARTY, A. u. a.: Ultrafast single-shot diffraction imaging of nanoscale dynamics. In: *Nature Photon.* 2 (2008), S. 415–419

- [BHH78] BOX, G.E.P. ; HUNTER, W.G. ; HUNTER, J.S.: *Statistics for Experimenters*. 1st. John Wiley and Sons, Inc., 1978
- [Boy80] BOYD, R.W.: Intuitive explanation of the phase anomaly of focused light beams. In: *J. Opt. Soc. Am.* 70 (1980), July, Nr. 7, S. 877–880
- [C⁺05] CAVALIERI, A. L. u. a.: Clocking Femtosecond X Rays. In: *Phys. Rev. Lett.* 94 (2005), S. 114801
- [Cor93] CORKUM, P.B.: Femtosecond Undulator Radiation from Sliced Electron Bunches. In: *Phys. Rev. Lett.* 71 (1993), September, S. 1994–1997
- [cxr] *The Center for X-Ray Optics at, <http://www.cxro.lbl.gov/>*
- [D⁺02] DRESCHER, M. u. a.: Time-resolved atomic inner-shell spectroscopy. In: *Nature* 419 (2002), S. 803–807
- [Dre] DRESCHER, M.: Time-Resolved ESCA: a Novel Probe for Chemical Dynamics. In: *Z. Phys. Chem.* 218, S. 1147–1168
- [E⁺] EPP, S.W. u. a.: Soft x-ray laser spectroscopy on trapped highly charged ions at FLASH. In: *Phys. Rev. Lett.* 98, S. 183001
- [F⁺01] FAATZ, B. u. a.: Development of a pump-probe facility combining a far-infrared source with laser-like characteristics and a VUV free electron laser. In: *Nucl. Instr. and Meth. A* (2001), Nr. 475, S. 363–367
- [F⁺07] FENG, J. u. a.: An x-ray streak camera with high spatio-temporal resolution. In: *Appl. Phys. Lett.* 91 (2007), S. 134102
- [FIR05] *The Infrared Undulator Project at the VUV-FEL (Proceedings of the 27th International Free Electron Laser Conference)*. Stanford, California, USA : JACoW, 2005 . – ISBN eConf C0508213
- [FW01] FENG, S. ; WINFUL, H.: Physical origin of the Gouy phase shift. In: *Optics Letters* 26 (2001), April, Nr. 8, S. 485–487
- [G⁺] GENSCHE, M. u. a.: *To be published*
- [G⁺04] GOULIELMAKIS, E. u. a.: Direct Measurement of Light Waves. In: *Science* 305 (2004), S. 1267–1269

- [G⁺08a] GAHL, C. u. a.: A femtosecond X-ray/optical cross-correlator. In: *Nature Phot.* 2 (2008), S. 165–169
- [G⁺08b] GENSCHE, M. u. a.: New infrared undulator beamline at FLASH. In: *Infrared Phys. Techn.* 51 (2008), S. 423–425
- [Geb] GEBERT, T.: *Nicht Veröffentlicht*
- [Gri] GRIMM, O.: *Nicht Veröffentlicht*
- [GSSY02] GELONI, G. ; SALDIN, E. ; SCHNEIDMILLER, E. ; YURKOV, M.: A Method for Ultrashort Electron Pulse Shape-Measurement Using Coherent Synchrotron Radiation. In: *Desy Report* (2002), Nr. 03-031
- [GSSY06] GELONI, G. ; SALDIN, E. ; SCHNEIDMILLER, E. ; YURKOV, M.: Statistical Optics Approach to the Design of Beamlines for Synchrotron Radiation. In: *Desy Report* (2006), Nr. 06-037
- [H⁺01] HENTSCHEL, M. u. a.: Attosecond metrology. In: *Nature* 414 (2001), S. 509–513
- [I⁺] ISCHEBECK, R. u. a.: Study of the transverse coherence at the TTF free electron laser. In: *Nukl. Inst. Meth. A* 507
- [I⁺02] ITATANI, J. u. a.: Attosecond Streak Camera. In: *Phys. Rev. Lett.* 88 (2002), S. 173903
- [IW98] IACONIS, C. ; WALMSLEY, I.A.: Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. In: *Optics Letters* 23 (1998), S. 792
- [K⁺04] KIENBERGER, R. u. a.: Atomic transient recorder. In: *Nature* 427 (2004), S. 817–821
- [KHK⁺06] KAHN, S. ; HOLLDAK, K. ; KACHEL, T. ; MITZNER, R. ; QUAST, T.: Femtosecond Undulator Radiation from Sliced Electron Bunches. In: *Phys. Rev. Lett.* 97 (2006), S. 074801
- [KT93] KANE, D.J. ; TREBINO, R.: Single-shot measurement of the intensity and phase of an arbitrary ultrashort pulse by using frequency resolved optical gating. In: *Optics Letters* 18 (1993), S. 823
- [L⁺08] LAMBERT, G. u. a.: Injection of harmonics generated in gas in a free-electron laser providing intense and coherent extreme-ultraviolet light. In: *Nature Phys.* 4 (2008), S. 296–300

- [Löh09] LÖHL, F.: *Optical Synchronization of a Free-Electron Laser with Femtosecond Precision*, Universität Hamburg, Diss., 2009
- [M⁺a] MITZNER, R. u. a.: *To be published*
- [M⁺b] MORISHITA, Y. u. a.: Experimental Evidence of Interatomic Coulombic DEcay from the Auger Final States in Argon Dimers. In: *Phys. Rev. Lett.* 96, S. 243402
- [M⁺c] MOSHAMMER, R. u. a.: Few-photon Multiple Ionization of Ne and Ar by Stron Fee-Electron-Laser Pulses. In: *Phys. Rev. Lett.* 98, S. 203001
- [M⁺08a] MALTEZOPOULOS, Th. u. a.: Single-shot timing measurement of extreme-ultraviolet free-electron laser pulses. In: *New. Journ. of Phys.* 10 (2008), March, S. 033026
- [M⁺08b] MITZNER, R. u. a.: Spatio - temporal coherence of free electron laser pulses in the soft x-ray regime. In: *Optics Express* 116 (2008), S. 19909–19919
- [MQ05] MAIRESSE, Y. ; QUERE, F.: Attosecond Streak Camera. In: *Phys. Rev. A* 71 (2005), S. 011401
- [PSG06] PFEIFER, T. ; SPIELMANN, C. ; GERBER, G.: Femtosecond x-ray science. In: *Rep. Prog. Phys.* 69 (2006), S. 443–505
- [Q⁺03] QUERE, F. u. a.: Attosecond Spectral Shearing Interferometry. In: *Phys. Rev. Lett.* 90 (2003), S. 073902
- [QMI05] QUERE, F. ; MAIRESSE, Y. ; ITATANI, J.: Temporal characterization of attosecond XUV fields. In: *Journal of Mod. Opt.* 52 (2005), S. 339–360
- [R⁺] RUDENKO, A. u. a.: Recoil-Ion Momentum Distributions for Two-Photon Double Ionization of He and Ne by 44 eV Free-Electron Laser Radiation. In: *Phys. Rev. Lett.* 101, S. 073003
- [S⁺] SOROKIN, A.A. u. a.: Photoelectric Effect at Ultrahigh Intensities. In: *Phys. Rev. Lett.* 99, S. 213002
- [S⁺06] SANSONE, G. u. a.: Isolated Single-Cycle Attosecond Pulses. In: *Science* 314 (2006), S. 443–446

- [S⁺08a] SHINTAKE, T. u. a.: A compact free-electron laser for generating coherent radiation in the extreme ultraviolet region. In: *Nature Phot.* 2 (2008), S. 555–559
- [S⁺08b] SINGER, A. u. a.: Transverse-Coherence Properties of the Free-Electron-Laser FLASH at DESY. In: *Phys. Rev. Lett.* 101 (2008), S. 254801
- [SC05] SHAKYA, M.M. ; CHANG, Z.: Achieving 280 fs resolution with a streak camera by reducing the deflection dispersion. In: *Appl. Phys. Lett.* 87 (2005), S. 041103
- [Sco88] SCOLES, G. (Hrsg.): *Atomic and Molecular Beam Methods*. 1st. Oxford, Great Britain : Oxford University Press, 1988
- [SDR08] SCHMÜSER, P. ; DOHLUS, M. ; ROSSBACH, J.: *Ultraviolet and Soft X-Ray Free-Electron Lasers*. 1. Auflage. Berlin Heidelberg : Springer-Verlag, 2008
- [Sie86] SIEGMAN, A.E.: *Lasers*. 1st. Sausalito, CA, USA : University Science Books, 1986
- [Sim99] *SIMION 3D, Version 7.00*. 1999
- [SSY98] SALDIN, E. L. ; SCHNEIDMILLER, E. A. ; YURKOV, M. V.: Statistical properties of radiation from VUV and X-ray free electron laser. In: *Optics Communications* 148 (1998), S. 383–403
- [ST91] SALEH, B.E.A. ; TEICH, M.C.: *Fundamentals of Photonics*. 1st. USA : John Wiley and Sons, Inc., 1991
- [T⁺08] TIEDTKE, K. u. a.: Gas detectors for x-ray lasers. In: *Journ. Appl. Phys.* 103 (2008), S. 094511
- [T⁺09] TIEDTKE, K. u. a.: The free-electron laser user facility FLASH at DESY: beamlines, diagnostics and end stations. In: *New J. of Phys.* 11 (2009), S. 023029
- [Tay88] TAYLOR, John R.: *Fehleranalyse*. 1. Auflage. Weinheim, Germany : VCH Verlagsgesellschaft mbH, 1988
- [TBH⁺06] TIEDTKE, K. ; BARGEN, N. von ; HESSE, M. ; JASTROW, U. ; HAHN, U.: The Gas Attenuator of Flash. In: *HASYLAB Annual Report* (2006), S. 201

- [TK93] TREBINO, R. ; KANE, D.J.: Using phase retrieval to measure the intensity and phase of ultrashort pulses: frequency resolved optical gating. In: *J. Opt. Soc. Am.* 10 (1993), S. 1101
- [Tre00] TREBINO, R.: *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrashort Laser Pulses*. 1st. Norwell, Massachusetts, USA : Kluwer Academic Publishers Group, 2000
- [U+05] UIBERACKER, M. u. a.: Attosecond Metrology with Controlled Light Waveforms. In: *Laser Physics* 15 (2005), S. 195–204
- [U+07] UIBERACKER, M. u. a.: Attosecond real-time observation of electron tunneling in atoms. In: *Nature* 446 (2007), Apr., S. 627–632
- [W+02] WABNITZ, H. u. a.: Multiple ionization of atom clusters by intense soft X-rays from a free-electron laser. In: *Nature* 420 (2002), S. 482–485
- [Wik] *www.wikipedia.de*
- [Wil08] WILLNER, A.: *Diplomarbeit*, Diss., 2008. – TESLA-FEL 2008-04
- [Wiz79] WIZA, J. L.: Microchannel Plate Detectors. In: *Nuclear Instruments and Methods* 162 (1979), S. 587
- [YBS05] YAKOVLEV, V.S. ; BAMMER, F. ; SCRINZI, A.: Attosecond streaking measurements. In: *Journal of Mod. Opt.* 52 (2005), S. 395–410
- [Z⁺] ZASTRAU, U. u. a.: Bremsstrahlung and line spectroscopy of warm dense aluminium plasma heated by xuv free-electron-laser radiation. In: *Phys. Rev. E*. 78, S. 066406
- [Zem] *Zemax optical Design Program*,. August 1
- [Zew] ZEWEIL, A.H.: Femtochemistry: Atomic Scale Dynamics of the Chemical Bond. In: *J. Phys. Chem. A* 104, S. 5660–5694

Abkürzungen

Abkürzung	Bezeichnung
c	Lichtgeschwindigkeit im Vakuum
e	Elementarladung
ε_0	elektrische Feldkonstante
FEL	Freier Elektronen Laser
FLASH	Freier-Elektronen-Laser in Hamburg
FWHM	Full Width Half Maximum (Volle Breite bei halber Höhe)
K	Undulatorparameter
m_e	Ruhemasse des Elektrons
THz	Terra Hertz
rms	root mean square (Standardabweichung)
U_p	Ponderomotives Potential

Danksagung

Ich habe während meiner Zeit als Doktorandin viel freundliche Unterstützung erfahren und möchte mich an dieser Stelle dafür bedanken.

Da wäre zunächst Markus Drescher zu nennen für die Bereitstellung des Themas, die gute Betreuung und die Unterstützung bei den Messungen und beim Lösen vieler Probleme.

Marek Wieland habe ich zu Danken für die stets zuverlässige und Tatkräftige Unterstützung bei den Experimentvorbereitungen und Messungen sowie für das Korrekturlesen dieser Arbeit,

Elke Plönjes für die gute Betreuung und Unterstützung während der letzten Jahre,

Michael Gensch für seinen immensen Einsatz beim Aufbau und der Inbetriebnahme der THz-Beamline und bei den Experimenten,

Thomas Gebert für die Hilfe bei der Theorie und den Simulationen, sowie für das Finden vieler Fehler,

Oliver Grimm und Arik Willner für die Hilfe bei den THz-Simulationen, Messungen und das Beantworten vieler Fragen,

Lutz Bittner und Maike Röhling für das Konstruieren sowie der Hasylab FS-BT-Gruppe für das Aufbauen der THz-Beamline unter extrem großem Zeitdruck,

Svea Kaptizki und Holger Weigelt für die Hilfe beim Aufbau und der Inbetriebnahme der THz-Beamline,

Maria Krikunova für die Umkonstruktion und den Aufbau der Tofs,

Bernd Schütte, Roland Kalms, Filip Budzyn, und Thomas Klee für die Hilfe bei den Vorbereitungen und der Durchführung der Messungen,

den Mitarbeitern der Hasylab und Uni-Hamburg Werkstätten für die gute und flexible Fertigung vieler Bauteile des Experiments,

Bart Faatz, Katja Honkavaara und Siegfried Schreiber für die Bereitstellung und Organisation der Messschichten,

Theophilos Maltezopoulos, Roland Kalms, Christian Sager und Francesca Curbis für den Spaß im Büro,

den Mitgliedern der FLASH-Photoendagnostik- und der Uni-HH-Dynamix-

Arbeitsgruppe für die Gute Atmosphäre und Hilfsbereitschaft
sowie meinen Freunden, meiner Familie und Martin für die Unterstützung
in den letzten Jahren.

Selbständigkeitserklärung

Diese Arbeit ist von mir selbstständig verfasst worden, und ich habe keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet.

Ulrike Frühling, Juni 2009