

**Fakultät für Physik und Astronomie
Universität Heidelberg**

Bachelorarbeit im Fach Physik
vorgelegt von

Faiq Bakar

geboren in Mannheim

August 2014

**Design eines Breitband-XUV
Gitterspektrometers und numerische
Simulationen zur multidimensionalen
XUV-Spektroskopie**

Diese Bachelorarbeit wurde ausgeführt am
Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg
unter der Betreuung von
Herrn Dr. Thomas Pfeifer

Zusammenfassung

Die multidimensionale Spektroskopie ermöglicht die zeitaufgelöste Untersuchung von quantenmechanischen Übergängen in Atomen und Molekülen. In dieser Arbeit wurde für ein Experiment zur multidimensionalen Spektroskopie ein Breitband-XUV Gitterspektrometer entworfen. Dabei wurde die räumliche Position der Foki, der an einem Reflexionsgitter gebeugten Strahlung, bestimmt. Diese Berechnungen dienen als Grundlage für den Aufbau eines Detektorsystems für simultane spektrale Messungen von Pulsen im extrem-ultravioletten (XUV) Bereich unmittelbar bevor und nachdem sie mit Atomen gewechselwirkt haben.

Im zweiten Abschnitt dieser Arbeit wurde eine quantenmechanische Simulation zur multidimensionalen Spektroskopie auf der Basis der eindimensionalen, zeitabhängigen Schrödingergleichung durchgeführt. Dabei wurden drei breitbandige XUV-Pulse jeweils zeitlich gegeneinander verschoben und die Wechselwirkung mit einem Ein-Elektron-Atom in Abhängigkeit der beiden relativen zeitlichen Pulsversätze untersucht. Die Simulationsergebnisse wurden mittels der Fouriertransformation entlang der beiden Zeitversatz-Dimensionen ausgewertet. Schließlich wurde auch die rein optische Interferenz der Drei-Puls-Sequenz berechnet und den quantenmechanischen Simulationen gegenübergestellt.

Abstract

Multidimensional spectroscopy allows the time-resolved investigation of quantum-mechanical transitions in atoms and molecules. In this work, a broadband XUV grating spectrometer was designed for a multidimensional spectroscopy experiment. In this case, the position of the foci of the diffracted radiation from a reflection grating is determined. These calculations are used as a basis for the construction of a detector system for simultaneous spectral measurements of pulses in the extreme ultraviolet (XUV) region immediately before and after their interaction with atoms.

In the second part of this study, a quantum-mechanical simulation of multidimensional spectroscopy was performed on the basis of the one-dimensional, time-dependent Schrödinger equation. Three broadband XUV pulses were shifted with respect to one another and the interaction with a one-electron atom as a function of the relative time delays was examined. The simulation results were evaluated by means of a Fourier transformation along the two time-delay dimensions. Finally, the optical interference of the three-pulse sequence was calculated and compared to the quantum-mechanical simulations.

Inhaltsverzeichnis

1. Einleitung	1
2. Grundlagen	3
2.1. Schrödingergleichung	3
2.2. Laserpuls	4
2.3. Atom-Licht-Wechselwirkung	5
2.4. Absorptionsspektroskopie	6
2.4.1. Lambert-beersches Gesetz	6
2.4.2. Absorptionskoeffizient	6
2.5. Experimenteller Aufbau für Absorptionsexperimente mit breitbandigen XUV Pulsen	8
2.5.1. Aufbau	8
2.5.2. Toroidalspiegel	9
2.5.3. Vier-Quadranten Spiegel	10
2.5.4. Reflexionsgitter	11
3. Design eines Breitband-XUV Gitterspektrometers	13
3.1. Berechnung der räumlichen Position der Foki beliebiger Wellenlängen	13
3.1.1. Konstruktion des optischen Systems nach den Prinzipien der geometrischen Optik	13
3.1.2. Ergebnisse	18
3.2. Simulationen mittels eines Ray-Tracing Codes	21
3.2.1. Optische Parameter und Auswertemethode	21
3.2.2. Simulationsergebnisse für verschiedene Kamerapositionen	22
4. Simulationen zur Multidimensionalen Spektroskopie mit XUV Pulsen	25
4.1. Umsetzung in LabView	25
4.1.1. Softcore Coulomb Potential	25
4.1.2. Split-Step-Operator Methode	27
4.1.3. Numerische Bestimmung des Absorptionskoeffizienten $\sigma(\omega)$	28
4.1.4. Multidimensionale Spektroskopie	29
4.2. Time-Delay Scan mit zwei dynamischen Pulsen	30
4.3. Simulationsergebnisse	31
4.4. Optische Interferenz von drei superpositionierten XUV-Pulsen .	33
5. Schlussfolgerungen und Ausblick	37
A. Anhang	39
A.1. Tabellen zur Fokusberechnung für verschiedene Gitter	39

Inhaltsverzeichnis

A.2. Nebenrechnungen zur Bestimmung der Foki	43
A.2.1. Berechnung von γ und d	43
A.2.2. Berechnung von δ , ϵ und j	44
A.2.3. Berechnung von x , y und z	44

1. Einleitung

Eine der bedeutendsten Errungenschaften im 20. Jahrhundert war die Entwicklung der Quantenmechanik, die zur Beschreibung der Materie und ihren Eigenschaften im Größenbereich der Atome dient. Möchte man nun die Dynamik von Elektronen auf atomarer Ebene untersuchen, so kommt man zu der Erkenntnis, dass man Experimente im zeitlichen Bereich von Attosekunden ($1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$) (nach dem Bohrschen Atommodell) durchzuführen hat [8].

Dabei eignen sich gepulste Laser wegen ihrer hohen Leistung und der hohen Kohärenz besonders gut für Experimente an Atomen und Molekülen. Hierbei ist es möglich mit Hilfe eines Titan-Saphir-Lasers beispielsweise Pulslängen im Bereich von Femtosekunden zu erreichen [9]. Die Erzeugung von hohen Harmonischen (HHG) ermöglicht die Verfügbarkeit von ultrakurzen Pulsen auf einer Zeitskala von einigen hundert Attosekunden im extrem ultravioletten (XUV) Spektralbereich. Die Kombination aus XUV-Attosekunden- und intensiven Nahinfrarot(NIR)-Femtosekunden-Pulsen eröffnete ein breites Feld an Anwendungen, das von der zeitaufgelösten Betrachtung von Elektronenbewegungen auf den inneren Schalen von Atomen über die Untersuchung der Dynamik von Molekülen bis hin zur Untersuchung ihrer Bindungen reicht [13].

Eine Methode die Kopplungen zwischen quantenmechanischen Übergängen zeitaufgelöst zu betrachten, ist die multidimensionale Spektroskopie. Hierbei wird mit zwei Pulsen, die einen variablen Zeitversatz haben, das zu untersuchende System angeregt und anschließend mit einem dritten Puls, der ebenfalls einen variablen Zeitversatz hat, abgefragt. Durch Betrachtung der Fouriertransformation entlang beider Zeitversätze können Aussagen über Kopplungen zwischen den Zuständen getroffen werden. Beim geplanten experimentellen Aufbau, der drei Pulse zeitlich gegeneinander verschieben kann, wird ein Vier-Quadrantenspiegel verwendet, der aus einem Puls vier zeitlich variierbare Pulse erzeugt. Dabei wird die Verwendung von einer Kombination aus zwei XUV und zwei NIR-Pulsen, sowie auch die Verwendung von vier XUV-Pulsen möglich sein. Während drei Pulse für die Anregung und die Abfrage verwendet werden, benötigt man den vierten Puls für die sogenannte heterodyne Detektionstechnik. Dabei interferiert die Dipolemission der Probe mit dem Referenzpuls räumlich und zeitlich, was Informationen über die Phase im zu untersuchenden Quantensystem liefert.

In dieser Arbeit wird ein wasserstoffähnliches Modellatom untersucht, das mit Laserpulsen im Femto (NIR)- und im Attosekundenbereich (XUV) wechselwirkt. Im Wesentlichen wird die Dynamik und das Verhalten der quantenmechanischen Zustände des Modellatoms simuliert. Dabei stehen die resonanten Dipolkopplungen zwischen verschiedenen Zuständen des Quantensystems im Fokus. Diese

1. Einleitung

Simulation dient als erste theoretische Studie für ein geplantes entsprechendes Experiment, bei dem anfangs einfache Edelgase und letztendlich auch komplexere Moleküle untersucht werden sollen. Dabei wird der Aufbau sowohl an der HHG-Quelle am Max-Planck-Institut für Kernphysik, als auch am Freien Elektronen Laser (FLASH) in Hamburg zum Einsatz kommen.

Ein weiterer Teil dieser Arbeit beinhaltet die Planung eines Spektrometers zur simultanen Detektion der Dipolemission der Targetatome und des Vakuum-HHG-Spektrums, das nicht mit den Targetatomen gewechselwirkt hat. Im Falle von extrem ultravioletter (XUV) Strahlung, ist die Reproduzierbarkeit der spektralen Struktur hauptsächlich wegen der Nichtlinearität des Erzeugungsprozesses nicht vollständig gewährleistet. Zwei unabhängig voneinander erzeugte HHG-Spektren fluktuieren in der Größenordnung von ungefähr 15 % in der spektralen Intensität [4]. Aus diesem Grund ist die gleichzeitige Messung der Intensität vor und nach dem Target von Bedeutung.

Die physikalischen Grundlagen und der geplante experimentelle Aufbau werden im Kapitel 2 dieser Arbeit erläutert. Die Bestimmung der Platzierung der CCD-Kamera zur Detektion des Referenzsignals wird in Kapitel 3 behandelt. In Kapitel 4 werden das Computereperiment und das numerische Modell eines Ein-Elektron Atoms beschrieben. Darüber hinaus werden in diesem Kapitel die Simulationsergebnisse sowohl für 3 XUV-Attosekundenpulse, als auch für die rein optische spektrale Interferenz von 3 XUV-Attosekundenpulsen erörtert.

In der Arbeit werden zum einen atomare Einheiten (a.u.), zum anderen SI-Einheiten verwendet. Bei den a.u. gilt $e = \hbar = m_e = 1$ und $c = \frac{1}{\alpha} = \frac{1}{137}$ (α ist die Feinstrukturkonstante). Einer atomaren Zeiteinheit entsprechen in SI Einheiten: 24.188 as (atto: 10^{18}) und einer atomaren Einheit in der Energie entsprechen 27.211 eV.

2. Grundlagen

In diesem Kapitel werden die elementaren Begriffe und Definitionen erläutert, welche für die Überlegungen und Interpretationen in dieser Arbeit notwendig sind. Auf diese Weise sollen auch die wesentlichen physikalischen Grundlagen zusammengefasst werden.

2.1. Schrödingergleichung

Die Schrödingergleichung ist eine Differentialgleichung, welche die zeitliche Entwicklung von quantenmechanischen Zuständen beschreibt. In der Gleichung tritt der Energieoperator \mathcal{H} (Hamiltonoperator) auf, welcher die Zeitentwicklung und die möglichen Energieeigenwerte bestimmt:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(t) = \mathcal{H}\psi(t), \quad (2.1)$$

mit der imaginären Einheit i und dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum \hbar .

Für zeitunabhängige Hamiltonoperatoren besitzen die Lösungen der Schrödingergleichung im stationären Fall die Form:

$$\mathcal{H}\psi_n = E\psi_n. \quad (2.2)$$

Diese Eigenwertgleichung bestimmt die Eigenvektoren ψ_n des Hamiltonoperators wobei die Eigenwerte E die zugehörigen Energien sind. Je nach betrachtetem System kann das Energiespektrum diskrete oder kontinuierliche Eigenenergien besitzen. Das Wasserstoffatom hat zum Beispiel ein diskretes, nach unten beschränktes Spektrum und darüber ein Kontinuum möglicher Energien.

Eine analytische Lösung für die zeitliche Veränderung eines Zustands kann mit folgendem Ausdruck berechnet werden:

$$\psi(t) = e^{-i \int_{t_0}^t \mathcal{H} dt'} \psi(t_0), \quad (2.3)$$

$$= e^{-i \int_{t_0}^t \mathcal{H}_x + \mathcal{H}_p dt'} \psi(t_0). \quad (2.4)$$

Diese Relation gilt im Allgemeinen für zeitunabhängige Hamiltonians oder kleine Intervalle $[t_0, t]$, für die der Hamiltonian noch als zeitlich konstant angesehen werden kann. Dabei wird ein Anfangszustand zur Zeit t_0 in einen Zustand zur Zeit t überführt. Der Ausdruck $\exp(-i \int_{t_0}^t \mathcal{H} dt')$ wird Zeitentwicklungsoperator

2. Grundlagen

genannt. Den Hamiltonoperator kann man in einen potentiellen $\mathcal{H}(x)$ und einen kinetischen $\mathcal{H}(p)$ Anteil zerlegen, wobei der potentielle Teil in der Basis der Ortseigenvektoren und der kinetische Anteil in der Basis der Impulseigenvektoren dargestellt wird.

Dies bewirkt folgenden Zusammenhang zwischen den Orts- und Impulsoperatoren und den jeweiligen Zustandsfunktionen:

$$\hat{x}\psi(x, t) = x\psi(x, t), \quad \hat{x}\psi(p, t) = i\partial_p\psi(p, t), \quad (2.5)$$

$$\hat{p}\psi(x, t) = \frac{\partial_x}{i}\psi(x, t), \quad \hat{p}\psi(p, t) = p\psi(p, t). \quad (2.6)$$

Um zwischen den verschiedenen Koordinatendarstellungen wechseln zu können, wird eine Fouriertransformation durchgeführt. Dabei kann durch eine Umkehrung der Transformation die ursprüngliche Darstellung erreicht werden:

$$\psi(p, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \psi(x, t) \frac{1}{\sqrt{2\pi\hbar}} e^{\frac{i}{\hbar}p \cdot x} dx, \quad (2.7)$$

$$\psi(x, t) = \int_{-\infty}^{\infty} \psi(p, t) \frac{1}{\sqrt{2\pi\hbar}} e^{-\frac{i}{\hbar}p \cdot x} dp. \quad (2.8)$$

Dabei ist zu beachten, dass die Wellenfunktionen in beiden Basisdarstellungen normiert sind, d.h.:

$$\int_{-\infty}^{\infty} \|\psi(x, t)\|^2 dx = 1, \quad (2.9)$$

$$\int_{-\infty}^{\infty} \|\psi(p, t)\|^2 dp = 1. \quad (2.10)$$

2.2. Laserpuls

Elektrische Felder sind reelle Größen, jedoch rechnet man manchmal mit ihrer komplexen Darstellung, was in dieser Arbeit der Fall ist. Die betrachteten Laserpulse sind linear polarisiert und breiten sich mit einer harmonischen Zeitabhängigkeit aus. Sie werden folgendermaßen beschrieben:

$$\vec{E}(t) = \vec{E}_0 \cdot e^{i\omega t} \cdot e^{-\frac{t}{\tau_e}}. \quad (2.11)$$

Die Amplitude des elektrischen Feldes wird mit E_0 bezeichnet. Der Puls hat eine gaussförmige einhüllende Funktion, die mit dem Ausdruck $e^{-\frac{t}{\tau_e}}$ beschrieben wird. Die Intensität I des Feldes ist definiert als das Betragsquadrat der Pulsfunktion ($I = \|\vec{E}(t)\|^2$). Ihre Halbwertsbreite (FWHM) definiert die Pulsdauer

τ_{Puls} . Durch komplexe Fouriertransformation lässt sich ein Basiswechsel in die Frequenzdarstellung durchführen. Dabei gibt $\|\vec{E}(\omega)\|^2$ die spektrale Intensität an und die zugehörige Halbwertsbreite wird als $\Delta\omega$ bezeichnet.

2.3. Atom-Licht-Wechselwirkung

Die Wechselwirkung eines Atoms mit einem Laserfeld wird durch den Hamiltonoperator \mathcal{H}_L beschrieben:

$$\mathcal{H}_L = \frac{1}{2} \left[\hat{p} + \vec{A}(\hat{x}, t) \right]^2 + \Phi(\hat{x}, t) + V(\hat{x}). \quad (2.12)$$

Wobei mit $V(\hat{x})$ das Coulombpotential des Atoms gemeint ist. Das Vektorpotential $\vec{A}(\hat{x}, t)$ und das skalare Potential $\Phi(\hat{x}, t)$ sind abhängig vom eingestrahlenen Laser. Dabei gelten für das elektromagnetische Feld folgende Relationen:

$$E(\hat{x}, t) = -\vec{\nabla}\Phi(\hat{x}, t) - \partial_t \vec{A}(\hat{x}, t), \quad (2.13)$$

$$B(\hat{x}, t) = \vec{\nabla} \times \vec{A}(\hat{x}, t). \quad (2.14)$$

Bei dem in dieser Arbeit verwendeten Modell handelt es sich um ein, sich an einem Ort x_0 befindliches Atom. Das Laserfeld ist quellenfrei und wird als ebene elektromagnetische Welle beschrieben. Des Weiteren kann das Laserfeld als homogen angesehen werden, da die Wellenlänge des Laserfeldes deutlich größer ist als die atomare Längenskala. Betrachtet man Elektronen weit unterhalb der Lichtgeschwindigkeit, so kann man die Dipolnäherung anwenden. Damit kann die Ortsabhängigkeit des Vektorpotentials vernachlässigt werden und die magnetische Feldstärke verschwindet. Der Hamiltonoperator \mathcal{H}_L lässt sich somit folgendermaßen nähern:

$$\mathcal{H}_L = \frac{1}{2} \hat{p}^2 + \hat{p} \cdot \vec{A}(t) + \frac{1}{2} \vec{A}(t)^2 + V(\hat{x}). \quad (2.15)$$

Der quadratische Term $\frac{1}{2} \vec{A}(t)^2$ kann hierbei vernachlässigt werden, da er in der Zeitentwicklung des Systems zu einem globalen Phasenfaktor führt. Um das Vektorpotential zu erhalten, muss wegen Gleichung 2.13 folgende Integration durchgeführt werden: $\vec{A}(t) = - \int_{-\infty}^t E(t') dt'$. Der Hamiltonoperator kann in einen Teil in der Ortsdarstellung und in einen Teil in der Impulsdarstellung getrennt werden, was für die numerische Lösung der Schrödingergleichung sinnvoll ist (vgl. Kapitel 4.1.2).

$$\mathcal{H}_{L,x} = V(\hat{x}) \quad (2.16)$$

$$\mathcal{H}_{L,p} = \frac{1}{2} \hat{p}^2 + \hat{p} \cdot A(t) \quad (2.17)$$

2.4. Absorptionsspektroskopie

2.4.1. Lambert-beersches Gesetz

Wird Licht beim Durchgang durch ein Medium absorbiert, so kann dies durch das Lambert-Beersche Gesetz beschrieben werden [3]:

$$I(\omega, d) = I_0(\omega) \cdot e^{-\alpha(\omega) \cdot d}. \quad (2.18)$$

Dabei bezeichnet d die Dicke des Mediums, I_0 die Intensität der Strahlung vor dem Material und I die Intensität nach dem Durchgang durch die Probe. Der Absorptionskoeffizient α beschreibt die gesamte in einem Probenvolumen gespeicherte Energie und ist deshalb abhängig von der Stoffmengenkonzentration ϱ der absorbierenden Substanz. Dies führt zu folgendem Zusammenhang mit dem Absorptionsquerschnitt σ :

$$\alpha(\omega) = \varrho \cdot \sigma(\omega). \quad (2.19)$$

Misst man nun die Intensitäten I und I_0 , die Dicke d und die Stoffmengenkonzentration ϱ so erhält man den Absorptionskoeffizienten σ :

$$\sigma(\omega) = \ln \left(\frac{I_0(\omega)}{I(\omega)} \right) \cdot \frac{1}{\varrho \cdot d}. \quad (2.20)$$

Folglich ist eine Kenntnis von I_0 wichtig, um σ zu bestimmen. Geht man, wie bei klassischen Absorptionsexperimenten, von stabilen und reproduzierbaren Laserpulsen aus, so können die Größen I und I_0 mit und ohne Probe nacheinander aufgezeichnet werden. Im Falle von extrem ultravioletter (XUV) Strahlung, gewonnen durch Erzeugung hoher Harmonischer (engl. High-Harmonic Generation, HHG), ist allerdings die Reproduzierbarkeit hauptsächlich wegen der Nichtlinearität des Erzeugungsprozesses aus technischen Gründen der Laserstabilität oft nicht gewährleistet. Zwei unabhängig voneinander erzeugte HHG-Spektren fluktuieren in der Größenordnung von ungefähr 15 % in der spektralen Intensität [4]. Aus diesem Grund ist das simultane Messen der beiden Größen I und I_0 in den hier dargestellten Experimenten ein erwünschtes Ziel, um die Absorption nach Gleichung 2.20 ohne 'unphysikalische' Strukturen durch HHG-Fluktuationen bestimmen zu können. Eine Möglichkeit die Referenzintensität zu messen, wird in dieser Arbeit durch die Messung der +1. Beugungsordnung eines Gitters vor der Wechselwirkungsregion aufgezeigt. Dabei wird ein Teil des Pulses auf ein Reflexionsgitter gelenkt und anschließend wird die +1. Ordnung der Beugung mit einer räumlich auflösenden CCD-Kamera gemessen. Dieses Reflexionsgitter muss unter streifendem Einfall platziert werden, da die XUV-Strahlung sonst absorbiert werden würde.

2.4.2. Absorptionskoeffizient

Die Wechselwirkung zwischen einem Strahlungsfeld und einem Atom wird klassisch durch die induzierte Verschiebung \vec{r} der elektrischen Ladung e bezüglich der

Kernladung beschrieben. Diese Verschiebung bezeichnet man als Dipolmoment $\vec{\mu} = e \cdot \vec{r}$. Makroskopisch wird μ durch die Ladungsverteilung $\rho(\vec{r})$ beschrieben:

$$\mu = \int_V \vec{r} \cdot \rho(\vec{r}) dV. \quad (2.21)$$

Die Polarisation \vec{P} ist definiert als $\vec{P} = \frac{\vec{\mu}}{V} = \langle \vec{\mu} \rangle \cdot \rho(\vec{r})$, mit dem mittleren Dipolmoment $\langle \vec{\mu} \rangle$. In einem homogenen, linearen, isotropen und dielektrischen Medium ist die Polarisation parallel und proportional zum elektrischen Feld \vec{E} :

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \cdot \chi \cdot \vec{E}, \quad (2.22)$$

wobei χ die elektrische Suszeptibilität des Mediums ist. Aufgrund der Tatsache, dass die Simulationen in einer Dimension durchgeführt werden, können diese Größen von nun an als skalar betrachtet werden. Hieraus folgt die Gleichung:

$$\chi = \frac{\langle \mu \rangle \cdot \rho}{E \cdot \varepsilon_0}. \quad (2.23)$$

Die Suszeptibilität χ ist eine komplexe Größe. Es gilt also $\chi = \text{Re}(\chi) + i \text{Im}(\chi)$. Des weiteren gilt für den Brechungsindex $n(\omega) = \sqrt{1 + \chi(\omega)}$ und hieraus folgt die Beziehung für die komplexe Wellenzahl k :

$$k(\omega) = \frac{\omega}{c} \cdot \sqrt{1 + \chi(\omega)} \simeq \frac{\omega}{c} \cdot \left(1 + \frac{\text{Re}(\chi)}{2} + \frac{i \text{Im}(\chi)}{2} \right). \quad (2.24)$$

Für eine in einem Medium propagierende Welle beschreibt der Realteil der Gleichung 2.24 die Dispersion und zweimal der Imaginärteil die Absorption. Die Näherung in Gleichung 2.24 kann für $\chi \ll 1$ durchgeführt werden, was für verdünnte Gase als experimentelle Probe gerechtfertigt ist. Hieraus folgt für den Absorptionskoeffizienten σ :

$$\sigma(\omega) = \frac{\omega}{\rho \cdot c} \cdot \text{Im}(\chi) = \frac{\omega}{\varepsilon_0 \cdot c} \text{Im} \left(\frac{\langle \mu(\omega) \rangle}{E(\omega)} \right). \quad (2.25)$$

Mithilfe dieser Gleichung lässt sich durch eine numerische Simulation, die in Kapitel 4.1 beschrieben wird, der Absorptionskoeffizient berechnen.

2.5. Experimenteller Aufbau für Absorptionsexperimente mit breitbandigen XUV Pulsen

Der experimentelle Aufbau zur zeitaufgelösten Absorptionsspektroskopie, bei dem es möglich ist vier breitbandige XUV-Pulse zeitlich gegeneinander zu versetzen, wird in diesem Kapitel vorgestellt.

2.5.1. Aufbau

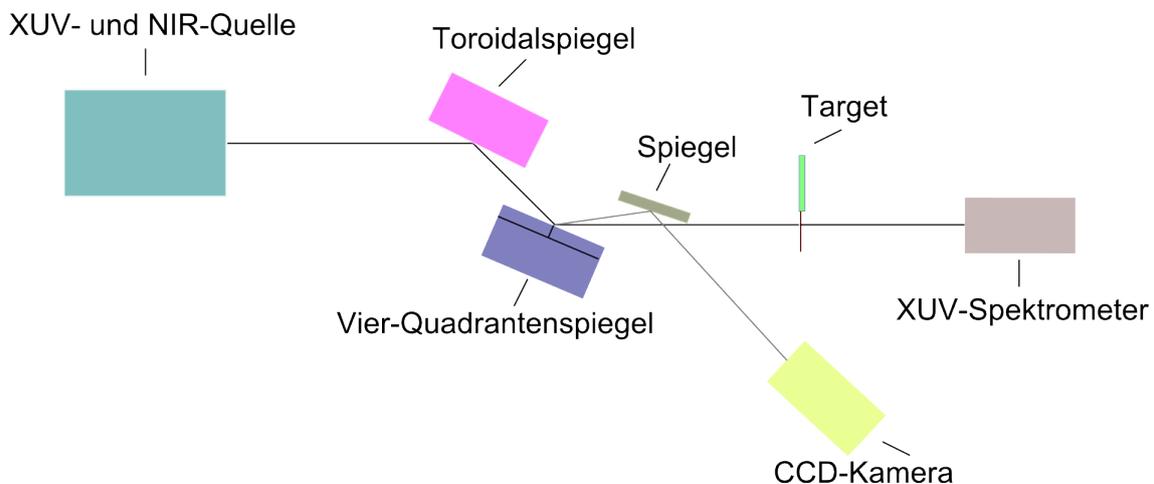


Abbildung 2.1.: Schematische Darstellung des Experiments. Die durch NIR-Strahlung verursachten breitbandigen XUV-Pulse werden durch einen Toroidalspiegel fokussiert. Anschließend wird der Strahl durch einen Vier-Quadrantenspiegel in vier zueinander zeitversetzte Strahlen getrennt. Auf einem Quadranten ist ein Gitter angebracht. Die Messung der Referenz wird durch das Abgreifen der +1. Beugungsordnung durch den Spiegel und die CCD-Kamera erreicht. Das XUV-Spektrometer registriert die Intensität der Strahlung nach Passieren des Targets.

In Abbildung 2.1 ist der schematische Aufbau des Experiments dargestellt. Nach der Erzeugung hoher Harmonischer werden die NIR- und XUV-Strahlung mithilfe eines Toroidalspiegels (in Abschnitt 2.5.2 erläutert) fokussiert. Anschließend wird die Strahlung durch Anbringen eines Vier-Quadrantenspiegels (siehe Abschnitt 2.5.3) in vier zueinander zeitversetzte Pulse getrennt. Die +1. Beugungsordnung, die durch ein an einem Quadranten angebrachtes Gitter (die Funktionsweise eines Gitters ist in Abschnitt 2.5.4 beschrieben) verursacht wird, registriert man anschließend durch einen rotierbaren Spiegel und eine CCD-Kamera. Ein weiteres XUV-Spektrometer ist hinter dem Target aufgebaut, um die Intensität der Strahlung, die das Target passiert, zu detektieren.

2.5.2. Toroidalspiegel

Einen Torus erhält man, wenn man einen Kreis mit Radius R_{sag} um eine Rotationsachse z im Abstand R_{tan} rotiert, er hat die Form eines Rettungsrings. Aus einem Stück der Außenhülle eines Torus wird ein Toroidalspiegel hergestellt. Ein Toroidalspiegel hat daher auch zwei Krümmungsradien. Einen großen Radius R_{tan} in der Ebene der optischen Achse und einen kleineren R_{sag} in der Ebene senkrecht dazu. Man unterscheidet beim Strahlverlauf zwischen sagittaler und tangentialer Ebene. In Abbildung 2.2 erkennt man die schematische Darstellung eines Toroidalspiegels und diese zwei Ebenen. In der Tangentialebene, in der das tangentiale Strahlenbündel (rotes Bündel) liegt, sind auch die optische Achse und der Hauptstrahl vorhanden. Die Sagittalebene liegt senkrecht dazu.

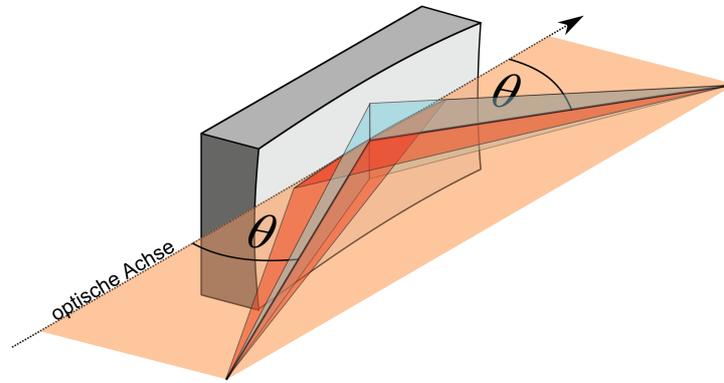


Abbildung 2.2.: Schematische Darstellung eines Toroidalspiegels. Ein Strahlenbündel trifft unter einem mittleren Winkel θ die Spiegelfläche und wird fokussiert. Das blaue Strahlenbündel stellt den sagittalen Anteil und das rote den tangentialen Anteil dar. Abbildung entnommen aus [12].

Die Krümmungsradien des Toroidalspiegels R_{tan} und R_{sag} definieren die Fokusweite in der entsprechenden Ebene. Eine optimale Fokussierung erhält man durch Gleichsetzen beider Foki, also $f_{tan} = f_{sag}$. Das gewählte Verhältnis $\frac{R_{tan}}{R_{sag}}$ definiert den Einfallswinkel θ wie folgt (siehe [12]):

$$\frac{R_{tan}}{R_{sag}} = \frac{1}{\sin^2(\theta)} \quad (2.26)$$

Unterscheidet sich der Einfallswinkel so, dass nicht mehr das Verhältnis $\frac{R_{tan}}{R_{sag}}$ eingehalten wird, haben tangentiales und sagittales Strahlenbündel unterschiedliche Brennweiten und man spricht in diesem Fall von einem Astigmatismus. Im geplanten Aufbau wird ein Toroidalspiegel mit den Parametern: $R_{tan} = -270.469$ cm; $R_{sag} = -18.17$ cm; $\theta = 15^\circ$ und $f_{tan} = f_{sag} = 35$ cm verwendet. Um eine 1:1 Abbildung zu erreichen, sind die Gegenstandsweite g und Bildweite b folgendermaßen definiert: $b = g = 2f = 70$ cm. Eine 2f-2f Abbildungsgeometrie verspricht bei steifendem Einfall größere Toleranzen der Winkeleinstellung des

2. Grundlagen

Spiegels gegenüber Abbildungsfehlern [7], weshalb sie bevorzugt wird.

2.5.3. Vier-Quadranten Spiegel

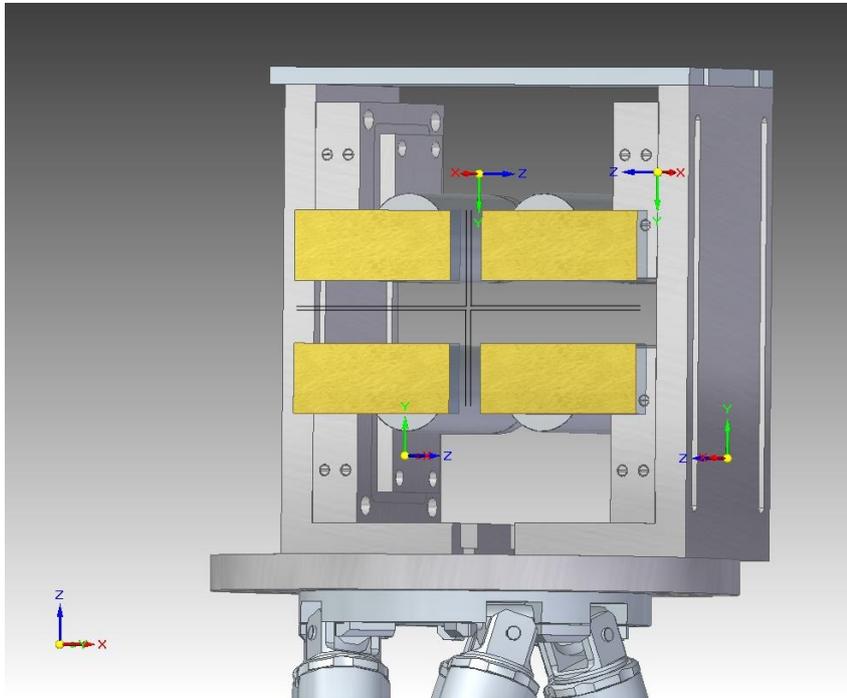


Abbildung 2.3.: Darstellung des Vier-Quadrantenspiegels in vorläufiger Form. Die Aufhängungen der einzelnen Spiegelquadranten können entlang der Langlöcher in alle Raumrichtungen verschoben werden. Während des Experiments werden die Spiegelsegmente unmittelbar nebeneinander positioniert sein (in der Zeichnung mit durchgezogenen Linien dargestellt). Drei Spiegel, die jeweils piezoelektrisch gekippt und verfahren werden können, verursachen den Zeitversatz der Pulse. Auf einem Spiegel wird ein Gitter angebracht, um die +1. Ordnung als Referenz abzugreifen, während die 0. Ordnung als Referenzpuls genutzt wird.

Nachdem die NIR- und XUV-Strahlung durch den Toroidalspiegel fokussiert wird, wird mithilfe eines Vier-Quadrantenspiegels der ursprüngliche Strahl in vier Teilstrahlen aufgeteilt und durch das Verfahren der einzelnen Spiegel zeitlich versetzt. Drei dieser Spiegel werden deshalb piezoelektrisch gekippt und verfahren. Durch das Verfahren erhalten die Strahlen einen Zeitversatz und durch das Kippen werden diese Strahlen räumlich überlagert. Diese drei Strahlen sind von physikalischer Bedeutung. Zwei Pulse regen die Probe an und der dritte Puls fragt die Probe ab. Der vierte Strahl wird zur heterodyn Detektion verwendet, wodurch man die Phase der Dipolantwort erhält. Darüber hinaus wird auf diesem Spiegel ein Gitter angebracht, um die +1. Ordnung als Referenz zu detektieren.

2.5.4. Reflexionsgitter

Ein optisches Gitter dient zur räumlichen Trennung spektraler Anteile von Strahlung. Dies wird durch Beugung und anschließender Interferenz der entstandenen Wellenfronten erreicht. Dadurch entstehen Orte maximaler Intensität (konstruktive Interferenz der entstandenen Wellenfronten). Diese Orte sind abhängig von der Wellenlänge des einfallenden Strahlenbündels, weshalb man eine örtliche Separierung der einzelnen Wellenlängen erreicht. Man unterscheidet im allgemeinen zwischen Transmissions- und Reflexionsgittern. Reflexionsgitter bestehen dabei aus periodischen Furchen auf einer reflektierenden Fläche.

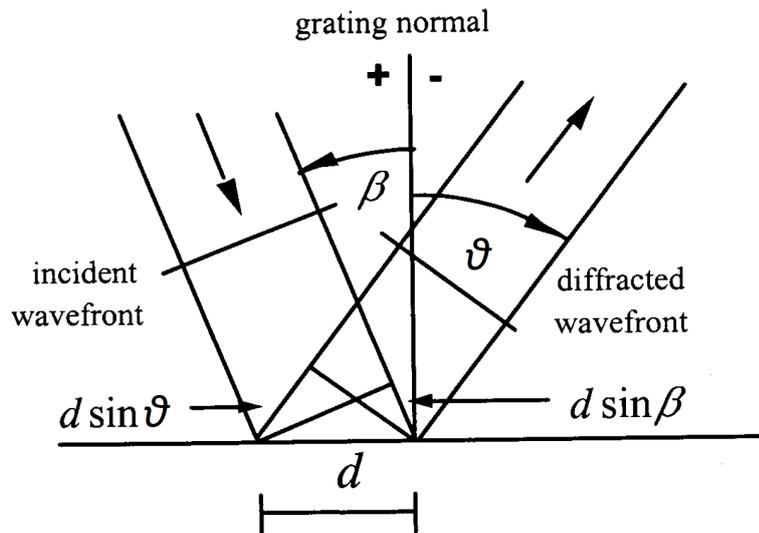


Abbildung 2.4.: Darstellung eines Reflexionsgitters zur Illustration der Gittergleichung. Abbildung entnommen aus [5], wobei die Winkel undefiniert wurden.

In Abbildung 2.4 ist ein Reflexionsgitter dargestellt. Die Gittergleichung (eine Herleitung findet sich in [13] und in [5]) ist durch Gleichung 2.27 beschrieben:

$$m \cdot \lambda = d (\sin(\beta) + \sin(\vartheta)). \quad (2.27)$$

Dabei ist β der Einfallswinkel und ϑ der Ausfallswinkel. Die Gitterkonstante d ist definiert als Abstand zwischen zwei Furchen und m ist die Beugungsordnung. Der Winkel ϑ nimmt negative Werte an, wenn er nicht auf der selben Seite der Gitternormalen wie β gezeichnet ist, ansonsten nimmt er positive Werte an (siehe [13]). In dieser Arbeit ist der Term $d \cdot \sin(\vartheta)$ also negativ. Hieraus folgt die für diese Arbeit wichtige Gleichung:

$$\vartheta = \arcsin \left(\frac{m \cdot \lambda}{d} - \sin(\beta) \right) \quad \text{mit } \vartheta < 0 \quad (2.28)$$

3. Design eines Breitband-XUV Gitterspektrometers

In diesem Kapitel wird sowohl anhand geometrischer Überlegungen, als auch mithilfe eines Ray-Tracing-Programms der Strahlengang einer Punktquelle nachgestellt. Zunächst wird ein geometrisches Modell vorgestellt und erläutert, woraufhin die Ergebnisse des selbigen dargelegt werden. Anschließend wird mithilfe dieser Ergebnisse ein Ray-Tracing-Programm verwendet, um mögliche CCD-Kamerapositionen für die Detektion der 1. Beugungsordnung zu evaluieren.

3.1. Berechnung der räumlichen Position der Foki beliebiger Wellenlängen

Im ersten Teil dieses Abschnitts wird das betrachtete optische System vorgestellt und die durchgeführten Rechnungen, sowie vereinfachende Annahmen erläutert. Der zweite Teil dieses Abschnitts beinhaltet eine Darstellung der berechneten Ergebnisse und eine mögliche Lösung für die CCD Kameraposition um alle gewünschten Energien (20 eV bis 120 eV) mit ausreichender spektraler Auflösung detektieren zu können.

Die im realen Experiment durch HHG erzeugte XUV-Strahlung wird im Modell als Punktquelle genähert. Der Toroidalspiegel fokussiert diesen Strahl anschließend. Als nächstes wird ein planes Reflexionsgitter dazu verwendet, die Strahlung zu beugen. Da nur die Aufspaltung der unterschiedlichen Wellenlängen von Bedeutung ist wird im folgenden nur die (zweidimensionale) Beugungsebene des optischen Gitters verwendet. Dabei ist die Gitterebene die xz -Ebene und die Beugungsebene des optischen Gitters (siehe Abbildung 3.1), sowie die Reflexionsebene des Toroidalspiegels in der xy -Ebene. Der Ursprung des Koordinatensystems für die Berechnungen wird auf dem Gitter festgelegt.

3.1.1. Konstruktion des optischen Systems nach den Prinzipien der geometrischen Optik

In Abbildung 3.1 ist das zu untersuchende optische System dargestellt. Divergente XUV-Strahlen aus einer Quelle werden durch einen Toroidalspiegel fokussiert. Anschließend wird die konvergente Strahlung durch ein optisches Reflexionsgitter gebeugt und die 0. Ordnung der Beugungsstruktur trifft auf das Target. Mithilfe der geometrischen Optik kann auch die räumliche Position beliebiger Beugungsordnungen und Wellenlängen berechnet werden. Ähnlich wie beim Ray-Tracing-Verfahren „verfolgt“ man einzelne Strahlen (Vektoren) und

3. Design eines Breitband-XUV Gitterspektrometers

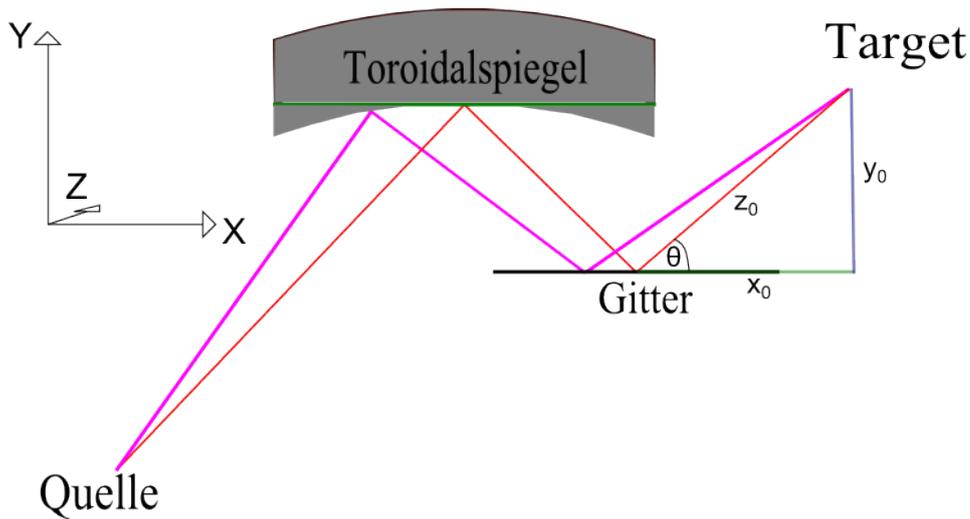


Abbildung 3.1.: Das optische System, bestehend aus einer divergenten Quelle, zwei optischen Elementen (Toroidalspiegel und Reflexionsgitter) und einem Target. Die optischen Elemente werden unter streifendem Einfall (15° Glanzwinkel) der Strahlung eingesetzt. Des Weiteren sind die zu bestimmenden Werte x_0 , y_0 , z_0 und θ dargestellt.

bestimmt deren Schnittpunkt um die Position des Fokus zu berechnen. Es genügt dafür zwei Strahlen zu betrachten.

In Tabelle 3.1 werden die Parameter beschrieben, die das optische System vollständig beschreiben. Die zu untersuchenden Wellenlängen befinden sich im Energiebereich von 20 eV bis 120 eV. Für den Einfallswinkel β wird ein Wert von 15° und für den Divergenzwinkel α ein Wert von 1° verwendet. Die Gegenstandsweite c und die Bildweite c' stimmen in diesem Fall überein, da wir die Quelle und das Target in einem $2f$ - $2f$ ¹ Verhältnis zum Toroidalspiegel aufstellen. Der Lichtweg n wird in Abbildung 3.4 dargestellt, und ist für die Berechnung mit

¹Siehe Grundlagen Abschnitt 2.5.2

Tabelle 3.1.: Parameter

Wellenlänge	λ
Divergenz	α
Einfallswinkel	β
Gegenstandsweite	c
Bildweite	c'
Lichtweg Toroidal-Gitter	n
Gitterkonstante	u
Beugungsordnung	m

3.1. Berechnung der räumlichen Position der Foki beliebiger Wellenlängen

Tabelle 3.2.: Zu bestimmende Werte

Horizontaler Abstand zum Gitter	x_0
Vertikaler Abstand zum Gitter	y_0
Fokusweite	z_0
Winkel zur Gitterebene	θ

8 cm gewählt. Für die Strichdichte u des Gitters werden die Werte 600 mm^{-1} , 900 mm^{-1} , 1200 mm^{-1} und 2400 mm^{-1} verwendet.

In Tabelle 3.2 werden die zu bestimmenden Werte dargestellt. Dabei gibt x_0 den Wert für die x-Achse und y_0 den Wert für die Y-Achse an. Die Fokusweite z_0 und der Winkel zur Gitterebene θ definieren den Strahlengang nach dem Gitter. Um diese Werte in Abhängigkeit der zuvor beschriebenen Parameter zu erhalten, werden einige trigonometrische Relationen verwendet, die im Folgenden beschrieben sind. (Für eine exakte Herleitung siehe Anhang A.2)

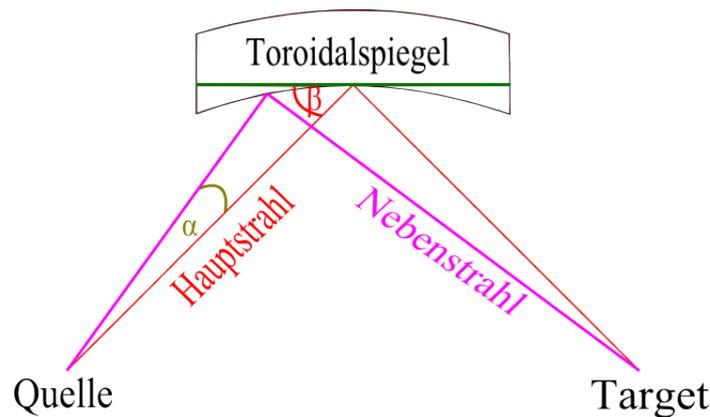


Abbildung 3.2.: Verlauf des Hauptstrahls (rot) und des Nebenstrahls (lila). Der Winkel des Hauptstrahls zum Toroidalspiegel ist β und die Divergenz ist α .

Die zwei Strahlen, die verfolgt werden, sind zum einen der Hauptstrahl, der unter dem Winkel β auf den Mittelpunkt des Toroidalspiegels trifft und der Nebenstrahl, der den Divergenzwinkel α zum Hauptstrahl besitzt (Abbildung 3.2).

Unter der Annahme einer kleinen Divergenz kann der Toroidalspiegel näherungsweise als Planspiegel betrachtet werden.

Durch trigonometrische Betrachtungen kann der Winkel γ , den der ausfallende Nebenstrahl zum planen Spiegel haben müsste, um sich nach der Strecke $2c$ zu schneiden, berechnet werden. Des Weiteren kann man mit derselben Methode den Abstand d zwischen dem Auftreffpunkt des Haupt- und dem des Nebenstrahls auf dem Spiegel erhalten.:

3. Design eines Breitband-XUV Gitterspektrometers

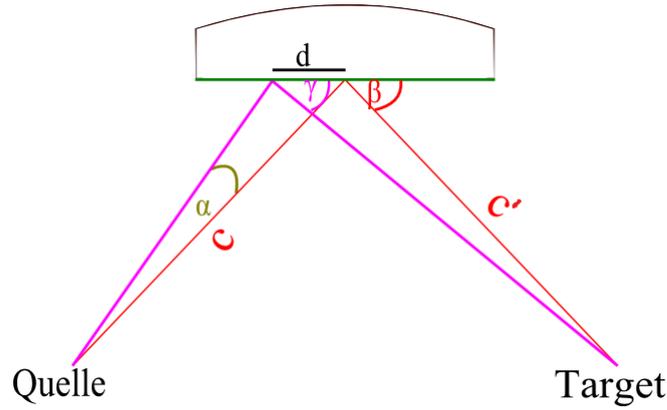


Abbildung 3.3.: Bestimmung des Abstands d zwischen dem Auftreffpunkt des Haupt- und Nebenstrahls. Der Winkel γ definiert den Ausfallswinkel des Nebenstrahls am Toroidalspiegel und c ist die Gegenstands- und c' die Bildweite.

$$\gamma = \arctan \left(\left[\frac{2}{\tan(\beta)} - \frac{1}{\tan(\beta + \alpha)} \right]^{-1} \right), \quad (3.1)$$

$$d = \sin(\beta) \cdot c \cdot \left(\frac{1}{\tan(\beta)} - \frac{1}{\tan(\beta + \alpha)} \right). \quad (3.2)$$

Das Gitter ist wie in Abbildung 3.4 dargestellt bezüglich des Toroidalspiegels positioniert. Ausgehend von den berechneten Werten von γ und von d , kann man den Abstand der Auftreffpunkte j des Haupt- und des Nebenstrahls am Gitter bestimmen. Des Weiteren werden die Winkel δ und ϵ bestimmt:

$$j = d + \cos(\beta) \cdot n - \frac{\sin(\beta) \cdot n}{\tan(\gamma)}, \quad (3.3)$$

$$\delta = 90 - \gamma, \quad \epsilon = 90 - \beta. \quad (3.4)$$

3.1. Berechnung der räumlichen Position der Foki beliebiger Wellenlängen

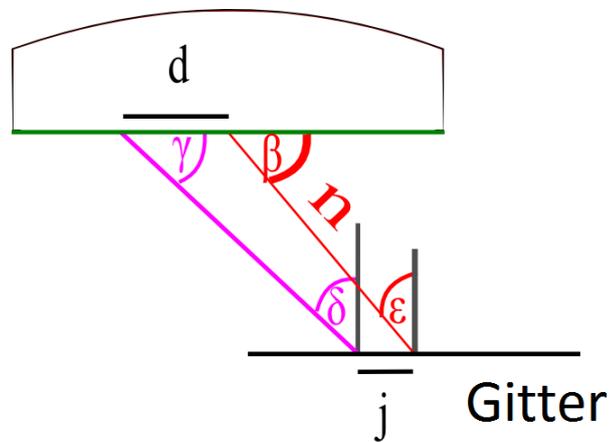


Abbildung 3.4.: Bestimmung des Abstands j von den Auftreffpunkten des Haupt- und Nebenstrahls auf dem Gitter. Der Weg n des Hauptstrahls vom Toroidalspiegel zum planen Gitter wird hierfür definiert.

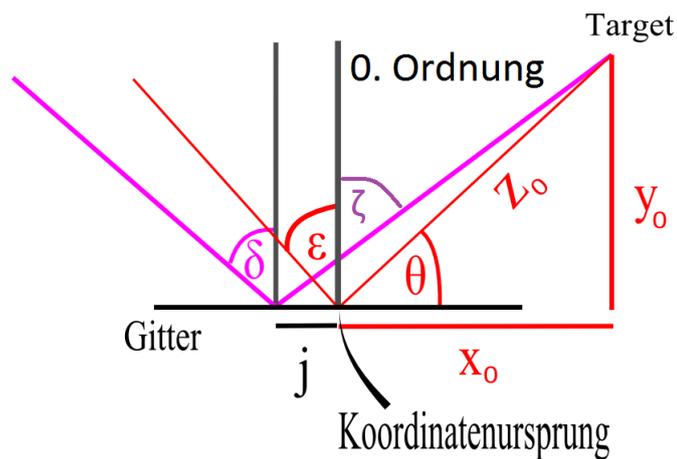


Abbildung 3.5.: Bestimmung des Winkels θ , der Fokusweite z_0 , der Werte x_0 und y_0 , hier für die 0. Ordnung aufgezeichnet, als Funktion von ϵ , δ , ζ und j . Der Koordinatenursprung liegt auf dem Gitter.

3. Design eines Breitband-XUV Gitterspektrometers

In Abbildung 3.5 ist dargestellt, wie man die Fokusweite z_0 und den Winkel θ des Strahls zum Gitter bestimmt. Mit j , ϵ , δ und ζ erhält man folgende Relationen:

$$\zeta = \arcsin\left(\frac{m \cdot \lambda}{u} - \sin(\delta)\right), \quad (3.5)$$

$$\theta = 90 + \arcsin\left(\frac{m \cdot \lambda}{u} - \sin(\epsilon)\right), \quad (3.6)$$

$$x_0 = j \cdot \left(\frac{\tan(-\zeta)}{\tan(90 - \theta)} - 1\right)^{-1}, \quad (3.7)$$

$$y_0 = \tan(\theta) \cdot x_0, \quad (3.8)$$

$$z_0 = \sqrt{x_0^2 + y_0^2}. \quad (3.9)$$

Dabei ist zu beachten, dass zunächst der Winkel ζ durch die Gleichung 2.28 berechnet wurde. Dabei ist der Winkel per Definition negativ. Deshalb wird mit dem Betrag dieses Winkels gerechnet. Somit hat man einen Ausdruck für x_0 , y_0 , z_0 und θ der ausschließlich von den in Tabelle 3.1 erwähnten Parametern abhängt. Die Ergebnisse der Berechnung dieser Relationen für verschiedene Parameter werden im nächsten Abschnitt gezeigt.

3.1.2. Ergebnisse

Mit den in Kapitel 3.1.1 erstellten Relationen können beliebige Fokusweiten berechnet werden. Für dieses Modell wurde eine Divergenz der Punktquelle von 0.1° ($\hat{=} 1.745$ mrad) angenommen, da dies in etwa der Divergenz der HHG-Strahlung entspricht. Der Abstand n zwischen Toroidalspiegel und Gitter wurde mit 8 cm und der Einfallswinkel der 0. Ordnung auf 15° gewählt, was den experimentellen Gegebenheiten entspricht. Der zu untersuchende Energiebereich der Photonen ist 20 eV bis 120 eV². Für die Gitterkonstante u wird im Folgenden der Wert 1200 mm^{-1} verwendet³.

In der Abbildung 3.6 sind die berechneten Werte für die -1. Ordnung (blau) und die +1. Ordnung (orange) für das Gitter mit 1200 mm^{-1} aufgetragen. Dabei wurde für den Koordinatenursprung der Auftreffpunkt des Hauptstrahls auf das Gitter definiert. Räumliche Abstände zu diesem Punkt entlang und auf der Gitterebene sollen durch x-Koordinaten beschrieben werden und die Abstände senkrecht dazu durch y-Koordinaten. Der Ort, an dem die 0. Beugungsordnung, also der ungebeugte Reflex des Strahls, fokussiert (in Abbildung 3.6 gelb dargestellt), liegt bei einer Entfernung von 62 cm vom Gitter. Von diesem Punkt aus treten die verschiedenen Wellenlängen auf, wobei die größeren Energien näher am Target sind.

Die Foki der -1. Ordnung liegen vor dem Target. Es sind nur Foki für die Energien zwischen 120 eV und 50 eV definiert. Für Foki kleinerer Energien als 50 eV liefern

²20 eV $\hat{=} 62$ nm, 120 eV $\hat{=} 10.1$ nm

³Im Anhang A.1 befindet sich die Tabelle der Ergebnisse für weitere Gitterkonstanten.

3.1. Berechnung der räumlichen Position der Foki beliebiger Wellenlängen

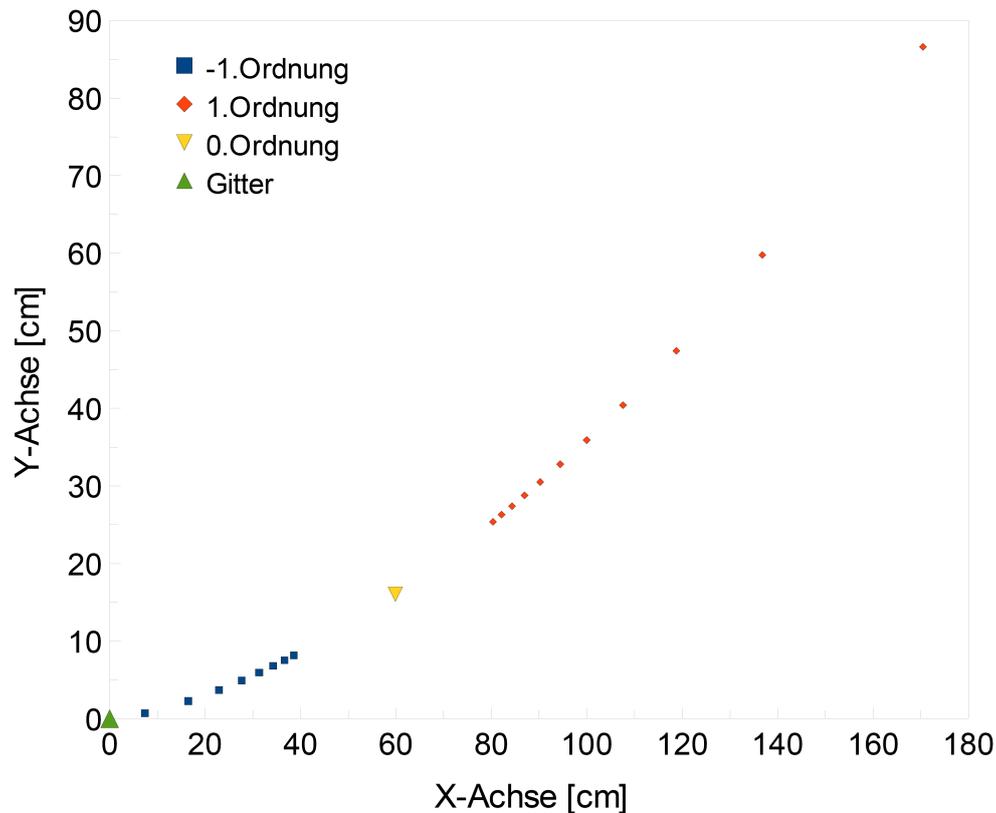


Abbildung 3.6.: In diesem Plot ist die Verteilung dwe Foki der verschiedenen Wellenlängen und Ordnungen (+1. Ordnung (orange) und -1. Ordnung (blau)) für das Gitter mit der Konstanten 1200 mm^{-1} dargestellt. Dabei ist zu beachten, dass der Energiebereich von 120 eV absteigend in 10 eV Schritten bis 20 eV reicht. Die größeren Energien sind näher am Target (gelb).

die erläuterten Gleichungen keine Lösung. Die -1. Ordnung wird also für die Detektion eines Referenzspektrums nicht in Betracht gezogen. Der Verlauf der 1. Ordnung zeigt, dass der Fokus für verschiedene Wellenlängen hinter dem Target ist.

Für die Detektion der Strahlung im Energiebereich zwischen 120 eV und 20 eV, was einer räumlichen Fokusauffächerung in der Größenordnung von 1 m entspricht, muss nun eine geeignete Positionierung der CCD-Kamera (Breite des CCD Chips: 26.8 mm) gefunden werden. Der gesamte Detektorarm muss aus Platzgründen so kompakt wie möglich gestaltet werden. Ein verfahrbarer Detektorarm, wie etwa bei einem Rowland-Kreis-Spektrometer, ist daher für den hier betrachteten Energiebereich nicht die bevorzugte Wahl. Stattdessen soll die gebeugte Strahlung mittels eines Planspiegels (ca. 10 cm Breite) hinter dem Gitter (die 0. Ordnung darf nicht blockiert werden) auf die fest-installierte CCD-Kamera gelenkt werden. Durch die Rotation dieses Spiegels können die Beu-

3. Design eines Breitband-XUV Gitterspektrometers

gungsordnungen der Energie nach detektiert werden. Da die Strahlen unter 15° reflektiert werden sollen und gleichzeitig einen Abstand von mindestens 1 cm zum Hauptstrahl besitzen müssen, ist der Ort des Spiegels festgelegt. Der Nachteil dieses Aufbaus ist, dass nur ein kleiner Energiebereich den Fokus auf der Kamera hat. Entscheidend ist jedoch, dass das langsam modulierte HHG-Signal (1 eV Größenordnung oder langsamer) noch aufgelöst werden kann. Die Planung des Detektorarms mit rotierbarem Planspiegel wird im Folgenden diskutiert.

In Abbildung 3.7 sind die Strahlverläufe der 0. Ordnung und der 1. Ordnung für die Energien 20 eV, 40 eV, 120 eV und für die Gitterkonstante 1200 mm^{-1} aufgetragen. Eine mögliche Detektorposition ist durch die Position (a) dargestellt. Die Kamera sollte möglichst nah am Fokus des 120 eV-Strahl aufgestellt werden, da die Foki der hohen Energien näher beieinander liegen als die der niedrigen Energien. Für die Strahlung im höheren Energiebereich ist eine derartige Platzierung der CCD-Kamera optimal. Dass auch die Strahlung im niedrigen Energiebereich, trotz einer deutlichen Defokussierung mit ausreichender spektraler Auflösung detektiert werden kann, wurde mittels eines Ray-Tracing-Programmes nachgewiesen (siehe Kapitel 3.2.2). Da der Detektor nicht in der Kammer (siehe Kapitel 2.5.1) platziert werden kann, wird eine zweite Kameraposition dargestellt. Der mögliche Aufbau, den (b) beschreibt, besteht aus einem rotierbaren Spiegel und einer fest justierten Kamera. Der Spiegel endet an dem Punkt, an dem der 120 eV-Strahl (lila) 1 cm Abstand zum Hauptstrahl aufweist. Die Kamera ist so aufgestellt, dass sie den 120 eV-Strahl am äußeren Rand des Detektors, bei einer Orientierung des Spiegels von 15° zum 120 eV-Strahl, detektiert.

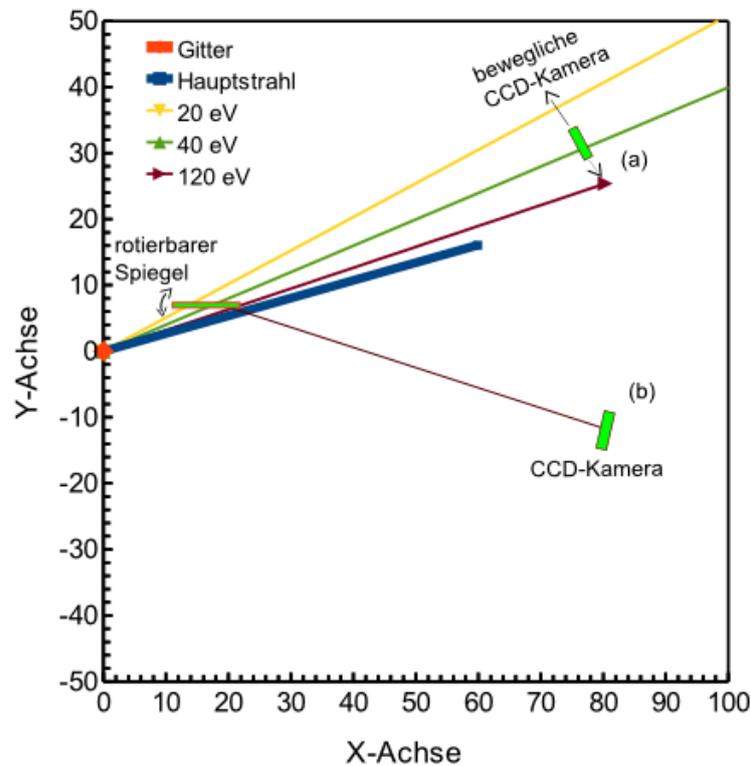


Abbildung 3.7.: In diesem Plot sind die Strahlverläufe der 0. Ordnung (blau) und der +1. Ordnung für die Energien 20 eV (gelb), 40 eV (grün) und 120 eV (lila) und für die Gitterkonstante 1200 mm^{-1} aufgetragen. Um den gesamten Energiebereich zu detektieren sind zwei mögliche Kamerapositionen dargestellt. Position (a) liegt hinter dem Fokus des Hauptstrahls (Target). Die Kameraposition (b) wird mit einem rotierbaren Spiegel kombiniert und weist eine größere Distanz zum Hauptstrahl auf.

3.2. Simulationen mittels eines Ray-Tracing 'Codes

In diesem Kapitel wird anhand eines Ray-Tracing Programms der Strahlengang des oben beschriebenen optischen Systems simuliert. Dabei liegt das Augenmerk auf dem spektralen Auflösungsvermögen für verschiedene mögliche CCD-Kamerapositionen.

3.2.1. Optische Parameter und Auswertemethode

Für die folgenden Simulationen wird das Ray-Tracing Programm „SHADOW“ [1] verwendet. Betrachtet man die vorherigen geometrischen Untersuchungen als ein Ray-Tracing mit nur zwei Strahlen (Rays), so führt man nun eine entsprechende Berechnung im 3D Raum mit einer beliebigen Anzahl von Strahlen durch, wobei die einzelnen Strahlen in unterschiedliche Winkel ausgesendet werden. Die Methode bietet die Möglichkeit das spektrale Auflösungsvermögen des ge-

3. Design eines Breitband-XUV Gitterspektrometers

planten Detektors zu berechnen. Dies ist insbesondere deshalb notwendig, weil nicht der gesamte relevante Energiebereich auf den CCD-Chip fokussiert werden kann. Das Spektrometer sollte für die Detektion von HHG-Signalen (> 1 eV Modulation) zwei Strahlenbündel mit einer energetischen Differenz von 0.5 eV voneinander trennen können.

Die Lichtquelle wird als punktförmig (Divergenzwinkel 0.1°) angenommen. Wie bei den vorherigen geometrischen Überlegungen werden die Berechnungen mit diskreten Energien im Bereich zwischen 120 eV und 20 eV durchgeführt. Das erste optische Element ist ein Toroidalspiegel, der in einer Entfernung von 70 cm zu der Quelle erstellt wurde. Der Saggital- und Tangentialradius dieses Spiegels wurde analog zum im Experiment verwendeten Spiegel gewählt (siehe Kapitel 2.5.2). Der Einfallswinkel des Hauptstrahls wurde auf 15° streifendem Einfall gesetzt. Hinter dem Toroidalspiegel befindet sich das Gitter in 8 cm Entfernung (Distanz des Hauptstrahls zwischen den Auftreffpunkten auf Toroidalspiegel und Gitter). Das Gitter ist ebenfalls unter einem Winkel von 15° zum Hauptstrahl aufgestellt. Dabei kann für das Gitter die Gitterkonstante und die Ordnung des zu verfolgenden Maximums eingestellt werden. Die Bildebene ist in einer frei einstellbaren Entfernung orthogonal zur 0. Ordnung aufgestellt. Die Bildebene ist ein virtueller Schirm, der von den einzelnen Teilstrahlen beleuchtet wird und dadurch die simulierte räumliche Photonverteilung ausgibt.

Untersucht wird, ab welcher energetischen Differenz zweier Strahlenbündel mit diskreten Energien sich die Photonverteilungen in der Bildebene räumlich überlappen.

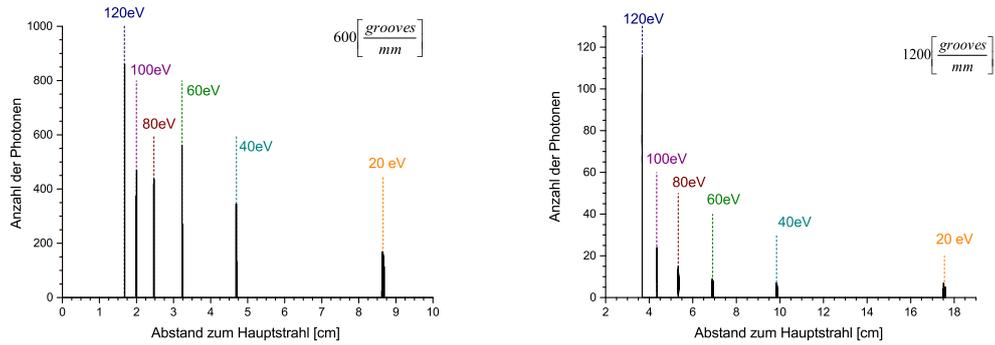
3.2.2. Simulationsergebnisse für verschiedene Kamerapositionen

Um die optimale Kameraposition zu bestimmen, benötigt man eine Angabe bezüglich der zu erzielenden Auflösung. Diese Auflösung liefert die Randbedingungen für die möglichen Kamerapositionen. Des Weiteren ist der Energiebereich, der gemessen werden soll, ein Parameter zur Bestimmung der Detektorplatzierung. In diesem Fall soll ein Energiebereich von 20 eV bis 120 eV aufgenommen werden. Dabei soll eine Auflösung von 0.5 eV erzielt werden. Die Gitter, die im Folgenden untersucht werden, haben die Gitterkonstanten 600 mm^{-1} und 1200 mm^{-1} . Stellt man nun den Detektor (so wie in Abbildung 3.7 (a) dargestellt) in einer Entfernung von 73 cm zum Mittelpunkt des Gitters, so erhält man für die Gitterkonstante 600 mm^{-1} einen Bereich von 7 cm, um alle Energien zu registrieren. Bei einem Abstand von 83 cm und für die Gitterkonstante 1200 mm^{-1} sind es 14 cm. Die Entfernungen werden so gewählt, dass die Fokusweite der höchsten zu detektierenden Energie mit der Entfernung der Bildebene übereinstimmt.

Im Histogramm 3.8 erkennt man anhand der Breite der einzelnen Peaks die Fokussierung. Je schmaler der Peak ist, desto weniger Bins registrieren Photonen, was gleichbedeutend mit einer besseren Fokussierung ist.

Will man nun eine Aussage über die Auflösung an den zwei Orten erhalten, so kann man dies mithilfe von Histogramm 3.9 erreichen. In dieser Abbildung ist die

3.2. Simulationen mittels eines Ray-Tracing 'Codes



(a) in einer Entfernung von 73 cm zum Gitter. (b) in einer Entfernung von 83 cm zum Gitter.

Abbildung 3.8.: In diesen vom Ray-Tracing-Programm Shadow simulierten Histogrammen ist die Anzahl der registrierten Photonen als Funktion des Abstands zum Hauptstrahl für Energien von 20 bis 120 eV in 20 eV-Schritten aufgetragen. Dabei wurden die Gitter mit der Gitterkonstanten 600 mm^{-1} und 1200 mm^{-1} verwendet. Die Bildebene ist in einem Abstand von 73 cm bzw. 83 cm zum Gitter definiert.

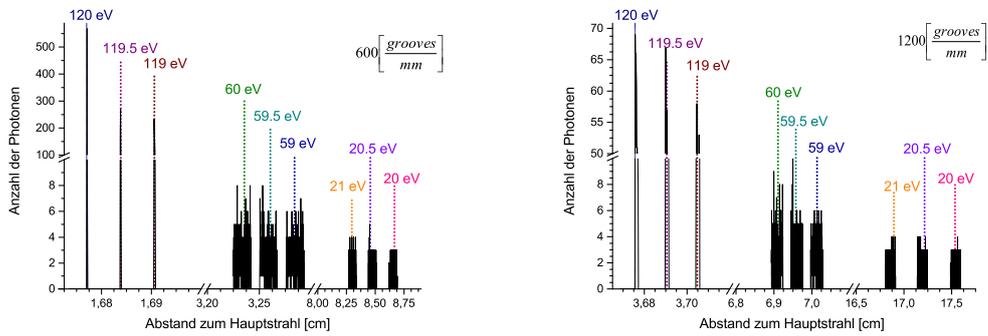
Anzahl der Photonen als Funktion des Abstands zum Hauptstrahl für verschiedene Energien aufgetragen. Es wurden im Gegensatz zu Histogramm 3.8 drei Energiebereiche (20-21, 59-60 und 119-120 eV in 0.5 eV Schritten) ausgewählt. Dabei wurden die Gitter mit der Gitterkonstanten 600 mm^{-1} und 1200 mm^{-1} verwendet.

Man erkennt, dass die Breite der Peaks zu geringeren Energien hin zunimmt, was auf eine schlechtere Fokussierung hindeutet. Des Weiteren ist die Auflösung der größten Energien für das 600 mm^{-1} -Gitter im Bereich von 0.1 mm. Für kleinere Energien sinkt die Fokussierung, jedoch steigt die Entfernung zwischen den Energien an. Die Distanz zwischen zwei Energien die sich um 0.5 eV unterscheiden, ist für das 600 mm^{-1} -Gitter 0.25 mm und für die kleinsten Energien liegt sie sogar bei 2.5 mm. Ähnlich verhält es sich für das 1200 mm^{-1} -Gitter. Hier liegt die Distanz der größten Energien ebenfalls im Bereich von 0.1 mm, die der mittleren Energien schon bei 0.5 mm und die der kleinsten bei 2.5 mm.

Für die Energieauflösung gilt $\frac{\Delta E}{E}$, wobei ΔE die Differenz zweier Energien ist, die voneinander unterscheidbar sind. Dabei beträgt die Auflösung für das 1200 mm^{-1} -Gitter bei einer Entfernung von 83 cm für die niedrigen Energien $\frac{\Delta E}{E} = 0.02$. Die Auflösung für hohe Energien ist um mehrere Größenordnungen besser ($\frac{\Delta E}{E} = 0.0005$ für $E = 120 \text{ eV}$), da die Kamera an dem Fokus der höchsten Energie positioniert wurde.

Somit ergibt sich ein möglicher Aufbau mit einem Gitter und einem rotierbaren Spiegel. Für die Gitterkonstante 1200 mm^{-1} ist die Position des Spiegels und der CCD-Kamera in Abbildung 3.7 dargestellt.

3. Design eines Breitband-XUV Gitterspektrometers



(a) Die Bildebene ist in einer Entfernung von 73 cm zum Gitter positioniert. Die Distanz zwischen zwei Energien die sich um 0.5 eV unterscheiden, ist bei den größten Energien (120 eV) im Bereich von 0.05 mm, bei den mittleren Energien (60 eV) bei 0.25 mm und bei den kleinsten 20 eV bei 1.25 mm. .

(b) Die Bildebene ist in einer Entfernung von 83 cm zum Gitter positioniert. Die Distanz zwischen zwei Energien, die sich um 0.5 eV unterscheiden, ist bei den größten Energien (120 eV) im Bereich von 0.1 mm, bei den mittleren Energien (60 eV) bei 0.5 mm und bei den kleinsten 20 eV bei 2.5 mm.

Abbildung 3.9.: In diesen vom Ray-Trace-Programm Shadow simulierten Histogrammen ist die Anzahl der Photonen als Funktion des Abstands zum Hauptstrahl für verschiedene Energien aufgetragen. Es wurden drei Energiebereiche (20-21, 59-60 und 119-120 eV in 0.5 eV Schritten) ausgewählt. Dabei wurden die Gitter mit der Gitterkonstanten 600 mm^{-1} und 1200 mm^{-1} verwendet. Die Bildebene ist bei 73 cm bzw. 83 cm Abstand vom Gitter aufgestellt.

4. Simulationen zur Multidimensionalen Spektroskopie mit XUV Pulsen

Das zum Aufbau (siehe 2.5) geplante Experiment soll in dieser Arbeit anhand eines wasserstoffähnlichen Potentials simuliert werden. Dabei handelt es sich um eine *ab initio* Simulation, die auf der zeitabhängigen Schrödingergleichung beruht. Die in den Grundlagen dargelegte numerische Berechnung des Absorptionsspektrum und die damit verbundene Erzeugung von Time-Delay-Scans werden in diesem Abschnitt für zwei verschiedene Pulsconfigurationen durchgeführt. Anschließend wird die Wechselwirkung des Softcore Coulomb Potential für die Pulsconfiguration mit drei XUV-Pulsen simuliert. Schließlich wird noch auf die spektrale Interferenz von drei XUV-Pulsen eingegangen. Die Eigenschaften der Pulse und deren zeitliche Anordnung wird in Abschnitt 4.1 erläutert. Im zweiten Abschnitt 4.2 werden die Pulse definiert und auch die Parameter dieser Simulation werden erläutert. Anschließend werden in den Abschnitten 4.3 und 4.4 die Ergebnisse vorgestellt und erklärt.

4.1. Umsetzung in LabView

Die numerischen Simulationen in dieser Arbeit werden durch die numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung (TDSE) berechnet. Die TDSE beschreibt die zeitliche Änderung eines quantenmechanischen Zustands und ist deshalb geeignet für die Simulation von Experimenten aus dem Bereich der Quantendynamik, wo relativistische Effekte, der Elektronenspin und quantenelektrodynamische Korrekturen keine Rolle spielen.

Die in diesem Kapitel verwendeten Erklärungen über die Methoden zur numerischen Berechnung wurden unter anderem in [10] und [12] genauer beschrieben. Die folgenden Beschreibungen orientieren sich an diesen Arbeiten.

4.1.1. Softcore Coulomb Potential

Das Potential des eindimensionalen Modells, das simuliert werden soll, hat eine Polstelle am Ort $x = 0$. Um von negativen Ortswerten zu positiven zu gelangen, kann das Teilchen nicht wie in drei Dimensionen der Singularität räumlich ausweichen, sondern muss über einen endlichen Wert propagieren. Darüber hinaus muss das Potential dem Verhalten von $V(x) \approx \frac{1}{|x|}$ für große x genügen.

4. Simulationen zur Multidimensionalen Spektroskopie mit XUV Pulsen

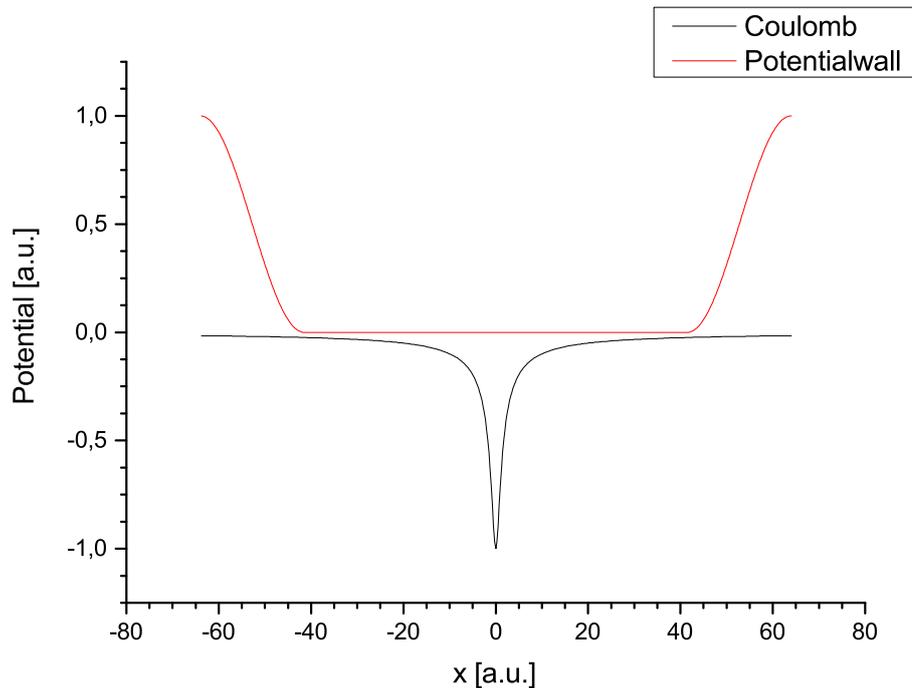


Abbildung 4.1.: Die Abbildung zeigt den imaginären Potentialwall (rot) und das Kernpotential (blau) als Funktion der Ortskoordinaten der Zustände.

Ein solches Potential, das diese Eigenschaften besitzt heißt Softcore Coulomb Potential¹:

$$\mathcal{H}_x = -\frac{1}{\sqrt{\hat{x} + a}} \text{ mit } a = 1. \quad (4.1)$$

Das in dieser Arbeit verwendete Rechengitter besteht aus insgesamt 512 Gitterpunkten. Mit einem Abstand zwischen zwei Gitterpunkten (Schrittweite der Ortskoordinate) von 0.25 a.u. besitzt das Rechengitter eine Breite von 128 a.u., wobei sich die räumliche Nullkoordinate am Gittermittelpunkt befindet und daher die Gittergrenzen durch die Werte -64 a.u. und +64 a.u. definiert sind.

Da in dieser Arbeit hauptsächlich Eigenenergien von gebundenen Zuständen von Bedeutung sind, müssen wir das Rechengitter um ein imaginäres Potential erweitern, um das reale Verhalten ionisierter Elektronen bei asymptotischen Raumkoordinaten zu simulieren. Die imaginäre Barriere absorbiert die im Kontinuum befindlichen freien Wellenpakete. Wie in der Abbildung 4.1 gezeigt, reicht das imaginäre Potential von -64 bis +64 a.u. und hat eine Höhe von 1 a.u.. Es besitzt das Profil des ersten Halbzyklus einer $\sin^2(x)$ -Funktion und ist mit seinem Kurvenmaximum auf dem numerischen Rand verankert. Die gesamte Flanke der Barriere ist 22,5 a.u. breit.

¹Das Softcore Coulomb Potential wird in [11] ausführlich erläutert

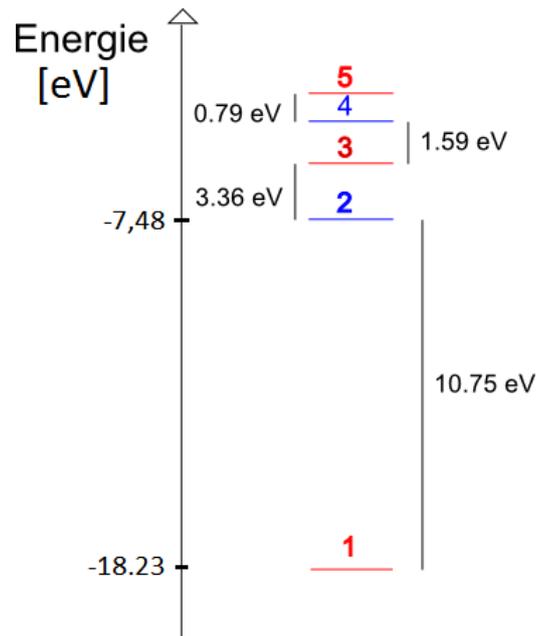


Abbildung 4.2.: Die Abbildung zeigt die Energien der ersten fünf gebundenen Zustände des Soft-Core-Potentials. Der Grundzustand ist mit 1 und die angeregten Zustände mit der entsprechenden Zahl definiert. Es sind nur Dipolübergänge zwischen Zuständen unterschiedlicher Parität erlaubt. Dabei sind die Zustände gleicher Parität durch die Farben rot (positive Parität) und blau (negative Parität) markiert. Zu den hier dargestellten Übergängen ist die Übergangsenergie eingetragen.

Die Grundzustandswellenfunktion (Zustand 1) und alle ungeraden Energieniveaus (3, 5, 7, usw.) sind symmetrisch bezüglich der Raumspiegelung ($x \rightarrow -x$), wohingegen die geraden Zustände (2, 4, 6 usw.) antisymmetrisch sind. Dipolübergänge können nur zwischen Zuständen unterschiedlicher Parität stattfinden. Deshalb sind nur Übergänge zwischen geraden und ungeraden Zuständen erlaubt (siehe Abbildung 4.2). Im Folgenden werden Übergangsenergien von Zustand i zu Zustand k mit ω_{i-k} bezeichnet.

4.1.2. Split-Step-Operator Methode

Gemäß der Gleichung 2.3 kann der Hamiltonoperator in einen Anteil in Ortsdarstellung und in einen Anteil in Impulsdarstellung formuliert werden. Ziel der numerischen Umsetzung der Zeitentwicklung ist es in einem Rechenzyklus einen Anfangszustand um einen Zeitschritt Δt in einen Endzustand zu überführen und diesen im nächsten Rechenzyklus als neuen Anfangszustand zu verwenden. Der Hamiltonoperator soll während des Propagationsschrittes als konstant angenommen werden. Dementsprechend sollten für Δt kleine Zahlenwerte gewählt werden. Ein Kompromiss zwischen einer vernünftigen Simulationszeit und einer für die zu untersuchenden dynamischen Phänomene ausreichenden Zeitauflösung

4. Simulationen zur Multidimensionalen Spektroskopie mit XUV Pulsen

wird mit $\Delta t = 0.1$ a.u. erreicht. Die Split-Step-Operator Methode besteht nun darin, die Faktoren der Exponentialfunktion getrennt voneinander in ihren jeweils günstigen Basisdarstellungen zu integrieren. Dies führt zu einer Vermeidung von numerisch umständlich zu berechnenden Differentialgleichungen. Durch die getrennte Zeitentwicklung im Ortsraum und Impulsraum, die nicht miteinander kommutieren, entsteht ein Fehler in der Größenordnung von mindestens Δt^3 . Somit sollte Δt klein genug gehalten werden um auch diesen Fehler zu minimieren. (für eine detaillierte Beschreibung siehe [6])

Die Propagation einer Wellenfunktion $\psi(x, t)$ in einem Rechenzyklus wird hier folgendermaßen durchgeführt:

$$\psi(x, t + \Delta t) = \mathcal{F}^{-1} e^{-i\mathcal{H}_p \cdot \Delta t} \mathcal{F} e^{-i\mathcal{H}_x \cdot \Delta t} \psi(x, t) \quad (4.2)$$

Durch iterative Zeitpropagation kann somit ein Anfangszustand $\psi(x, t_0)$ in einen Endzustand $\psi(x, t_1)$, mit $t_1 = t_0 + N \cdot \Delta t$ (N ist die Anzahl der Iterationsschritte), überführt werden. Somit erhält man für jede Zeit $n \cdot \Delta t$ zwischen t_0 und t_1 die Zustandsfunktion $\psi(x, t_0 + n \cdot \Delta t)$, wobei n eine Natürliche Zahl kleiner als N ist. Um den Hamiltonoperator im Impulsraum (Gleichung 2.16) zu erhalten, benötigt man das Vektorpotential $A(t)$, welches durch Integration der Summe der elektrischen Felder von den simulierten Pulsen berechnet werden kann (siehe Kapitel 2.3).

4.1.3. Numerische Bestimmung des Absorptionskoeffizienten

$$\sigma(\omega)$$

Der Absorptionskoeffizient $\sigma(\omega)$ wurde in Gleichung 2.25 bereits eingeführt und wird hier der Übersicht halber noch einmal gezeigt:

$$\sigma(\omega) = \frac{\omega}{\varepsilon_0 \cdot c} \text{Im} \left(\frac{\langle \mu(\omega) \rangle}{E(\omega)} \right).$$

Es ist zu beachten, dass die Simulationen mit atomaren Einheiten durchgeführt werden. Der Wert $\langle \mu(t) \rangle$ wird zunächst durch $\langle \psi(t) | x | \psi(t + \Delta t) \rangle$ für jeden Zeitschritt berechnet und anschließend über die Zeit t fouriertransformiert. Dadurch ergibt sich das spektrale Dipolmoment $\langle \mu(\omega) \rangle$. Das Spektrum des elektrischen Feldes $E(\omega)$ erhält man durch Fouriertransformation über $E(t)$. Durch Division dieser beiden Größen (beides komplexe Größen) und anschließender Berechnung des Imaginäranteils kann $\sigma(\omega)$ berechnet werden.

Durch Variation des zeitlichen Abstandes zwischen den elektrischen Feldern (Pulsen), die superpositioniert durch die Größen $E(t)$ bzw. $E(\omega)$ beschrieben werden, werden verschiedene dieser Absorptionsspektren erzeugt und in Form eines Time-Delay Scans mit zwei dynamischen Pulsen dargestellt. Die angesprochene Drei-Puls-Sequenz mit zwei dynamischen Pulsen, sowie die entsprechenden numerischen Pulsparameter, werden im folgenden Kapitel eingeführt.

4.1.4. Multidimensionale Spektroskopie

Bei der eindimensionalen Spektroskopie erhält man ein Spektrum in Abhängigkeit einer Frequenz. Dabei können Informationen über die Energien, die zu den induzierten Übergängen zwischen zwei Zuständen gehören, erhalten werden. Die Erzeugung einer weiteren Frequenzachse durch Wechselwirkung mit einem weiteren Puls führt zu einem zweidimensionalen Spektrum, das mehr Informationen (z.B.: Informationen über Kopplungen zwischen Zuständen) als das eindimensionale Spektrum beinhaltet. Die Wechselwirkung mit einem dritten Puls führt zu der Erzeugung einer dritten Frequenzachse, wodurch ein dreidimensionales Spektrum erzeugt wird. Dieses Spektrum beinhaltet wiederum mehr Informationen (z.B.: Information über die Dynamik von Kopplungen zwischen Zuständen), als ein zweidimensionales. Im Folgenden wird die in dieser Arbeit verwendete dreidimensionale Spektroskopie vorgestellt.

In Abbildung 4.3 sind drei Pulse dargestellt. Puls 3 ist im Folgenden in der Zeit konstant, wohingegen der Puls 2 und der Puls 1 eine Zeitverschiebung zum Puls 3 erhalten. Der Zeitversatz von Puls 2 (P2) zu Puls 3 (P3) wird mit t und der Zeitversatz von Puls 1 (P1) zu P3 mit T definiert. Die Simulationszeit des Systems wird mit τ bezeichnet. Hieraus ergibt sich ein Signal $I(\tau, t, T)$, das von τ , t und T abhängt. Lässt man nun diese Pulsconfiguration mit einem Atom wechselwirken, so entstehen Oszillationen zwischen den Zuständen. Durch eine Fouriertransformation über τ erhält man das auch experimentell detektierbare Frequenzspektrum $I(\omega_\tau, T, t)$, bei dem die Schwingungsfrequenzen der erlaubten und vom Laser induzierten Übergänge des Systems erkennbar sind. Die Peaks der Übergänge, die von P3 induziert werden, sind über die Zeit T moduliert. Das heißt die Amplitude der Übergänge variiert abhängig von der Zeitverschiebung von P3. Durch eine Fouriertransformation über T erhält man schließlich $I(\omega_\tau, \omega_T, t)$. Dies ist ein zweidimensionales Fourierspektrum, das Peaks an den Frequenzen ω_T aufweist, die zu den Übergängen gehören, die durch das zeitliche Verschieben von P3 induziert werden. Durch Fouriertransformation über t erhält man schließlich $I(\omega_\tau, \omega_T, \omega_t)$, was analog zu den vorher beschriebenen Fouriertransformationen die Energien, die durch die zeitliche Verschiebung von P2 beeinflusst werden, wiedergibt.

In der Simulation werden zunächst Absorptionsspektren für einen dynamischen Puls (P1) und zwei feste Pulse (P2 und P3) erstellt. Diese ergeben einen Time-Delay-Scan für verschiedene Zeitversätze T . Anschließend wird P2 verschoben und es wird erneut ein Time-Delay-Scan aufgenommen. Man nimmt also Time-Delay-Scans für verschiedene Zeitversätze t auf. Dies ergibt einen dreidimensionalen Datensatz mit den Achsen Photonenergie, Time-Delay T und Time-Delay t . Nun wird zunächst in einem Time-Delay-Scan für jede Photonenergie über den Zeitversatz T fouriertransformiert. Anschließend wird das selbe mit dem nächsten Time-Delay-Scan durchgeführt usw. Dies ergibt mehrere zweidimensionale Scans mit der Photonenergie auf einer Achse und der Fourierenergie ω_T auf der anderen. Schließlich wird für jede Photonenergie und für jede Fourierenergie ω_T über alle Zeitversätze t fouriertransformiert, was ω_t ergibt.

4. Simulationen zur Multidimensionalen Spektroskopie mit XUV Pulsen

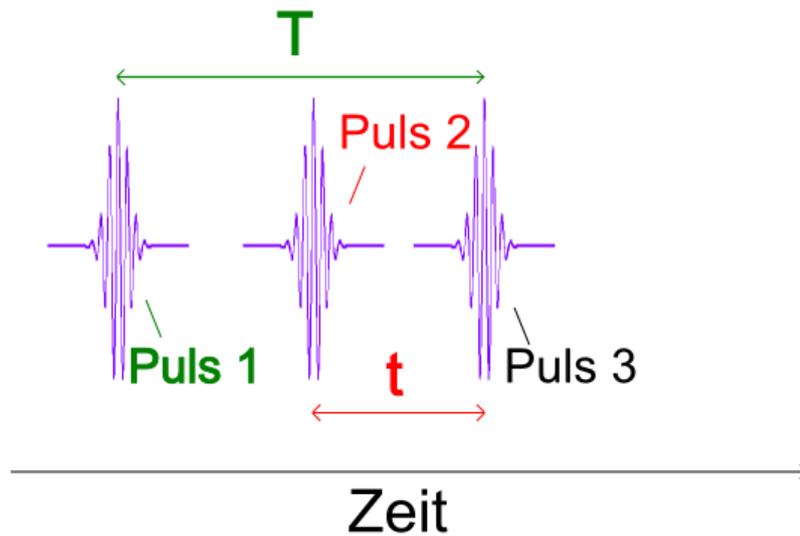


Abbildung 4.3.: In dieser Abbildung ist die Pulsanordnung dargestellt. Drei XUV Pulse sind zeitlich gegeneinander verschoben. Dabei bezeichnet T die Zeitdifferenz zwischen Puls 3 und Puls 1, wohingegen t die Differenz zwischen Puls 3 und Puls 2 darstellt.

4.2. Time-Delay Scan mit zwei dynamischen Pulsen

Die in dieser Simulation verwendete Pulsanordnung ist in Abbildung 4.3 dargestellt. Drei Pulse, von denen einer zeitlich konstant ist, werden im XUV-Bereich erzeugt. Alle drei Pulse haben eine Wellenlänge von 79 nm (15.69 eV), eine Halbwertsbreite (FWHM) von 0.25 fs und eine Intensität von $8.77 \times 10^9 \text{ W cm}^{-2}$. Zunächst werden Puls 3 (P3) und Puls 2 (P2) zeitlich konstant gehalten und Puls 1 (P1) in der Zeit verfahren. Dabei beginnt P1 2.5 fs vor P3 und wird in 0.05 fs-Schritten bis zu einem Delay von 12.4 fs hinter P3 verfahren. Der Nullpunkt des Zeitversatzes liegt dabei bei P3. Bei jedem Verfahrensschritt wird ein Absorptionsspektrum aufgenommen und nach der Durchführung aller Schritte zu einem Time-Delay-Scan zusammengefügt. Anschließend wird P2, der 1.21 fs vor P3 beginnt um einen 0.12 fs-Schritt verschoben. Nun wird erneut ein Time-Delay-Scan aufgenommen, bei dem P1 von -2.5 fs bis 12.4 fs verschoben wird. Dies wird so oft wiederholt, bis der Delay von P2 14.5 fs beträgt. In der Tabelle 4.1 sind die konstanten Parameter der elektrischen Felder, sowie die dynamischen Pulsversatz-Parameter der Drei-Puls-Sequenz zusammengefasst. Darüber hinaus steht die Zeit, die der Split-Step-Operator simuliert, in dieser Tabelle. .

Startzeitpunkt P1:	7.26 fs
Schrittweite P1:	0.05 fs
Endzeitpunkt P1:	21.8 fs
Startzeitpunkt P2:	8.47 fs
Schrittweite P2:	0.12 fs
Endzeitpunkt P2:	14.5 fs
Startzeitpunkt P3:	9.68 fs
Schrittweite P3:	0 fs
Endzeitpunkt P3:	9.68 fs
Zeitschritte Simulation:	2.424 as
Simulationszeit:	242 fs

Tabelle 4.1.: Die dynamischen Pulsversatz-Parameter der Drei-Puls-Sequenz, wobei jeder Puls eine Wellenlänge von 79 nm, eine Halbwertsbreite von 0.25 fs und eine Intensität von $8.77 \times 10^9 \text{ W cm}^{-2}$ besitzt.

4.3. Simulationsergebnisse

In Abbildung 4.4 sind für drei verschiedene Zeitversätze t (gekennzeichnet durch a, b und c) die Time-Delay-Scans (1. Zeile der Graphik), die Fouriertransformation bezüglich des Time-Delays T (2. Zeile der Graphik) und schließlich die Fouriertransformation bezüglich des Zeitversatzes t (3. Zeile der Graphik) dargestellt. In der Abbildung 4.3 ist die Pulsanordnung veranschaulicht. Dabei ist auf der Abszisse die Photonenergie aufgetragen. Auf der Ordinate der Graphiken in der 1. Zeile der Abbildung ist jeweils der Time-Delay T , auf der Ordinate der Graphiken der 2. und 3. Zeile der Abbildung ist jeweils die Fourierenergie ω_T aufgetragen. Die Delay-Zeiten von P2 zu P3, die hier ausgewählt wurden, lauten für die Pulsanordnung a: $t = -2.5$ fs, b: $t = -0.96$ fs und c: $t = 0$ fs. Die gezeigten Fourierenergien ω_t sind für a: $\omega_t = 0$ eV, b: $\omega_t = 8.20$ eV und c: $\omega_t = 13.67$ eV.

Man erkennt in den Time-Delay-Scans die Spektrallinie des Dipol-Übergangs $|2\rangle$ zu $|1\rangle$ bei der Photonenergie $\omega_{2-1} = 10.75$ eV, $\omega_{4-1} = 15.70$ eV und $\omega_{6-1} = 17.05$ eV (siehe Abbildung 4.4 a.1). Der gesamte Scan wird in Time-Delay-Richtung von wellenförmigen Strukturen überlagert (hervorgehoben in Abbildung 4.4 b.1). Des Weiteren erkennt man hyperbolische Strukturen als Funktion des Time-Delays T (Abbildung 4.4 c.1). Diese Strukturen weisen auf Kopplungen zwischen dem Grundzustand und angeregten Zuständen hin, wie in den Fourierdarstellungen (a.2, b.2 und c.2) ersichtlich. Man erkennt eine durchgezogene Diagonale, die bei den entsprechenden Übergangsenergien eine erhöhte Intensität aufweist (hervorgehoben in Abb. 4.4 b.2). Der physikalische Ursprung solcher Diagonalstrukturen kann rein optischer Natur sein und von der spektralen Interferenz der drei XUV-Pulse herrühren. Dies wird in Kapitel 4.4 tiefergehend untersucht. Des Weiteren erkennt man in diesen Abbildungen einige Offdiagonalpeaks bei niedrigen Photonenergien (markiert in Abbildung 4.4 c.2). Diese Peaks deuten auf Übergänge zwischen den angeregten Zuständen hin (z.B. $\omega_{3-2} = 3.36$ eV). Die beteiligten Zustände aller in Abb.

4. Simulationen zur Multidimensionalen Spektroskopie mit XUV Pulsen

4.4 beobachteten Übergangs-Signaturen lassen sich anhand ihrer Position auf der Photonenenergie-Achse identifizieren (Vergleiche hierzu auch das Energie-Termschema des untersuchten Modellatoms in Abb. 4.2).

Die Fouriertransformation bezüglich t ist in den Abbildungen 4.4 a.3, b.3 und c.3 mit den jeweiligen Frequenzen ω_t aufgetragen. Zu beachten ist, dass die Skala der Fourieramplituden für $\omega_t = 0\text{ eV}$ um drei Größenordnungen größer ist als die Skala für die anderen zwei Frequenzen. Für die Bilder wurden die Nullfrequenz ($\omega_t = 0\text{ eV}$), die Frequenz bei halber Energie des Laserpulses ($\omega_t = \frac{\omega_{P2}}{2} = 8.2\text{ eV}$) und eine zufällige Frequenz ($\omega_t = 13.67\text{ eV}$) ausgewählt. Die Abbildung 4.4 a.3 stellt die Anteile des Time-Delay-Scans dar, die nicht von der zeitlichen Verschiebung von P2 verändert werden. Die Frequenz mit der maximalen Intensität (mit Ausnahme der Nullfrequenz), die in Abbildung 4.4 b.3 dargestellt ist, entspricht der halben Photonenenergie des zweiten Pulses. Man erkennt eine Abnahme der Intensität bei der Frequenz $\omega_t = 13.67$ anhand Abbildung 4.4 c.3.

Die Diagonale taucht bei der Fouriertransformation bezüglich des Time-Delays von t nur bei der Nullfrequenz auf. Bei allen anderen Frequenzen ist diese Diagonale nicht mehr vorhanden. Hieraus kann geschlossen werden, dass der zeitliche Versatz von P2 keinen Einfluss auf die Diagonale hat. Die Diagonalpeaks verschwinden ebenfalls bei dieser Fouriertransformation, was bedeutet, dass die zeitliche Verschiebung von P2 die Kopplung zwischen angeregten Zuständen und dem Grundzustand nicht beeinflusst.

In der Abbildung 4.5 ist der Scan für $\omega_t = 8.20\text{ eV}$ (Graphik b.3 aus Abb. 4.4) vergrößert dargestellt. Es sind Peaks bei den eingezeichneten Photonenergien von ω_{3-2} und ω_{4-3} zu erkennen. Die Signaturen dieser Übergänge variieren in Abhängigkeit des Pulsversatzes t . Man sieht aber auch, dass die Peaks für diese Übergänge bei einer bestimmten Fourierenergie liegen. Diese entspricht exakt der Energie des Übergangs von Zustand 3 zu Zustand 2 ($\omega_{3-2} = 3.36\text{ eV}$), in der Abbildung 4.5 dargestellt durch eine horizontale Linie.

Ein weiterer Peak ist bei sehr niedrigen Photonenenergien und bei einer Fourierenergie $\omega_T = \omega_{2-1} = 10.75\text{ eV}$ zu erkennen. Darüber hinaus sind bei dieser Photonenenergie weitere Peaks in zwei Diagonalen erkennbar (siehe Abbildung 4.5).

Die Simulationen zeigen, dass bei einem Experiment mit drei zueinander zeitlich variierbaren Pulsen, die Kopplungen zwischen den Zuständen von beiden Pulsversatzvariablen t und T abhängen. Diese Veränderung der Kopplungs-Signaturen kann durch die Fouriertransformationen entlang beider Zeitversätze dargestellt werden. Führt man sie für beide Time-Delays durch, so erhält man die Energien der Übergänge, die von beiden Time-Delays t und T beeinflusst werden. Diese Energien sind in Form von intensiven Peaks in den fouriertransformierten Time-Delay Scans erkennbar.

Somit kann mithilfe eines Experiments, bei dem es möglich ist drei breitbandige XUV-Pulse zeitlich gegeneinander zu verfahren, die Kopplung von quantenmechanischen Zuständen zeitaufgelöst evaluiert werden. Zum einen ist für den hier betrachteten Fall von Ein-Elektron-Modellatomen die Kopplung zwischen den

4.4. Optische Interferenz von drei superpositionierten XUV-Pulsen

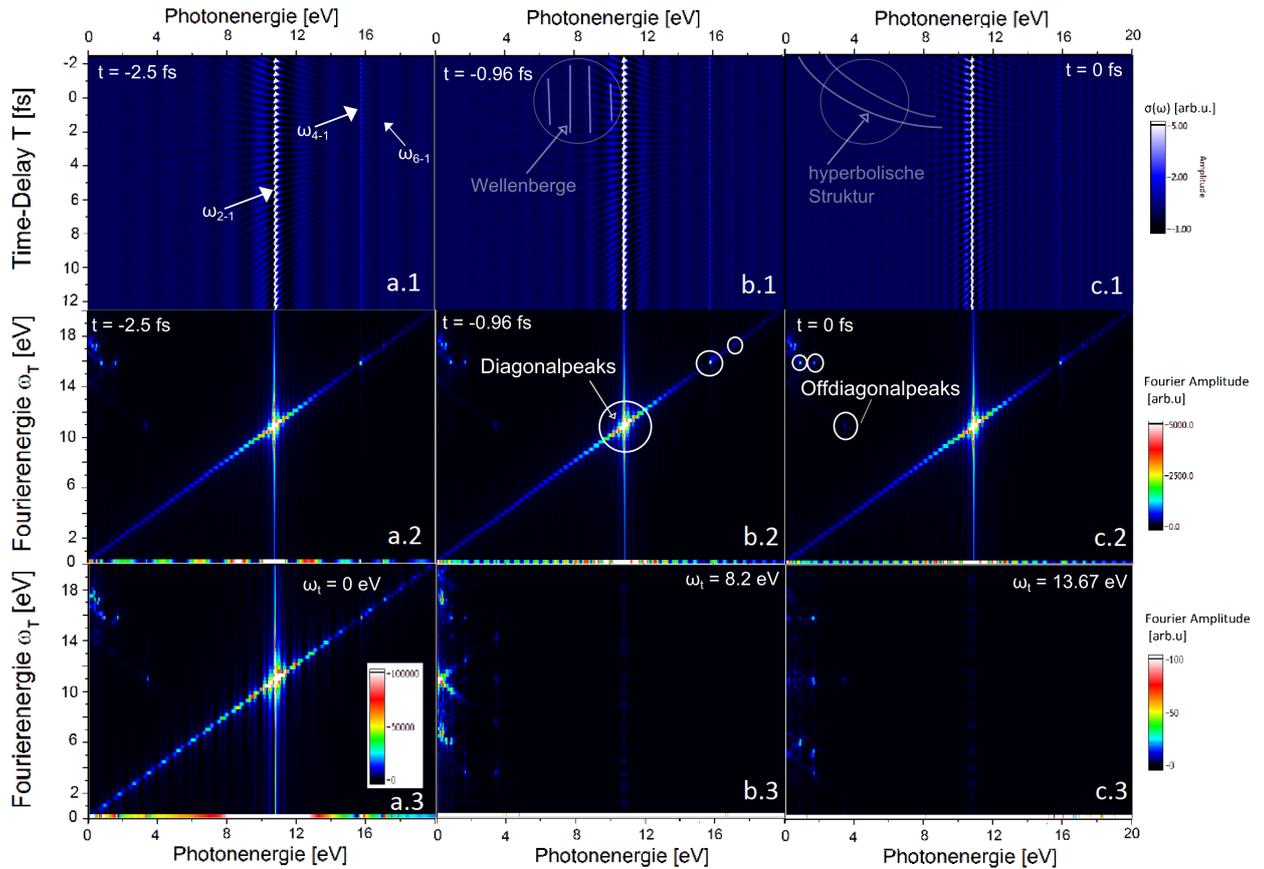


Abbildung 4.4.: In dieser Abbildung sind für drei verschiedene Zeitpunkte t (a, b und c) die Time-Delay-Scans (1), die Fouriertransformation bezüglich des Time-Delays T (2) und schließlich die Fouriertransformation bezüglich t (3) dargestellt. Dabei ist auf der Abszisse die Photonenergie aufgetragen. Auf der Ordinate von 1 ist der Time-Delay, auf der Ordinate von 2 und 3 ist die Fourierenergie ω_T aufgetragen.

angeregten Zuständen und dem Grundzustand nicht offensichtlich vom Time-Delay t abhängig. Zum anderen sind die Signaturen der Dipol-Übergänge zwischen höherliegenden, angeregten Zuständen abhängig vom Time-Delay t .

4.4. Optische Interferenz von drei superpositionierten XUV-Pulsen

In diesem Abschnitt wird die rein optische spektrale Interferenz (bei Abwesenheit des Atompotentials) von drei XUV-Pulsen untersucht. Dabei werden drei Pulse, mit denselben Parametern des elektrischen Feldes wie in Abschnitt 4.2 beschrieben, gegeneinander verfahren. Bezeichnet man einen Puls mit $E_1(\tau)$, so kann man die zwei anderen Pulse mit $E_2 = E_1(\tau + t)$ und $E_3 = E_1(\tau + T)$ bezeichnen. Dabei sind t und T variierbare Zeitversätze. Die Superposition die-

4. Simulationen zur Multidimensionalen Spektroskopie mit XUV Pulsen

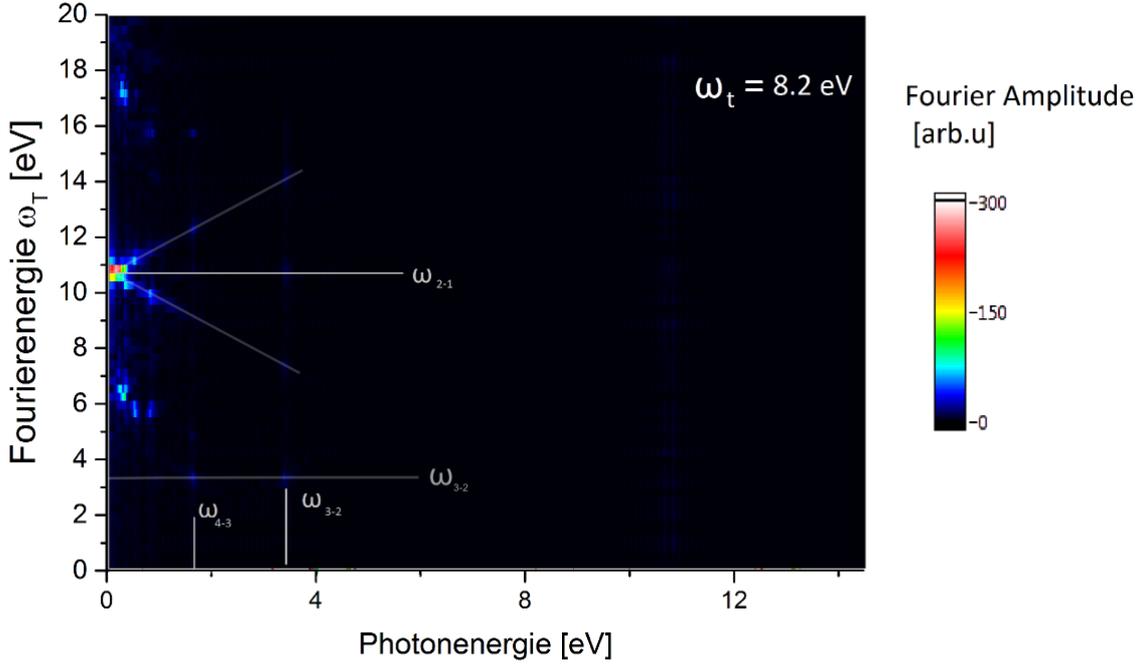


Abbildung 4.5.: In dieser Abbildung ist der Scan für $\omega_t = 8.20$ eV dargestellt. Es sind Peaks bei den Photonenergien ω_{3-2} und ω_{4-3} zu erkennen. Des weiteren erkennt man eine erhöhte Fourieramplitude bei den Fourierenergien ω_{3-2} und ω_{2-1} .

ser drei Pulse ergibt schließlich $E(\tau, T, t) = E_1 + E_2 + E_3$. Nun kann man eine Fouriertransformation in den Spektralraum durchführen. Dabei wird zunächst τ fouriertransformiert, was $E(\omega_\tau, T, t)$ ergibt. Dies gibt die spektrale Interferenz der Pulse wieder. Um zu untersuchen, wie sich diese Interferenz durch Variieren von T und t verändert, wird nacheinander über beide Zeitversatzvariablen eine Fouriertransformation durchgeführt. Dabei erhält man $E(\omega_\tau, \omega_T, t)$ und $E(\omega_\tau, \omega_T, \omega_t)$.

Im Folgenden wurde ein Zeitversatzbereich von -1.25 fs bis 13.29 fs für den Time-Delay T verwendet. Dabei wurde E_3 in 0.05 fs-Schritten verfahren. Für den Time-Delay von t wurde ein Bereich von -1.25 fs bis 4.75 fs bei einer Schrittweite von 0.12 fs verwendet.

In Abbildung 4.6 sind für drei verschiedene Zeitpunkte t (gekennzeichnet durch a, b und c) die Time-Delay-Scans (1. Zeile der Graphik), die Fouriertransformation bezüglich des Time-Delays T (2. Zeile der Graphik) und schließlich die Fouriertransformation entlang des Zeitversatzes t (3. Zeile der Graphik) von der spektralen Interferenz dreier breitbandiger XUV-Pulse dargestellt. Dabei wurden die Abbildungen für die Zeiten $t = -1.25$ fs (a), $t = -0.23$ fs (b) und $t = 1.15$ fs (c) verwendet.

Es sind eine hyperbolische Struktur als Funktion von T (hervorgehoben in b.1) und auch eine Wellenstruktur (gekennzeichnet in c.1) entlang der Photonenergie zu erkennen. Beide Strukturen sind auch in der *ab initio* Simulation zu

4.4. Optische Interferenz von drei superpositionierten XUV-Pulsen

beobachten (siehe Abb. 4.4). Die Fouriertransformation entlang des Zeitversatzes T führt zu einer Diagonalen, die abhängig von der Anzahl der Wellenberge Lücken aufweist (markiert in b.2 und c.2). Zu beachten ist, dass die Anzahl der Wellenberge mit dem Zeitversatz t des zweiten Pulses vom festen Puls abhängt. Bei einem großem Time-Delay zeigt sich eine größere Anzahl von Wellenbergen, als bei kleinem Time-Delay. Bei der Fouriertransformation entlang des Zeitversatzes t (3. Zeile der Graphik) erkennt man für $\omega_t = 0$ eine Diagonale ohne Lücken. Die Interferenz, die sowohl durch den Zeitversatz T als auch durch den Zeitversatz t manipuliert wird, ist in b.3 und c.3 dargestellt. Des Weiteren sind Intensitätspeaks auf der Diagonalen zu erkennen (in b.3 und c.3 markiert). Dabei stimmen die Photonenergie und die durch die Fouriertransformation entlang der Time-Delays T und t erhaltenen Energien überein. Für b.3 gilt: $\omega_{Photon} = \omega_T = \omega_t = 8.2 \text{ eV}$, wohingegen für c.3 gilt: $\omega_{Photon} = \omega_T = \omega_t = 13.68 \text{ eV}$.

Der offensichtliche Unterschied zwischen den Abbildungen 4.4 und 4.6 sind die Offdiagonalpeaks, die nur in der Simulation zur multidimensionalen Spektroskopie auftauchen. Die Diagonalstruktur ist für beide Simulationen bei der Fouriertransformation entlang des Zeitversatzes T erkennbar, wohingegen diese Diagonalstruktur bei der Simulation zur multidimensionalen Spektroskopie für die Fouriertransformation entlang beider Zeitversätze T und t verschwindet. Bei der Simulation der optischen Interferenz von drei superpositionierten XUV-Pulsen sind in der Fouriertransformation entlang beider Zeitversätze noch Diagonalpeaks zu erkennen. Diese Diagonalpeaks würde man auch bei der multidimensionalen Spektroskopie von drei XUV-Pulsen erwarten, konnten dort aber bislang nicht beobachtet werden. Das genaue Verständnis der zwei- und dreidimensionalen Strukturen im 2/3D Spektrum übersteigt den zeitlichen Rahmen dieser Arbeit und wird Gegenstand zukünftiger Untersuchungen sein. Hierzu müssen auch Intensitätsabhängigkeiten der 3 Pulse berücksichtigt werden, wobei zu beachten ist dass die Berechnung eines 3D Spektrums selbst im Fall des einfachen Modellatoms auf einem PC eine Zeitdauer von mehreren Tagen in Anspruch nimmt.

4. Simulationen zur Multidimensionalen Spektroskopie mit XUV Pulsen

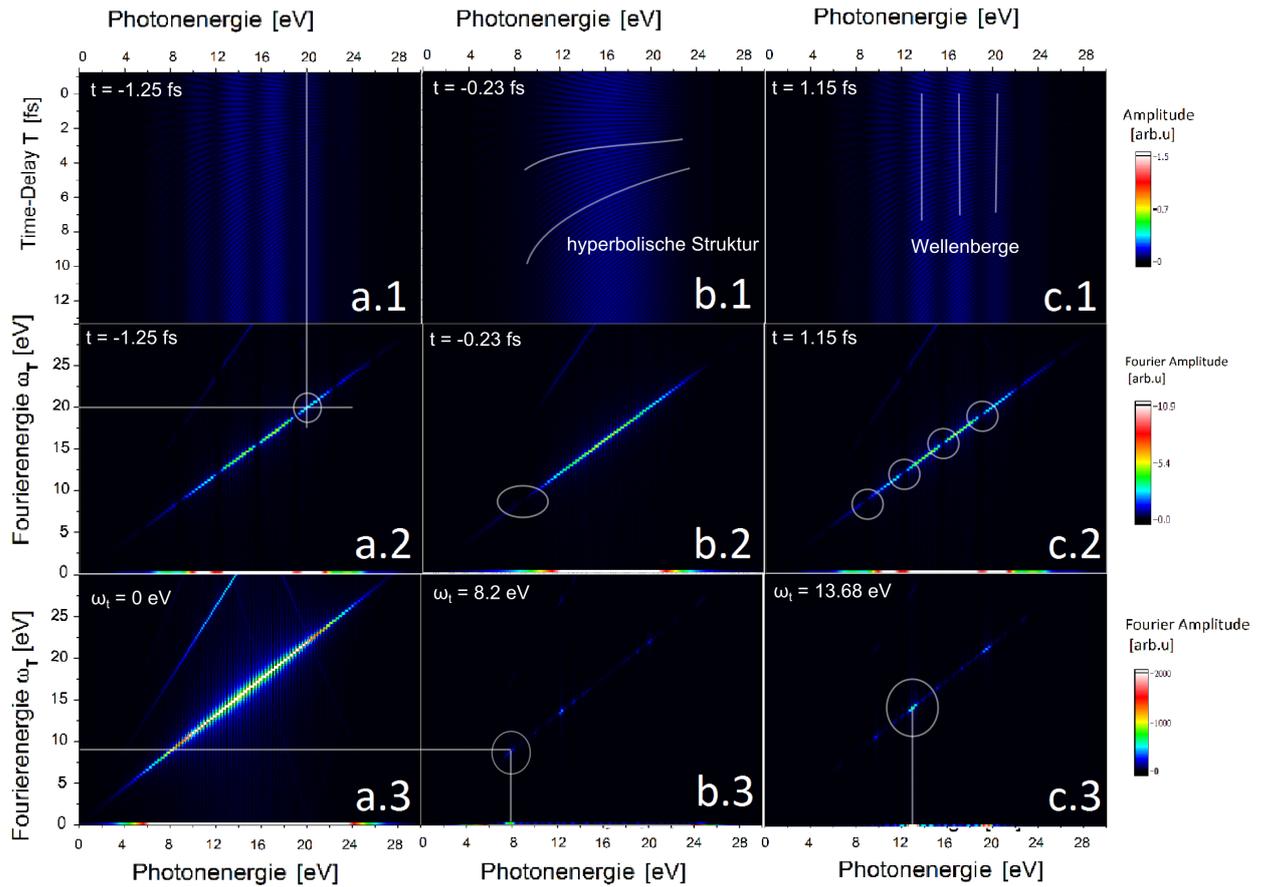


Abbildung 4.6.: In dieser Abbildung sind für drei verschiedene Zeitpunkte t (a, b und c) die Time-Delay-Scans (1), die Fouriertransformation bezüglich des Time-Delays T (2) und schließlich die Fouriertransformation bezüglich t (3) von der spektralen Interferenz dreier breitbandiger XUV-Pulse dargestellt. Dabei ist auf der Abszisse die Photonenergie aufgetragen. Auf der Ordinate der Bilder in Zeile 1 ist der Time-Delay, auf der Ordinate der Bilder in den Zeilen 2 und 3 ist die Fourierenergie ω_T aufgetragen.

5. Schlussfolgerungen und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die multidimensionale Spektroskopie mit breitbandigen Pulsen im extrem ultravioletten (XUV) Spektralbereich untersucht. Der erste Teil dieser Arbeit beschäftigt sich mit dem Aufbau eines Detektors für die erste Ordnung der an einem Gitter gebeugten XUV-Strahlung. Im Experiment wechselwirkt diese gebeugte Strahlung nicht mit den Targetatomen. Ihr Spektrum wird bei der Datenaufbereitung nach dem Lambert-Beerschen Gesetz als Referenz genutzt. Zu diesem Aufbau wurde im ersten Teil dieser Arbeit die Detektion eines Referenzpulses mithilfe eines Gitters und einer CCD-Kamera ermittelt. Dabei wurde zunächst durch trigonometrische Berechnungen die Orte der Foki für verschiedene Wellenlängen in Abhängigkeit der Gitterkonstanten berechnet. Mithilfe dieser Verteilung konnte ein möglicher Aufbau, bestehend aus einem rotierbaren Spiegel und einer CCD-Kamera, für die Detektion der +1. Ordnung vorgestellt werden. Mithilfe eines Ray-Tracing Codes wurde die Verteilung und Fokussierung von Strahlenbündel verschiedener Wellenlängen für den geplanten Aufbau untersucht, um Angaben über die Energieauflösung dieses Spektrometers zu erhalten. Die Energieauflösung für die niedrigen zu untersuchenden Energien (20 eV) für das 1200 nm^{-1} -Gitter beträgt $\frac{\Delta E}{E} = 0.02$. Die Auflösung $\frac{\Delta E}{E} = \frac{20.5-20}{20} = 0.025$, um durch HHG erzeugte Pulse auflösen zu können, wird mit diesem Aufbau also erreicht, wobei für größere Energien eine deutlich bessere Auflösung erreicht wird ($\frac{\Delta E}{E} = 0.0005$ für 120 eV). Durch Tausch des Gitters mit einem Gitter anderer Strichdichte kann des Spektrometer auf den zu untersuchenden Energiebereich angepasst werden.

Im zweiten Teil dieser Arbeit wurde eine *ab initio* Simulation zur multidimensionalen Spektroskopie mit drei XUV-Pulsen durchgeführt. Mithilfe von LabVIEW wurde die Schrödingergleichung mit dem Split-Step-Operator und einem Modellatom mit Softcore-Potential gelöst und die Dipolantwort des Systems berechnet. Anschließend wurde ein Time-Delay-Scan durch das zeitliche Verfahren eines Pulses aufgenommen. Eine Serie von solchen Time-Delay-Scans wurde durch das zeitliche Verfahren eines zweiten Pulses erstellt. Nach der Durchführung der Fouriertransformation entlang der Zeitversätze dieser zwei Pulse, wurden Kopplungen zwischen quantenmechanischen Zuständen zeitaufgelöst untersucht. Die Übergänge zwischen angeregten Zuständen waren auf den über beide Zeitversätze fouriertransformierten Abbildungen zu erkennen, wohingegen die Übergänge zwischen dem Grundzustand und den angeregten Zuständen (Diagonale) nicht mehr vorhanden waren. Die spektrale Interferenz von drei XUV-Pulsen konnte analog hierzu untersucht und mit der *ab initio* Simulation verglichen werden. Dabei wurden bei beiden Simulationen ähnliche Strukturen identifiziert. Diese Simulationen dienen als erster Anhaltspunkt für geplante Messungen und weiteres Verständnis der beobachteten Strukturen im

5. Schlussfolgerungen und Ausblick

multidimensionalen Spektrum.

A. Anhang

A.1. Tabellen zur Fokusberechnung für verschiedene Gitter

Tabelle A.1.: Gitterkonstante 600/cm

Energie [eV]	Ordnung	Abszisse [cm]	Ordinate [cm]	Focusweite [cm]	Winkel [°]
20	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
30	-1	16,48544	2,26134	16,63982	7,81
40	-1	27,65347	4,92253	28,08818	10,09
50	-1	34,25202	6,80975	34,92239	11,24
60	-1	38,60869	8,17218	39,46411	11,95
70	-1	41,69993	9,19257	42,70114	12,43
80	-1	44,00706	9,98242	45,12505	12,78
90	-1	45,79483	10,61081	47,00804	13,05
100	-1	47,22084	11,12216	48,51299	13,25
110	-1	48,38480	11,54613	49,74336	13,42
120	-1	49,35286	11,90322	50,76801	13,56
20	1	118,76880	47,41329	127,88295	21,76
30	1	99,95668	35,90382	106,20933	19,76
40	1	90,24700	30,50991	95,26477	18,68
50	1	84,32326	27,40094	88,66355	18
60	1	80,33312	25,38456	84,24836	17,54
70	1	77,46289	23,97296	81,08762	17,2
80	1	75,29919	22,93039	78,71322	16,94
90	1	73,60977	22,12926	76,86418	16,73
100	1	72,25410	21,49463	75,38351	16,57
110	1	71,14218	20,97957	74,17110	16,43
120	1	70,21371	20,55328	73,16011	16,32

A. Anhang

Tabelle A.2.: Gitterkonstante 900/cm

Energie [eV]	Ordnung	Abszisse [cm]	Ordinate [cm]	Focusweite [cm]	Winkel [°]
20	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
30	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
40	-1	10,82063	1,20837	10,88789	6,37
50	-1	20,97834	3,24557	21,22791	8,79
60	-1	27,65347	4,92253	28,08818	10,09
70	-1	32,37451	6,25067	32,97241	10,93
80	-1	35,88973	7,31134	36,62688	11,51
90	-1	38,60869	8,17218	39,46411	11,95
100	-1	40,77436	8,88246	41,73065	12,29
110	-1	42,54000	9,47740	43,58294	12,56
120	-1	44,00706	9,98242	45,12505	12,78
20	1	145,48895	66,23038	159,85461	24,48
30	1	118,76880	47,41329	127,88295	21,76
40	1	104,73537	38,69457	111,65467	20,28
50	1	96,09723	33,71549	101,84013	19,33
60	1	90,24700	30,50991	95,26477	18,68
70	1	86,02328	28,27906	90,55225	18,2
80	1	82,83081	26,63940	87,00920	17,83
90	1	80,33312	25,38456	84,24836	17,54
100	1	78,32573	24,39388	82,03646	17,3
110	1	76,67719	23,59222	80,22458	17,1
120	1	75,29919	22,93039	78,71322	16,94

A.1. Tabellen zur Fokusberechnung für verschiedene Gitter

Tabelle A.3.: Gitterkonstante 1200/cm

Energie	Ordnung	Abszisse	Ordinate	Focusweite	Winkel
[eV]		[cm]	[cm]	[cm]	[°]
20	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
30	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
40	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
50	-1	7,39508	0,68946	7,42715	5,33
60	-1	16,48544	2,26134	16,63982	7,81
70	-1	22,89336	3,70145	23,19066	9,18
80	-1	27,65347	4,92253	28,08818	10,09
90	-1	31,32876	5,94679	31,88817	10,75
100	-1	34,25202	6,80975	34,92239	11,24
110	-1	36,63258	7,54307	37,40112	11,64
120	-1	38,60869	8,17218	39,46411	11,95
20	1	170,44353	86,59511	191,17979	26,93
30	1	136,78019	59,77023	149,26922	23,6
40	1	118,76880	47,41329	127,88295	21,76
50	1	107,57830	40,39760	114,91326	20,58
60	1	99,95668	35,90382	106,20933	19,76
70	1	94,43322	32,79004	99,96409	19,15
80	1	90,24700	30,50991	95,26477	18,68
90	1	86,96513	28,77045	91,60062	18,31
100	1	84,32326	27,40094	88,66355	18
110	1	82,15090	26,29538	86,25669	17,75
120	1	80,33312	25,38456	84,24836	17,54

A. Anhang

Tabelle A.4.: Gitterkonstante 2400/cm

Energie [eV]	Ordnung	Abszisse [cm]	Ordinate [cm]	Focusweite [cm]	Winkel [°]
20	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
30	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
40	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
50	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
60	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
70	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
80	-1	n.a.	n.a.	n.a.	n.a.
90	-1	1,23644	0,05566	1,23769	2,58
100	-1	7,39508	0,68946	7,42715	5,33
110	-1	12,37100	1,47394	12,45850	6,79
120	-1	16,48544	2,26134	16,63982	7,81
20	1	253,32776	178,70314	310,01575	35,2
30	1	201,03224	115,68359	231,94106	29,92
40	1	170,44353	86,59511	191,17979	26,93
50	1	150,61995	70,18940	166,17136	24,99
60	1	136,78019	59,77023	149,26922	23,6
70	1	126,58539	52,61248	137,08368	22,57
80	1	118,76880	47,41329	127,88295	21,76
90	1	112,58759	43,47632	120,69033	21,11
100	1	107,57830	40,39760	114,91326	20,58
110	1	103,43711	37,92748	110,17136	20,14
120	1	99,95668	35,90382	106,20933	19,76

A.2. Nebenrechnungen zur Bestimmung der Foki

A.2.1. Berechnung von γ und d

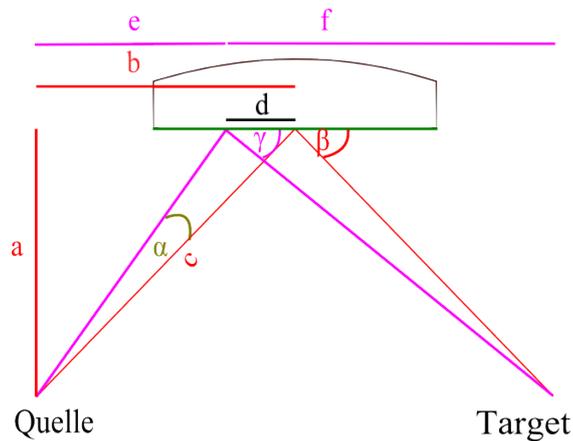


Abbildung A.1.: Bestimmung von γ und d

Es gilt:

$$\tan(\beta + \alpha) = \frac{a}{e} \quad \tan(\beta) = \frac{a}{b} \quad (\text{A.1})$$

$$\tan(\gamma) = \frac{a}{f} \quad \cos(\beta) = \frac{b}{c} \quad (\text{A.2})$$

$$\sin(\beta) = \frac{a}{c} \quad (\text{A.3})$$

$$e + f = 2 \cdot b \quad (\text{A.4})$$

$$\frac{a}{\tan(\beta + \alpha)} + \frac{a}{\tan(\gamma)} = 2 \cdot \cos(\beta) \cdot c \quad (\text{A.5})$$

$$\Rightarrow \sin(\beta) \cdot c \cdot \left[\frac{1}{\tan(\beta + \alpha)} + \frac{1}{\tan(\gamma)} \right] = 2 \cdot \cos(\beta) \cdot c \quad (\text{A.6})$$

$$\Rightarrow \left[\frac{1}{\tan(\beta + \alpha)} + \frac{1}{\tan(\gamma)} \right] = \frac{2 \cdot \cos(\beta)}{\sin(\beta)} \quad (\text{A.7})$$

$$\Rightarrow \frac{1}{\tan(\gamma)} = \frac{2}{\tan(\beta)} - \frac{1}{\tan(\beta + \alpha)} \quad (\text{A.8})$$

$$\Rightarrow \gamma = \arctan \left(\left[\frac{2}{\tan(\beta)} - \frac{1}{\tan(\beta + \alpha)} \right]^{-1} \right) \quad (\text{A.9})$$

A. Anhang

$$d = b - e \quad (\text{A.10})$$

$$\Rightarrow d = \frac{a}{\tan(\beta)} - \frac{a}{\tan(\beta) + \alpha} \quad (\text{A.11})$$

$$\Rightarrow d = \sin(\beta) \cdot c \cdot \left[\frac{1}{\tan(\beta)} - \frac{1}{\tan(\beta + \alpha)} \right] \quad (\text{A.12})$$

A.2.2. Berechnung von δ , ϵ und j

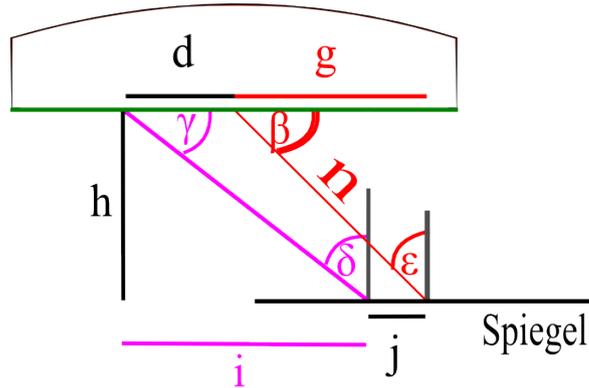


Abbildung A.2.: Bestimmung von δ , ϵ und j

$$\delta = 90 - \gamma \quad (\text{A.13})$$

$$\epsilon = 90 - \beta \quad (\text{A.14})$$

$$g = \cos(\beta) \cdot n \quad h = \sin(\beta) \cdot n \quad (\text{A.15})$$

$$i = \frac{h}{\tan(\gamma)} = \frac{\sin(\beta) \cdot n}{\tan(\gamma)} \quad (\text{A.16})$$

$$j = d + g - i \quad (\text{A.17})$$

$$\Rightarrow j = d + \cos(\beta) \cdot n - \frac{\sin(\beta) \cdot n}{\tan(\gamma)} \quad (\text{A.18})$$

A.2.3. Berechnung von x , y und z

Nach der Gittergleichung 2.28 gilt:

$$\zeta = \arcsin \left(\frac{m \cdot \lambda}{u} - \sin(\delta) \right) \quad (\text{A.19})$$

$$\eta = \arcsin \left(\frac{m \cdot \lambda}{u} - \sin(\epsilon) \right) \quad (\text{A.20})$$

$$(\text{A.21})$$

A.2. Nebenrechnungen zur Bestimmung der Foki

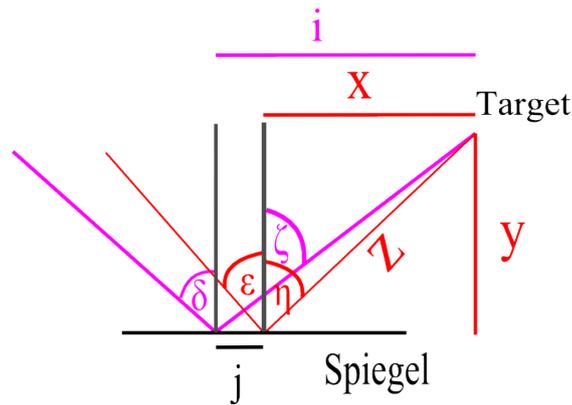


Abbildung A.3.: Bestimmung von x , y und z

Dabei ist m die Beugungsordnung λ die Wellenlänge und u die Gitterkonstante. Zu erwähnen hierbei ist die Tatsache, dass die Winkel ζ und η per Konvention negativ definiert sind (siehe Grundlagen Kapitel 2.5.4). Da der Koordinatenursprung auf dem Gitter liegt (siehe Abbildung A.4), wird im Folgenden mit negativem ζ und η gerechnet.

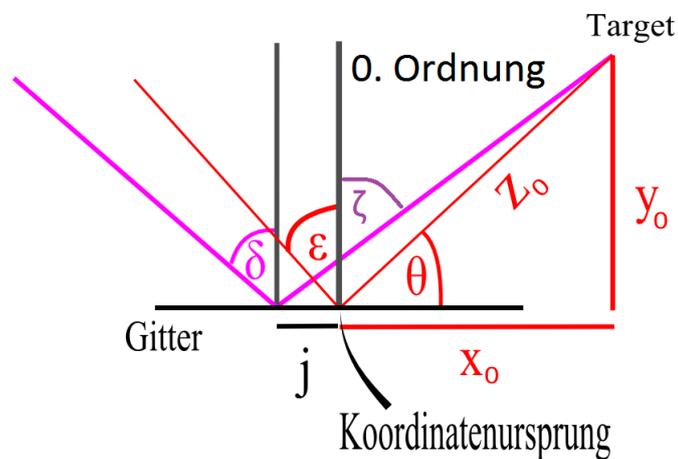


Abbildung A.4.: Bestimmung von x , y und z

A. Anhang

$$\tan(-\zeta) = \frac{i}{y} \quad \tan(-\eta) = \frac{x}{y} \quad i = x + j \quad (\text{A.22})$$

$$\Rightarrow \frac{x + j}{\tan(-\zeta)} = \frac{x}{\tan(-\eta)} \quad (\text{A.23})$$

$$\Rightarrow x + j = x \cdot \frac{\tan(-\zeta)}{\tan(-\eta)} \quad (\text{A.24})$$

$$\Rightarrow j = x \left(\frac{\tan(-\zeta)}{\tan(-\eta)} - 1 \right) \quad (\text{A.25})$$

$$\Rightarrow x = j \cdot \left(\frac{\tan(-\zeta)}{\tan(-\eta)} - 1 \right)^{-1} \quad (\text{A.26})$$

$$\Rightarrow y = \frac{x}{\tan(-\eta)} \quad (\text{A.27})$$

$$\Rightarrow z = \sqrt{x^2 + y^2} \quad (\text{A.28})$$

Literaturverzeichnis

- [1] SHADOW, Ray-Tracing Software, Nanotech-Wisconsin, University of Wisconsin, <http://www.esrf.eu/computing/scientific/raytracing/>.
- [2] P. Hamm, M. Zanni: Concepts and Methods of 2D Infrared Spectroscopy, Cambridge University Press (2011)
- [3] J. Eichler, H.J.Eichler: Laser - Bauformen, Strahlführung, Anwendungen, Springer Verlag, 6. Auflage (2006)
- [4] C. Ott, Attosecond multidimensional interferometry of single and two correlated electrons in atoms, Ph.D thesis, Universität Heidelberg (2012)
- [5] Palmer, Christopher, Diffraction Grating Handbook, 6th edition, Newport Corporation (2005)
- [6] T. Pfeifer, Adaptive control of coherent soft x-rays, Ph.D. thesis, Universität Würzburg (2004)
- [7] C. Ott, Erzeugung, Fokussierung und Charakterisierung Hoher Harmonischer, Diplomarbeit, Universität Würzburg (2008)
- [8] Bohr, N.: On the constitution of atoms and molecules: papers of 1913 reprinted from the Philosophical magazine. Munksgaard, 1963 (On the Constitution of Atoms and Molecules: Papers of 1913 Reprinted from the Philosophical Magazine Bd. 1)
- [9] Demtröder, Wolfgang: Experimentalphysik 3. Springer-Verlag, (2010)
- [10] T. Ding, Modellatom mit zwei Elektronen in jeweils einer Raumdimension in Wechselwirkung mit XUV- und IR-Laserfeldern (Bachelorarbeit), 2011.
- [11] J. Javanainen, J. H. Eberly, and Q. C. Su. Numerical Simulations of Multiphoton Ionization and Above-threshold Electron-spectra. Phys. Rev. A 38, 3430–3446 (1988).
- [12] R. Heck, Erzeugung hoher Harmonischer durch Interferenz freier Elektronenwellenpakete / Charakterisierung und Einrichtung eines Toroidalspiegels (Bachelorarbeit), 2010
- [13] Demtröder, Wolfgang: Laserspektroskopie, Grundlagen und Techniken. Springer, Berlin, 5. Auflage (2007)

Danksagung

Zunächst möchte ich mich bei Thomas Pfeifer für die Möglichkeit mich in einem neuartigen Experiment zu beteiligen und die Bachelorarbeit in der INTERATTO-Gruppe durchzuführen, bedanken.

Ganz speziell möchte ich mich bei Thomas Ding bedanken, der mir sehr viele Hinweise und Erklärungen sowohl zum Experiment, als auch zur Simulation gegeben hat.

Außerdem danke ich Alexander Blättermann, Kristina Meyer, Marc Rebholz und Veit Stooß, die mir während dieser Arbeit geholfen haben.

Darüber hinaus gilt ein Dank allen Mitgliedern der INTERATTO- Gruppe für die freundschaftliche Zusammenarbeit.

Erklärung

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

Heidelberg, den ...,