

**Fakultät für Physik und Astronomie  
Universität Heidelberg**

Bachelorarbeit in Physik  
eingereicht von

**Lukas Endres**

geboren in Bamberg (Deutschland)

**2017**



# Polarisation Assisted Amplitude Gating

Diese Bachelorarbeit wurde erarbeitet von Lukas Endres am  
Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg  
unter der Aufsicht von  
Prof. Dr. Thomas Pfeifer



**Polarisation Assisted Amplitude Gating** is a recently developed method to produce isolated attosecond pulses. This thesis is about investigating the functionality of this method as an integration into an existing high harmonic beamline. Some further measurements regarding the lasers polarisation and dispersion are executed. The measured frequency spectra of the produced high harmonic light will be discussed and an outlook to future improvements will be given.

**Polarisation Assisted Amplitude Gating** ist eine Möglichkeit, isolierte Attosekundenpulse zu erzeugen. In dieser Arbeit wird die Funktionsweise dieser Methode in Verbindung mit dem zur Verfügung stehenden Lasersystem diskutiert. Im Zuge dessen werden Aspekte wie Polarisation und Dispersion des Laserlichts untersucht. Die aufgenommenen Spektren des erzeugten Lichts Hoher Harmonischer werden diskutiert. Abschließend wird im Ausblick erklärt, wie in Zukunft die Verwendung des Polarisation Assisted Amplitude Gates optimiert werden könnte.



# Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	3
2.1	Die elektromagnetische Beschreibung von Licht . . . . .	3
2.2	Zusammenhänge zwischen Zeit- und Frequenzraum . . . . .	5
2.3	Die Phasenfunktion . . . . .	5
2.4	Propagationseffekte . . . . .	7
2.4.1	Dispersion . . . . .	8
2.4.2	High Harmonic Generation . . . . .	9
2.5	Polarisation und deren Manipulation . . . . .	12
2.6	PASSAGE . . . . .	15
3	Experiment	19
3.1	Polarisationsmessungen . . . . .	19
3.2	Chirped Mirror Compressor . . . . .	20
3.3	PASSAGE . . . . .	22
4	Messergebnisse	24
4.1	Energiekalibrierung . . . . .	24
4.2	Spektren . . . . .	27
4.2.1	Amplitude Gate oder Polarisation Gate . . . . .	30
4.2.2	PASSAGE . . . . .	33
5	Zusammenfassung und Ausblick	40
	Literaturverzeichnis	i



# 1 Einleitung

Seit die Quantentheorie zu Beginn des 20. Jahrhunderts die physikalische Welt erobert hat, nimmt das Verständnis im Bezug auf die kleinsten Bausteine des Universums kontinuierlich zu. War es zu Beginn nur das Bohrsche Atommodell, in dem negativ geladene Elektronen auf festen Bahnen um einen positiv geladenen Kern kreisen, entwickelte sich daraus eine fundamental neue Theorie, in der eine probabilistische Welt beschrieben wird, die rein durch unseren Anblick zu einem von vielen möglichen Zuständen kollabiert. Man entdeckte, dass es für Elektronen Bereiche innerhalb eines Atoms gibt, in denen sie sich besonders wahrscheinlich aufhalten, sogenannte Orbitale. Diese Anschauung war zum Zeitpunkt ihrer Entdeckung so revolutionär, so weit weg von der damals allgemein anerkannten Theorie, dass Werner Heisenberg über Max Planck, einen Mitbegründer der Quantenphysik, schrieb: „Auf diesem Weg hätte er ihm auseinandergesetzt, dass er das Gefühl habe, entweder eine Entdeckung allerersten Ranges gemacht zu haben, vielleicht vergleichbar mit der Entdeckung Newtons, oder sich völlig zu irren. Planck muß sich also um diese Zeit darüber klar geworden sein, dass seine Formel die Grundlagen der Naturbeschreibung erschütterte“ [1, Seite 5]. Man führte Quantenzahlen ein, um die neu entdeckten Zustände zu charakterisieren und bis heute konnte noch kein Experiment erdacht werden, das die Systematik hinter diesen Quantenzahlen ernstzunehmend in Frage stellen könnte.

Wir scheinen allen Informationen zufolge die Zustände von Elektronen in Atomen und Molekülen mittlerweile sehr genau zu verstehen. Allerdings fehlte uns bisher ein vollständiger Zugang zu den Abläufen, die hinter diesen Zuständen stehen, den Prozessen, die auf elektronischer Ebene z.B. bei der Entstehung einer Molekülbindung ablaufen. Theoretisch wird dies durch die Quantenmechanik beschrieben, nachzulesen in [2], experimentell bedient man sich verschiedener zeitaufgelöster Spektroskopiemethoden.

Diese Arbeit soll eine Einführung in den Umgang mit zeitlich stark komprimierten Lichtpulsen geben, welche sich theoretisch dazu eignen, quantenmechanische Prozesse zeitlich aufzulösen und uns so einen Einblick

in die Abläufe innerhalb der Atome ermöglichen können. Eine explizite Anwendung wird beispielsweise in [3] vorgestellt. Es wird ein Überblick über die allgemeinsten Eigenschaften von Licht wie z.B. Polarisation und Propagationseffekte, die mathematische Beschreibung, sowie Erklärungen zu experimentenspezifischen Themen wie der Erzeugung von Attosekunden-Pulsen und dem Umgang mit ultrakurzen Lichtpulsen gegeben. Das durchgeführte Experiment überprüft die Funktionalität einer Variante isolierte Attosekundenpulse ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ) zu erzeugen, dem sogenannte Polarisation ASSisted Amplitude Gate (PASSAGE).

## 2 Theoretische Grundlagen

Bevor auf die Eigenschaften von zeitlich stark komprimierten Lichtpulsen eingegangen werden kann, müssen zunächst die dafür benötigten Grundlagen der mathematischen Beschreibung und einige Eigenschaften von Licht verstanden werden. Die folgenden Erklärungen sollen Schritt für Schritt die Theorie aufbauen, die nötig ist, um das Polarisation Gate und die erzeugten Lichtpulse in den Grundzügen zu verstehen. Im Laufe der Ausführungen werden manche englischen Fachbegriffe nicht ins Deutsche übersetzt, da diese im Englischen geläufiger sind.

### 2.1 Die elektromagnetische Beschreibung von Licht

Um an die Einleitung anzuknüpfen, soll hier erwähnt sein, dass zu Beginn des 20. Jahrhundert nicht nur der Welle-Teilchen-Dualismus von Elektronen, die sich erst bei Betrachtung dazu entscheiden, sich wie Teilchen zu verhalten, sondern ein ähnliches Modell auch für Licht entwickelt wurde. Man fing an, Licht-Teilchen (Photonen) Größen zuzuordnen, wie z.B. einen Impuls, den man zuvor nur mit fester Materie in Verbindung brachte. Da Photonen keine Masse besitzen, bedient man sich für die Berechnung ihres Impulses deren Wellenlänge  $\lambda$ . Hier soll Licht als Welle beschrieben werden, die mathematisch mit Hilfe eines komplexen, elektrischen Felds  $\vec{E}(t, \vec{x}) \in \mathbb{C}^2$  beschrieben wird. Experimentell beschäftigt man sich mit reellen, ortsfesten Größen  $\mathcal{E}(t)$ , wobei der Zusammenhang zwischen komplexer und reeller Größe im Allgemeinen durch  $\mathcal{E}(t) = 2\text{Re}[E(t)]$  gegeben ist. Um die weitere Berechnungen zu erleichtern, fixiert man einen Punkt im Raum und erhält so einen komplexen E-Feldvektor im Frequenz- bzw. Zeitraum, welche über die Fouriertransformation verknüpft sind. Im Folgenden wird immer jeweils nur eine Raumkomponente des E-Feld-Vektors betrachtet:

$$\hat{E}(\omega) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} E(t) e^{-i\omega t} dt. \quad (2.1)$$

$$E(t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{+\infty} \hat{E}(\omega) e^{+i\omega t} d\omega. \quad (2.2)$$

Es sei angemerkt, dass sowohl  $E(t)$ , als auch  $\hat{E}(\omega)$  im Schwarzraum enthalten sein müssen, da eine Rücktransformation sonst nicht ohne weiteres möglich ist. Mathematisch könnte dieser Zusammenhang weit ausgebreitet werden, dies soll hier jedoch nicht getan werden. Wir begnügen uns mit der Annahme, dass wir bedenkenlos von Zeit- in Frequenzraum und zurück transformieren können, da Lichtpulse, wie wir sie experimentell verwenden, in beiden Darstellungen intuitiv nach außen hin gegen Null konvergieren und dies eine der zentralen Anforderungen an Funktionen im Schwarzraum ist.

Da wir uns in der Praxis mit Lichtpulsen beschäftigen, führen wir an dieser Stelle eine alternative, aber analoge Beschreibung des E-Felds ein, die dafür sehr hilfreich ist. Das Feld wird in einen Amplituden- und einen Phasenteil aufgeteilt:

$$E(t) = A(t) \cdot e^{i\phi(t)}. \quad (2.3)$$

$$\hat{E}(\omega) = \hat{A}(\omega) \cdot e^{i\hat{\phi}(\omega)}. \quad (2.4)$$

Mittelt man das E-Feld über eine optische Periode  $T$  erhält man die spektrale und zeitliche Intensität  $I(\omega)$  und  $I(t)$ :

$$\hat{I}(\omega) = 2\epsilon_0 cn |\hat{E}(\omega)|^2, \quad (2.5)$$

$$= 2\epsilon_0 cn \hat{A}(\omega)^2, \quad (2.6)$$

$$I(t) = \epsilon_0 cn \frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} \mathcal{E}(t')^2 dt', \quad (2.7)$$

$$\approx 2\epsilon_0 cn A(t)^2, \quad (2.8)$$

mit der dielektrischen Permittivität  $\epsilon_0$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$  und dem Brechungsindex  $n$  des Mediums, in dem der Puls propagiert. Dabei wurde für die Abschätzung in Gleichung (2.8)  $\left| \frac{d}{dt} A(t) \right| \ll \frac{2\pi}{T} |A(t)|$  verwendet, d.h. die einhüllende Amplitude variiert nur langsam im Vergleich zur zeitlichen Länge eines optischen Zyklus  $T$ .

## 2.2 Zusammenhänge zwischen Zeit- und Frequenzraum

Die quantenmechanische Ort-Impuls-Unschärfe, die besagt, dass das Produkt der Ungenauigkeiten keinen beliebig kleinen Wert annehmen kann, basiert auf dem Fourier-Transformations-Limit (FTL). Ebenso existiert dieses Limit bei der Betrachtung von Zeit- und Frequenzraum. In unserem Fall kann nur ein breites Frequenzspektrum einen zeitlich kurzen Puls erzeugen. Definiert ist dieser Zusammenhang über das Produkt der jeweiligen Breite, z.B. dem Full Width at Half Maximum (FWHM):

$$\Delta t_{FWHM} \cdot \Delta \omega_{FWHM} \geq 2\pi c_{FTL}, \quad (2.9)$$

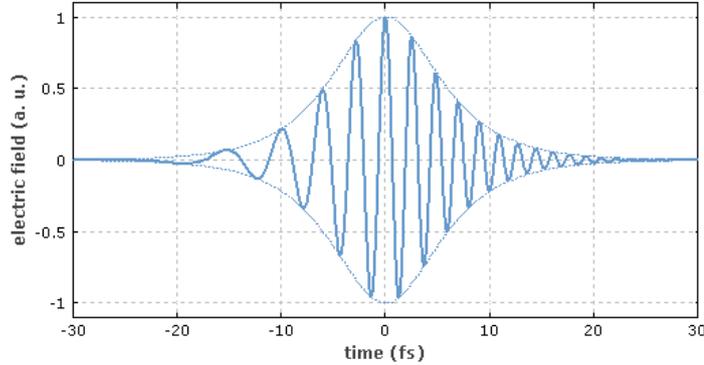
wobei  $c_{FTL}$  eine Konstante ist und  $\Delta t_{FWHM}$  und  $\Delta \omega_{FWHM}$  die Breiten im Zeit- und Frequenzraum darstellen. Gleichheit impliziert, dass die minimale Pulsdauer für ein gegebenes Frequenzspektrum erreicht ist. Anschaulich ist dieses Prinzip mit der Anwendung der Fourierentwicklung auf ein periodisches Rechtecksignal zu verstehen, das wie jedes periodische Signal durch die Überlagerung von Cosinus- und Sinusfunktionen verschiedener Frequenzen dargestellt werden kann. Je mehr Frequenzen man zu dieser Reihenentwicklung zulässt, desto genauer wird die Form des Rechtecksignals abgebildet. Ein weiteres Beispiel wäre die Anwendung der Fouriertransformation auf eine Deltafunktion  $f(t) = \delta(t)$  in der Zeit. Nur ein unendlich ausgedehntes Frequenzspektrum, d.h.  $\hat{f}(\omega) = const$  erfüllt Gleichung (2.9).

## 2.3 Die Phasenfunktion

Es soll im Folgenden genauer auf die Eigenschaften der temporalen und spektralen Phasenfunktionen aus Gleichung (2.3) und (2.4) eingegangen werden. Für Erstere liefert die Reihenentwicklung in eine Taylor-Reihe die Form:

$$\phi(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\phi^{(n)}}{n!} t^n = \phi_{CEP} + \omega_c t + \Phi(t), \quad (2.10)$$

wobei die Carrier Envelope Phase (CEP) eine Verschiebung zwischen dem Maximum der Einhüllenden  $A(t)$  und dem oszillierenden E-Feld vorgibt,  $\omega_c$  die zentrale Frequenz festlegt und  $\Phi(t)$  alle höheren Ordnungen der



**Abbildung 2.1:** Realteil eines Pulses der Form (2.3). Als Amplitude wurde eine Gaussfunktion gewählt und die Phasenfunktion ist quadratisch, d.h.  $\Phi(t) = at^2$  mit positivem  $a$ . Bei genauer Betrachtung stellt man fest, dass die Frequenz mit der Zeit zunimmt. Man nennt diesen Puls „up-chirped“, was umgangssprachlich bedeutet, dass der Puls positive Dispersion besitzt. Bild aus [4].

Reihenentwicklung enthält. Die Oszillationsfrequenz ist im Allgemeinen gegeben durch:

$$\omega(t) = \frac{d}{dt}\phi(t) = \omega_c + \frac{d}{dt}\Phi(t), \quad (2.11)$$

wobei der sogenannte Chirp durch die zeitliche Ableitung von  $\Phi(t)$  festgelegt wird:

$$\text{Positive Dispersion: } \frac{d}{dt}\Phi(t) > 0 \quad \text{„up - chirped“.}$$

$$\text{Negative Dispersion: } \frac{d}{dt}\Phi(t) < 0 \quad \text{„down - chirped“.}$$

Besitzt ein Puls positiven Chirp nimmt seine Oszillationsfrequenz innerhalb der Einhüllenden mit der Zeit zu, bei negativem Chirp mit der Zeit ab. Auf den Effekt von in der Taylor-Reihe potentiell vorkommenden höheren Ordnungen ( $n \geq 3$ ) soll hier nicht näher eingegangen werden.

Analog zu der Analyse, wie sie nun für die zeitliche Phase durchgeführt wurde, kann auch die spektrale Phase entwickelt und untersucht werden:

$$\text{Reihenentwicklung: } \hat{\phi}(\omega) = \varphi_{CEP} + \tau_0\omega + \hat{\Phi}(\omega). \quad (2.12)$$

$$\text{Group-Delay-Beziehung: } \tau(\omega) = \frac{d}{d\omega}\hat{\phi}(\omega) = \tau_0 + \frac{d}{d\omega}\hat{\Phi}(\omega). \quad (2.13)$$

Der konstante Teil in Gleichung (2.13) sorgt für eine Verzögerung aller Frequenzkomponenten des Pulses, verschiebt diesen also in der Zeit nach rechts, man nennt ihn daher Group-Delay. Der rechte Term verzögert verschiedene Frequenzkomponenten gegeneinander, diesen Effekt zweiter Ordnung nennt man Group-Delay-Dispersion (GDD). Angewandt auf Abbildung 2.1 entspricht der Group-Delay der Position des gesamten Pulses relativ zur Zeit-Achse. Die GDD legt fest, ob und wie stark die Frequenz mit der Zeit zu- oder abnimmt, definiert so also auch die zeitliche Breite des Pulses.

## 2.4 Propagationseffekte

Bewegt sich Licht in einem Medium, wechselwirkt das Licht mit der Materie, wobei verschiedenste Effekte auftreten können. Der Zusammenhang ist über folgende Wellengleichung, hergeleitet aus den Maxwellgleichungen, gegeben:

$$\left( \nabla^2 - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \right) \vec{E}(t, \vec{x}) = \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(t, \vec{x}). \quad (2.14)$$

Dabei beschreibt  $\mu_0$  die magnetische Feldkonstante und  $\vec{P}$  die induzierte Polarisation des Mediums. Um diese Gleichung zu lösen wird die Polarisation nun in einen linearen und nichtlinearen Teil aufgespalten, d.h.  $\vec{P} = \vec{P}_L + \vec{P}_{NL}$ . Desweiteren erkennt man in Gleichung (2.14), dass der Polarisationsterm dem inhomogenen Teil der Wellengleichung entspricht. Daher kann als Lösung im Frequenzraum

$$E(\omega, z) = A(\omega, 0) \cdot \exp(i(\varphi(\omega) - k(\omega)z)) \quad (2.15)$$

angenommen werden, wobei  $z$  die Ausbreitungsrichtung des Lichts darstellt,  $A(\omega, 0)$  die Intensität bei  $z = 0$  und  $k(\omega)$  die Dispersionsrelation festlegt, der das Licht im Medium ausgesetzt ist. Um verschiedene Propagationseffekte zu trennen, bedient man sich wieder einer Taylorentwicklung:

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 (\chi^{(1)} \vec{E}(t) + \chi^{(2)} \vec{E}(t) \cdot \vec{E}(t) + \chi^{(3)} \vec{E}(t) \cdot \vec{E}(t) \cdot \vec{E}(t) + \dots). \quad (2.16)$$

$\chi^{(n)}$  beschreibt die  $n$ -te Ordnung der Suszeptibilität und stellt mathematisch einen Tensor der Ordnung  $(n + 1)$  dar.

Bei hohen Intensitäten können höhere Ordnungen nicht vernachlässigt werden und eine beobachtete Wirkung hat mehrere Ursachen, basierend

auf verschiedenen Ordnungen von Propagationseffekten. Für die Analyse idealisiert man die Wirklichkeit jedoch dahingehend, dass man jeder Wirkung eine bestimmte Ordnung der Taylorreihe (2.16) zuordnet. Speziell für diese Arbeit ist nur ein Effekt erster (Abschnitt 2.4.1) und einer höherer Ordnung (Abschnitt 2.4.2) relevant, daher wird auf die anderen nicht weiter eingegangen.

### 2.4.1 Dispersion

Man spricht von Dispersion, wenn verschiedene Frequenzen unterschiedlich schnell in Materie propagieren. Dieser Effekt wirkt sich auf die Phasenfunktion von Licht aus und wird zunächst über die Dispersionsrelation  $k(\omega)$  in Gleichung (2.15) definiert, welche in Abhängigkeit des frequenzabhängigen Brechungsindex  $n(\omega)$  des Propagationsmediums geschrieben werden kann:

$$k(\omega) = n(\omega) \frac{\omega}{c}. \quad (2.17)$$

Man unterscheidet im Allgemeinen normale und anormale Dispersion, es gilt:

$$\text{normal: } \frac{dn}{d\omega} > 0, \quad (2.18)$$

$$\text{anormal: } \frac{dn}{d\omega} < 0. \quad (2.19)$$

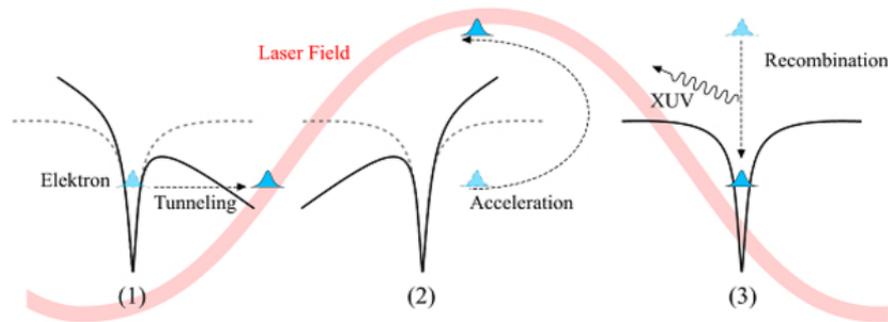
Ersteres beschreibt das Verhalten von Licht in Materialien wie beispielsweise Glas, nämlich dass größere Wellenlängen schneller propagieren als kleinere. Anhand des Beispiels in Abbildung 2.1 würde dies bedeuten, dass der Puls zeitlich in die Länge gezogen werden würde. Anormale Dispersion hingegen komprimiert selbigen Puls bis das FTL erreicht ist. Bei weiterer negativer Dispersion überkompensiert man, was dann in einem down-chirped Puls resultiert. In Experimenten wird die Komprimierung durch Aufbauten aus Prismen und Gittern oder durch dielektrische Spiegel, sogenannte Chirped Mirrors, realisiert. Das Funktionsprinzip basiert dabei auf der Frequenzabhängigkeit der Eindringtiefe in das Substrat, die dafür sorgt, dass kürzere Wellenlängen eine kleinere optische Weglänge zurücklegen als größere Wellenlängen und den Effekt normaler Dispersion somit umkehren. Die genaue Funktionsweise von Chirped Mirrors kann in [5] nachgelesen

werden. Praktisch beeinflussen dispersive Medien den Group-Delay, die GDD und höhere, hier nicht betrachtete, Ordnungen des Pulses. Ersteres lässt die Pulsform unverändert. Interessant ist aber die Manipulation der GDD, da wir so, wie in Abschnitt 2.3 gelernt, die zeitliche Ausdehnung des Pulses beeinflussen können. Normale Dispersion bedeutet dabei, dass das Licht positive GDD erfährt, anormale Dispersion hingegen verursacht negative GDD.

### 2.4.2 High Harmonic Generation

Die Produktion isolierter, extrem ultravioletter Pulse (XUV-Pulse) ist das Hauptziel dieser Arbeit. Es soll nun kurz erklärt werden, worum es sich bei diesem Phänomen, der sogenannten Hohen-Harmonischen-Erzeugung, handelt. Die Bezeichnung „XUV-Puls“ kommt daher, dass die Frequenzkomponenten dieser Pulse im XUV-Bereich ( $E = h\nu = 10 \text{ eV} - 124 \text{ eV}$ ) liegen. Grob gesprochen werden durch die Wechselwirkung eines treibenden elektrischen Feldes mit der Wellenfunktion eines in einem Atom, typischerweise ein Edelgas, gebundenen Elektrons sehr kurze Lichtpulse erzeugt. Die Pulse des treibenden E-Feldes werden im Experiment oft durch einen gepulsten Ti:Saphir-Laser erzeugt und haben eine Länge von wenigen Femtosekunden. Der Großteil der Intensität eines solchen Lasers liegt bei ca. 780 nm, d.h. im Nah-Infrarot- (NIR-) Bereich. Im Folgenden wird genauer auf Einzelheiten eingegangen, speziell wird das Drei-Stufen-Modell beschrieben, wie es auch in Abbildung 2.2 gezeigt wird.

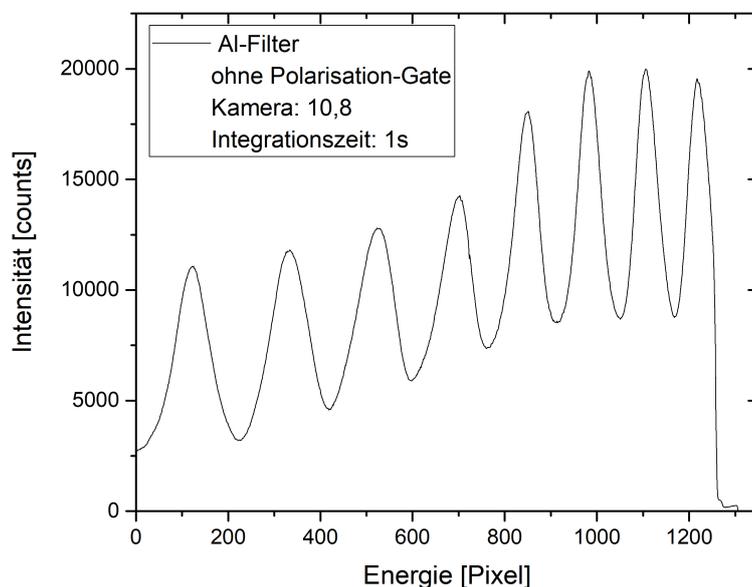
Schießt man mit hohen Laserintensitäten auf Atome oder Moleküle, ist es möglich, die Wellenfunktion eines in einem Atom gebundenen Elektrons zu beeinflussen, indem das elektrische Feld an die Energieeigenfunktionen eben dieses Elektrons koppelt, wobei der Hamilton-Operator um das E-Feld ergänzt wird. Durch die resultierende Krümmung der Potentialbarriere, nimmt die Wahrscheinlichkeit zu, dass das Elektron durch diese tunnelt und das Atom so ionisiert wird. Die Wahrscheinlichkeit dafür ist umso größer, je intensiver das treibende E-Feld ist. Anschließend wechselwirkt das ungebundene Elektron mit dem Laserfeld, indem es zunächst vom Mutter-Atom wegbeschleunigt und letztendlich, sobald sich das Vorzeichen des E-Feldes umkehrt, wieder zurückbeschleunigt wird. An seinem Ursprungsort angekommen, kann es mit dem positiv geladenen Ion rekombinieren, wodurch



**Abbildung 2.2:** Drei-Stufen-Modell der Hohen-Harmonischen-Erzeugung. Das aus dem Bindungspotential getunnelte Elektron (1) wird in Anwesenheit des Laserfelds beschleunigt (2) und erzeugt bei Rekombination einen XUV-Puls (3). Bild aus [6].

die im Laserfeld aufgenommene kinetische Energie des Elektrons als XUV-Photon abgestrahlt wird, das sich parallel zum Wellenvektor des treibenden Laserfelds bewegt. Es wird nicht nur ein einzelnes Photon erzeugt, sondern der eben mikroskopisch beschriebene Prozess passiert vielfach, abhängig von Pulsfrequenz des treibenden E-Felds und zeitlicher Ausdehnung dieser Pulse. Daraus resultieren die XUV-Pulse, deren zeitliche Dauer sich typischerweise in einer Größenordnung von einigen 100 as bewegt, weshalb diese Pulse auch Attosekunden-Pulse (AP) genannt werden.

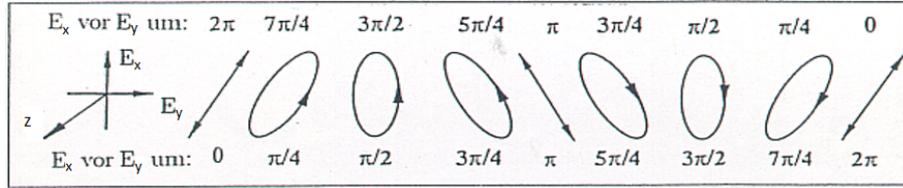
Der Gesamtprozess ist in Abbildung 2.2 dargestellt. Die vom ungebundenen Elektron im Laserfeld aufgenommene Energie ist abhängig von der Intensität des ionisierenden E-Feld-Peaks, wobei man vereinfachend davon ausgeht, dass nur an Maxima der Laserintensität, d.h. in jedem Extremum des Ausgangspulses Ionisation stattfindet. Es ist ersichtlich, dass mehrere XUV-Pulse produziert werden können, da die Erzeugung theoretisch jeden optischen Zyklus (alle  $2\pi$ ) zweifach passieren kann. Aus der Interferenz der verschiedenen Pulse entsteht das Spektrum der Hohen Harmonischen, beispielhaft zu sehen in Abbildung 2.3. Dieses besteht aus Hebungen und Senken, auch Wiggles genannt, die durch eben diese Interferenz zustande kommen. Der Abstand der Wiggles beträgt für eine mittlere Wellenlänge der NIR-Pulse von 780 nm und einer Pulsdauer von einigen Femtosekunden ca. 3.2 eV. Man kann theoretisch auch mit längeren Pulsen Hohe Harmonische produzieren, allerdings würden dann mehr XUV-Pulse entstehen, wodurch



**Abbildung 2.3:** Typisches Spektrum der Hohen Harmonischen. Genauer wird auf dieses spezielle Spektrum in Kapitel 4 eingegangen.

die Interferenz ein diskreteres Bild ergeben würde. Die bis zu diesem Punkt dargelegte Theorie wurde an die Werke [5], [7] und [8] [5] angelehnt und kann besonders in Letzterem um einiges detaillierter nachgelesen werden.

Es soll noch angemerkt werden, dass die Wahrscheinlichkeit für das Erzeugen Hoher Harmonischer stark von der Polarisation des Ausgangspulses abhängt. Die oben gegebene Beschreibung gilt in erster Linie nur für linear polarisierte E-Felder. Bei elliptischer Polarisation wird die Wahrscheinlichkeit je nach Elliptizität der Polarisation um bis zu fünf Größenordnungen unterdrückt, da das ungebundene Elektron nach Ionisation - anschaulich gesprochen - nicht zu seinem Mutteratom zurückfindet, vergleiche [9]. Genauer wird der Zusammenhang zwischen Polarisation und der Erzeugung Hoher Harmonischer in [3] erläutert. Da bisher noch keine Erklärung zu Polarisation gegeben wurde, wird auf diesen Aspekt später nochmal genauer eingegangen.



**Abbildung 2.4:** Als Veranschaulichung sind die verschiedenen Polarisationen und Polarisationsrichtungen dargestellt. Bei gleichem Betrag beider Komponenten wären bei einer Phasenverschiebung von  $\frac{\pi}{2}$  und  $\frac{3\pi}{2}$  Kreise zu sehen, deren Drehrichtung jedoch ebenfalls entgegengesetzt wäre. Bild aus [12].

## 2.5 Polarisation und deren Manipulation

Dieser Abschnitt soll nicht als vollständige Darstellung der Theorie zu Polarisation als Eigenschaft von Licht angesehen werden, es sollen lediglich die grundlegenden Prinzipien verstanden werden. Genauere Ausführungen sind in [10] oder [11] nachzulesen.

Es wird vorausgesetzt, dass eine elektromagnetische Welle, die sich in z-Richtung ausbreitet, in ihre x- und y-Komponente zerlegt werden kann. Man kann den Realteil der Welle schreiben als:

$$\vec{E}(z, t) = \mathcal{E}_x \vec{e}_x \cos(kz - \omega t) + \mathcal{E}_y \vec{e}_y \cos(kz - \omega t + \phi) \quad (2.20)$$

wobei  $\vec{e}_i$  der Einheitsvektor in die jeweilige Richtung,  $\phi$  die Phasenverschiebung zwischen den Komponenten und  $\mathcal{E}_i$  die Amplitude der zugehörigen Komponente des E-Felds ist. Die Polarisationsebene des Lichts wird durch die Größen  $\mathcal{E}_x$ ,  $\mathcal{E}_y$  und  $\phi$  festgelegt. Für  $\phi = 0, \pi, 2\pi, \dots$  sind die beiden Komponenten phasengleich und das Licht ist linear polarisiert, d.h. die Projektion der Welle auf die x-y-Ebene resultiert in einer geraden Linie. Für  $\phi = \frac{\pi}{2}, \frac{3\pi}{2}, \frac{5\pi}{2}, \dots$  erhält man im Allgemeinen eine elliptisch polarisierte Welle. Setzt man zusätzlich  $\mathcal{E}_x = \mathcal{E}_y$  wird die Polarisation zirkular, deren Projektion auf die x-y-Ebene einen Kreis ergibt. Dies ist als Spezialfall der elliptischen Polarisation zu betrachten. Bei der Superposition zweier elektromagnetischer Wellen wird die kanonische Vektoraddition angewendet, allerdings muss bedacht werden, dass sich somit eine neue Polarisation ergeben kann. So führt z.B. die Interferenz zweier entgegengesetzt zirku-

lar polarisierter Wellen gleicher Wellenlänge und Amplitude zu linearer Polarisation:

$$\vec{E}_1(z, t) = \mathcal{E}_x \vec{e}_x \cos(kz - \omega t) + \mathcal{E}_y \vec{e}_y \cos(kz - \omega t + \frac{\pi}{2}) \quad (2.21)$$

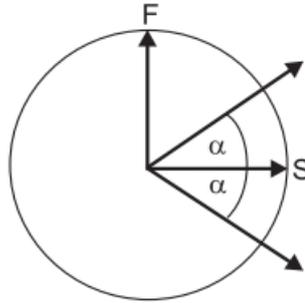
$$\vec{E}_2(z, t) = \mathcal{E}_x \vec{e}_x \cos(kz - \omega t) + \mathcal{E}_y \vec{e}_y \cos(kz - \omega t + \frac{3\pi}{2}) \quad (2.22)$$

$$\Rightarrow \vec{E}_1(z, t) + \vec{E}_2(z, t) = 2\mathcal{E}_x \vec{e}_x \cos(kz - \omega t) \quad (2.23)$$

Die einfachste Möglichkeit, auf die Polarisation von Licht einzuwirken, ist die Verwendung eines Polarisators. Dieser filtert eine bestimmte Polarisationsrichtung aus unpolarisiertem Licht heraus, indem er die Transmission anderer Polarisierungen verhindert. Die Funktionsweise hängt stark vom Aufbau des Polarisators ab, da unterschiedliche optische Effekte ausgenutzt werden können, um ans Ziel zu gelangen. Manche Polarisatoren absorbieren einen Großteil an Polarisierungen, andere reflektieren das Licht. Da hier allerdings nur das Ergebnis relevant ist, soll es an dieser Stelle genügen zu wissen, dass Licht nach Durchqueren eines Polarisators in eine bestimmte Richtung linear polarisiert ist. Elliptisch polarisiertes Licht kann durch einen Polarisator nicht vollständig geblockt werden, da immer eine der beiden Feld-Komponenten zu einem bestimmten Teil transmittiert wird.

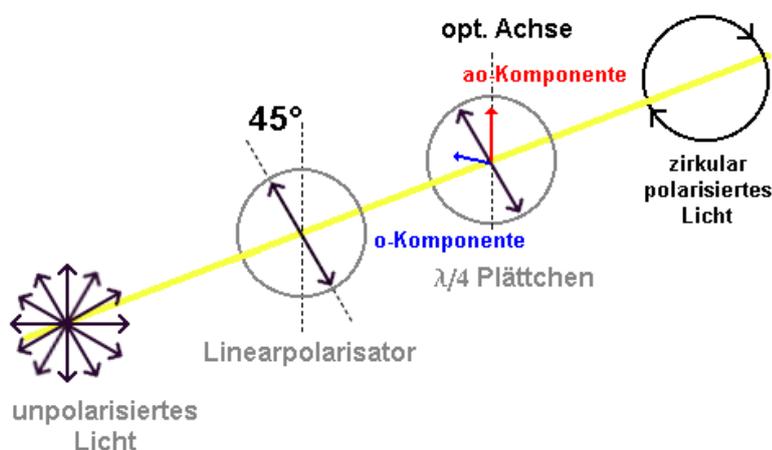
Möchte man nun die Polarisation von Licht ändern, bedient man sich meistens sogenannter Verzögerungsplatten. Im Allgemeinen bestehen diese aus anisotropen Materialien, deren Kristallachsen verschiedene Brechungsindizes haben und somit die beiden Feldkomponenten beim Durchqueren gegeneinander verzögern, indem sie diesen unterschiedlichen Group-Delay verleihen. Man nennt die Hauptachsen solcher Kristalle langsame und schnelle Achse, je nach Brechungsindex der jeweiligen Achse (die meisten Hersteller markieren nur die schnelle Achse). Spezialfälle der Verzögerungsplatten sind  $\frac{\lambda}{2}$ - und  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen, deren Name daher stammt, dass man eine Komponente des Lichts bestimmter Wellenlänge  $\lambda$  um  $\frac{\lambda}{2}$  bzw.  $\frac{\lambda}{4}$  gegenüber der anderen verzögert. Voraussetzung hierfür ist, dass die optische Achse des Kristalls senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Lichts steht. Ohne Herleitung wird für die aus einer Verzögerungsplatte resultierenden Phasendifferenz  $\Delta\phi$  verwendet:

$$\Delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} d (n_{\text{langsam}} - n_{\text{schnell}}) \quad (2.24)$$



**Abbildung 2.5:** Ein  $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen dreht linear polarisiertes Licht um den Winkel  $2\alpha$  relativ zur langsamen (S-) Achse. Bild aus [13].

mit  $\lambda$ : Wellenlänge des Lichts,  $n_{\text{schnell}}$  und  $n_{\text{langsam}}$ : Brechungsindex der schnellen bzw. langsamen Achse und  $d$ : Dicke der Verzögerungsplatte. Die Verzögerung einer Komponente linear polarisierten Lichts um  $\frac{\lambda}{2}$  entspricht einer Phasenverschiebung von  $\phi = \pi$ , d.h. man erhält nach Gleichung (2.20) wieder linear polarisiertes Licht, allerdings dreht man die Polarisation um den Winkel  $2\alpha$ , sofern die Ausgangspolarisation relativ zur langsamen Achse um  $\alpha$  gedreht ist (siehe Abbildung 2.5). Den Spezialfall beschreibt  $\alpha = 45^\circ$ , da so die Polarisation um  $90^\circ$  gedreht wird. Es sei angemerkt, dass die meisten  $\frac{\lambda}{2}$ -Platten eine Phasenverschiebung von  $(2n + 1)\pi$  mit  $n \in \mathbb{N}$  verursachen, was aufgrund der Periodizität von Wellen die Wirkung jedoch nicht beeinflusst.  $n$  beschreibt in diesem Fall die Ordnung der Platte. Für die Anwendung auf kurze, sehr intensive Lichtpulse ist  $n = 0$  eine wichtige Voraussetzung, da diese sonst aufgrund anderer Propagationseffekte verzerrt werden können. Das Prinzip von  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen lässt sich analog beschreiben, allerdings verschieben diese die Polarisationskomponenten um  $(2n + 1)\frac{\pi}{2}$ , d.h. aus linearer Polarisation wird für  $\alpha = 45^\circ$  zirkulare Polarisation und umgekehrt. Die Kombination verschiedener Instrumente und speziell die Funktionsweise eines  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens sind zusammenfassend in Abbildung 2.6 dargestellt.

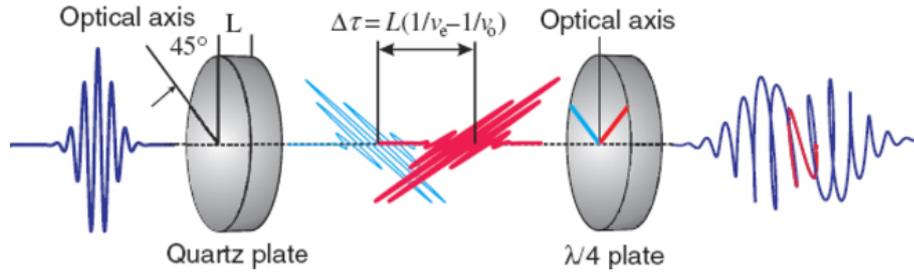


**Abbildung 2.6:** Man sieht links unpolarisiertes Licht, welches einen Polarisator passiert. Anschließend liegt linear polarisiertes Licht vor, das relativ zu den Achsen des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens (rot und blau) um  $45^\circ$  gedreht ist. Die außerordentliche (ao-) Achse entspricht in der Regel der langsamen und die ordentliche (o-) der schnellen Achse. Nach dem es die Verzögerungsplatte durchquert hat, erhält man abschließend zirkular polarisiertes Licht. Bild aus [14].

## 2.6 PASSAGE

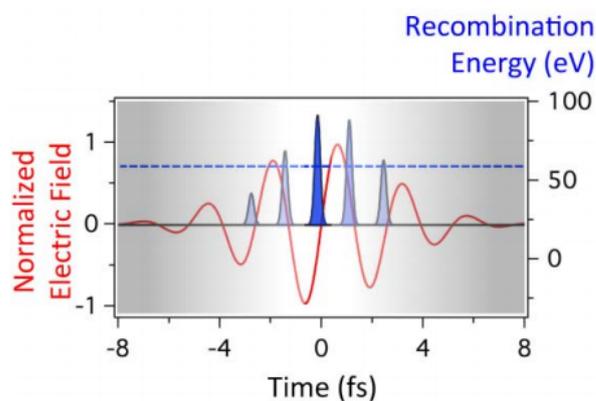
Im Folgenden wird nun die Kernthematik dieser Arbeit vorgestellt, das Polarisation ASSisted Amplitude GatE (PASSAGE), erstmals erwähnt in [9]. Dies ist ein Verfahren, welches es ermöglicht, isolierte Attosekunden-Pulse zu erzeugen. Man kombiniert hierzu zwei Techniken, das Polarisation Gating und das Amplitude Gating. Zunächst soll der Teil erklärt werden, der sich mit der Polarisation beschäftigt.

Betrachten wir einen Puls der Form, wie sie in Abbildung 2.1 dargestellt ist. Dieser Puls sei nun linear polarisiert, d.h. das E-Feld lässt sich aus einer Linearkombination von x- und y-Anteil schreiben, siehe Abschnitt 2.5. Wendet man eine Verzögerungsplatte auf den Puls an und setzt  $\alpha = 45^\circ$ , erreicht man damit eine zeitliche Retardierung einer der beiden Polarisationsanteile gegenüber der anderen. Man betrachtet den Puls nun nicht mehr als einzelnen Puls, sondern beide seiner Komponenten getrennt, d.h. anschaulich erhalten wir zwei zueinander senkrecht polarisierte Pulse, deren



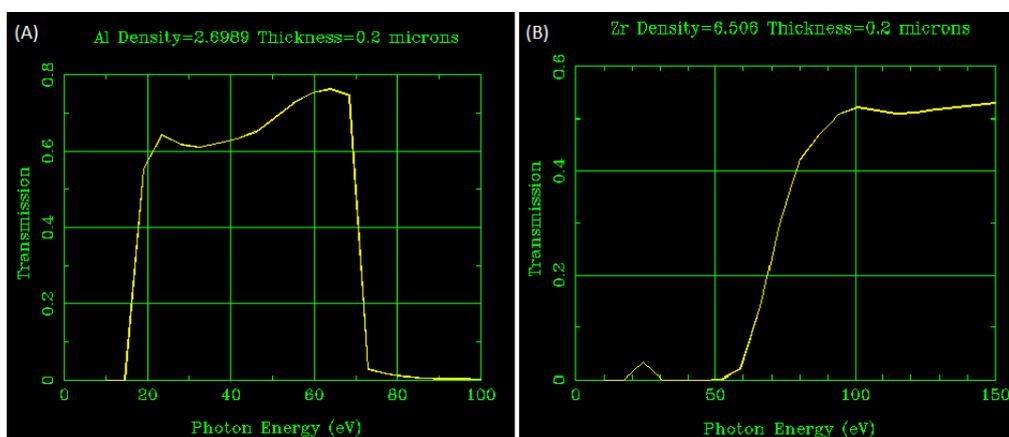
**Abbildung 2.7:** Schematische Darstellung eines Polarisation Gates. Das  $\frac{\lambda}{2}$ -Plättchen wird hier durch eine Quarz-Platte realisiert mit  $L$ : Dicke der Platte,  $\nu_e$  bzw.  $\nu_o$ : Brechungsindex der außerordentlichen bzw. ordentlichen Achse.  $\Delta\tau$  ergibt die Dauer des Gates. Der linear polarisierte Überlapp nach Durchlaufen des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens ist rot markiert dargestellt. Bild aus [15].

Group-Delay so verschoben ist, dass sie sich nur noch in einem definierten Intervall überschneiden. Als nächstes wird ein  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen durchquert, dessen Hauptachsen relativ zur ersten Verzögerungsplatte wieder um  $45^\circ$  gedreht sind. Somit werden die beiden Komponenten mit zueinander senkrechter, linearer Polarisation entgegengesetzt zirkular polarisiert. Resultierend aus diesem Prozedere erhält man zwei Laserpulse, die sich so überlagern, dass ein parallel zum Eingangspuls linear polarisierter Bereich zwischen ihnen entsteht. Die Größe dieses Bereichs, auch die Dauer des Gates genannt, legt die zeitliche Verzögerung fest, die die beiden Puls-Komponenten durch das Quarz-Plättchen gegeneinander erfahren. Zusammenfassend sind die einzelnen Schritte zum besseren Verständnis in Abbildung 2.7 dargestellt. Da man durch das PASSAGE zwei verschiedene Techniken kombinieren möchte, legt man Wert darauf, dass beide Verfahren nicht bis ins Äußerste ausgereizt werden. Das bedeutet in diesem Fall, dass die Dauer des Gates nicht zu klein sein, d.h. im Bereich von einem halben bis ganzen optischem Zyklus liegen sollte. Somit kann das Gate je nach CEP des Laserpulses mehrere Extrema enthalten, wodurch bei der Hohen-Harmonischen-Erzeugung noch kein isolierter Puls erzeugt werden würde. In den entgegengesetzt zirkular polarisierten Bereichen ist die Wahrscheinlichkeit dafür deutlich geringer. Schon eine Elliptizität der Polarisation von 0,2 reduziert die Wahrscheinlichkeit dafür um eine Größenordnung. Daher wird im Folgenden nur noch der Bereich des Gates betrachtet. Hier kommt nun das Amplitude Gating zum tragen, das durch einen  $0.2\ \mu\text{m}$  dicken Zr-Filter realisiert wird,



**Abbildung 2.8:** Funktionsschema eines Amplitude Gates bei Verwendung eines Zirkonium-Filters: Die rote Kurve stellt das elektrische Feld des treibenden Pulses dar, die blauen Peaks die aus den einzelnen Halbzyklen resultierenden XUV-Pulse. Die gestrichelte blaue Linie repräsentiert die Energie von  $E = 60$  eV, ab der die Zirkonium Transmission zulässt, siehe auch Abbildung 2.9. Transmittiert werden nur die XUV-Pulse mit ausreichender Energie. Bild aus [9].

welcher nur Photonen mit Energie  $> 60$  eV transmittiert, siehe Abbildung 2.9. Amplitude-Gating im Allgemeinen sorgt dafür, dass nur Licht oberhalb einer bestimmten Energie oder Intensität von einem Medium transmittiert wird. Da das Frequenzspektrum und somit das Energiespektrum der APs von der Stärke des E-Feld-Peaks abhängt, welcher zur Ionisation führt und das Polarisation Gate nur einige, mittig lokalisierte Extrema des ursprünglichen Laserpulses enthält, wobei deren Intensitäten nach außen hin abfällt, soll durch den Einsatz des Zr-Filters der AP resultierend aus dem mittleren, intensivsten Maximum isoliert werden, da allein dieser aufgrund seiner hohen Energie transmittiert wird (siehe Abbildung 2.8). Der interessierte Leser kann in [16] mehr über verschiedene Gating-Techniken lernen.



**Abbildung 2.9:** (A): Transmissionsspektrum von 0.2  $\mu\text{m}$  dicker Aluminium-Folie. (B): Transmissionsspektrum von 0.2  $\mu\text{m}$  dicker Zirkonium-Folie. Man sieht, dass Aluminium ab einer Energie von ca. 72 eV kein Licht mehr transmittiert, Zirkonium hingegen nur Licht ab einer Energie von ca. 60 eV. Der dargestellte Energiebereich ist im Rahmen des XUV-Spektrums eingeschränkt. Bild aus [17].

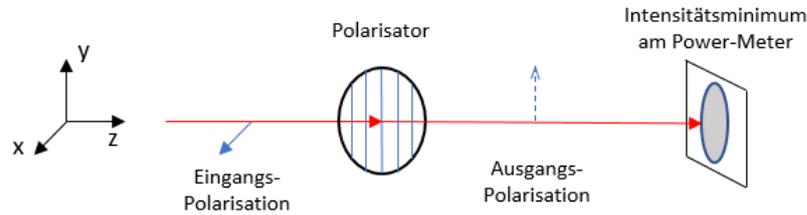
## 3 Experiment

Bevor die Funktionsweise des PASSAGE getestet werden kann, müssen zunächst einige Vorbereitungen getroffen werden. Es muss sichergestellt werden, dass die Laserpulse linear, parallel zur Oberfläche des optischen Tisches, also P-polarisiert sind und sich dies durch andere Komponenten des Aufbaus nicht ändert. Für PASSAGE wäre linear polarisiertes Licht ohne bestimmte Vorzugsrichtung ausreichend, aber für weiterführende Experimente ist die P-Polarisation entscheidend. Außerdem müssen Dispersionseffekte, die die Pulse beim Durchlaufen der Optiken des Polarisation Gates erfahren, kompensiert werden. Nach dem Lasersystem beträgt die zeitliche Dauer der Pulse ca. 5 fs, dies soll auch möglichst beibehalten werden. Abgeschlossen wird dieses Kapitel mit der Erklärung zur Durchführung der Experimente mit PASSAGE.

### 3.1 Polarisationsmessungen

Um die Polarisation von linear polarisiertem Licht festzustellen, benutzt man einen Polarisator und ein Power-Meter, welches die Intensität des einfallenden Lichts misst. Man stellt das Power-Meter in den Strahlengang und davor den Polarisator, schematisch dargestellt in Abbildung 3.1. Durch Drehen des Polarisators ändert man die am Power-Meter angezeigte Intensität des vom Polarisator transmittierten Lichts. Sobald die Messung ein Intensitätsminimum ergibt, ist davon auszugehen, dass der Polarisator den größten Teil der Eingangspolarisation blockiert, also senkrecht zu dieser ausgerichtet ist. Die Winkelstellung des Polarisators um  $90^\circ$  gedreht ergibt die Polarisation des Eingangslichts.

Die Durchführung dieser Messung an der Stelle auf dem optischen Tisch, an dem das Polarisation Gate positioniert werden soll, ergibt P-polarisiertes Licht.



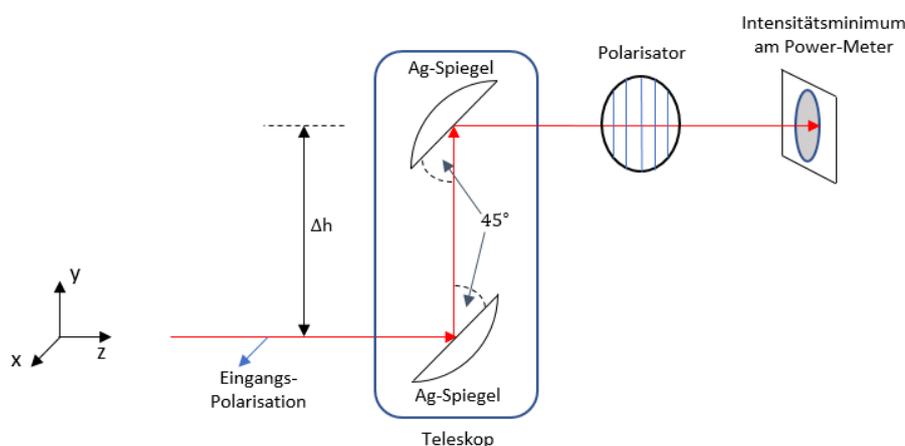
**Abbildung 3.1:** Ist die Eingangspolarisation parallel zur Oberfläche des optischen Tisches ( $x$ - $z$ -Ebene) und der Polarisator so gedreht, dass nur in  $y$ -Richtung polarisiertes Licht transmittiert wird, ist die mit dem Power-Meter bestimmte Intensität minimal.

Um sicherzustellen, dass andere Komponenten des optischen Aufbaus die Polarisation nicht beeinflussen, werden weitere Polarisationsmessungen vor und nach kritischen Stellen des Aufbaus durchgeführt. Speziell das Periskop, welches die Höhe des Strahlengangs verändert (siehe Abbildung 3.2), muss überprüft werden. Die Polarisationsmessung vor dem Periskop ergibt zunächst P-Polarisation, danach ist diese allerdings um einige Grad gegen den Uhrzeigersinn gedreht. Dem vorbeugend wird das Periskop und der Strahlengang etwas nachjustiert, indem die seitliche Verkippung der beiden Silberspiegel minimiert wird. Daraufhin ist auch nach dem Periskop P-polarisiertes Licht festzustellen. Es kann zudem verifiziert werden, dass zirkular polarisiertes Licht nach dem Polarisation Gate strahlabwärts unverändert bleibt. Hierzu wird das P-polarisierte Licht vor dem Periskop mit Hilfe eines  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens zirkular polarisiert und nach dem Periskop wieder umgekehrt. Auch in diesem Experiment ist P-Polarisation festzustellen.

Zusammenfassend wird in diesem Teil verifiziert, dass das Licht nach dem Laser-System P-polarisiert ist und sowohl lineare, als auch zirkulare Polarisation den optischen Aufbau unverändert passieren kann.

## 3.2 Chirped Mirror Compressor

Nach Abschnitt 2.4.1 erfahren unterschiedliche Frequenzanteile der Laserpulse unterschiedliche optische Weglängen, d.h. up-chirped Pulse werden beim Propagieren in Glas oder anderen normal dispersiven Optiken (insbesondere auch Luft) in die Länge gezogen. Dieser Effekt wird durch den Chirped



**Abbildung 3.2:** Das Licht ist vor dem Periskop P-polarisiert. Beim Durchqueren des Periskops, das aus zwei Silber- (Ag-) Spiegeln besteht, wird die Höhe des Strahlengangs um  $\Delta h$  verändert. Zeigt das Power-Meter bei gleicher Einstellung des Polarisators ein Minimum, kann davon ausgegangen werden, dass das Periskop die Polarisation unverändert lässt. Muss man diesen jedoch nachjustieren, um das Intensitätsminimum am Power-Meter zu erhalten, liegt kein P-polarisiertes Licht mehr vor und man muss die seitliche Verkippung der Silberspiegel ändern.

Mirror Compressor (CMC) kompensiert, da die Pulse hier negative GDD erfahren und somit zeitlich wieder komprimiert werden. Der ursprüngliche CMC war auf einen optischen Aufbau ohne zusätzliche dispersive Medien optimiert, wodurch die Pulse beim Durchlaufen der Optiken des Polarisation Gates zu lang wurden. Daher müssen in den CMC zusätzliche Chirped Mirrors der Firma Utrafast Innovations eingefügt und ausgerichtet werden. Die korrekte Winkelstellung der Chirped Mirrors ist essenziell für ihre Funktion, einfallende und ausfallende Strahlen müssen jeweils einmal  $10^\circ$ , einmal  $38^\circ$  einschließen, vergleiche [18]. Man benötigt für den gewünschten Effekt also immer  $2n$  Chirped Mirrors ( $n \in \mathbb{N}$ ). Ein Millimeter Quarz-Glas verursacht eine GDD von  $35 \text{ fs}^2$ , wobei ein Chirped Mirror  $-40 \text{ fs}^2$  GDD verursacht, vergleiche [18] und [19]. Es wurden insgesamt vier zusätzliche Chirped Mirrors eingebaut, d.h. die Pulse erfahren im CMC bei korrekter Ausrichtung der Spiegel zusätzliche  $-160 \text{ fs}^2$  GDD. Das Polarisation Gate besteht aus einer Verzögerungs- ( $d = (83,2 \pm 0,5) \mu\text{m}$ ) und einer  $\frac{\lambda}{4}$ -Platte ( $d = 0.76 \text{ mm}$ ), die beide aus Quarz bestehen und daher insgesamt eine

GDD von ca.  $35 \text{ fs}^2$  verursachen. In diesem Fall wären die Pulse überkompensiert, man muss also noch zusätzliches Glas über Quarz-Glas-Wedges in den Strahlengang einfügen. Die Messung durch den Dispersion Scan [20] mit erweitertem CMC und 4 mm zusätzlichem Glas ergab eine zeitliche Dauer der treibenden Pulse von 5.7 fs bei einem FTL von 4.6 fs.

### 3.3 PASSAGE

Die für das Polarisation Gate verwendeten Optiken sind eine Verzögerungsplatte ( $d = (83,2 \pm 0,5) \mu\text{m}$ ) und ein  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen von der Firma B-Halle, beides Verzögerungsplättchen nullter Ordnung. Setzt man die Brechungsindizes  $n_{\text{Schnell}} = 1,543$  und  $n_{\text{langsam}} = 1,552$  von Quarz, die Dicke der Platte und eine Wellenlänge von 780 nm in Gleichung (2.24) ein, resultiert als Phasenverschiebung zwischen den beiden Feld-Komponenten von ca.  $1,9\pi$ , was fast einem optischen Zyklus des Pulses entspricht. Die verwendete Wellenlänge entspricht der Wellenlänge, bei dem das treibende Laserfeld die meiste Intensität hat. Verbaut werden die Optiken in manuell justierbaren Drehmounts der Firma Thorlabs, wobei die auf den Verzögerungsplatten jeweils markierte Achse einem Winkel von  $180^\circ$  an den Drehmounts entsprechen. Der Aufbau wurde so konstruiert, dass man ihn einfach als Modul in den Strahlengang setzen, aber ebenso einfach wieder herausnehmen kann. Die Durchführung des Experiments bestand hauptsächlich darin, die Spektren der Hohen Harmonischen mit und ohne Polarisation Gate, sowie mit Aluminium- (Al-) und Zirkonium- (Zr-) Filter aufzunehmen. Dabei wurde ein feines Gitter (mittlere Gitterkonstante  $g = 1200/\text{mm}$ ) und eine CCD-Kamera verwendet, deren horizontale Position variiert werden kann. Je nach Positionierung der Kamera wird ein anderer Energiebereich des XUV-Spektrums betrachtet. Erzeugt wurden die XUV-Pulse in dem Edelgas Neon, wobei das treibende Laserfeld auf das Gas bei einem Druck von  $p = (158,6 \pm 0,3) \text{ mbar}$  traf. Zusätzliches Glas wurde über zwei Quarz-Glas-Wedges eingefügt, die mit Hilfe eines kleinen Motors in den Strahlengang gefahren werden können. Für beide wurde eine Position fixiert, die etwa 2.5 mm zusätzlichem Glas im Strahlengang entspricht. Vor der Hohen-Harmonischen-Erzeugung durchquert das Licht dann nochmal 1 mm Glas.

Es wird zunächst eine Energiekalibrierung durchgeführt, die es ermöglichen

---

soll, dem mit der Kamera betrachteten Spektralbereich einen Energiebereich zuzuordnen. Das PASSAGE im Speziellen wird hinsichtlich verschiedener Winkelstellungen der Verzögerungsplatten im Polarisation Gate untersucht. Die ohnehin schon über die Integrationszeit gemittelten Einzelspektren werden für die Messzyklen erneut gemittelt, um ein möglichst glattes Spektrum zur Weiterverarbeitung zu erhalten. Von diesen wird die Fouriertransformation berechnet, die qualitativ auf die Anzahl von erzeugten XUV-Pulsen untersucht wird. Es werden Hohe Harmonische bei Verwendung von Al- und Zr-Filter, sowie mit und ohne Polarisation Gate erzeugt und deren Spektren werden verglichen.

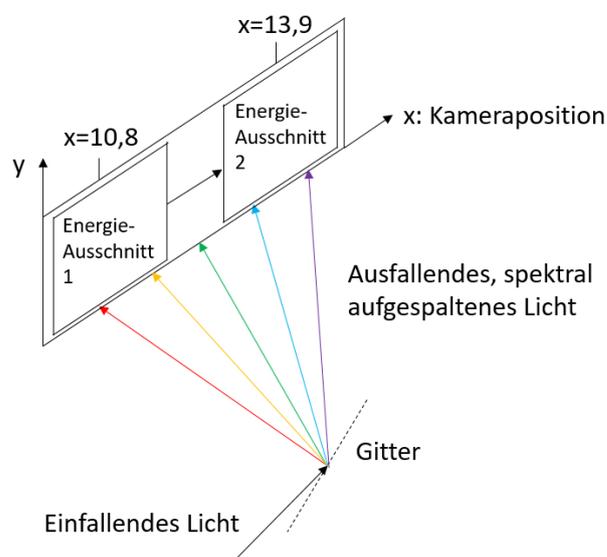
## 4 Messergebnisse

In diesem Teil soll zunächst eine grobe Energiekalibrierung des Spektrometers relativ zur x-Position der Kamera durchgeführt werden. Im Anschluss werden die Spektren der Hohen Harmonischen bei verschiedenen Einstellungen des Polarisation Gates mit Al- und Zr- Filter vorgestellt.

### 4.1 Energiekalibrierung

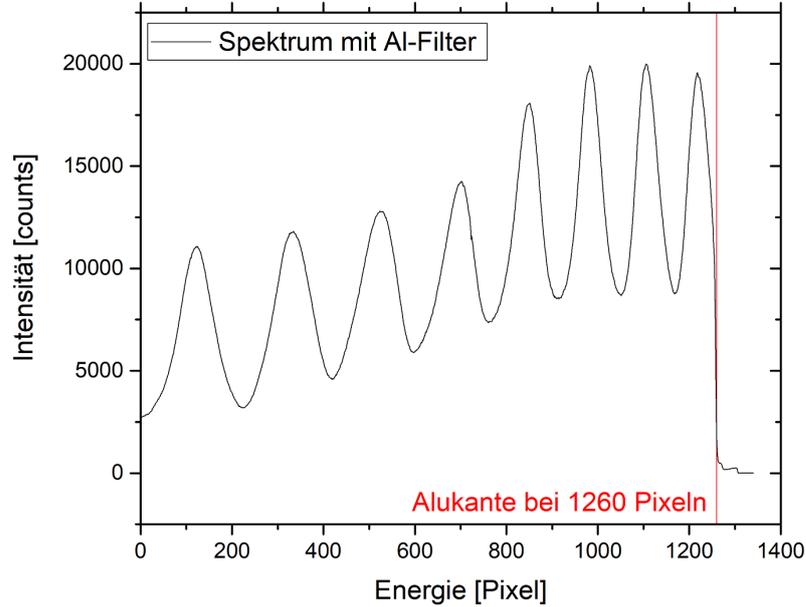
Es wurde bereits erwähnt, dass die Spektren der Hohen Harmonischen mit Hilfe einer CCD-Kamera aufgenommen werden. Dabei wird die Intensität, d.h. die in einem einstellbaren Zeitintervall auf den Chip der Kamera auftreffende Anzahl an Photonen gegen die Frequenz der jeweiligen Photonen (x-Achse) aufgetragen. Die Kamera gibt allerdings keinen absoluten Wert der Energie bzw. Frequenz an, sondern lediglich die Pixelposition auf dem CCD-Chip. Vor der Kamera wird das XUV-Licht an einem Gitter gebeugt, welches das Licht spektral aufspaltet und das zentrale Element darstellt, um die x-Achse des CCD-Chips mit der Photonenenergie in Verbindung zu bringen. Variiert man also die x-Position der Kamera, verändert man zugleich den Energiebereich, den die Kamera abtastet (siehe Abbildung 4.1). Es wurden nun XUV-Spektren mit einem Al- oder Zr-Filter ohne Polarisation-Gate aufgenommen. Betrachtet man das mit Al-Filter bei Kameraposition 10,8 aufgenommene Spektrum, erkennt man die Hebungen und Senken der Harmonischen-Interferenz (Abbildung 4.2). Ab einem Pixelwert von ca. 1260 wird keine Intensität mehr gemessen. Dieser Pixelwert entspricht der Absorptionskante von Aluminium (kurz: Alukante) von 72 eV, ab der höhere Photonenenergien nur noch zu einem sehr kleinen Teil transmittiert werden, siehe Abbildung 2.9.B. Bei Kameraposition 10,8 können wir also festlegen, dass die Pixelposition 1260 ungefähr einer Energie von 72 eV entspricht.

Anschließend werden Spektren mit dem Zr-Filter (ebenfalls ohne Polarisation Gate) aufgenommen, wobei die x-Position stetig verändert wird.



**Abbildung 4.1:** Schema der energetischen Aufspaltung des Lichts am Gitter und des Zustandekommens verschiedener Energieausschnitte durch das Verändern der Kameraposition.

Die Kamera wird immer gerade so weit bewegt, dass es einen x-Achsen-Bereich gibt, in dem sich das aktuelle und zuvor aufgenommene Spektrum überschneiden, beispielhaft zu sehen für die ersten beiden Kamerapositionen in Abbildung 4.3. Dieses Prozedere wird bis zur Kameraposition 13,9 wiederholt und anschließend werden die Spektren zusammengefügt, indem die sich überlagernden x-Achsenabschnitte aufeinandergelegt werden. Aus Abschnitt 2.4.2 wissen wir, dass die Wiggles im XUV-Spektrum ungefähr einen Abstand von 3.2 eV haben, wodurch man durch reines Abzählen der Wiggles die Energie-Pixel-Beziehung bei Kameraposition 13,9 abschätzen kann. Der CCD-Chip der Kamera fasst insgesamt 1340 Pixel, wobei die rechten und linken 1340 Pixel im zusammengeführten Spektrum (Abbildung 4.4) jeweils die bei Kameraposition 13,9 (rechts im Bild) und 10,8 (links im Bild) sind. Durch Abzählen der Wiggles ab Pixelposition 1260 (entspricht bei Position 10,8 der Alukante) kann abgeschätzt werden, dass der Ausschnitt der rechten 1340 Pixel einen Energiebereich von ungefähr 93-163 eV abdeckt. Die mittlere Energie der letzten, peakähnlichen Struktur



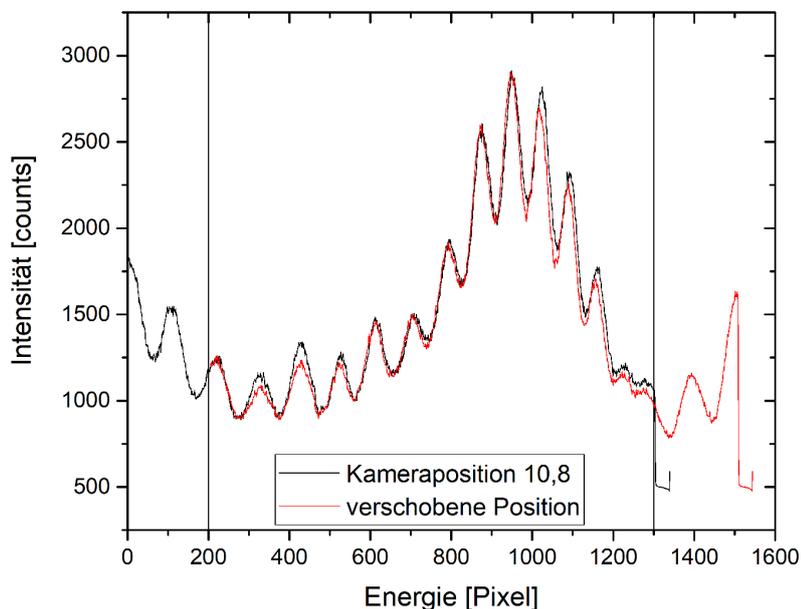
**Abbildung 4.2:** Das XUV-Spektrum bei Kameraposition 10,8 ohne Polarisation Gate und mit Al-Filter zeigt die Interferenz der sich überlagernden XUV-Pulse. Ab ca. 1260 Pixeln wird aufgrund der Alukante kein Licht mehr transmittiert.

mit Zr-Filter bei Kameraposition 13,9 liegt bei ca. 128 eV.

Alternativ kann der Energiebereich abhängig von der Kameraposition auch rechnerisch bestimmt werden. Man wendet folgende Beziehung, hergeleitet aus der Gittergleichung, an:

$$\lambda = \frac{d}{m} \left( \sin(\alpha) - \frac{1}{\sqrt{\left(\frac{x}{L}\right)^2 + 1}} \right), \quad (4.1)$$

mit dem mittleren Abstand zwischen zwei Linien des Gitters  $d = \frac{1}{g} = \frac{10^6 \text{ nm/mm}}{1200/\text{mm}} \approx 833.3 \text{ nm}$ , der Beugungsordnung  $m$ , wobei hier  $m = 1$  vorausgesetzt wurde, dem Einfallswinkel des Lichts  $\alpha \approx 85,3^\circ$ , dem Abstand zwischen Gitter und Kamera entlang des Gitters  $L \approx 469 \text{ mm}$  und der Kameraposition  $x$ . Für  $x = 13,9$  erhält man einen betrachteten Energiebereich von 80-170 eV (siehe Abbildung 4.5). Dies passt im Rahmen einer

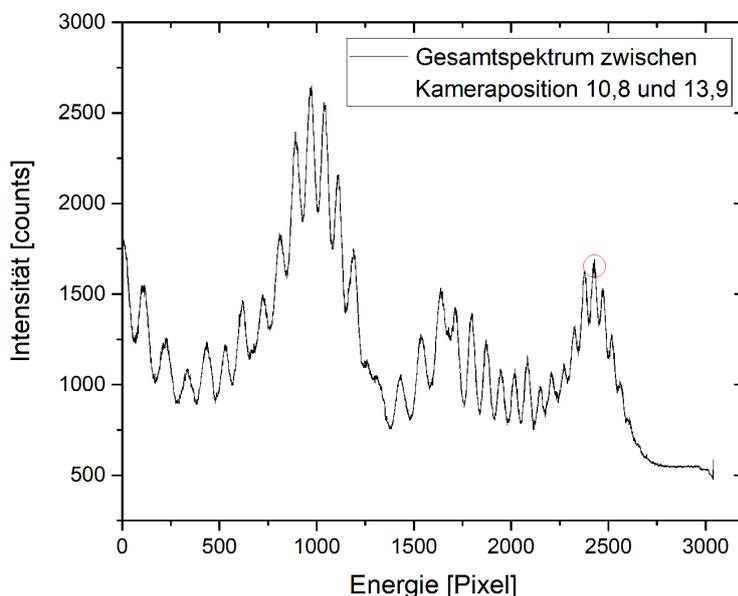


**Abbildung 4.3:** Das bei Kameraposition 10,8 aufgenommene Spektrum (schwarz) gleicht im durch die Geraden markierten Bereich dem Spektrum, das bei der nächsten Kameraposition aufgenommen wurde (rot). Um das Gesamtspektrum zu erstellen wird nun der Teil des linken Spektrums ausgeschnitten, sodass aus den beiden Einzelspektren ein Einziges wird.

Abschätzung zu vorheriger Methode, aus welcher ein Bereich von 93-163 eV resultierte.

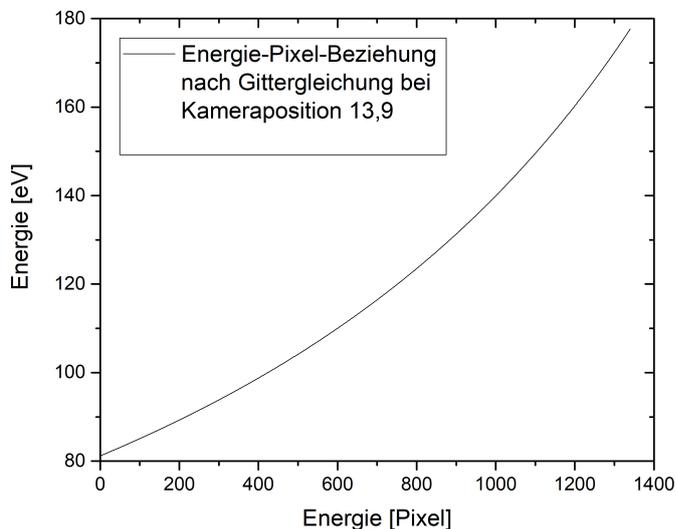
## 4.2 Spektren

Zuerst muss von jedem aufgenommenen Spektrum der Untergrund abgezogen werden. Für eine korrekte Fouriertransformation, wie sie im Folgenden für ausgewählte Spektren durchgeführt werden soll, ist dies unerlässlich. Es ist aus vorherigem Abschnitt der Energiebereich bekannt, den die CCD-Kamera bei Position 13,9 zeigt. Es ist allerdings unbeachtet geblieben, dass die Beziehung zwischen Energie und den Pixel-Werten der x-Achse nicht linear ist. Das kommt daher, dass die x-Achse der Kamera linear mit



**Abbildung 4.4:** Nachdem das Verfahren aus Abbildung 4.3 für die sechs Kamerapositionen zwischen 10,8 und 13,9 durchgeführt wurde, ergibt sich dieses Gesamtspektrum. Zwischen  $x=1260$  und dem intensivsten Peak der letzten Erhebung (rot markiert) liegen ca. 17,5 Maxima, daher kann die Energie dieses Peaks mit  $E \approx 72 \text{ eV} + 17,5 \cdot 3,2 \text{ eV} = 128 \text{ eV}$  abgeschätzt werden. Der Untergrund spielt für die Kalibrierung keine Rolle, wurde also im Voraus nicht von den Spektren subtrahiert. Der aufmerksame Beobachter stellt fest, dass auf dieser zusammengesetzten Aufnahme sowohl die erste (rechts), als auch die zweite Beugungsordnung (links) des Gitters abgebildet wird. Fraglich ist bisher, warum die zweite Ordnung eine höhere Intensität aufweist als die Erste. Für die weitere Betrachtung spielt diese Tatsache jedoch keine Rolle, weswegen es hier keine Analyse der Problematik geben wird.

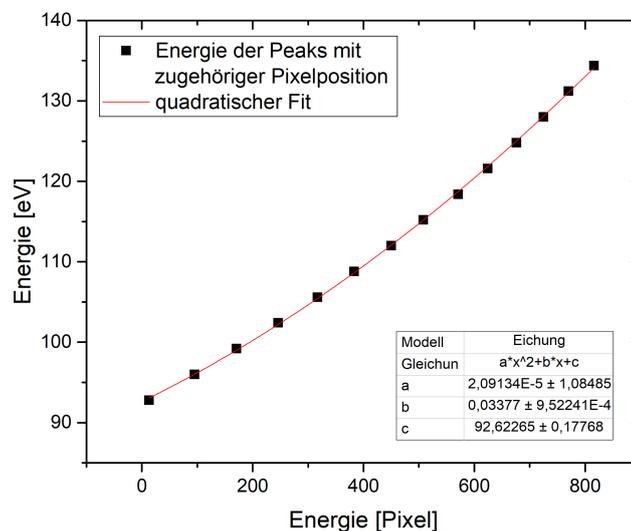
der Wellenlänge einfallender Photonen geht, die Energie, resultierend aus der Frequenz, und die Wellenlänge aber invers in Beziehung zueinander stehen. Man benutzt ein ähnliches Verfahren wie in Abschnitt 4.1, d.h. man trägt den zwischen zwei Interferenzpeaks liegenden energetischen Abstand von 3.2 eV gegen die zwischen ihnen liegende Anzahl an Pixeln auf. Bei



**Abbildung 4.5:** Für Kameraposition 13,9 wird durch die Gittergleichung ein Energiebereich von ca. 80-170 eV berechnet. Zusätzlich ist die Nichtlinearität zwischen Pixelposition und Energie erkennbar.

Verwendung einer quadratischen Fit-Funktion ergeben sich die Abbildung 4.6 zu entnehmenden Eich-Parameter. Streckt man nun die x-Achse gemäß der Eichvorschrift, ist die Pixelposition linear proportional zur Energie.

Für aussagekräftige Fouriertransformationen wird der x-Bereich der wie zuvor beschrieben korrigierten Spektren bis  $E = 0$  eV erweitert, indem in die Daten bis zu diesem Wert Nullen eingefügt werden. Zuletzt wird das zu transformierende Spektrum am Rand etwas geglättet. Der Verarbeitungsprozess ist beispielhaft für ein Spektrum in Abbildung 4.7 dargestellt.

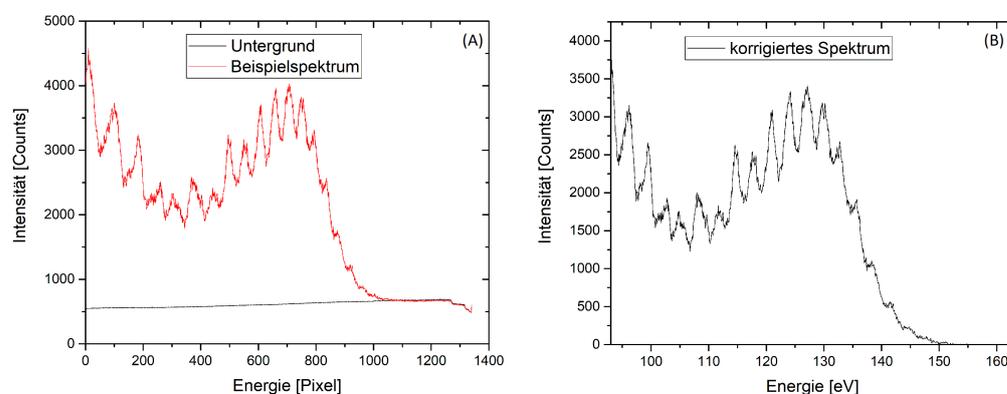


**Abbildung 4.6:** Aufgetragen ist der energetische Abstand zweier Interferenzpeaks der Hohen Harmonischen (3.2 eV) gegen den Pixelabstand selbiger Peaks. Der quadratische Fit (rot)  $y = ax^2 + bx + c$  liefert  $a = 2.1 \cdot 10^{-5} \text{ eV/Pixel}^2$ ,  $b = 0.034 \text{ eV/Pixel}$  und  $c = 92.6 \text{ eV}$ .

#### 4.2.1 Amplitude Gate oder Polarisation Gate

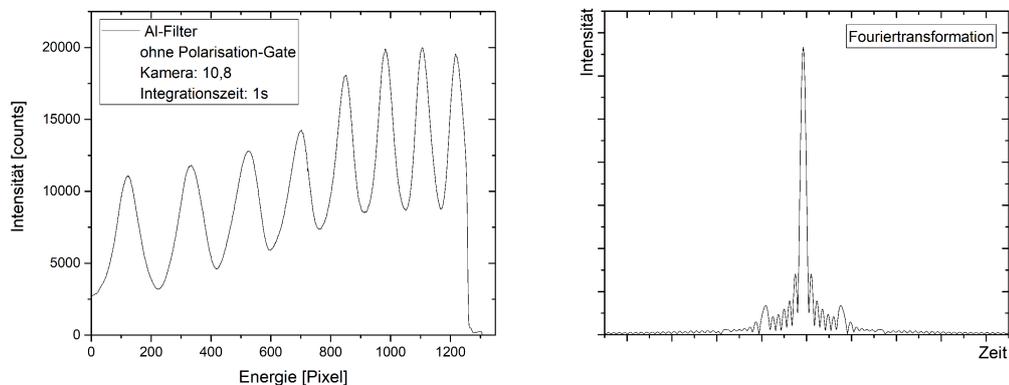
Es werden zunächst die ohne Polarisation Gate aufgenommenen Spektren dargestellt. Die Formulierung „ohne Polarisation Gate“ bedeutet, dass die Quarz-Platte so eingestellt ist, dass eine Hauptachse parallel zur eingehenden Polarisation ist. Somit hat das Quarz- und das  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen des Polarisation Gates den selben Einfluss wie Glas und die Pulsdispersionen der Messungen mit und ohne Gate bleiben vergleichbar.

In den Frequenzspektren (Abbildungen 4.8 - 4.10) erkennt man gut die Interferenzpeaks der sich überlagernden XUV-Pulse. Betrachtet man die Amplituden der Fouriertransformationen, sieht man ebenfalls, dass es sich um mehrere Pulse handeln muss, da in der Fouriertransformation noch mehrere Peaks zu sehen sind. Es sei angemerkt, dass die Fouriertransformationen rein qualitativ zu betrachten sind. Die Spektren, bei denen ein Al-Filter verwendet wurde, unterscheiden sich nur marginal, ob das

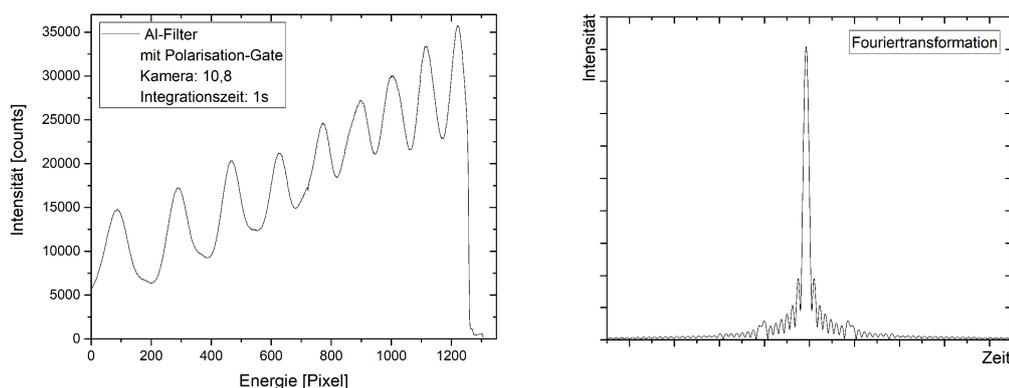


**Abbildung 4.7:** Vom aufgenommenen Rohspektrum (in A rot) wird zunächst der Untergrund (in A schwarz) abgezogen. In (B) ist die korrigierte Intensität gegen die Energie in eV nach Eichung der x-Achse dargestellt. Es ist deutlich erkennbar, dass die Interferenzpeaks in (B) gleichmäßigere Abstände haben als noch beim Rohspektrum in (A). Das Spektrum in (B) wird dann für die Weiterverarbeitung verwendet, d.h. an dieses werden bis 0 eV Nullen angefügt, bevor es am Rand geglättet und fouriertransformiert wird. Das ausgewählte Spektrum ist ohne Polarisation Gate, mit Zr-Filter bei Kameraposition 13,9 aufgenommen.

Polarisation Gate aktiv war oder nicht. Die Fouriertransformationen in Abbildung 4.8 und 4.9 zeigen, dass die Intensität der Nebenpeaks zwar durch das Polarisation Gate reduziert wurde, sie aber definitiv noch im Spektrum enthalten sind. Dies liegt an der Dauer des Gates von fast einem ganzen optischen Zyklus der mittleren Wellenlänge des treibenden E-Felds. Bei dieser Dauer liegt im linear polarisierten Bereich des Signals nach dem Gate mehr als ein Extermum des treibenden Pulses, sodass damit wieder verschiedene XUV-Pulse erzeugt werden können, die von Al transmittiert werden. Alleine das Polarisation Gate reicht in diesem Fall also nicht aus, um isolierte XUV-Pulse zu erzeugen. In Abbildung 4.10 erkennt man, dass auch Amplitude-Gating in Form des Zr-Filters alleine nicht genügt, um isolierte Attosekunden-Pulse zu erzeugen. Es ist offensichtlich, dass ohne das Polarisation Gate mehr als ein XUV-Puls mit einer Energie von über 60 eV erzeugt wird, die vom Zr-Filter transmittiert werden. Es sollte noch darauf hingewiesen werden, dass die gemessene Intensität stark variiert, je nach Kameraposition und verwendetem Filter. Vergleicht man beispielsweise Abbildung 4.10 und 4.9 wird die Abweichung deutlich. Das kann durch die

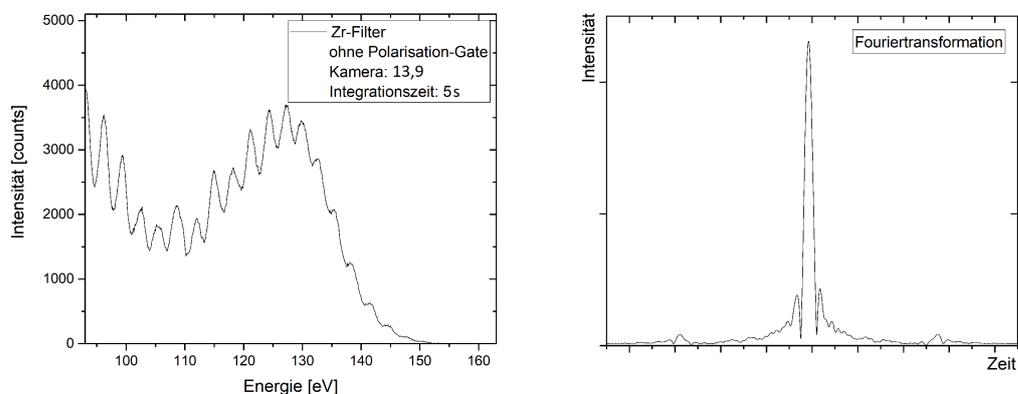


**Abbildung 4.8:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Filter: Al, Polarisation Gate: nein, Kameraposition: 10.8, Integrationszeit: 1s. Zu sehen ist ein typisches XUV-Spektrum bei Verwendung eines Al-Filters, die Fouriertransformation zeigt deutlich Nebenpeaks.



**Abbildung 4.9:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $134^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $180^\circ$ , Filter: Al, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 10.8, Integrationszeit: 1s. Durch das Polarisation Gate wird die Intensität der Nebenpeaks gegenüber Abbildung 4.8 unterdrückt, sie sind aber noch deutlich zu erkennen.

Effizienz des verwendeten Gitters erklärt werden. Dieses ist laut Hersteller für Energien bis zu 112 eV ausgelegt, wodurch noch höhere Energien we-



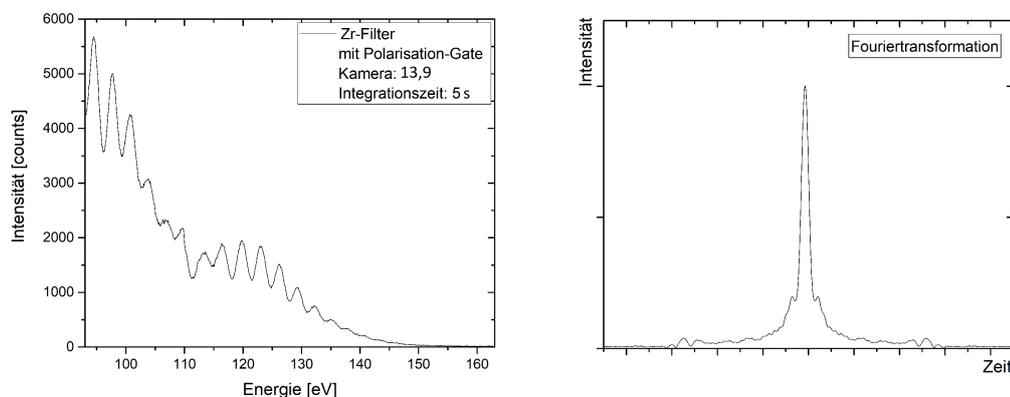
**Abbildung 4.10:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Filter: Zr, Polarisations Gate: nein, Kameraposition: 10.8, Integrationszeit: 1s. Die Fouriertransformation zeigt wieder deutliche Nebenpeaks, sie haben jedoch einen größeren zeitlichen Abstand zum Hauptpeak.

sentlich ineffizienter gebeugt werden und so bei der Kamera eine geringere Intensität einfällt.

#### 4.2.2 PASSAGE

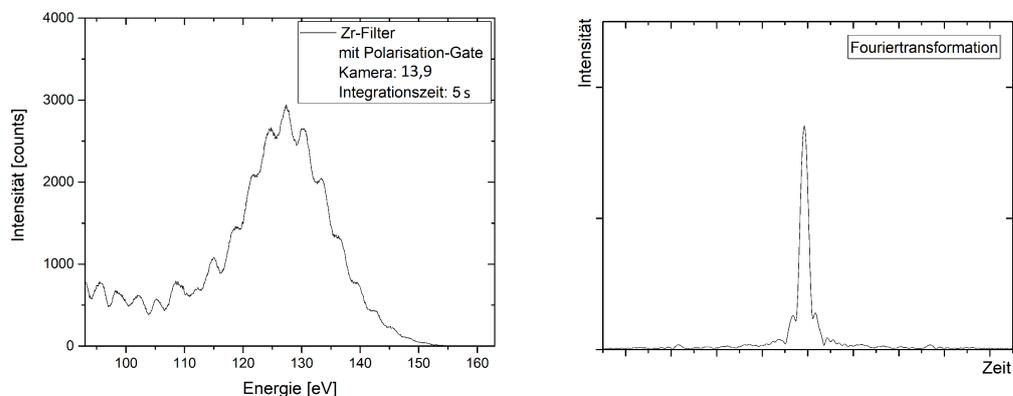
Im Folgenden wird die wohl spannendste Frage dieser Arbeit beantwortet, und zwar, ob das Polarisation Assisted Amplitude Gating in Verbindung mit unserem Aufbau eine mögliche Methode ist, isolierte XUV-Pulse zu erzeugen.

Die einzelnen Experimentierschritte bis hin zu Umsetzung von PASSAGE werden in den Abbildungen 4.11-4.14 dargestellt. Jedes abgebildete Frequenzspektrum ist das Resultat von ca. zehn Einzelmessungen mit einer Integrationszeit von fünf Sekunden, die daraufhin gemittelt wurden. Dies sorgte dafür, dass die Spektren geglättet wurden, d.h. das Rauschen der Einzelspektren aufgrund von Modenflackern des Lasers unterdrückt wurde. Grobe Modulationen des Spektrums wurden dadurch jedoch nicht verändert. Das Polarisations Gate wurde zuerst so eingestellt, dass die auf dem Quarz-Plättchen markierte Achse  $45^\circ$  relativ zur Eingangspolarisation gedreht war und die auf dem  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen markierte Achse wiederum  $45^\circ$  relativ dazu (Abbildung 4.11). Es ist recht schnell ersichtlich, dass dies wohl nicht

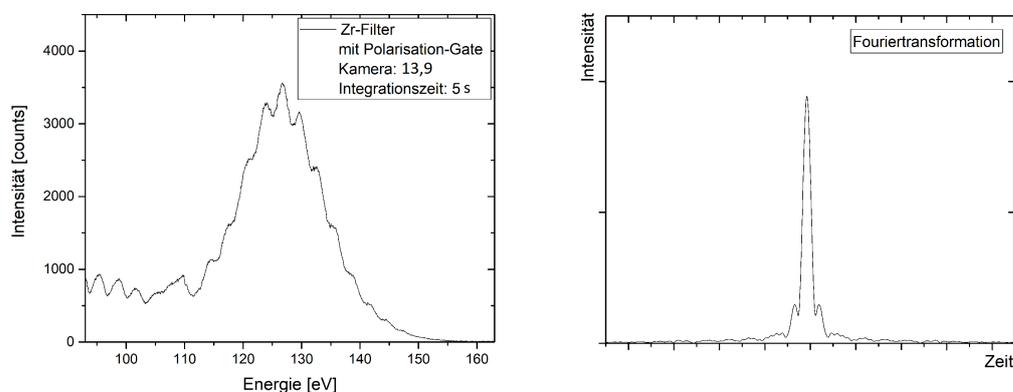


**Abbildung 4.11:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $134^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $180^\circ$ , Filter: Zr, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 13.9, Integrationszeit: 5s, langsame CEP-Stabilisierung: inaktiv. Ähnlich wie in Abbildung 4.10 sind noch Nebenpeaks in der Fouriertransformation zu erkennen.

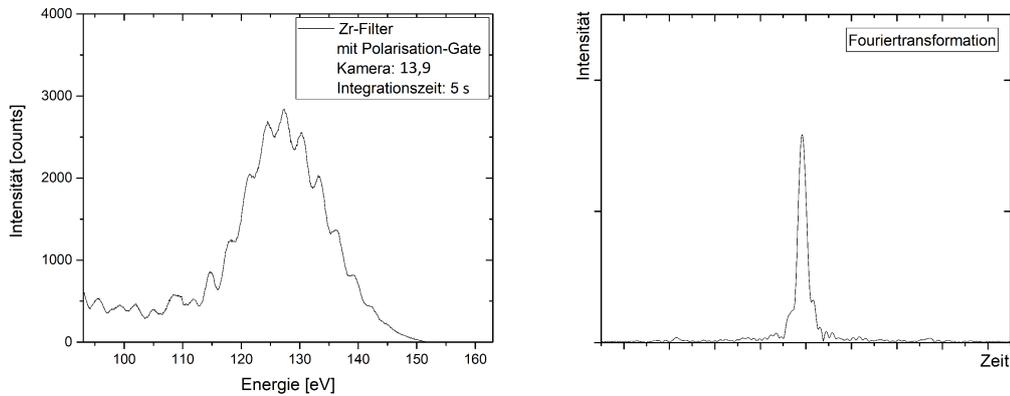
die richtige Einstellung des Polarisation Gates ist, da noch Nebenpeaks in der Fouriertransformation zu sehen sind. Dies lässt darauf schließen, dass die auf den beiden Optiken jeweils markierte Achse wohl keiner ihrer Kristallachsen entspricht. Danach wurde versucht, das Polarisation Gate so einzustellen um bei hohen Energien ein möglichst modulationsfreies und kontinuierliches Spektrum zu erhalten. Schließlich wurden die Einstellungen  $116^\circ$  am Quarz- und  $168^\circ$   $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen für erfolgversprechend erachtet. Die Fouriertransformation bestätigt diese Annahme, da der Verlauf der Kurve die Amplitude eines einzigen Pulses zeigen könnte. Lediglich im äußersten Bereich des Spektrums sind noch kleine Erhebungen zu sehen, die auf die Existenz eines zusätzlichen, sehr schwachen Nebenpulses deuten könnten. Anschließend wurde nochmal versucht, die Einstellungen des Polarisation Gates zu perfektionieren (Quarz-Plättchens:  $123^\circ$ ,  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchen:  $167^\circ$ ). Das in Abbildung 4.12 gezeigte Frequenzspektrum von dem in Abbildung 4.13 zu unterscheiden fällt einigermaßen schwer, aber der äußere Bereich der fouriertransformierten Amplitude zeigt, dass eventuelle Nebenpulse durch die Neujustierung des Gates nochmal mehr unterdrückt wurden. Die Umrechnung des FWHM von Frequenz- auf Zeitdarstellung unterstützt einen Puls mit einer Länge von 271 as. Abschließend (Abbildung 4.14) ist dieje-



**Abbildung 4.12:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $116^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $168^\circ$ , Filter: Zr, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 13.9, Integrationszeit: 5s, langsame CEP-Stabilisierung: inaktiv. Die Intensität zuvor deutlich zu sehender Nebenpeaks in der Fouriertransformation ist fast vollständig unterdrückt und es bleibt ein mittig lokalisiertes Maximum.



**Abbildung 4.13:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $123^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $167^\circ$ , Filter: Zr, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 13.9, Integrationszeit: 5s, langsame CEP-Stabilisierung: inaktiv, unterstützte zeitliche Dauer eines isolierten XUV-Pulses: 271 as. Die Nebenpeaks sind in der Fouriertransformation nicht mehr zu erkennen.



**Abbildung 4.14:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $123^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $167^\circ$ , Filter: Zr, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 10.8, Integrationszeit: 5s, langsame CEP-Stabilisierung: aktiv. Die Fourierdarstellung ist nahezu identisch zu 4.13.

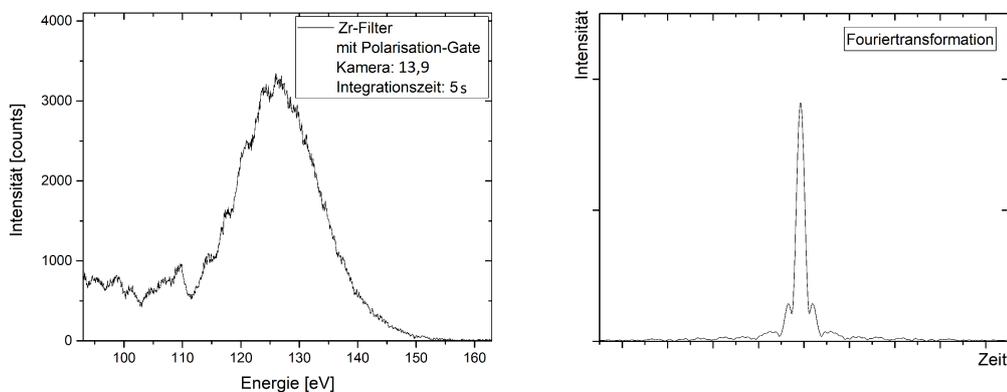
nige CEP-Stabilisierung eingeschaltet worden, die auf einer Zeitskala von Sekunden wirkt. Der Unterschied zur vorherigen Messung fällt derart gering aus, da zum einen die Cavity des Lasers schon über eine eigene, auf kürzeren Zeitskalen wirkende CEP-Stabilisierung verfügt und zum anderen kleine Fluktuationen im Spektrum aufgrund von leichten Verschiebungen der CEP während der Aufnahme eines Einzelspektrums durch die Integrationszeit von 5 s weitestgehend herausgemittelt werden.

Die Form der Frequenzspektren des XUV-Signals kommt wie schon beschrieben durch Überlagerung aller erzeugten XUV-Pulse zustande. Man stelle sich das Frequenzspektrum eines einzelnen Pulses wie eine breite Gaussverteilung im Frequenzraum vor. Wir wissen ebenfalls, dass wenn ein intensiveres Extremum des treibenden Pulses für die Hohen-Harmonischen-Erzeugung sorgt, ein energiereicherer XUV-Puls erzeugt wird. Je mehr Energie ein Puls hat, desto weiter rechts liegt seine spektrale Gaussverteilung. In einem Pulszug aus mehreren XUV-Pulsen interferieren die verschiedenen Gaussverteilungen in den Bereichen, in denen sie sich überlagern und es entsteht die typische Modulation auf den Spektren, wie man sie nun schon oft sehen konnte. Im Bereich der höchsten Energien sind nur die Frequenzkomponenten desjenigen Pulses vorhanden, der aus dem intensivsten Maximum

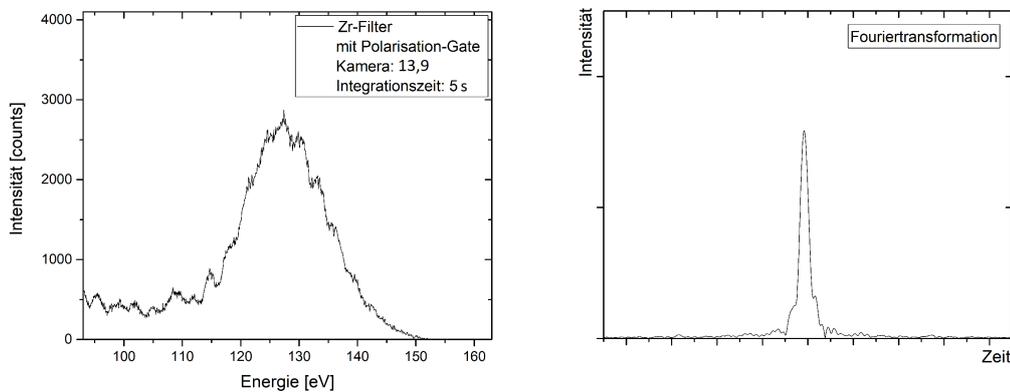
des treibenden E-Felds resultiert. Diese können nicht interferieren, wodurch dort keine Modulation zu sehen sind, der Bereich des Kontinuums. Was bei PASSAGE anschaulich gesprochen im Frequenzraum passiert ist, dass man zunächst durch das Polarisation Gate die Anzahl der XUV-Pulse reduziert und deren unterschiedliche Energien stärker separiert. Anschließend schneidet man die Frequenzanteile der energiearmen XUV-Pulse so weit aus, dass ausschließlich der intensivste Puls übrig bleibt.

Egal welches bei Kameraposition 13,9 aufgenommene Spektrum man betrachtet, man erkennt im Bereich der höchsten Frequenzen immer das Kontinuum, da die Modulationsstärke des Signals dort immer abnimmt. Nun sind aber in den Spektren, von denen in den Bildunterschriften behauptet wird, sie könnten die einzelner XUV-Pulse sein, nach wie vor Restmodulationen zu erkennen, beispielsweise in Abbildung 4.13. Das liegt daran, dass die Frequenzkomponenten energieärmerer Pulse trotz Ausschneiden durch das Amplitude Gating zum Teil noch im Spektrum enthalten sind. Diese können zwar Nebenpulse darstellen, deren Intensität ist aber stark unterdrückt. Was man mit Sicherheit sagen kann ist, dass man durch PASSAGE einen XUV-Puls mit zentraler Energie von ca. 128 eV erhält, dessen Spektrum eine Pulsdauer von ungefähr 271 as unterstützt. Dass es der einzige aus dem Experiment resultierende XUV-Puls ist, kann jedoch alleine anhand des Frequenzspektrums nicht eindeutig bestätigt werden, obwohl die zugehörigen Fouriertransformationen vielversprechend aussehen.

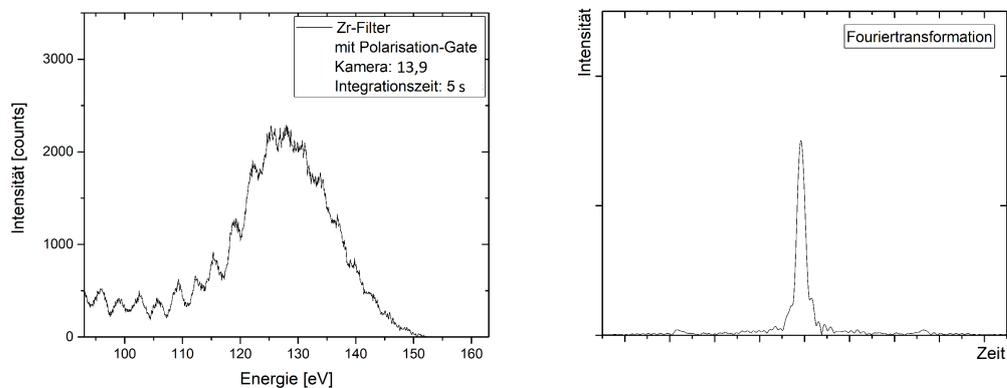
Abschließend werden noch einige Einzelspektren mit ihren Fouriertransformationen zu sehen sein. Man erkennt, dass gegenüber den gemittelten Spektren mehr Rauschen im Signal vorhanden ist. Die Messungen aus Abbildung 4.15 und 4.18 ergaben einen nahezu modulationsfreien Gausspeak, nur im linken Bereich der Spektren sind noch Modulationen zu sehen. Obwohl mal stärkere, mal sehr wenige Modulationen erkennbar sind, weisen die Fouriertransformationen der Einzelspektren so gut wie keine Unterschiede auf, was auch wieder die Annahme bestätigt, dass rein aus diesem Messverfahren keine endgültige Aussage über die Funktionalität des PASSAGE getroffen werden kann.



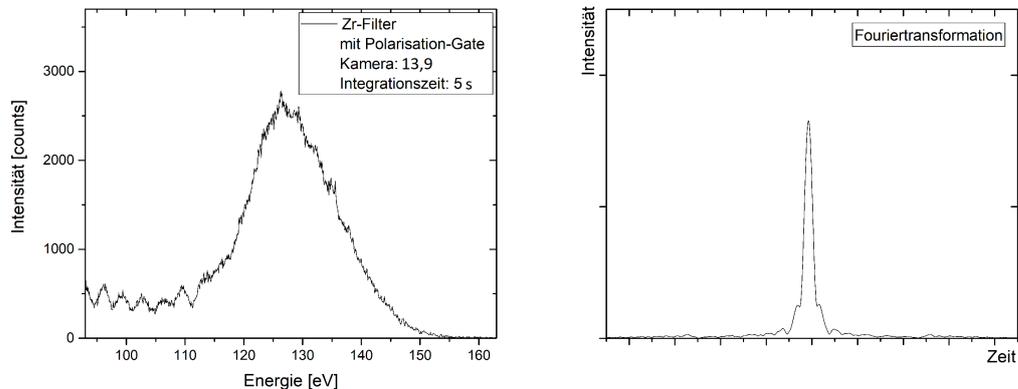
**Abbildung 4.15:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $123^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $167^\circ$ , Filter: Zr, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 13.9, Integrationszeit: 5s, langsame CEP-Stabilisierung: inaktiv, unterstützte zeitliche Dauer eines isolierten XUV-Pulses: 271 as.



**Abbildung 4.16:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $123^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $167^\circ$ , Filter: Zr, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 13.9, Integrationszeit: 5s, langsame CEP-Stabilisierung: inaktiv, unterstützte zeitliche Dauer eines isolierten XUV-Pulses: 286 as.



**Abbildung 4.17:** QLinks: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $123^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $167^\circ$ , Filter: Zr, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 13.9, Integrationszeit: 5s, langsame CEP-Stabilisierung: inaktiv, unterstützte zeitliche Dauer eines isolierten XUV-Pulses: 282 as.



**Abbildung 4.18:** Links: Aufgenommenes Frequenzspektrum. Rechts: Fouriertransformation des Spektrums. Parameter: Einstellung des Quarz-Plättchens:  $123^\circ$ , Einstellung des  $\frac{\lambda}{4}$ -Plättchens:  $167^\circ$ , Filter: Zr, Polarisation Gate: ja, Kameraposition: 13.9, Integrationszeit: 5s, langsame CEP-Stabilisierung: aktiv, unterstützte zeitliche Dauer eines isolierten XUV-Pulses: 270 as.

## 5 Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassend wurde in dieser Arbeit die Funktionalität des PASSAGE in Verbindung mit dem verfügbaren Lasersystem untersucht. Im Zuge dessen wurde die P-Polarisation des treibenden Laserfelds gemessen und sichergestellt, dass diese bis hin zur Hohen-Harmonischen-Erzeugung unverändert bleibt. Es wurden Spektren mit unterschiedlichen Variationen des Aufbaus aufgenommen, jeweils mit Al- oder Zr-Filter und mit oder ohne Polarisation Gate, welches im Zuge der Arbeit konstruiert wurde. Der Energiebereich des betrachteten Spektralbereichs bei Verwendung von PASSAGE, also mit Zr-Filter und Polarisation Gate, wurde auf ca 93-163 eV abgeschätzt, wodurch die Fouriertransformationen der aufgenommenen Frequenzspektren auch quantitativ hinsichtlich ihrer Halbwertsbreiten diskutiert werden konnten. Es ist aus den Spektren ersichtlich, dass PASSAGE mit Sicherheit eine vielversprechende Methode ist, isolierte Attosekundenpulse zu erzeugen. Es war möglich die Modulationen des Hohen-Harmonischen-Spektrums weitgehend zu reduzieren. Die Amplituden der Fouriertransformationen unterstützen einen XUV-Puls mit zeitlicher Breite von rund 270 as. In weiteren Experimenten könnten nun z.B. CEP-Scans durchgeführt werden. Diese würden eine eindeutigere Aussage über die Anzahl der erzeugten XUV-Pulse zulassen. Ändert man die CEP des treibenden Laserfelds, verschiebt man zugleich die Intensität der Extrema, an denen Hohen-Harmonischen-Erzeugung stattfindet. Ein Puls mit  $CEP = 0$  hat ein globales Maximum exakt in der Mitte der Einhüllenden und das resultierende XUV-Licht enthält einen energetisch höchsten Puls. Schiebt man die CEP um  $\frac{\pi}{2}$  enthält das Quadrat des treibenden E-Felds zwei Maxima selber Intensität und man kann im XUV-Spektrum nicht mehr zwischen den beiden resultierenden XUV-Pulsen unterscheiden. Bei einem CEP-Scan mit PASSAGE soll überprüft werden, ob bei  $CEP = \pm\frac{\pi}{2}$  noch XUV-Licht erzeugt wird. Ist dies nicht der Fall, reichen die vom Zr-Filter transmittierten Frequenzanteile resultierend aus den beiden für  $CEP = \pm\frac{\pi}{2}$  Maxima nicht aus, um einen XUV-Puls darzustellen. Wenn man dann bei  $CEP = 0$  XUV-Licht misst, kann man davon

ausgehen, dass es sich nur um einen Puls handelt, resultierend aus dem zentralen, absoluten Maximum des treibenden E-Felds. Um mehr Informationen über das treibende E-Feld zu erhalten wäre es sinnvoll, die Flugzeit des ungebundenen Elektrons in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen den treibenden und den XUV-Pulsen zu messen. Man nennt diese Technik Streaking, ausführlich beschrieben in [21]. Dies würde eine Rekonstruktion des E-Felds ermöglichen, das die Hohen Harmonischen erzeugt und man könnte so weitere Aussagen darüber treffen, wie viele XUV-Pulse erzeugt werden.

Weiterhin könnten XUV-Spektren für verschiedene Stellungen des Polarisation Gates aufgenommen werden, um einen Eindruck zu erhalten, wie sich die Elliptizität des treibenden Felds auf das XUV-Licht auswirkt. Außerdem sollten die Hauptachsen der im Polarisation Gate verwendeten Verzögerungsplatten bestimmt werden, um eine genauere Aussage darüber machen zu können, was mit der Polarisation innerhalb des Gates passiert. Nachdem die auf den Optiken jeweils markierte Achse offensichtlich nicht mit einer der Kristallachsen übereinstimmt, ist unklar, ob in der Praxis rein die Dispersionseffekte auftreten, die theoretisch beschrieben wurden. Ein Hinweis darauf ist in jedem Fall aber, dass die Quarz- und die  $\frac{\lambda}{4}$ -Platte bei optimaler Ausrichtung (siehe Abbildung 4.13)  $44^\circ$  gegeneinander gedreht waren.

Eine explizite, mit unserem Aufbau umsetzbare Anwendung von PASSAGE wird in [22] vorgestellt. Es wurden Hohe Harmonische in Argon mit Hilfe von Polarisation Assisted Amplitude Gating mit einer zentralen Energie von 67 eV erzeugt, mit denen das Absorptionsverhalten von Xenon im  $4d^{-1}6p$ -Zustand im Tunnel-Regime untersucht wurde. Aufgrund des breiten Spektrums des mit PASSAGE erzeugten XUV-Pulses, dessen zeitliche Ausdehnung im Paper mit 170 as abgeschätzt wurde, kann die gesamte spektrale Absorptionsstruktur des Zustandes untersucht werden. Im Speziellen sollte der Shift des Absorptionspeaks von 65 eV nach 58 eV basierend auf Ein-Photon-Kopplung zwischen Zuständen unterschiedlicher Parität und Halb-Zyklus-Oszillationen durch Zwei-Photon-Kopplung von Zuständen gleicher Parität untersucht werden.



# Literaturverzeichnis

- [1] W. Heisenberg and J. Busche, *Quantentheorie und Philosophie: Vorlesungen und Aufsätze*. Reclams Universal-Bibliothek. Reclam, 1979.
- [2] W. Nolting, *Grundkurs Theoretische Physik 5/1*. Grundkurs Theoretische Physik. Springer Berlin Heidelberg, 2008.
- [3] P. B. Corkum, “Plasma perspective on strong field multiphoton ionization,” *Physical Review Letters* **71** no. 13, (1993) 1994.
- [4] <https://www.rp-photonics.com/chirp.html>.
- [5] Z. Chang, *Fundamentals of Attosecond Optics*. Taylor & Francis, 2011.
- [6] [https://www.helmholtz-berlin.de/forschung/oe/fg/mi-synchrotron-radiation/synchrotron/photons/x-ray-pulses/high-harmonic-generation/index\\_en.html](https://www.helmholtz-berlin.de/forschung/oe/fg/mi-synchrotron-radiation/synchrotron/photons/x-ray-pulses/high-harmonic-generation/index_en.html).
- [7] M. Hartmann, “Characterization of few-cycle laser pulses,” 2016.
- [8] A. Blättermann, “Impulsive control of the atomic dipole response in the time and frequency domain,” 2016.
- [9] H. Timmers, M. Sabbar, J. Hellwagner, Y. Kobayashi, D. M. Neumark, and S. R. Leone, “Polarization-assisted amplitude gating as a route to tunable, high-contrast attosecond pulses,” *Optica* **3** (2016) 707–710.
- [10] D. Meschede, *Optik, Licht und Laser*. Teubner-Studienbücher : Physik. Teubner, 1999.
- [11] E. Hecht, *Optik*. Oldenbourg, 2001.
- [12] <http://www.astro.uni-jena.de/Teaching/Praktikum/pr2002/node235.html>.

- [13] <http://www.physi.uni-heidelberg.de/Einrichtungen/FP/anleitungen/F85-86-87.pdf>.
- [14] [http://www.chemgapedia.de/vsengine/vlu/vsc/de/ph/14/ep/einfuehrung/wellenoptik/polarisation\\_d.vlu/Page/vsc/de/ph/14/ep/einfuehrung/wellenoptik/polarisation61.vscml.html](http://www.chemgapedia.de/vsengine/vlu/vsc/de/ph/14/ep/einfuehrung/wellenoptik/polarisation_d.vlu/Page/vsc/de/ph/14/ep/einfuehrung/wellenoptik/polarisation61.vscml.html).
- [15] <http://iopscience.iop.org/article/10.1088/1367-2630/10/2/025025>.
- [16] M. Chini, K. Zhao, and Z. Chang, “The generation, characterization and applications of broadband isolated attosecond pulses,” *Nature Photonics* **8** no. 3, (2014) 178–186.
- [17] [http://henke.lbl.gov/optical\\_constants/filter2.html](http://henke.lbl.gov/optical_constants/filter2.html).
- [18] <http://www.ultrafast-innovations.com/index.php/ufitest/article/160-pc70>.
- [19] [https://www.rp-photonics.com/group\\_velocity\\_dispersion.html](https://www.rp-photonics.com/group_velocity_dispersion.html).
- [20] M. Miranda, T. Fordell, C. Arnold, A. L’Huillier, and H. Crespo, “Simultaneous compression and characterization of ultrashort laser pulses using chirped mirrors and glass wedges,” *Opt. Express* **20** no. 1, (2012) 688–697.
- [21] Y. Mairesse and F. Quéré, “Frequency-resolved optical gating for complete reconstruction of attosecond bursts,” *Physical Review A* **71** no. 1, (2005) 011401.
- [22] Y. Kobayashi, H. Timmers, M. Sabbar, S. R. Leone, and D. M. Neumark, “Attosecond transient-absorption dynamics of xenon core-excited states in a strong driving field,” *Physical Review A* **95** no. 3, (2017) 031401.

# Würdigung

Es sei allen Mitgliedern der Interatto-/X-Music-Gruppe gedankt, dass sie diese Bachelorarbeit ermöglicht haben. Ich wurde stets gut unterstützt, mir wurden geduldig (manchmal auch mehrfach) die Grundlagen beim Umgang mit dem Laser gezeigt.

Besonderer Dank gilt:

- **Max Hartmann** für seine unermüdlichen Erklärungen, Korrekturen vorläufiger Versionen dieser Arbeit und Tanzeinlagen im Labor. Er nahm sich bei Fragen und Problemen stets Zeit, auch wenn es für ihn selbst manchmal Stress bedeutete.
- dem Alphakritiker **Paul Birk** für das ein oder andere Lab-View-Programm, seine Hilfe bei der Erstellung meiner eigenen Programme und für das Korrekturlesen der Arbeit.
- **Anne Harth** für das Korrekturlesen der Arbeit und die lobenden Worte.

Ich wurde in der Gruppe zu Beginn freundlich aufgenommen und habe in der Zeit bei euch viel gelernt. Meine gesundheitliche Situation war während der Entstehung der Arbeit nicht optimal, aber auch dafür wurde Verständnis gezeigt. Ich bin sehr dankbar dafür bei euch gewesen zu sein, mit euch gearbeitet zu haben und die Zeit zu genesen bekommen zu haben, als es nötig war. Ich hoffe wir sehen uns wieder für die Masterarbeit. Bleibt solange so wie ihr seid.

Meine Familie soll an dieser Stelle auch nicht unerwähnt bleiben, da sie in stressigen Zeiten immer ein offenes Ohr für mich haben und versuchen, mich wieder auf den Boden zu bringen. Ich bin selbst wohl mein größter Kritiker und kann mich glücklich schätzen, dass sie den Gegenpol dazu darstellen.



Erklärung:

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

Heidelberg, den 26. Juli 2017

.....

Declaration:

I hereby certify that the thesis I am submitting is entirely my own original work except where otherwise indicated.

Heidelberg, July 26<sup>th</sup> 2017

.....