

Marc Winter

Messung von zeitlichen und räumlichen Strukturen mit ultrakurzen Elektronenpulsen

Die vorliegende Arbeit wurde vom Fachbereich Naturwissenschaften der Universität Kassel als Dissertation zur Erlangung des akademischen Grades eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.) angenommen.

Erster Gutachter: Prof. Dr. Thomas Baumert

Zweiter Gutachter: Prof. Dr. Martin Garcia

Tag der mündlichen Prüfung

13. Februar 2008

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <http://dnb.d-nb.de> abrufbar

Zugl.: Kassel, Univ., Diss. 2008

ISBN 978-3-89958-386-1

URN: urn:nbn:de:0002-3869

© 2008, kassel university press GmbH, Kassel

www.upress.uni-kassel.de

Druck und Verarbeitung: Unidruckerei der Universität Kassel

Printed in Germany

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	v
1. Theoretische Grundlagen	1
1.1. Mathematische Beschreibung von ultrakurzen Laserpulsen	1
1.2. Spektral phasengeformte ultrakurze Laserpulse	3
1.2.1. Lineare spektrale Phasenformung	3
1.2.2. Pulsdauer phasengeformter Pulse	8
2. Kohärente Materiewellen	15
2.1. Propagation von Materiewellen im Phasenraum	15
2.1.1. Analogie zur Optik	15
2.1.2. Doppelpulspropagation im Phasenraum	17
2.2. Messung von Interferenzen im Phasenraum	21
2.3. Experimenteller Aufbau	22
2.4. Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse	24
2.5. Zusammenfassung	28
3. Ultraschnelle Elektronenbeugung	31
3.1. Messen von Bewegungen auf molekularer Ebene	32
3.2. Experimentelle Aufbauten	34
3.2.1. Röntgenquellen	35
3.2.2. Elektronenbeugungsanlage	38
3.3. Elektronenerzeugung	45
3.3.1. Modell zur Beschreibung der Photoemission auf fs-Zeitskalen	45
3.3.2. Zeitlicher Emissionsverlauf	50
3.3.3. Experimenteller Aufbau	52
3.3.4. Quanteneffizienz unterschiedlicher Kathodenmaterialien . .	55
3.3.5. Fluenzabhängigkeit der Elektronenausbeute	57
3.3.6. Doppelpulsanregung	60
3.3.7. Spektrale Phasenabhängigkeit	61
3.3.8. Zusammenfassung	68
3.4. Elektronenpropagation	71
3.4.1. Energieverteilung der Elektronen	71
3.4.2. Analytische Beschreibungen	72

3.4.3. Simulation der Elektronenpropagation	76
3.4.4. Niedrige Elektronenanzahlen	79
3.4.5. Hohe Elektronenanzahlen	85
3.4.6. Pulsdauerbestimmung von Elektronenpulsen	87
3.4.7. Zusammenfassung	95
3.5. Statische Elektronenbeugung	97
3.5.1. Theorie	97
3.5.2. Experimenteller Aufbau	102
3.5.3. Experimentelle Ergebnisse	103
3.5.4. Zusammenfassung	105
3.6. Zusammenfassung	107
4. Zusammenfassung und Ausblick	109
4.1. Zusammenfassung	109
4.2. Ausblick	112
A. Experimente an der Röntgenquelle der ersten Generation	115
B. Simulation zur Elektronenerzeugung	121
B.1. Schottky-Effekt	121
B.2. Fowlerfunktion	121
B.3. Zwei-Temperatur Modell	121
C. Optimierungsalgorithmus	125
C.1. Grundlagen	125
C.1.1. Evolutionäre Programmierung	126
C.1.2. Evolutionsstrategie	127
C.1.3. Genetische Algorithmen	127
C.1.4. Einordnung der Algorithmen	127
C.2. Aufbau des Algorithmus	128
C.3. Benchmark des Algorithmus	133
C.3.1. Minimierung	133
C.3.2. Problem des Handlungsreisenden	135
C.3.3. Zusammenfassung	136
C.4. Anwendungsbeispiel: Pulsdaueroptimierung	137
D. Konstruktionszeichnungen	141
D.1. Gestell	142
D.2. Vakuumkörper und Flansche	145
D.3. Elektronenquelle und Probenhalter	147
D.3.1. Kathode	148

D.3.2. Anode	152
D.3.3. Probenhalter	153
E. Liste der Veröffentlichungen	169
F. Danksagung	171

Einleitung

Elektronen sind ein vielseitiges Werkzeug zur Messung von zeitlichen und räumlichen Strukturen im jeweils konjugierten Raum.

Die Messung von physikalischen Größen im konjugierten Raum ist ein häufig anzutreffendes Grundprinzip in der Experimentalphysik. So ist zum Beispiel die Messung eines Spektrums mit einem handelsüblichen Spektrometer eine solche Messung. Der Impuls p der Photonen, gegeben durch den Quotienten aus ihrer Energie E und der Lichtgeschwindigkeit c

$$p = E/c$$

wird durch räumliche Aufspaltung der spektralen Komponenten an einem Gitter in eine Ortsmessung überführt. Hierbei ist das Zusammenspiel von Interferenz und Dispersion zur Konversion der Ortsverteilung der elektromagnetischen Welle in ihre Impulsverteilung der entscheidende Prozess. Dies ist ein sehr allgemeines Prinzip, welches in dieser Arbeit auf Messungen mittels Materiewellen – speziell Elektronenwellen – angewandt wird.

1924 stellte de Broglie in seiner Doktorarbeit die Hypothese auf, dass sich die Ausbreitung einer Welle und die Bewegung eines Körpers sich nicht voneinander trennen lassen¹. Einem bewegten Teilchen mit der Ruhemasse m_0 und einer Geschwindigkeit v ist mit dem Planckschen Wirkungsquantum h demnach eine Wellenlänge

$$\lambda = \frac{h}{m_0 v} \sqrt{1 - \left(\frac{v}{c}\right)^2}$$

zugeordnet. Demzufolge sind Beugungsexperimente, wie sie aus der Optik, z.B. mit Röntgenstrahlen, bekannt waren, auf Teilchenexperimente übertragbar. Dies diente Davisson und Germer als Basis für erste Beugungsexperimente mit langsamem Elektronen² [1]. Zeitgleich beschrieben Thomson und Reid Beugungsexperimente mit schnellen Elektronen³. Ein kurzer Abriss über den Beginn der Elektronenbeugung findet sich in [2]. Für diese Experimente erhielten Davisson und Thomson 1937 den Nobelpreis. In der Folge haben sich Experimente zur Strukturbestimmung

¹... Nobelpreis Physik 1929

²... ca. 200 eV kinetische Energie

³... ca. 10 keV kinetische Energie

auf Basis der Elektronenbeugung zu einem wichtigen Standardwerkzeug entwickelt [3, 4]. Für die Untersuchung der Struktur von Festkörpern und Molekülen sind diese Methoden essentiell. Die Signale sind durch Streuung der Elektronenwellen am Kristallgitter entstehenden Interferenzmuster. Hierbei handelt es sich um eine Messung im Impulsraum, die Rückschlüsse auf die räumliche Struktur des Kristallgitters zulässt.

In dieser Arbeit wird, inspiriert von [5, 6], diese Messmethode mit ultrakurzen Laserpulsen zur Erzeugung der Elektronenwellen kombiniert. Dies ermöglicht die direkte Beobachtung transienter Strukturänderungen auf einer ps bis sub-ps Zeitskala.

Inzwischen wurde diese Technik sowohl zur Untersuchung von photoinduzierten strukturellen Änderungen an Molekülen in der Gasphase, als auch zur Untersuchung von Femtosekundenlaser induzierten Phänomenen an Oberflächen und im Festkörper eingesetzt⁴.

Der Aufbau einer entsprechenden Anlage und Versuche zur Optimierung von Elektronenpulsdauer und Quanteneffizienz bei der Elektronenpulserzeugung auf Basis der Femtosekundenpulsformung bilden einen Teil dieser Arbeit (Kapitel 3).

Neben der zeitaufgelösten Untersuchung der räumlichen Struktur durch Messung im Impulsraum beschäftigt sich der andere Teil der Arbeit mit der Bestimmung zeitlicher Strukturen durch Messung der Energieverteilung. Dabei werden Elektronenwellenpakete eingesetzt, um ultrakurze Laserpulse zeitlich zu charakterisieren.

Die Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse ist für den Einsatz in Forschung und Anwendung fundamental. Obwohl eine große Bandbreite an Charakterisierungstechniken existiert, ist die Anwendung auf Pulse im XUV Bereich oft problematisch. Techniken in diesem Spektralbereich sind jedoch für die Charakterisierung von Attosekundenpulsen unabdingbar.

Im Allgemeinen schließt die ultrakurze Pulsdauer eine direkte Bestimmung ihrer zeitlichen Struktur aus. Sie kann jedoch mit Hilfe von nichtlinearen Korrelationstechniken extrahiert werden. Zusätzlich existieren Charakterisierungstechniken, die im Spektralbereich – Spektrale Interferometrie (SI) – oder im kombinierten Zeit-/Frequenzraum – Frequency Resolved Optical Gating (FROG) – arbeiten. Messungen des Spektrums im Zeitbereich [7] haben gezeigt, dass die Trennung von Techniken, die im Spektralbereich, oder im Zeitbereich arbeiten, vernachlässigbar ist. In [7] wurde durch ein linear gechirptes Bragg Fasergitter die zeitliche Form des Pulses in seine spektrale Form konvertiert. Dies geschah durch die zeitliche Trennung der spektralen Komponenten. Erreicht wurde dies durch ausreichend große Dispersionseffekte.

Basis der durchgeführten Experimente ist sowohl im Fall der Elektronenbeugung, als auch im Fall der Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen mittels

⁴... In Abschnitt 3.1 wird ein Überblick über den momentanen Stand der Anwendungen gegeben

Materiewellen, der Einsatz eines Femtosekundenlasersystems. Daher werden im ersten Kapitel zunächst die theoretischen Grundlagen zur Beschreibung ultrakurzer Laserpulse eingeführt. Hierbei wird in Abschnitt 1.2.2 eine allgemeine analytische Form für die statistische Pulsdauer eines Laserpulses angegeben. Dies ist für die Diskussion komplexer Pulsformen, wie sie durch lineare Phasenformung erzeugt werden können (Abschnitt 1.2), hilfreich.

Im zweiten Kapitel wird die Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse mittels kohärenter Materiewellen beschrieben. Eine kürzere Fassung des Kapitels wurde bereits in [8] veröffentlicht.

Es wird gezeigt, wie die kohärente Propagation von Materiewellenpaketen – strukturierten, freien Elektronenwellenpaketen – im Vakuum die Messung einer Impulsverteilung im Ortsraum ermöglicht. Die Interferenz kohärenter Materiewellen wurde für Schwachfeld- [9, 10] und Starkfeldanregung [11] demonstriert und als Young'sches Doppelspaltexperiment in der Zeitdomäne interpretiert. In dieser Arbeit werden die Photoelektronenspektren der Multi-Photonen Anregung von Kaliumatomen zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse verwendet. Hierzu wird zunächst demonstriert, wie ein Elektronenwellenpaket – dessen zeitliche und spektrale Form durch den ionisierenden Laserpuls bestimmt sind – in seine Impulsdarstellung, also das Photoelektronenspektrum, überführt wird. Da dieser Prozess zur Propagation von Laserpulsen in dispersiven Medien analog ist, werden die gemeinsamen Prinzipien in Optik und Quantenmechanik betont. Ein einfaches Bild des Effektes, der über Dispersion und Interferenz den Ortsraum und den Impulsraum verbindet, wird im Phasenraum durch die Wignerverteilung gegeben.

Anschließend werden diese Erkenntnisse für die Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse zur Anwendung gebracht. Durch Messung der Above Threshold Ionization (ATI) Spektren wird eine Nichtlinearität in den Messprozess eingeführt. Diese ist für den Einsatz der FROG Technik zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse notwendig. Im Gegensatz zu bisher für den XUV Bereich vorgestellten Charakterisierungstechniken, welche entweder auf Autokorrelationen 2. Ordnung [12, 13] oder energieaufgelösten Kreuzkorrelationstechniken [14, 15, 16] basieren, wird hier eine Methode präsentiert, die energieaufgelöste Photoelektronenspektren verwendet. Die Spektren werden in einem Autokorrelationsaufbau mit interferometrischer Auflösung aufgenommen. Um die zeitliche Information über den Ionisationslaserpuls zu erhalten, werden diese Spektren in eine FROG Spur konvertiert. Die zeitliche Struktur wird anschließend durch einen Standardalgorithmus extrahiert und mit direkten Messungen der Pulsform verglichen, um die Funktion der Charakterisierungsmethode zu überprüfen. Da diese Methode keine optischen Elemente zur Einführung der notwendigen Nichtlinearität verwendet, kann sie auch auf die Charakterisierung von Laserpulsen im XUV Bereich angewandt werden.

Kapitel 3 beschäftigt sich im Anschluss mit dem zweiten Aspekt der Messung von Strukturen im konjugierten Raum. Dort wird der Aufbau einer Elektronenbeugungs-

anlage mit sub-ps Zeitauflösung beschrieben. Dabei wird, im Gegensatz zu anderen vergleichbaren Aufbauten, die Fundamentalwellenlänge des fs-Lasersystems als Basis für die Erzeugung der ultrakurzen Elektronenpulse verwendet. Dies ermöglicht die einfache Anwendung von fs-Pulsformungstechniken. Der eigentliche Aufbau⁵ wird begleitet von Experimenten, die zu einzelnen Teilaspekten der Anlage durchgeführt wurden. Zunächst wird auf die Elektronenerzeugung eingegangen. Hierzu wurde basierend auf [17] eine Simulation zur Elektronenemission von dünnen Metallkathoden entwickelt. Experimentell wird die Effizienz der Elektronenerzeugung an Silber-Nickel/Chrom Kathoden in Abhängigkeit verschiedener Laserparameter untersucht. Dabei wird neben der Fluenzabhängigkeit auch die Abhängigkeit von unterschiedlichen Pulsformen diskutiert. Zusätzlich wurde eine rückkopplungssteuerte Optimierung der Elektronenerzeugungseffizienz mittels eines evolutionären Algorithmus⁶ durchgeführt. Im Anschluss an die Elektronenerzeugung folgt die Beschreibung der Propagation der Elektronenpulse zum Probenort. Die zeitliche Entwicklung der Elektronenpulse während der Propagation ist entscheidend für die zeitliche Auflösung der Elektronenbeugungsanlage. Dies wird mittels einer Simulation untersucht, wobei auch wieder der Einfluss unterschiedlicher Laserpulsformen bei der Erzeugung besprochen wird. Ein erstes Experiment zur Bestimmung der Elektronenpulsdauer am Probenort wird vorgestellt. Neben der zeitlichen, ist auch die räumliche Auflösung wichtig für die zeitaufgelöste Strukturuntersuchung. Diese wird zum Abschluss von Kapitel 3 beleuchtet. Hierzu werden erste statische Beugungsexperimente gezeigt.

Die Ergebnisse der Arbeit werden in Kapitel 4 zusammengefasst. In Anhang A werden Vorexperimente vorgestellt, die an der ersten Version der Röntgenquelle des Laserzentrums Hannover durchgeführt wurden. Einige Details zur Simulation der Elektronenerzeugung werden in Anhang B behandelt. Die Implementierung des Evolutionären Algorithmus, wie er in 3.3.7 zur Optimierung der Elektronenerzeugungseffizienz verwendet wird, wird in Anhang C beschrieben. Es werden auch Tests zur Konvergenzstabilität und -geschwindigkeit des Algorithmus vorgestellt. Abschließend sind die Konstruktionszeichnungen zur Elektronenbeugungsanlage in Anhang D zusammengefasst.

⁵... Konstruktionszeichnungen siehe Anhang D

⁶... Details zum Algorithmus siehe Anhang C

1. Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden die notwendigen Grundlagen zu den verwendeten ultrakurzen Laserpulsen [18, 19] beschrieben. Zunächst wird in 1.1 die mathematische Beschreibung der Laserpulse eingeführt [20, 21, 22, 23]. Anschließend wird in 1.2 auf die spektrale Phasenformung von ultrakurzen Laserpulsen eingegangen (für eine detailliertere Darstellung, siehe [20, 22, 24, 25, 26, 27]). Der hierfür verwendete Aufbau ist in [26, 28] beschrieben.

1.1. Mathematische Beschreibung von ultrakurzen Laserpulsen

In diesem Teil wird die mathematische Beschreibung ultrakurzer Laserpulse eingeführt, wie sie im weiteren Verlauf der Arbeit verwendet wird.

Für die Diskussion im Rahmen dieser Arbeit reicht es aus, von einem linear polarisierten, skalaren elektrischen Feld auszugehen¹. Dementsprechend wird ein Laserpuls durch sein elektrisches Feld $E(t)$, bzw. $\tilde{E}(\omega)$ beschrieben. Der Zusammenhang zwischen beiden ist, unter Vernachlässigung der Ortskomponente, durch die Fouriertransformation gegeben

$$E(t) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{i\omega t} d\omega = \mathcal{F}^{-1}(\tilde{E}(\omega)) \quad (1.1)$$

$$\tilde{E}(\omega) = \int_{-\infty}^{\infty} E(t) e^{-i\omega t} dt = \mathcal{F}(E(t)) \quad (1.2)$$

Da reelle Felder betrachtet werden, $E(t)$ also reellwertig ist, folgt die Hermitizität von $\tilde{E}(\omega)$

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}^*(-\omega) \quad (1.3)$$

Somit lässt sich das elektrische Feld im Frequenzbereich komplett durch

$$\tilde{E}^+(\omega) = \begin{cases} 0 & , \omega < 0 \\ \tilde{E}(0)/2 & , \omega = 0 \\ \tilde{E}(\omega) & , \omega > 0 \end{cases} \quad (1.4)$$

¹... der magnetische Anteil des Lichtpulses ergibt sich aus dem elektrischen Anteil und wird nicht weiter besprochen

oder

$$\tilde{E}^-(\omega) = \begin{cases} \tilde{E}(\omega) & , \omega < 0 \\ \tilde{E}(0)/2 & , \omega = 0 \\ 0 & , \omega > 0 \end{cases} \quad (1.5)$$

beschreiben [23]. Im folgenden wird daher nur noch $\tilde{E}^+(\omega)$ betrachtet. Sowohl $\tilde{E}^+(\omega)$, als auch die zugehörige Fouriertransformierte $E^+(t) = \mathcal{F}^{-1}(\tilde{E}^+(\omega))$ sind komplexwertige Funktionen, die sich in Amplitude (Einhüllende) und Phase zerlegen lassen [20]:

$$\tilde{E}^+(\omega) = \tilde{A}(\omega) e^{i\varphi(\omega)} \quad (1.6)$$

$$E^+(t) = A(t) e^{i\xi(t)} \quad (1.7)$$

$E(t)$ und $\tilde{E}(\omega)$ lassen sich hieraus wie folgt zurückgewinnen [20]:

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}^+(\omega) + \tilde{E}^-(\omega) = \tilde{E}^+(\omega) + [\tilde{E}^+(-\omega)]^* \quad (1.8)$$

$$E(t) = 2 \operatorname{Re}[E^+(t)] \quad (1.9)$$

Der zeitliche Verlauf der Phase wird durch die instantane Frequenz $\omega(t)$ des elektrischen Feldes gegeben

$$\omega(t) = \frac{d\varphi(t)}{dt} = \omega_{\text{ref}} + \frac{d\zeta}{dt} \quad \text{mit} \quad \zeta(t) = \xi(t) - \omega_{\text{ref}} t, \quad (1.10)$$

Die Frequenz ω_{ref} ist eine Referenzfrequenz, bzw. die Trägerfrequenz. Im Allgemeinen empfiehlt es sich die Referenzfrequenz, über die mittlere Steigung von $\xi(t)$ zu definieren. Im Falle symmetrischer Spektren entspricht sie der Mittenfrequenz ω_0 . Mit dieser Definition lässt sich eine komplexe Einhüllende im Zeitbereich definieren, die den schnell oszillierenden Anteil der Trägerfrequenz nicht mehr enthält:

$$\mathcal{E}(t) = A(t) e^{i\xi(t)} \quad (1.11)$$

Die Fouriertransformierte $\mathcal{F}(\mathcal{E}(t))$ ist demzufolge gegeben durch

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \mathcal{F}(\mathcal{E}(t)) = \tilde{E}^+(\omega - \omega_{\text{ref}}), \quad (1.12)$$

Analog zur Definition von $\omega(t)$ kann die relative zeitliche Verzögerung der spektralen Komponenten durch die Gruppenverzögerung T_g beschrieben werden [20]:

$$T_g(\omega) = \frac{d\varphi(\omega)}{d\omega} \quad (1.13)$$

Mit den komplexen Einhüllenden ist die Intensität $I(t)$ eines Laserpulses gegeben durch [20]:

$$I(t) = \varepsilon_0 c n \frac{1}{T} \int_{t-T/2}^{t+T/2} E^2(t') dt' = 2\varepsilon_0 c n |\mathcal{E}(t)|^2, \quad (1.14)$$

Hierbei ist ε_0 die Dielektrizitätskonstante, c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und n der Brechungsindex des umgebenden Mediums. Entsprechend ergibt sich die spektrale Intensität aus

$$I(\omega) = \frac{1}{\pi} \varepsilon_0 c n \tilde{A}(\omega)^2 = \frac{1}{\pi} \varepsilon_0 c n |\tilde{\mathcal{E}}(\omega - \omega_{\text{ref}})|^2 \quad (1.15)$$

Mit Hilfe der Intensität wird die Pulsdauer, bzw. die spektrale Breite eines ultrakurzen Laserpulses definiert, welche unter Annahme einer Funktion für die Einhüllende des Pulses, eine gute Pulsbeschreibung liefert.

Die gebräuchlichste Definition der Pulsdauer ist die volle Breite bei halber Höhe² Δt der zeitlichen Intensitätsverteilung des Laserpulses. Entsprechend kann die spektrale Breite $\Delta\omega$ als die FWHM der spektralen Intensitätsverteilung des Pulses definiert werden. Beide Größen sind nicht unabhängig voneinander. Der Zusammenhang wird vom Bandbreiteprodukt [20]

$$\Delta t \cdot \Delta\omega \geq K \quad (1.16)$$

beschrieben. Die Konstante K hängt von der Pulsform ab. Für Gaußpulse ist K beispielsweise $4 \ln 2$. Im Fall, dass das Bandbreiteprodukt gleich K ist, wird der Puls als bandbreitebegrenzt bezeichnet. In diesem Fall hat er die minimal mögliche Pulsdauer.

Im folgenden wird auf die spektrale Phasenformung eingegangen, welche zu komplexen Pulsformen führen kann, bei denen die Definition der Pulsdauer über die FWHM der zeitlichen Intensitätsverteilung keinen Sinn mehr macht. Hier bietet sich eine statistische Definition der Pulsdauer an, die in Abschnitt 1.2.2 beschrieben wird.

1.2. Spektral phasengeformte ultrakurze Laserpulse

Basierend auf dem vorherigen Abschnitt wird hier auf die Erzeugung und die Eigenschaften von spektral phasengeformten ultrakurzen Laserpulsen eingegangen. Zunächst wird in Abschnitt 1.2.1 der Prozess der Phasenformung beschrieben. Wobei speziell auf Phasenfunktionen eingegangen wird, die sich durch Taylorreihen, oder Sinusfunktionen beschreiben lassen. In 1.2.2 wird eine geeignete Definition der Pulsdauer geformter Laserpulse diskutiert.

1.2.1. Lineare spektrale Phasenformung

In diesem Teil wird auf die lineare spektrale Phasenformung von ultrakurzen Laserpulsen eingegangen. Lineare Phasenformung tritt intrinsisch bei dispersiven

²... englisch: Full Width Half Maximum (FWHM)

optischen Elementen, wie z.B. Linsen, Filtern, Spiegeln³ und Vakumschaugläsern, auf. Zudem kann die spektrale Phase auch durch einen Phasenformer, wie er in [28] beschrieben wird, kontrolliert werden, um z.B. durch im Strahlengang befindliche optische Elemente eingeführte, spektrale Phasen zu kompensieren. Im Allgemeinen kann die lineare Antwort⁴ $\tilde{M}(\omega)$ eines optischen Elements folgendermaßen beschrieben werden [25, 27]:

$$\tilde{M}(\omega) = \tilde{R}_M(\omega)e^{-i\varphi_M(\omega)} \quad (1.17)$$

In dieser Darstellung beschreibt die Amplitude $\tilde{R}_M(\omega)$ spektrale Absorption bzw. Verstärkung des optischen Elements, während die Phase $\varphi_M(\omega)$ die Dispersion des Elements beschreibt. Damit ergibt sich aus einem Eingangsfeld $\tilde{E}_{in}^+(\omega)$ das Ausgangsfeld $\tilde{E}_{out}^+(\omega)$ durch

$$\tilde{E}_{out}^+(\omega) = \tilde{M}(\omega) \tilde{E}_{in}^+(\omega) = \tilde{R}_M(\omega)e^{-i\varphi_M(\omega)} \tilde{E}_{in}^+(\omega) \quad (1.18)$$

Im weiteren wird nur auf die Phasenfunktion $\varphi_M(\omega)$ eingegangen. Dementsprechend wird von einer konstanten Amplitude der Transferfunktion ausgegangen, da bei den durchgeführten Experimenten nur $\varphi_M(\omega)$ variiert wurde. Zwei spezielle Repräsentationen der Phasenfunktion werden im folgenden genauer beschrieben.

Taylorphasen

In vielen Fällen, speziell zur Beschreibung von Dispersionseffekten, wird die spektrale Phase eines Laserpulses und damit auch die Phase der linearen Antwort eines optischen Systems als Taylorreihe um die Trägerfrequenz ω_0 beschrieben [22].

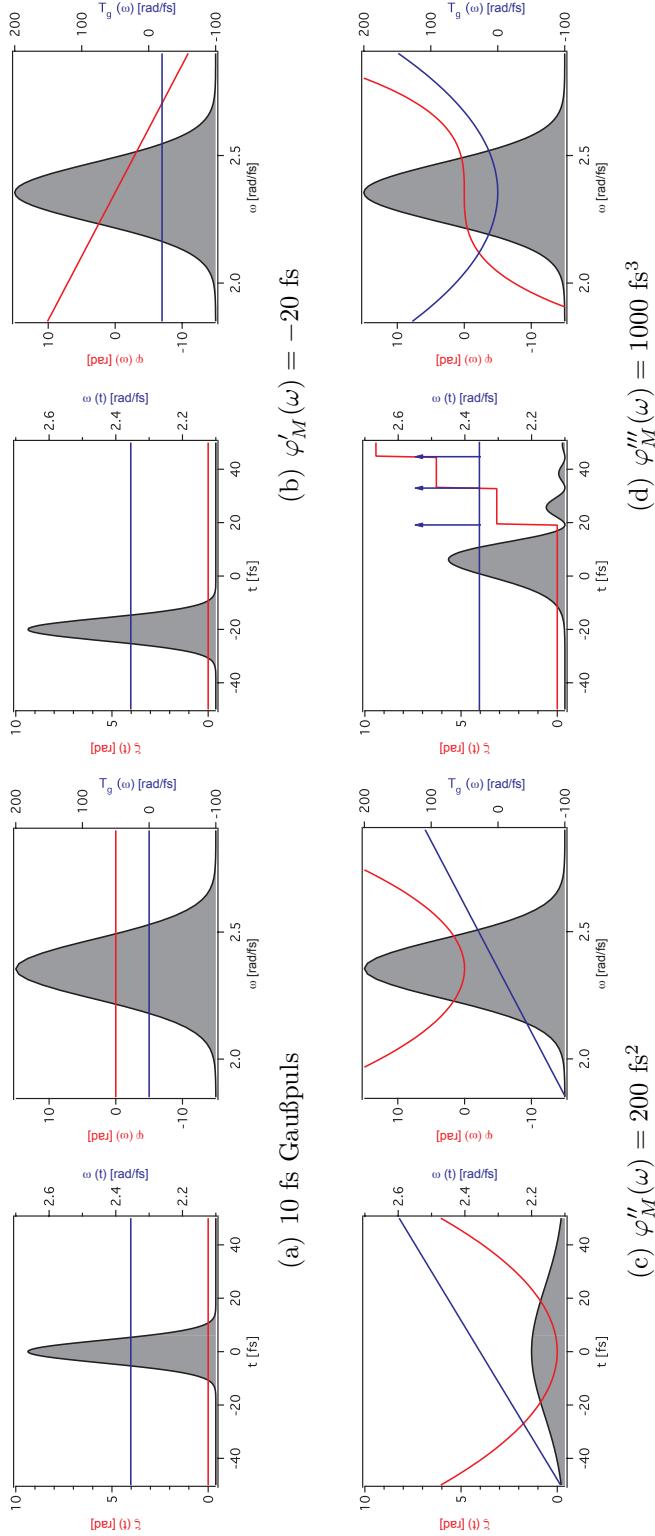
$$\varphi_M(\omega) = \sum_{j=0}^{\infty} \frac{\varphi_M^{(j)}(\omega_0)}{j!} \cdot (\omega - \omega_0)^j \quad \text{mit} \quad \varphi_M^{(j)}(\omega_0) = \left. \frac{\partial^j \varphi_M(\omega)}{\partial \omega^j} \right|_{\omega_0} \quad (1.19)$$

$$= \varphi_M(\omega_0) + \varphi'_M(\omega_0)(\omega - \omega_0) + \frac{1}{2}\varphi''_M(\omega_0)(\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{6}\varphi'''_M(\omega_0)(\omega - \omega_0)^3 + \dots \quad (1.20)$$

Die Koeffizienten $\varphi_M^{(j)}(\omega_0)$ entsprechen bei dieser Form der Repräsentation der j-ten Dispersionsordnung. Dementsprechend beschreibt der Koeffizient 0. Ordnung die Änderung der absoluten Phase, d.h. die Änderung der Lage der Oszillationen des elektrischen Feldes relativ zu seiner Einhüllenden [25]. Der Koeffizient erster Ordnung entspricht einer zeitlichen Verschiebung der Einhüllenden des Laserpulses in der Zeitdomäne, wobei $\varphi'_M(\omega_0) > 0$ eine Verschiebung hin zu späteren Zeiten zur

³... speziell auch durch deren Schutzschichten

⁴... Transferfunktion

**Abbildung 1.1.:**

Beispiele für den Einfluss einer polynomiellen, spektralen Phase $\varphi_M(\omega)$ auf einen gaußförmigen Laserpuls mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm und einer Pulsdauer von 10 fs (aus [22]). Jeweils Links: Zeitliche Intensität $I(t)$ (schattiert), zeitlicher Phasenverlauf $\zeta(t)$ (rot) und die instantane Frequenz (blau). Jeweils Rechts: Spektrale Intensität $I(\omega)$ (schattiert), spektrale Phase $\varphi(\omega)$ (rot) und die Gruppenverzögerung $T_g(\omega)$ (blau). **(a)** bandbreitebegrenzter Gaußpuls mit einer FWHM Pulsdauer von 10 fs **(b)** der Puls (a) durch eine lineare Phase von $\varphi_M'(\omega) = -20 \text{ fs}$ um -20 fs verschoben **(c)** der Eingangspuls durch einen linearen Chirp ($\varphi_M''(\omega) = 200 \text{ fs}^2$) symmetrisch verbreitert. **(d)** aus dem Eingangspuls durch eine spektrale Phase dritter Ordnung ($\varphi_M'''(\omega) = 1000 \text{ fs}^3$) erzeugter unsymmetrischer Puls.

Folge hat. Koeffizienten höherer Ordnung führen zu Veränderungen der zeitlichen Struktur des elektrischen Feldes. So entspricht z.B. $\varphi_M''(\omega_0) > 0$ der Einführung eines linearen up-chirps. Für die erste, zweite und dritte Ordnung der Taylorreihe sind die spektralen und zeitlichen Pulssstrukturen nach Anwendung auf einen gaußschen Eingangspuls

$$E_{in}^+(t) = \frac{E_0}{2} e^{-2 \ln 2 \frac{t^2}{\Delta t^2}} e^{i \omega_0 t} \iff \tilde{E}_{in}^+(\omega) = \frac{E_0 \Delta T}{2} \sqrt{\frac{\pi}{2 \ln 2}} e^{-\frac{\Delta t^2}{8 \ln 2} (\omega - \omega_0)^2} \quad (1.21)$$

in Abb. 1.1 gezeigt. Hier ist $\frac{E_0}{2}$ die Amplitude des elektrischen Feldes und Δt die zeitliche Intensitäts-FWHM des Pulses. Für die Beispiele in Abb. 1.1 wurde eine Zentralwellenlänge von 800 nm und $\Delta t = 10$ fs angenommen.

In den Experimenten die in Abschnitt 3.3.7 beschrieben werden, wurden zusätzlich noch die vierte und fünfte Ordnung mit untersucht, wobei die resultierenden Pulssformen mit denen der zweiten bzw. dritten Ordnung vergleichbar sind.

Sinusphasen

Die oben beschriebene Repräsentation der Phasenfunktion eines optischen Systems mittels einer Taylorreihe ist in vielen Fällen hilfreich, jedoch ist sie nicht in der Lage periodische Funktionen gut zu approximieren. Periodische Phasenfunktionen haben jedoch experimentell interessante Eigenschaften, weshalb sie im folgenden am Beispiel der experimentell verwendeten Sinusphasenfunktion diskutiert werden.

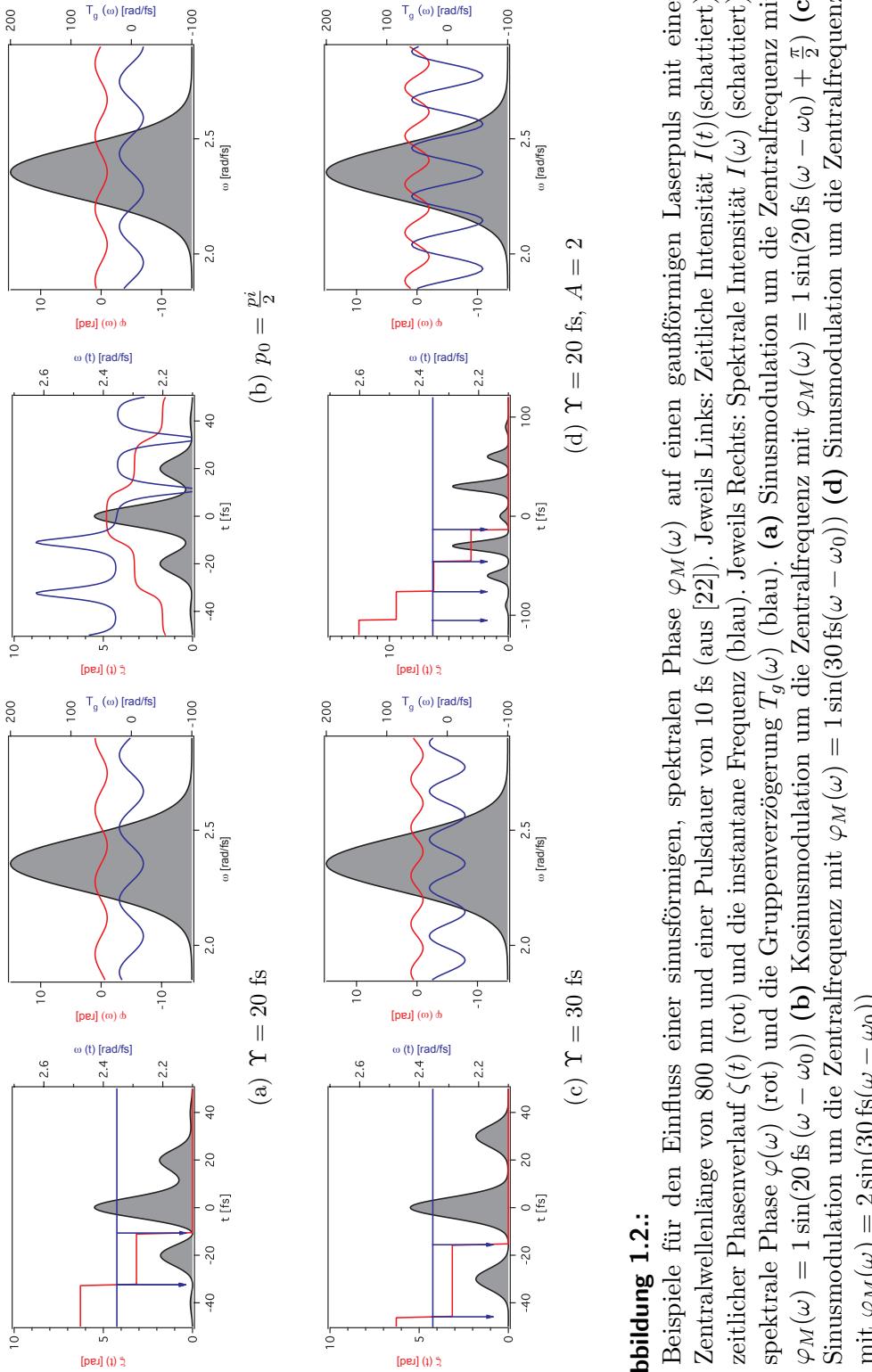
Im Falle der Sinusphasenfunktion wird $\varphi_M(\omega)$ folgendermaßen beschrieben:

$$\varphi_M(\omega) = A \sin(\Upsilon \omega + p_0) \quad (1.22)$$

Für beliebige Eingangsfelder $E_{in}^+(t)$ lässt sich hierzu analytisch das Ausgangsfeld berechnen [22]

$$E_{out}^+(t) = \sum_{n=-\infty}^{\infty} J_n(A) E_{in}^+(t - n \Upsilon) e^{-i n p_0} \quad (1.23)$$

Hier ist $J_n(A)$ die Besselfunktion der ersten Art und n -ten Ordnung. Demzufolge generiert ein sinusförmige spektrale Phasenfunktion eine Pulsssequenz, wobei der Abstand der Einzelpulse über den Parameter Υ bestimmt wird. Die relative Phase der Einzelpulse zueinander wird durch den Parameter der absoluten Phase p_0 kontrolliert. Sind die Einzelpulse zeitlich getrennt ($\Upsilon >$ Pulsbreite), so sind die Einhüllenden der Einzelpulse exakte Kopien der Einhüllenden des Eingangspulses. Die Amplituden der Einzelpulse werden durch $J_n(A)$ bestimmt. Somit können die Einzelpulsamplituden über die Amplitude A der spektralen Sinusphase kontrolliert werden. In Abb. 1.2 sind Beispiele für durch Sinusphasen geformte Pulse gezeigt, die die Erzeugung einer Pulsssequenz mit definierten Amplituden, Phasen der Einzelpulse zueinander und definiertem Pulsabstand durch Einführung einer spektralen Sinusphase illustrieren. Als Eingangspuls diente der durch (1.21) beschriebene Puls.

**Abbildung 1.2.:**

Beispiele für den Einfluss einer sinusförmigen, spektralen Phase $\varphi_M(\omega)$ auf einen gaußförmigen Laserpuls mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm und einer Pulsdauer von 10 fs (aus [22]). Jeweils Links: Zeitliche Intensität $I(t)$ (schattiert), zeitlicher Phasenverlauf $\zeta(t)$ (rot) und die instantane Frequenz (blau). Jeweils Rechts: Spektrale Intensität $I(\omega)$ (schattiert), spektrale Phase $\varphi(\omega)$ (rot) und die Gruppenverzögerung $T_g(\omega)$ (blau). (a) Sinusmodulation um die Zentrale Frequenz mit $\varphi_M(\omega) = 1 \sin(20 \text{ fs} (\omega - \omega_0))$ (b) Kosinusmodulation um die Zentrale Frequenz mit $\varphi_M(\omega) = 1 \sin(20 \text{ fs} (\omega - \omega_0) + \frac{\pi}{2})$ (c) Sinusmodulation um die Zentrale Frequenz mit $\varphi_M(\omega) = 1 \sin(30 \text{ fs} (\omega - \omega_0))$ (d) Sinusmodulation um die Zentrale Frequenz mit $\varphi_M(\omega) = 2 \sin(30 \text{ fs} (\omega - \omega_0))$

1.2.2. Pulsdauer phasengeformter Pulse

An den Beispielen in Abb. 1.1(d) und 1.2 ist zu erkennen, dass die in Abschnitt 1.1 eingeführte Pulsdauerdefinition über die FWHM nicht in jedem Fall sinnvoll ist. Allgemeiner ist eine statistische Definition über das zweite Moment der zeitlichen Intensitätsverteilung. Entsprechendes gilt auch für die spektrale Breite komplizierter spektraler Intensitätsverteilungen. Da in dieser Arbeit jedoch nur die spektrale Phase geformt wurde, wird im Weiteren nur die statistische Pulsdauer diskutiert.

Die statistische Definition der Pulsdauer τ_{rms} ist gegeben durch die doppelte Standardabweichung σ [23]

$$\tau_{\text{rms}} = 2\sigma = 2\sqrt{\langle t^2 \rangle - \langle t \rangle^2}, \quad (1.24)$$

also dem doppelten der Quadratwurzel des zweiten zentralen Moments (Varianz) der zeitlichen Intensitätsverteilung $I(t)$. Dabei ist $\langle t \rangle$ der zeitliche Erwartungswert der Intensitätsverteilung $I(t)$

$$\langle t \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} t I(t) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt} \quad (1.25)$$

interpretiert als Wahrscheinlichkeitsverteilung. $\langle t^2 \rangle$ ist dementsprechend das zweite Moment

$$\langle t^2 \rangle = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} t^2 I(t) dt}{\int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt} \quad (1.26)$$

Diese Definition der Pulsdauer erlaubt auch für komplexe, zeitliche Pulsfomren, wie z.B. in Abb. 1.1(d), eine sinnvolle Angabe der Pulsdauer. Für einen ultrakurzen Laserpuls, dessen bandbreitebegrenzte Pulsfom nach (1.11) und (1.12) durch

$$\mathcal{E}(t) = A(t) = \mathcal{F}^{-1}(\tilde{\mathcal{E}}(\omega)) = \mathcal{F}^{-1}(\tilde{A}(\omega)) \quad (1.27)$$

gegeben ist und dessen statistische Pulsdauer τ_{rms} ist, lässt sich der Einfluss einer zusätzlichen spektralen Phase $\varphi_M(\omega)$ auf die Pulsfom durch das erste und zweite Moment auf einfache Weise beschreiben. Ausgehend von (1.25) und der Normierung der Pulsfintensität $\int_{-\infty}^{\infty} I(t) dt = 1$ kann das erste Moment wie folgt geschrieben werden

$$\langle t \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} t \mathcal{E}_m(t) \mathcal{E}_m^*(t) dt, \quad \text{mit } \mathcal{E}_m(t) = A(t) e^{-i\varphi_M(t)} \quad (1.28)$$

Hierbei bezeichnet $\mathcal{E}_m^*(t)$ die komplex konjugierte Funktion zu $\mathcal{E}_m(t)$. Mit dem Parseval Theorem für zwei Funktionen $f(t), g(t)$ und ihre Fouriertransformierten $\tilde{F}(\omega), \tilde{G}(\omega)$ [29]

$$\int f(t)g^*(t) dt = \frac{1}{2\pi} \int \tilde{F}(\omega)\tilde{G}^*(\omega) d\omega \quad (1.29)$$

und dem Fouriertheorem [29]

$$t f(t) = \mathcal{F}^{-1} \left(i \frac{\partial}{\partial \omega} \tilde{F}(\omega) \right) \quad (1.30)$$

kann das erste zeitliche Moment im Frequenzbereich ausgedrückt werden:

$$\langle t \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} i \tilde{\mathcal{E}}'_m(\omega) \tilde{\mathcal{E}}_m^*(\omega) d\omega \quad (1.31)$$

Die Einhüllende im Spektralbereich ist dabei gegeben durch

$$\tilde{\mathcal{E}}_m(\omega) = \tilde{A}(\omega) e^{-i\varphi_M(\omega)} \quad (1.32)$$

Damit ist die Ableitung

$$\tilde{\mathcal{E}}'_m(\omega) = \tilde{A}'(\omega) e^{i\varphi_M(\omega)} - i \tilde{A}(\omega) \varphi'_M(\omega) e^{-i\varphi_M(\omega)} \quad (1.33)$$

So ergibt sich mit der komplex konjugierten Einhüllenden $\tilde{\mathcal{E}}_m^*(\omega)$ aus (1.31)

$$\langle t \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} i \tilde{A}'(\omega) \tilde{A}(\omega) d\omega + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}^2 \varphi'_M(\omega) d\omega \quad (1.34)$$

Der erste Term ist Null⁵ und so ergibt sich für das erste Moment die folgende, einfache Beschreibung

$$\langle t \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}^2(\omega) \varphi'_M(\omega) d\omega \quad (1.35)$$

Analog zu (1.28) lässt sich das zweite Moment (1.26) wie folgt schreiben

$$\langle t^2 \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} t \mathcal{E}_m(t) t \mathcal{E}_m^*(t) \quad (1.36)$$

⁵... zu sehen durch partielle Integration

Mit (1.29) und (1.30) ergibt sich hieraus

$$\langle t^2 \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{\mathcal{E}}'_m(\omega)|^2 d\omega \quad (1.37)$$

Mit (1.33) folgt daraus

$$\langle t^2 \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{A}'(\omega)|^2 d\omega + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}^2(\omega) [\varphi'_m(\omega)]^2 d\omega \quad (1.38)$$

Mit (1.24) ergibt sich für einen bandbreitebegrenzten Puls mit $\varphi_M(\omega) = 0$

$$\langle t^2 \rangle = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} |\tilde{A}'(\omega)|^2 d\omega = \frac{1}{4} \tau_{\text{rms}}^2 \quad (1.39)$$

Somit ergibt sich für das zweite Moment eines phasengeformten Laserpulses die folgende einfache Beschreibung:

$$\langle t^2 \rangle = \frac{1}{4} \tau_{\text{rms}}^2 + \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{A}^2(\omega) [\varphi'_M(\omega)]^2 d\omega \quad (1.40)$$

Im folgenden wird die sich so mit (1.24) ergebende Pulsdauer am Beispiel eines Gaußpulses mit einem zusätzlichen spektralen Taylorphasenterm explizit angegeben.

Beispiel: Gaußpuls mit Taylorphasenterm

Die Einhüllende $\mathcal{E}(t)$ des Eingangspulses wird mit der statistischen Pulsdauer τ_{rms} und der Normierung $\int_{-\infty}^{\infty} |\mathcal{E}(t)|^2 dt = 1$ wie folgt beschrieben:

$$\mathcal{E}(t) = \sqrt[4]{\frac{2}{\pi \tau_{\text{rms}}^2}} \exp\left(-\frac{t^2}{\tau_{\text{rms}}^2}\right) \quad (1.41)$$

Die zugehörige spektrale Verteilung ist durch

$$\tilde{\mathcal{E}}(\omega) = \sqrt[4]{2\pi} \tau_{\text{rms}} e^{-\left(\frac{\tau_{\text{rms}} \omega}{2}\right)^2} \quad (1.42)$$

gegeben. Die Modulationsfunktion $\tilde{M}(\omega)$ ist durch

$$\tilde{M}(\omega) = e^{-i\varphi_M(\omega)} = e^{-i\varphi_n(\omega)} \quad \text{mit } \varphi_n(\omega) = \frac{\phi_n}{n!} \omega^n \quad (1.43)$$

definiert. Hierbei ist n die Taylorordnung des zusätzlichen spektralen Phasenterms. Aus (1.35) ergibt sich so

$$\langle t \rangle = \begin{cases} \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{\sqrt{2}}{\tau_{\text{rms}}} \right)^{n-1} \frac{\Gamma(\frac{n}{2})}{\Gamma(n)} \phi_n & n \text{ ungerade} \\ 0 & n \text{ gerade} \end{cases} \quad (1.44)$$

Da $\langle t \rangle$ der zeitliche Erwartungswert der Intensitätsverteilung ist und der Eingangspuls um Null zentriert ist, ist $\langle t \rangle = 0$ für alle geraden Ordnungen des spektralen Phasenterms. Diese Ordnungen führen zu einer symmetrischen, zeitlichen Verbreiterung der Pulsform, also keiner zeitlichen Verschiebung des Erwartungswertes. Mit (1.40) folgt das zweite Moment

$$\langle t^2 \rangle = \frac{1}{4} \tau_{\text{rms}}^2 + \frac{1}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{2}{\tau_{\text{rms}}^2} \right)^n - 1 \frac{\Gamma(n - \frac{1}{2})}{\Gamma^2(n)} \phi_n^2 \quad (1.45)$$

Zusammen mit (1.24) ist die statistische Pulsdauer eines entsprechend geformten gaußschen Laserpulses

$$\tau = \tau_{\text{rms}} \cdot \begin{cases} \sqrt{1 + \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left(\frac{2}{\tau_{\text{rms}}^2} \right)^n \frac{\Gamma(n - \frac{1}{2})}{\Gamma^2(n)} \phi_n^2} & n \text{ gerade} \\ \sqrt{1 + [\sqrt{\pi} \Gamma(n - \frac{1}{2}) - \Gamma^2(\frac{n}{2})] \frac{2}{\pi} \left(\frac{2}{\tau_{\text{rms}}^2} \right)^n \frac{\phi_n^2}{\Gamma^2(n)}} & n \text{ ungerade} \end{cases} \quad (1.46)$$

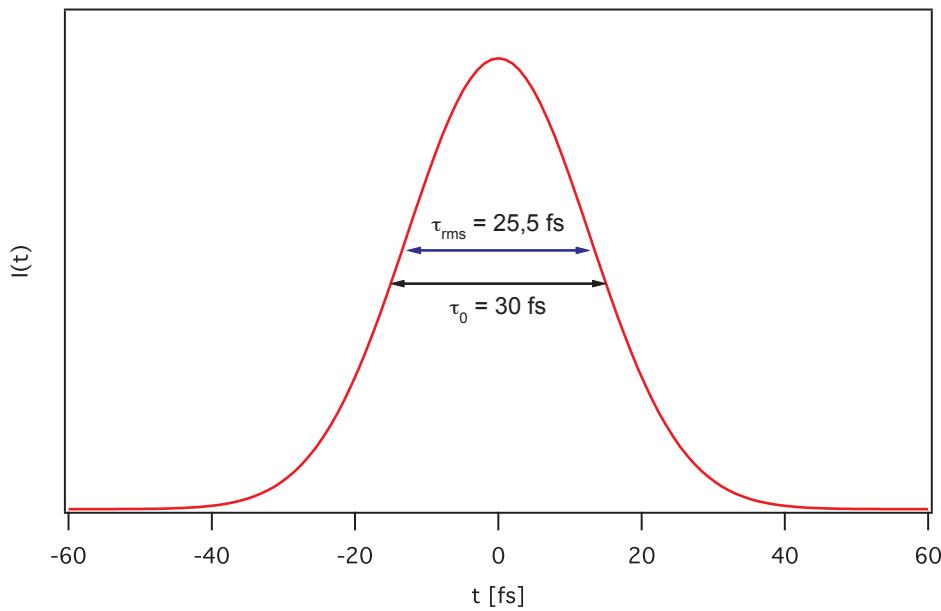
Bei dieser Beschreibung wird die statistische Pulsdauer τ_{rms} des bandbreitebegrenzten Pulses verwendet, die durch mit der entsprechenden FWHM τ_0 durch $\tau_{\text{rms}} = \frac{1}{\sqrt{2 \ln(2)}} \tau_0$ verbunden ist (als Beispiel siehe Abb. 1.3).

Für die Taylorterme 0 bis 5 ergibt dies die in Abb. 1.4(a) explizit ausgerechneten Formeln für die Pulsdauern. Wie bereits in Abschnitt 1.2.1 beschrieben ändert sich die Pulsdauer des Eingangspulses bei Taylorphasen nullter und erster Ordnung nicht. Für alle höheren Ordnungen vergrößert sich, wie aufgrund von (1.40) erwartet, die Pulsdauer. In Abb. 1.4(b) ist für eine Taylorphase $\phi_n = 16 \cdot 10^7 \text{ fs}^5$ die Pulsform gezeigt. Gleichzeitig sind der Erwartungswert $\langle t \rangle$ und die statistische Pulsdauer eingetragen. Deutlich zu erkennen ist der Einfluss der durch die spektrale Phase hervorgerufenen Nachpulse. Für die Taylorphasenterme 2-5 sind die Pulsdauern, die sich aus unterschiedlichen Eingangspulsdauern ergeben, in Tabelle 1.1 explizit angegeben.

τ_0 [fs]	ϕ_2 [fs ²]				ϕ_3 [fs ³]			
	500	1000	1500	2000	15000	30000	45000	60000
5	277	555	832	1109	1385	2770	4155	5540
10	139	277	416	554	346	693	1039	1385
20	72	140	209	278	89	174	260	347
30	55	97	142	187	49	83	119	157
50	57	75	97	122	52	57	65	75
100	101	104	108	114	100	100	101	101
τ_0 [fs]	ϕ_4 [fs ⁴]				ϕ_5 [fs ⁵]			
	8 10 ⁵	16 10 ⁵	24 10 ⁵	32 10 ⁵	8 10 ⁷	16 10 ⁷	24 10 ⁷	32 10 ⁷
5	15879	31757	47636	63515	236485	472969	709454	945939
10	1985	3970	5955	7939	14780	29561	44341	59121
20	249	497	745	993	924	1848	2771	3695
30	79	150	223	296	185	366	548	731
50	52	59	69	81	55	69	87	107
100	100	100	100	100	100	100	100	100

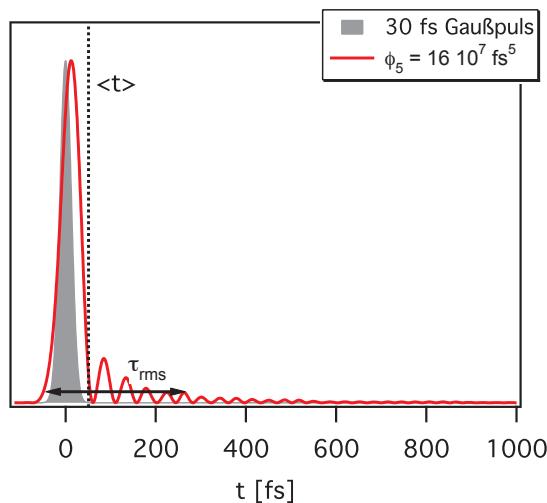
Tabelle 1.1.:

Tabelle der FWHM Pulsdauern. Für ausgewählte Eingangspulsdauern τ_0 sind für die Taylorphasenterme ϕ_n n=2,3,4,5 die resultierenden Pulsdauern in fs bei ausgewählten Phasenwerten angegeben.

**Abbildung 1.3.:**

Gaußpuls mit einer FWHM τ_0 von 30 fs. Zusätzlich ist die statistische Pulsdauer τ_{rms} von 25,5 fs eingezeichnet

$\varphi_n(\omega)$	τ/τ_{rms}
0	1
$\phi_1 \omega$	1
$\frac{\phi_2}{2!} \omega^2$	$\sqrt{1 + \frac{4\phi_2^2}{\tau_{\text{rms}}^4}}$
$\frac{\phi_3}{3!} \omega^3$	$\sqrt{1 + \frac{2\phi_3^2}{\tau_{\text{rms}}^6}}$
$\frac{\phi_4}{4!} \omega^4$	$\sqrt{1 + \frac{5\phi_4^2}{3\tau_{\text{rms}}^8}}$
$\frac{\phi_5}{5!} \omega^5$	$\sqrt{1 + \frac{2\phi_5^2}{3\tau_{\text{rms}}^{10}}}$

$$\tau_0 = \sqrt{2 \ln 2} \tau_{\text{rms}}$$


(a) Pulsdauerformeln

(b) τ_{rms} für ϕ_5 **Abbildung 1.4.:**

(a) Pulsdauern spektral modulierter Gaußpulse mit einer Eingangspulsdauer τ_{rms} . Die spektrale Phase $\varphi_n(\omega)$ führt nach (1.46) zu den Ausgangspulsdauern τ . (b) Gezeigt ist $I(t)$ eines 30 fs Gaußpulses und eines mit einer Taylorphase von $\phi_5 = 16 \cdot 10^7 \text{ fs}^5$ versehenen 30 fs Gaußpulses. Eingetragen sind die statistische Pulsdauer τ_{rms} und der zeitliche Erwartungswert $\langle t \rangle$ der Intensitätsverteilung.

2. Kohärente Materiewellen

Dieses Kapitel beschreibt die, in [8] vorgestellte, Methode zur Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen auf der Basis von kohärenten Materiewellen. Hierbei wird die zeitliche Struktur der fs-Laserpulse durch eine Sequenz von Messungen im konjugierten Raum bestimmt.

Zunächst wird dabei in 2.1 auf die Propagation von kohärenten Materiewellen im Vakuum eingegangen [9, 30, 31]. Dabei wird die Analogie der Propagation von Materiewellenpaketen und elektromagnetischen Wellenpaketen aufgezeigt. Die Propagation wird im Bild der Wignerdistribution besprochen. Es wird gezeigt, dass die Wellenpakete in der Zeit (Ortsraum) durch einen dispersiven Einfuss zur Verteilung im Frequenzraum (Energiebereich) konvergieren. In Abschnitt 2.2 wird die Messung von Interferenzen im Phasenraum demonstriert. Basierend auf diesem prinzipiellen Verständnis der Funktionsweise von Spektrometern wird in 2.3 der Aufbau zur Messung von Interferenzen im Phasenraum[9, 30, 31] und der Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen mittels kohärenter Materiewellen beschrieben. Im Anschluss werden in 2.4 die mit diesem Aufbau erhaltenen experimentellen Ergebnisse dargestellt und ihre Auswertung beschrieben. Abschließend wird in 2.5 noch eine kurze Zusammenfassung des Kapitels gegeben.

2.1. Propagation von Materiewellen im Phasenraum

Zunächst wird die Analogie zwischen der Propagation von Materiewellenpaketen im Vakuum und elektromagnetischen Wellenpaketen - Lichtpulsen - in einem dispersiven transparenten Material aufgezeigt. Anschließend wird anhand der Wignerdistribution einer Doppelpulssequenz demonstriert, wie die räumliche Verteilung eines Wellenpaketes zu seiner Impulsverteilung konvergiert.

2.1.1. Analogie zur Optik

Die formale Analogie zwischen der Propagation von Licht- und Materiewellen zeigt sich im Vergleich der eindimensionalen mathematischen Beschreibungen der beiden Prozesse. Für eine Materiewelle $\psi(x, t)$ im Ortsraum und eine Lichtwelle $E(x, t)$ in

der Zeit gilt [30]:

$$\psi(x, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\psi}(k) e^{i[kx - \varphi(k)]} dk \quad E(x, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{i[\omega t - \varphi(\omega)]} d\omega, \quad (2.1)$$

Hierbei beschreibt $\tilde{\psi}(k)$ die Materiewelle im Impulsraum und $\tilde{E}(\omega)$ die spektrale Verteilung der Lichtwelle. Entsprechend der Dispersionsrelation für freie Materiewellen $\omega = \frac{\hbar k^2}{2m_e}$ [32], akkumuliert eine Elektronenwelle während der Propagationszeit t die Phase

$$\varphi(k) = \frac{\hbar}{2m_e} \cdot k^2 \cdot t, \quad (2.2)$$

wobei m_e die Masse der Elektronen ist und k die Wellenzahl beschreibt.

Für elektromagnetische Wellen wird die Materialdispersion durch die Frequenzabhängigkeit des Brechungsindex $n(\omega)$ bestimmt. Im Folgenden wird nur die quadratische Phasenabhängigkeit des transparenten Mediums einbezogen, da dies der bei weitem stärkste Beitrag ist und zusätzlich die Analogie zum Fall der Materiewelle betont. Die Phase kann als $\varphi(\omega) = k(\omega) \cdot x$ in Abhängigkeit der Wellenzahl dargestellt werden. Deren Abhängigkeit vom Brechungsindex $k(\omega) = \frac{n(\omega)\omega}{c}$ ergibt schließlich die, über eine Propagationsstrecke x , akkumulierte Phase

$$\varphi(\omega) \approx \frac{1}{2} \frac{\partial^2 \varphi(\omega)}{\partial \omega^2} \cdot \omega^2 = \frac{1}{2} \frac{\partial^2 k(\omega)}{\partial \omega^2} \omega^2 x \quad (2.3)$$

Hierbei wurde, wie bereits erwähnt nur der quadratische Term der Taylorentwicklung des Brechungsindex berücksichtigt. Wird diese Gleichung zusammen mit (2.2) in (2.1) eingesetzt, wird die Analogie zwischen beiden Fällen im Rahmen der gemachten Näherungen deutlich:

$$\psi(x, t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{\psi}(k) e^{i[kx - \frac{\hbar}{2m_e} \cdot k^2 \cdot t]} dk \quad (2.4)$$

$$E(x, t) \approx \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \tilde{E}(\omega) e^{i[\omega t - \frac{1}{2} \frac{\partial^2 k(\omega)}{\partial \omega^2} \omega^2 x]} d\omega \quad (2.5)$$

Während die Phase im Fall der Materiewelle von der Propagationszeit abhängt, hängt die Phase der elektromagnetischen Welle von der Propagationsstrecke ab. Die zusätzliche quadratische Abhängigkeit der Phasen von der Wellenzahl k , bzw. der Kreisfrequenz ω , in den Gleichungen (2.2) und (2.3) führt unter Verwendung der Propagatoren in Gleichung (2.1) dazu, dass die Anfangsverteilung eines entsprechenden Wellenpakets sich in ihre Fouriertransformierte umwandelt, äquivalent zur gebrochen rationalen Fouriertransformation¹ [33]. Die Drehung im Phasenraum

¹... Fractional Fourier Transform

um 90° , die einer Fouriertransformation entspricht, wird im Fall der Materiewellenpakete im Vakuum durch ein starke Scherung angenähert.

In [7] wurde dies durch die Messung eines optischen Spektrums eines ultrakurzen Laserpulses $\tilde{E}(\omega)$ im Zeitbereich bereits gezeigt. Im Folgenden soll auf den Fall der Materiewelle eingegangen werden. Hierbei wird die Impulsverteilung eines Materiewellenpaketes durch Messung im Ortsraum bestimmt.

2.1.2. Doppelpulspropagation im Phasenraum

In diesem Abschnitt wird gezeigt, wie die räumliche Verteilung eines Wellenpaketes durch das Zusammenspiel von Interferenz und Dispersion in die zugehörige Impulsverteilung überführt wird. Um die Veränderung des Wellenpaketes im Phasenraum darzustellen, wird die Wignerverteilung $W(x, k)$ verwendet [29, 34, 35]. Diese kann entweder auf Basis der Ortsverteilung des Wellenpaketes $\psi(x)$, oder der Impulsverteilung $\tilde{\psi}(k)$ berechnet werden [35].

$$W(x, k) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-ik\xi} \psi^*(x - \frac{1}{2}\xi) \psi(x + \frac{1}{2}\xi) d\xi \quad (2.6)$$

$$= \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\kappa x} \tilde{\psi}(k - \frac{1}{2}\kappa) \tilde{\psi}^*(k + \frac{1}{2}\kappa) dk \quad (2.7)$$

Die Marginalen der Wignerfunktion ergeben die Impulsverteilung

$$|\tilde{\psi}(k)|^2 = \int_{-\infty}^{\infty} W(x, k) dx \quad (2.8)$$

und die räumliche Verteilung des Wellenpaketes [29, 34, 35]

$$|\psi(x)|^2 = \int_{-\infty}^{\infty} W(x, k) dk \quad (2.9)$$

Um die Überführung der Orts- in die Impulsverteilung zu demonstrieren, wird ein Wellenpaket zusammengesetzt aus zwei einzelnen Wellenpaketen verwendet. Experimentell wurde dies durch die Anregung eines Kalium Atoms mit einer Sequenz von zwei ultrakurzen Laserpulsen in [8] und [9] gezeigt. Ein entsprechendes Anregungsschema ist in Abb. 2.1 (a) dargestellt.

Die Propagation der Impulsverteilung eines solchen Wellenpakets in der Zeit t kann durch einen einfachen Phasenfaktor durch (2.2) beschrieben werden

$$\tilde{\psi}(k) = \tilde{\psi}_0(k) e^{i \frac{\hbar k^2 t}{2m}} \left(1 + e^{i \frac{\hbar k^2 \tau}{2m}} \right), \text{ mit} \quad (2.10)$$

$$\tilde{\psi}_0(k) = e^{-\frac{(k-k_0)^2}{\Delta k^2}}, \quad (2.11)$$

Hierbei entspricht $\tilde{\psi}_0(k)$ der Impulsverteilung des Wellenpakets zu Beginn der Propagation und τ der Verzögerungszeit zwischen den beiden Teilwellenpaketen. Als Verteilungsfunktion wird eine Gaußverteilung angenommen. Für eine solche Doppelpulssequenz ist die Wignerverteilung (2.7) durch

$$W(x, k) = W_{11}(x, k) + W_{22}(x, k) + 2 \operatorname{Re}[W_{12}(x, k)] \quad (2.12)$$

gegeben [29]. Die Funktion $W_{12}(x, k)$ wird als Kreuz-Wignerverteilung bezeichnet. Der Term $2 \operatorname{Re}[W_{12}(x, k)]$ ist der Kreuz-, oder Interferenzterm. Im Fall von (2.10) lässt sich dies für einen Zeitpunkt t wie folgt schreiben

$$\begin{aligned} W_t(x, k) &= W_0(k) \cdot [W_1^t(x, k) + W_2^t(x, k) + 2 W_x^t(x, k) \cos(\Phi(x, k))] \quad (2.13) \\ \text{mit } W_0(k) &= 2 \sqrt{\pi} \delta k e^{-\frac{(k-k_0)^2}{\delta k^2}} \\ W_1^t(x, k) &= e^{-\Omega^2 T^2(t)} \\ W_2^t(x, k) &= e^{-\Omega^2 T^2(t+\tau)} \\ W_x^t(x, k) &= \frac{1}{\gamma^{\frac{1}{4}}} e^{\frac{\Gamma_2^2 - 2\Omega^2(T^2(t) + T^2(t+\tau))}{4\gamma}} \\ \Phi(x, k) &= \frac{1}{2} \left[\arctan \left(\frac{\Gamma_1}{2} \right) + \frac{\Gamma_2^2}{\gamma \Gamma_1} + \frac{\Gamma_1 \Omega T(t)(\Gamma_2 - \Omega T(t))}{\gamma} \right] \end{aligned}$$

Hier geht die Wellenzahl k als Maß für den Impuls $\hbar k$ ein. Die Ortskoordinate ist durch x gegeben. Außerdem wurden die Abkürzungen $\delta k = \frac{\Delta k}{\sqrt{2}}$, $\Omega = \delta k \frac{\hbar}{x m}$, $\Gamma_1 = \frac{\Omega^2 x^2 \tau m}{\hbar}$, $\Gamma_2 = k x \Omega \tau$, $\gamma = 1 + \frac{\Delta k^4 \hbar^2 \tau^2}{16 m^2}$ und $T(t) = (m x - \hbar k t) \frac{x}{\hbar}$ verwendet. Die Einhüllende der Impulsverteilung wird durch $W_0(k)$ bestimmt, welche durch die Impulsverteilung des anregenden Laserpulses gegeben ist. Die zeitliche Entwicklung der beiden Teilwellenpakete wird durch $W_1^t(x, k)$ und $W_2^t(x, k)$ beschrieben, wobei diese sich nur durch den unterschiedlichen Anregungszeitpunkt τ unterscheiden. $W_x^t(x, k)$ beschreibt die Einhüllende des Kreuzterms der beiden Wellenpakete [29, 34, 35]. Der oszillatorische Anteil des Kreuzterms wird durch den Parameter $\Phi(x, k)$ des Kosinus beschrieben.

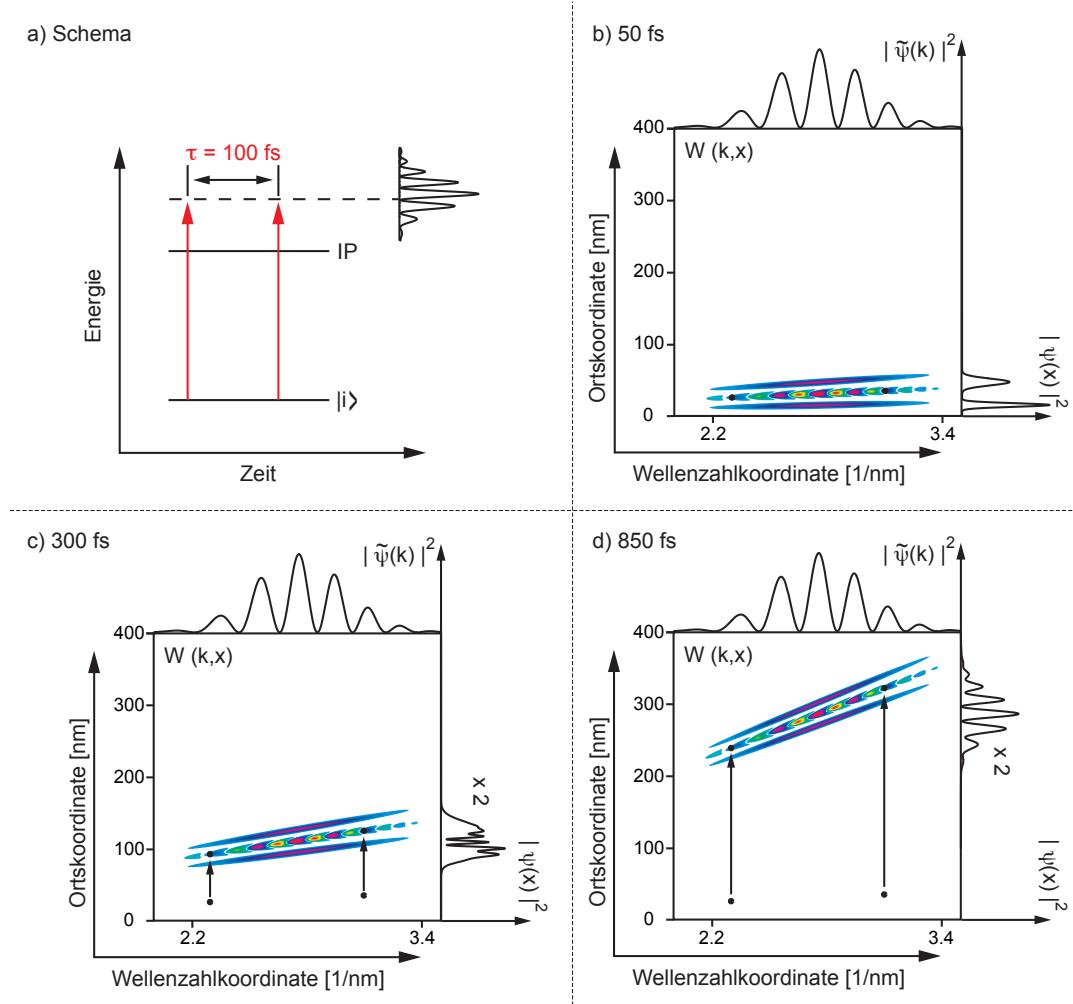
In Abbildung 2.1 ist zur Illustration die Propagation eines Wellenpakets bestehend aus zwei gaußförmigen Wellenpaketen mit einem Zeitabstand von $\tau = 100$ fs gezeigt. Die kinetische Energie beträgt ca. 0,3 eV.

Abb. 2.1 (b)-(d) zeigt die zugehörige Wignerverteilung für zunehmende Propagationszeiten. Zusätzlich sind jeweils die Marginalen, d.h. die Impulsverteilung $|\tilde{\psi}(k)|^2$ und die Ortsverteilung $|\psi(x)|^2$ des Wellenpaketes dargestellt. Zur weiteren Illustration sind die Trajektorien klassischer Teilchen mit großem und kleinem Impuls in den Abbildungen 2.1 (c) und (d) als Pfeile angedeutet.

Die oben bereits beschriebenen drei Anteile der Wignerfunktion lassen sich in den Phasenraumdiagrammen gut erkennen. Die Wignerverteilungen der Teilwellenpakete sind aufgrund des gaußschen Anregungsprofils als Ellipsen zu erkennen. Zwischen den Ellipsen der beiden Wellenpakete findet sich der Kreuzterm mit den charakteristischen Oszillationen, welche sowohl positive als auch negative Werte annehmen [29, 34, 35]. Zur Zeit $t \approx 0$ fs heben sich diese Oszillationen bei Integration entlang der Impulskoordinate weg, so dass die räumliche Verteilung des Doppelpuls-Wellenpaketes auch genau diese Doppelpulsstruktur reproduziert.

In Abb. 2.1 (b) ist die Wignerverteilung zum Zeitpunkt $t = 50$ fs dargestellt. Im Phasenraum zeigt sich bereits zu diesem Zeitpunkt eine Scherung der Teilwellenpakete. Diese Scherung führt im Ortsraum zu einer Verbreiterung der Wellenpakete. Ein Vergleich zwischen dem zuerst erzeugten und dem als zweites erzeugten Wellenpaket macht dies offensichtlich. Klassisch kann die Scherung durch die unterschiedliche Ausbreitungsgeschwindigkeit klassischer Teilchen mit hohem und niedrigem Impuls verstanden werden. Die Teilchen mit hohem Impuls entstehen denen mit niedrigem Impuls. Während die Scherung zu diesem Zeitpunkt noch klein genug ist, so dass sich die oszillatorischen Anteile der Kreuzterme gegenseitig auslöschen, führt die Scherung bei späteren Propagationszeiten dazu, dass die Oszillationen sich nicht mehr auslöschen und in der Ortsverteilung auftauchen. In 2.1 (c) ist die Situation nach einer Propagationszeit von $t = 300$ fs dargestellt. Hier zeigen sich *transiente* Oszillationen im Ortsraum. Zu diesem Zeitpunkt sind beide Teilwellenpakete bereits soweit „zerflossen“ (im Phasenraum geschert), dass ihre Ortsverteilungen ineinander „fließen“. Zum Zeitpunkt $t = 850$ fs in Abb. 2.1 (d) sind beide Teilwellenpakete im Phasenraum so stark geschert, dass ihre Ortsmarginalen praktisch übereinander liegen. Die Scherung sorgt zudem dafür, dass die oszillatorische Struktur der Impulsverteilung des Wellenpaketes komplett in die Ortsverteilung abgebildet wird.

Dies zeigt auf anschauliche Weise, wie die räumliche Verteilung $|\psi(x)|^2$ eines Wellenpaketes zu der zugehörigen Impulsverteilung konvergiert $|\tilde{\psi}(k)|^2$. Da die zugehörigen Experimente in [9] bereits ausführlich vorgestellt wurden, wird auf den experimentellen Vergleich im folgenden Abschnitt nur kurz eingegangen. Schwerpunktmäßig sollen die Erkenntnisse genutzt werden, um ultrakurze Laserpulse zu charakterisieren. Die zugehörigen Experimente werden in 2.4 vorgestellt.

**Abbildung 2.1.:**

(a) Ionisationsschema (b-d) Die Wignerverteilung Doppelpuls-Wellenpaketes, das 0,3 eV über der Ionisationsschwelle erzeugt wurde. Die Verteilung ist abgebildet zu den Zeiten 50 fs, 300 fs und 850 fs nach der Anregung. Oberhalb der Phasenraumdiagramme ist jeweils die Impulsverteilung $|\tilde{\psi}(k)|^2$ gezeigt. Rechts ist jeweils die räumliche Verteilung des Wellenpaketes $|\psi(x)|^2$ dargestellt. Beides sind Marginalen der Wignerverteilung. Die mit der Zeit zunehmende Scherung der Wignerverteilung erzeugt Oszillationen in der räumlichen Verteilung. Durch die Scherung geht $\psi(x)$ für $t \rightarrow \infty$ in seine eigene Fouriertransformierte über. Zur Illustration sind die Trajektorien klassischer Teilchen als schwarze Punkte in die Phasendiagramme eingezeichnet. Deren Zeitentwicklung ist durch die entsprechenden Pfeile angedeutet.

2.2. Messung von Interferenzen im Phasenraum

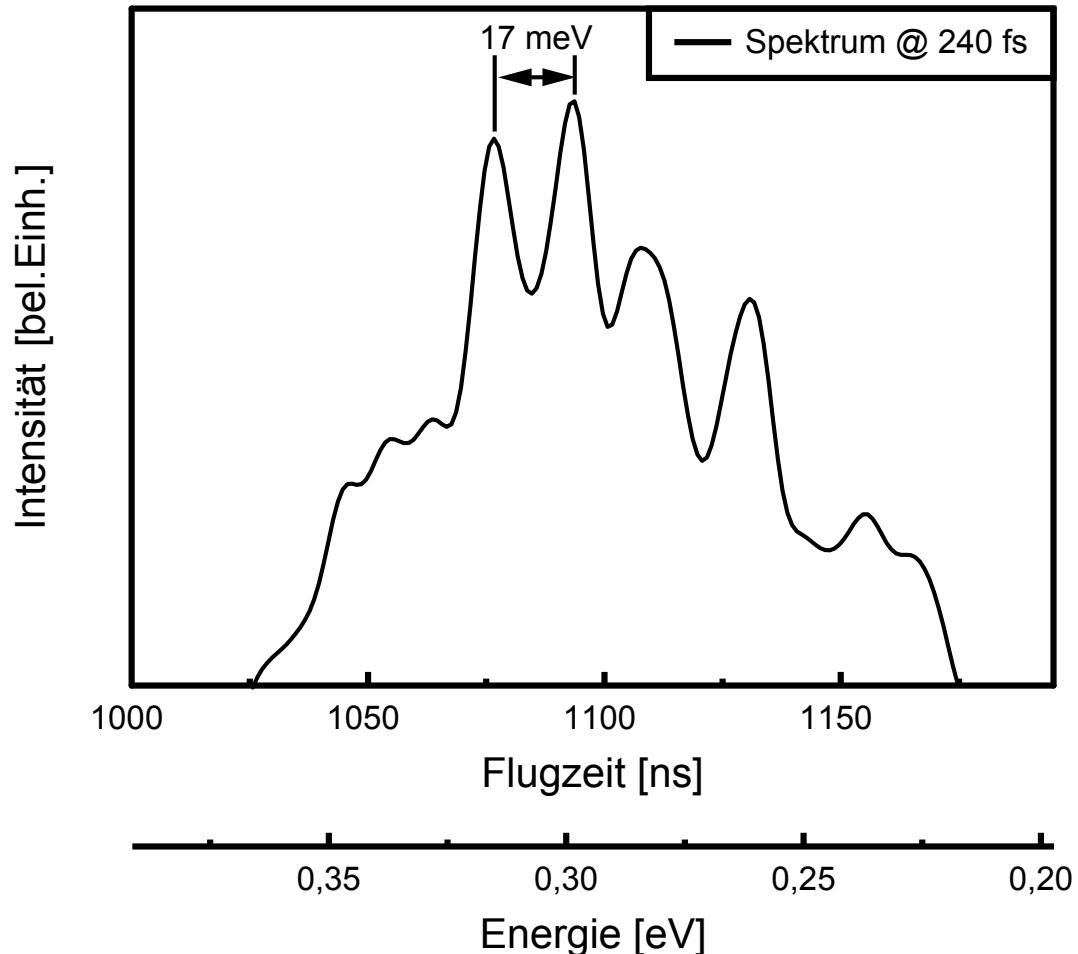


Abbildung 2.2.:

Flugzeitsignal eines Elektronenwellenpaketes. Das Wellenpaket wurde durch ein fs-Laserpulspaar mit einem Pulsabstand von $\tau = 240$ fs erzeugt. In Analogie zu Youngs Doppelspaltexperiment wirken die beiden Pulse wie ein zeitlicher Doppelspalt [9] und führen so zu spektralen Interferenzen. Die entsprechenden Oszillationen im Spektrum sind deutlich zu erkennen. Aufgrund der langen Flugzeit des Elektronenwellenpaketes im Flugzeitspektrometer können die Flugzeiten in Energien umgerechnet werden. Der resultierende Abstand der Oszillationsmaxima ist $\tau = 240$ fs.

In diesem Abschnitt wird auf die, mit dem in Abschnitt 2.3 vorgestellten Aufbau, gemessenen Interferenzen im Phasenraum eingegangen.

Die Propagationszeit der Photoelektronen im verwendeten TOF ist einige 100 ns

groß. Damit ist diese Zeit deutlich größer, als das in 2.1 erwähnte Zeitintervall, in dem transiente Interferenzen zu detektieren sind. Demzufolge hat die räumliche Verteilung der Elektronen eine quasistationäre Form angenommen, die der Impulsverteilung entspricht (vgl. Abb. 2.1 (d)). Somit misst das TOF die Impulsverteilung im Ortsraum (Energieverteilung im Zeitraum).

Wie bereits in Abschnitt 2.1 und in [9] diskutiert nimmt die Impulsverteilung eines Doppelpuls Wellenpaketes eine charakteristische Form an. Der zur Erzeugung verwendete Versuchsaufbau ist in Abschnitt 2.3 beschrieben. Das Photoelektronenspektrum ist durch das Spektrum der erzeugenden Laserpulsreplika $\text{PSD}(\omega_{ph})$ folgendermaßen bestimmt

$$P_e(\omega_e) \propto [1 + \cos(\omega_{ph}\tau)\text{PSD}(\omega_{ph})]. \quad (2.14)$$

Hierbei gilt $\hbar\omega_e = \hbar(\omega_{ph} + \omega_{5p} + \omega_{IP})$, mit der Anregungsenergie $\hbar\omega_{5p}$ des K(5p) Zustands, dem Ionisationspotenzial $\hbar\omega_{IP}$ und der Photonenenergie $\hbar\omega_{ph}$ des anregenden elektrischen Feldes.

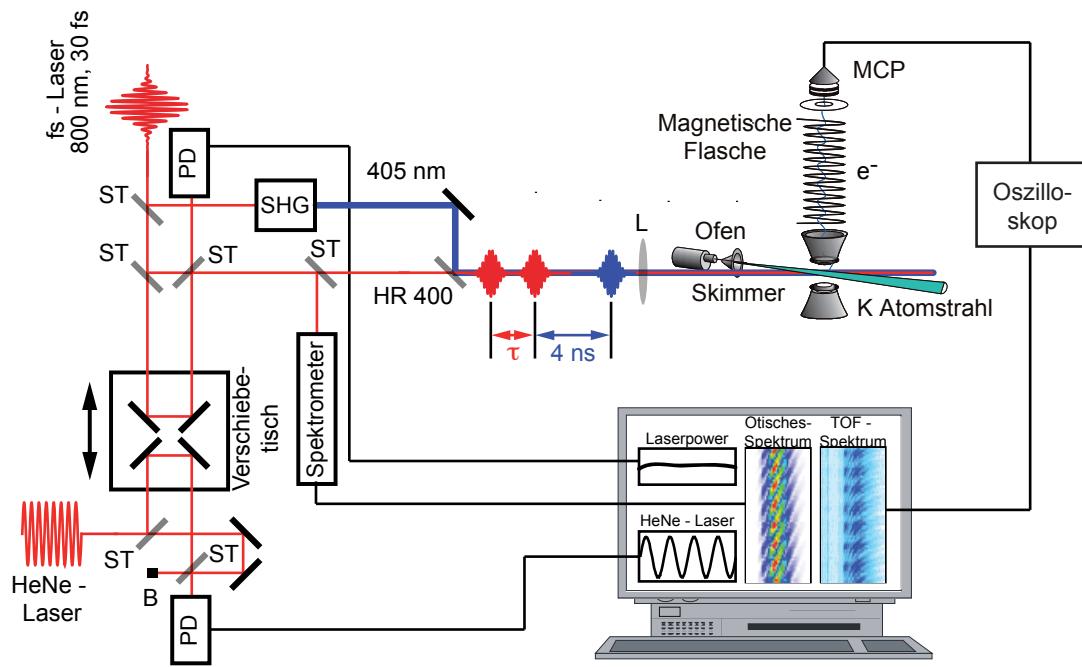
Eine TOF Messung eines Doppelpuls-Elektronenwellenpakets ist in Abb. 2.2 gezeigt. Der Abstand der erzeugenden fs-Laserpulse betrug hier $\tau = 240$ fs. Deutlich sind die erwarteten Oszillationen des Spektrums zu erkennen. Die Energieaufspaltung ist $\frac{\hbar}{\tau} \cong 17$ meV. Dass die Oszillationen nicht komplett durchmoduliert sind, liegt an der, im Vergleich zur Energieauflösung des verwendeten TOF, niedrigen Energieaufspaltung.

Dieses kurze Beispiel zur Messung der Energieverteilung im Zeitraum beschließt die Diskussion zur Analogie der Propagation von Materie- und elektromagnetischen Wellen (weitere Details siehe [9]). Im restlichen Teil dieses Kapitels wird aufbauend auf dieser Diskussion die Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse besprochen.

2.3. Experimenteller Aufbau

In diesem Abschnitt wird der experimentelle Aufbau beschrieben, wie er zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse mittels kohärenter Materiewellen verwendet wurde. Der Aufbau ist in Abb. 2.3 dargestellt.

Als Strahlquelle dient ein 1 kHz Ti:Saphir Lasersystem mit einer maximalen, mittleren Ausgangsleistung von 1 mJ. Die Zentralwellenlänge der fs-Laserpulse liegt bei 800 nm. Die Pulsdauer ist 30 fs. Zunächst wird der Laserstrahl mittels eines Strahlteilers in zwei Teilstrahlen aufgespalten. Einer dieser Teilstrahlen wird frequenzverdoppelt.

**Abbildung 2.3.:**

Experimenteller Aufbau zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse. Der fs-Laser wird in drei Teilstrahlen aufgespalten. Einer dieser Teilstrahlen wird frequenzverdoppelt und verwendet, um die Kaliumatome im ($5p$) Zustand für das Experiment zu präparieren. Die beiden anderen Teilstöße werden demgegenüber um 4 ns verzögert und können zudem gegeneinander verzögert werden. Der Abstand dieser beiden Teilstöße gegeneinander wird über einen Mach-Zehnder Aufbau realisiert. Einige zusätzliche für die Strahlführung und die Einstellung der Verzögerungszeit notwendigen Spiegel werden aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht dargestellt. Parallel zum eigentlichen Messsignal werden die Laserleistung und das optische Spektrum detektiert. Zusätzlich wurde als Referenz für die Charakterisierungsmessungen eine Autokorrelation zweiter Ordnung kurz vor der Fokussierunglinse (L) aufgenommen. Als Detektor diente eine Zwei-Photonen Diode. Um interferometrische Genauigkeit zu gewährleisten, ist zusätzlich ein Mach-Zehnder Interferometer mit einem HeNe-Laser unter Verwendung des Verschiebetischs aufgebaut. (ST = Strahlteiler, B = Blocker, SHG = Generierung der zweiten Harmonischen, HR400 = 400 nm hoch reflektiver, dichroitischer Spiegel, PD = Photodiode, L = Fokussierlinse ($f = 30$ cm), MCP = Multichannel Plate)

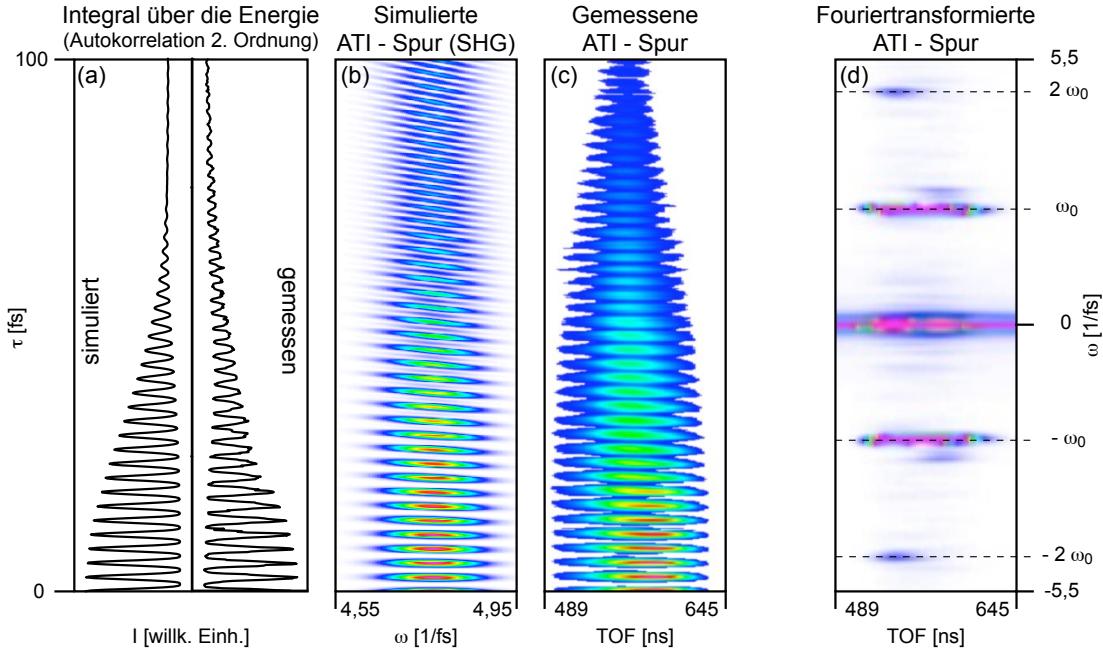
Die Zentralwellenlänge der frequenzverdoppelten Pulse ist 405 nm, die mittlere Leistung $0,25 \mu\text{J}$. Der andere Teilstahl wird demgegenüber um 4 ns verzögert und

anschließend in ein Mach-Zehnder Interferometer eingekoppelt. Auf diese Weise werden zwei identische fs-Laserpulse ($1 \mu\text{J}$, $< 10^{12} \text{ W/cm}^2$, 30 fs bei 800 nm) mit einem genau definierten Zeitabstand τ erzeugt. Die drei Teilstrahlen werden anschließend in eine Hochvakuumkammer fokussiert, in der sie einen Kaliumstrahl ($\text{K}(4s)$) kreuzen. Der zuerst wechselwirkende frequenzverdoppelte fs Laserpuls präpariert die Kaliumatome im ($5p$) Zustand, welcher als Startzustand für das Experiment dient. Ausgehend vom ($5p$) Zustand ist ein Photon der Fundamentalwellenlänge ausreichend, um die Atome in einem Ein-Photonen Prozess zu ionisieren. Aufgrund der Intensität der fs-Laserpulse kommt es jedoch auch zur Above-Threshold-Ionization[36] (ATI), bei der die erzeugten Elektronen durch Wechselwirkung mit weiteren Photonen zusätzliche kinetische Energie erhalten. Zur Charakterisierung der ultrakurzen Laserpulse wird das Signal des ersten ATI-Maximums in Abhängigkeit von τ detektiert. Als Detektor dient ein Flugzeit-Elektronen-Spektrometer (TOF) mit einer Energieauflösung von 25 meV bei einer kinetischen Energie der Elektronen von 1 eV [31]. Zur Kontrolle der experimentellen Parameter werden zusätzlich das kombinierte optische Spektrum der beiden Fundamentalpulse und die Laserenergie gemessen. Zusätzlich wird noch das Interferenzsignal eines HeNe-Lasers, der über ein Mach-Zehnder Interferometer, welches über den Verschiebetisch des Experiments realisiert ist, gemessen, um interferometrische Genauigkeit zu gewährleisten.

2.4. Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse

In diesem Abschnitt wird auf die experimentelle Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen mittels kohärenter Materiewellen eingegangen. Dabei werden die bisherigen Erkenntnisse verwendet und auf einen nichtlinearen Ionisationsprozess übertragen. Die Verwendung eines Multiphotonen Ionisationsprozesses anstelle optischer Frequenzkonversion hat hierbei den Vorteil, dass eine Übertragung der Charakterisierungstechnik in den spektralen XUV Bereich möglich ist. Im folgenden werden jedoch nur Experimente mit 800 nm fs-Laserpulsen besprochen, da diese auf einfache Weise mit klassischen optischen Charakterisierungsmethoden untersucht werden können und es somit möglich ist die photoelektronenspektroskopisch gewonnenen Resultate direkt mit Ergebnissen einer optischen Autokorrelation zweiter Ordnung zu vergleichen. Zum Einsatz kommt der in 2.3 vorgestellte Aufbau.

In 2.2 wurde ein linearer Messprozess verwendet. Dies ist jedoch zur zeitlichen Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse nicht ausreichend. Nach dem Wiener-Khintchine Theorem[37, 38] entspricht die Fouriertransformation einer Autokorrelation erster Ordnung, welche einen linearen Messprozess verwendet, der spektralen Leistungsdichte des autokorrierten Laserpulses. Somit liefert eine Autokorrelation erster Ordnung keine Informationen über die spektrale Phase. Daher wird für

**Abbildung 2.4.:**

(a) Vergleich der energieintegrierten Signale von **(b)** und **(c)**. **(b)** Simulation des interferometrisch aufgenommenen ATI Signals für 30 fs, 800 nm Laserpulse mit gaußscher Pulsform auf Basis eines optischen SHG Prozesses. **(c)** Interferometrisch gemessenes ATI Signal. **(d)** Fouriertransformation von **(c)** entlang der Verzögerungszeitachse. Die verschiedenen Frequenzkomponenten bei $\omega = 0$, $\omega = \omega_0$ und $\omega = 2\omega_0$ sind deutlich erkennbar.

die Charakterisierungsexperimente die ATI als nichtlinearer Konversionsprozess verwendet. In diesem Fall wird die Zwei-Photonen ATI einer interferometrischen Doppelpulsfolge energieaufgelöst detektiert. Die Laserenergie wurde dabei so gewählt (vgl. Abschnitt 2.3), dass höhere Ordnungen der ATI unterdrückt werden. Das Verhältnis der Intensitäten des ersten zum zweiten ATI-Maximum war im Experiment ca. 10:1. Somit kann der Einfluss höherer ATI-Kanäle vernachlässigt werden. Aus der interferometrischen, spektral aufgelösten Messung kann eine konventionelle SHG-FROG² Spur durch Fourier-Filterung gewonnen werden [39].

Die ATI Photoelektronen werden mit einem TOF-Spektrometer detektiert und die Verzögerungszeit der beiden Pulse fundamentaler Wellenlänge wird von 0 fs nach 100 fs in 0,12 fs Schritten verändert. Somit ergibt sich eine interferometrische Messung mit einem nichtlinearen Messprozess zweiter Ordnung. Der Abstand der Oszillationsmaxima im Spektrum nimmt dabei mit zunehmendem zeitlichen Ab-

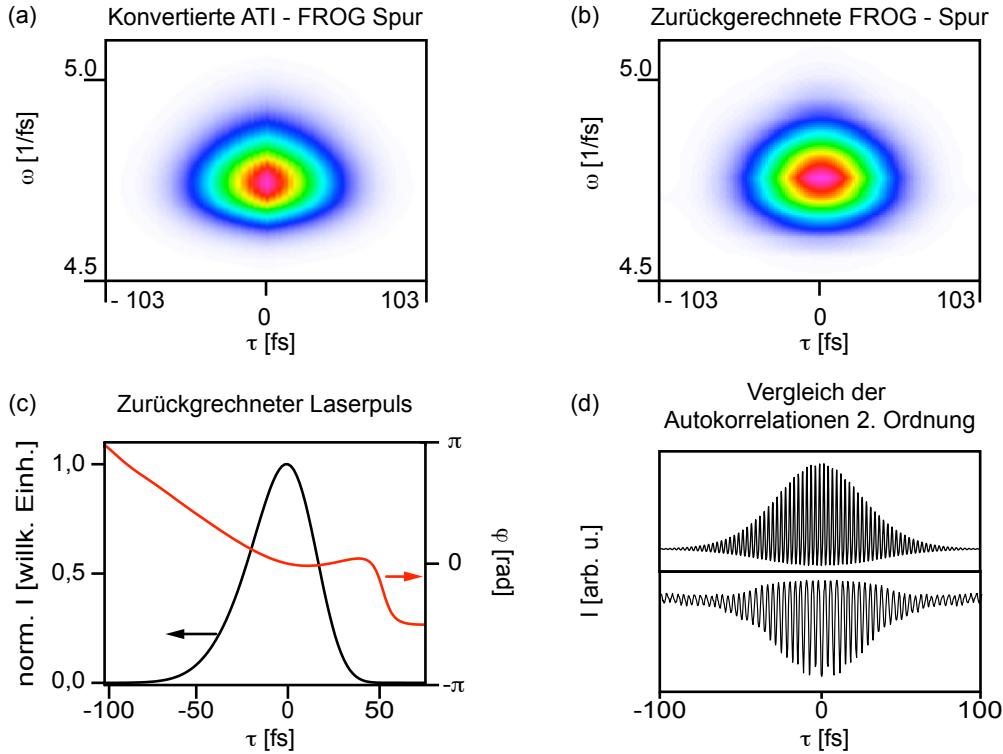
² ... Second Harmonic Generation - Frequency Resolved Optical Gating

stand der Pulse ab. Bei einer Verzögerungszeit von 100 fs beträgt der Abstand noch 40 meV. Dies liegt im gleichen Bereich, wie die Auflösung unseres TOF bei einer Elektronenenergie von 1,9 eV, entsprechend der Energie des ersten ATI-Maximums. Simulationen zeigen jedoch, dass sich das Ergebnis der Charakterisierung der ultra-kurzen Laserpulse im Rahmen der ermittelten Fehler auch bei einer um den Faktor zwei niedrigeren Auflösung nicht ändert. Das ATI Spektrum setzt sich für jeden Zeitschritt aus dem Mittel von 3000 Einzelschussspektren zusammen. Als Referenz wurde parallel eine optische Autokorrelation zweiter Ordnung direkt vor der Fokussierungslinse (L in Abb. 2.3) aufgenommen. In Analogie zu dem in Abschnitt 2.2 vorgestellten Experiment wurde der $K(5p)$ Zustand als Startzustand präpariert. Von diesem Zustand ausgehend reichen zwei Photonen der Fundamentalwellenlänge aus, den ersten ATI zu erreichen. Da dieser nicht resonante Prozess mit der optischen Generierung der zweiten Harmonischen vergleichbar ist, kann das in [39] vorgestellte Verfahren angewandt werden.

Um das interferometrisch aufgenommene ATI Signal in eine SHG-FROG Spur zu überführen, werden die Daten in einem Verzögerungszeitbereich von 0 fs bis 100 fs untersucht (s. Abb. 2.4 (c)). Zum Vergleich ist in Abb. 2.4 (b) die Simulation einer interferometrischen ATI Messung gezeigt. Hierbei wird das SHG Signal zweier gegeneinander verzögter ungechirpter 30 fs Gaußpulse als Simulationssignal verwendet. Die energieintegrierten Signale der simulierten und der gemessenen Daten – welches jeweils die Autokorrelation zweiter Ordnung ergibt – sind in Abb. 2.4 (a) gegenüber gestellt. Beide Kurven zeigen eine gute Übereinstimmung. Die erkennbaren Abweichungen lassen sich durch den Unterschied zwischen der angenommenen einfachen Pulsform und der tatsächlichen Pulsform im Experiment erklären. Aufgrund dieser Übereinstimmung ist es gerechtfertigt, den Algorithmus aus [39] auf die vorhandenen Daten anzuwenden und sie so in eine SHG-FROG Spur zu konvertieren.

Zunächst werden die Daten um den Zeitnullpunkt gespiegelt, um einen vollständigen, im folgenden als interferometrische ATI-FROG Spur bezeichneten, Datensatz zu erhalten. Diese wird im Anschluss entlang der Verzögerungszeitachse fourier-transformiert. Das Ergebnis der Fouriertransformation ist in Abbildung 2.4 gezeigt. Die unterschiedlichen Frequenzkomponenten bei $\omega = 0 \text{ fs}^{-1}$, $\omega = \omega_0$ und $\omega = 2\omega_0$ mit $\omega_0 = 2,36 \text{ fs}^{-1}$ sind deutlich voneinander getrennt. Nun werden die Frequenzkomponenten bei ω_0 und $2\omega_0$ weggefiltert und die gefilterten Daten um $\omega = 0 \text{ fs}^{-1}$ zurücktransformiert.

Neben dem erwünschten ATI-Prozess, an dem je ein Photon der beiden Fundamentalpulse beteiligt ist, können, trotz niedriger Energie der Einzelpulse, diese ein von der Verzögerungszeit unabhängiges ATI-Signal erzeugen. Dieser Anteil wird nach der Rücktransformation durch Mittelung der Spektren bei großen Verzögerungszeiten ermittelt und von den gefilterten Daten abgezogen. Anschließend wird die Photoelektronenenergiekalibrierung auf die Flugzeitdaten angewandt und über

**Abbildung 2.5.:**

(a) Aus der interferometrischen ATI-FROG Spur erhaltene SHG-FROG Spur. (b) Zurückgerechnete SHG-FROG Spur. Die Standardabweichung zu (a) beträgt 0,6 %. (c) Errechnete Pulsform. Die Pulsdauer liegt bei 42 fs (FWHM) mit einem linearen Chirp von 326 fs^2 . (d) Vergleich der direkt gemessenen Autokorrelation zweiter Ordnung (unten) und der entsprechenden Funktion, berechnet aus den errechneten Pulsparametern (oben).

$\omega_{2ph} = \omega_{IP} + \omega_e$ auf Kreisfrequenzen ω_{2ph} analog einem konventionellen SHG-FROG umgerechnet. Hierbei ist $\hbar\omega_{IP}$ das Ionisationspotenzial des ($5p$) Zustands und $\hbar\omega_e$ die gemessene kinetische Energie der Elektronen.

Das Ergebnis ist eine konventionelle SHG-FROG Spur (s. Abb. 2.5 (a)). Aus dieser wird nun mit Hilfe des von Kane in [40] vorgestellten PCGP³ Algorithmus die Laserpulsform errechnet. Die zurückgerechnete SHG-FROG Spur ist in Abb. 2.5 (b) gezeigt. Die Standardabweichung der berechneten von der gemessenen SHG-FROG Spur beträgt 0,6 %. Die zugehörige errechnete Pulsform ist in Abb. 2.5 dargestellt. Die daraus ermittelte Pulsdauer beträgt (42 ± 3) fs (FWHM) und die Phasenfunktion weist einen linearen Chirp von 326 fs^2 auf. Dies kann mit dem, aufgrund der Dicke

³... Principal Components Generalized Projections

des dichroitischen Strahlteilers und der Dicke der Fokussierungslinse, eingeführten linearen Chirp verglichen werden. Die Gesamtdicke ist 9 ± 1 mm. Für BK7 bei einer Wellenlänge von 800 nm ergibt sich aus [22] Tabelle 12.3 ein Wert von 287 ± 32 fs². Zum Vergleich mit der parallel gemessenen optischen Autokorrelation zweiter Ordnung wurde aus den errechneten Pulsparametern eine Autokorrelation zweiter Ordnung berechnet. Der Vergleich ist in Abb. 2.5 (d) zu sehen. Die gute Übereinstimmung beider Kurven bestätigt die Anwendbarkeit der vorgestellten Methode.

2.5. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde ein Methode zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse demonstriert. Zudem wurde die Analogie zwischen Lichtpropagation in dispersiven Medien und der Propagation kohärenter freier Materiewellen verwendet, um den Messprozess – Messung einer physikalischen Größe durch Messung im zu ihr konjugierten Raum – zu illustrieren. Der physikalische Mechanismus wurde dabei im Rahmen der WignerVerteilung, als Repräsentation des Phasenraums, diskutiert. Das Zusammenspiel von Dispersion und Interferenz führt nach ausreichend langer Propagationszeit zu einer quasi 90 Grad gedrehten WignerVerteilung, welches in diesem Bild einer Fouriertransformation entspricht [33]. Als Ergebnis konvergiert die Ortsverteilung eines Wellenpaketes zu seiner Impulsverteilung. Dieser Prozess wurde am Beispiel eines freien Doppelpuls-Wellenpakets unter dispersivem Einfluss demonstriert, welches nach ausreichend Propagationszeit die spektralen Interferenzerscheinungen der Impulsverteilung in seiner Ortsverteilung zeigt. Experimentell wurde das Wellenpaket durch eine Sequenz von zwei ultrakurzen Laserpulsen erzeugt und durch ein Photoelektronenspektrometer detektiert. Die sich ergebenden Interferenzen können als ein Youngsches Doppelspalteperiment an Materiewellen im Zeitraum betrachtet werden. Durch Verwendung des TOF wurde somit eine Impulsverteilung im Ortsraum gemessen.

Diese Technik wurde im Anschluss als Basis zur Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen verwendet. Die notwendige Nichtlinearität wurde durch Verwendung des Signals des ersten ATI-Maximums des Photoelektronenspektrums als Messsignal eingeführt. Dies verhindert Resonanzen, die durch ihre Lebensdauern die Messung verfälschen könnten. Das interferometrisch aufgenommene, spektral aufgelöste ATI Signal wurde in eine SHG-FROG Spur konvertiert und ein Standardalgorithmus zur Berechnung der Pulsform darauf angewandt. So konnte die zeitliche Pulsform der verwendeten fs-Laserpulse extrahiert werden. Zur Demonstration wurden 800 nm fs-Laserpulse verwendet, so dass das Ergebnis mit einer konventionellen, optischen Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung verglichen werden konnte. Dieser Vergleich zeigt eine gute Übereinstimmung und bestätigt die Verwendbarkeit des

vorgestellten Verfahrens.

Da diese Charakterisierungstechnik nur einen nicht-linearen, nicht-resonanten Ionisationsprozess benötigt, ist die Erweiterung in den XUV Bereich ein nächster Schritt. Die Detektion von ATI in Edelgasen wurde bereits in [41] demonstriert. Zur tatsächlichen Anwendung im XUV Bereich muss jedoch noch eine konstante Ionisationswahrscheinlichkeit über die gesamte Bandbreite von Attosekundenpulsen sichergestellt werden. Außerdem muss der Ionisationsprozess schneller sein, als die Pulsdauer der zu charakterisierenden Pulse [42].

3. Ultraschnelle Elektronenbeugung

In diesem Kapitel wird der Aufbau der ultraschnellen Elektronenbeugungsanlage¹ vorgestellt. Anschließend werden die durchgeführten Experimente beschrieben.

Zu Beginn wird in Abschnitt 3.1 ein Überblick über den momentanen Stand der Forschung gegeben. Außerdem werden die Vorteile der ultraschnellen Elektronenbeugung gegenüber anderen Methoden, wie z.B. zeitaufgelöster Röntgenbeugung diskutiert.

Anschließend werden in Abschnitt 3.2 unterschiedliche Aufbauten vorgestellt, die bei den durchgeführten Experimenten zum Einsatz kamen. Dabei handelt es sich, neben der Elektronenbeugungsanlage, um zwei Entwicklungsstufen einer fs-Laser basierten Röntgenquelle, die am Laser Zentrum Hannover (LZH) entwickelt wurde. An diesen Quellen wurden die ersten Experimente im Rahmen des DFG Schwerpunktprogramms 1134 - Aufklärung transienter Strukturen in kondensierter Materie mit Ultrakurzzeit-Röntgenmethoden - durchgeführt. Hieraus entwickelte sich dann in Kassel der Aufbau der Elektronenbeugungsanlage.

Die durchgeführten Untersuchungen, die in den anschließenden Abschnitten vorgestellt werden, gliedern sich entsprechend der drei Bereiche, die für die Leistung der Anlage bestimmend sind. Zunächst ist dies die *Erzeugung* der Elektronen durch Laseranregung, die die Anzahl der für Experimente zur Verfügung stehenden Elektronen bestimmt. Dem anschließend folgt die *Propagation* der Elektronenpulse zur Probe. Hierdurch wird die erreichbare zeitliche Auflösung bestimmt. Am Ort der Probe kommt es schließlich zur *Beugung* der Elektronen. Die durchgeführten Experimente werden dementsprechend gegliedert besprochen.

In Abschnitt 3.3 werden Experimente zur Erzeugung von Elektronen mittels Photoemissionen von Dünnschichtphotokathoden vorgestellt. Dabei wird basierend auf Experimenten an der Röntgenquelle der zweiten Entwicklungsstufe eine Auswahl von Kathodenmaterial und Geometrie für die Elektronenbeugungsanlage getroffen. Außerdem werden Abhängigkeiten der Effizienz der Photoemission von Laserpulsfluenzen, spektralen Phasen und Doppelpulsabständen untersucht. Schließlich wird die Feedback gesteuerte Optimierung der Photoemissionseffizienz demonstriert.

Abschnitt 3.4 widmet sich der Propagation der erzeugten Elektronenpakete von der Photokathode zur Probe. Dabei werden sowohl Computersimulationen, als auch erste zeitabhängige Messungen zur Bestimmung der Zeitnull und Elektronenpulsdauer besprochen. Die Zeitnull bezeichnet den Zeitpunkt, zu dem das Maximum des

¹... ULtraschnelle Elektronen Beugungsanlage (ULEB)

Probepulses (Elektronen) und des Pumppulses (Laser) am Ort der Probe zeitlich überlappen.

In Abschnitt 3.5 werden statische Elektronenbeugungsexperimente an Aluminium vorgestellt.

Den Abschluss des Kapitels bildet eine Zusammenfassung in Abschnitt 3.6.

3.1. Messen von Bewegungen auf molekularer Ebene

In diesem Abschnitt wird der momentane Stand der Forschung in Hinsicht auf das Ziel der ultraschnellen Elektronenbeugung, das Drehen eines „molekularen Films“², beleuchtet. Gleichzeitig wird eine Einordnung der Technik der ultraschnellen Elektronenbeugung in das Umfeld anderer Methoden mit dem gleichen Ziel vorgenommen.

Mit dem Drehen eines „molekularen Films“ wird die Beobachtung von strukturellen Änderungen in Molekülen und Festkörpern auf atomarer Ebene mit sub-ps Zeitauflösung bezeichnet. Dies kann auf unterschiedlichste Weisen geschehen, von denen eine die in dieser Arbeit vorgestellte ultraschnelle Elektronenbeugung ist.

Für beide Teilaufgaben existieren etablierte Standardverfahren. So gibt es ein breites Spektrum an Methoden zur Untersuchung statischer räumlicher Strukturen mit atomarer Auflösung (Röntgen- / Elektronenbeugung, Elektronenmikroskopie³, NMR) [43].

Ebenso existieren spektroskopische Methoden zur Beobachtung der elektronischen oder vibratiorischen Zustände von Molekülen und Atomen auf einer sub-ps Zeitskala⁴ [44]. In [45] wurde mittels Femtosekunden-Pump-Probe Photoelektronenspektroskopie die Bewegung eines Vibrationswellenpakets im Natrium-Dimer „gefilmt“. Dabei ist jedoch eine genaue Kenntnis der am Photoemissionsprozess beteiligten Potenzialkurven notwendig, um aus den Photoelektronenspektren auf die Distanz der einzelnen Natriumatome zurückzurechnen zu können. Alle spektroskopischen Methoden sind indirekte Methoden, da für die Berechnung struktureller Änderungen auf Potenziale (berechnet oder gemessen) zurückgegriffen werden muss. Für komplexe Moleküle ist dies nicht praktikabel. Außerdem ist der Zugriff auf sog. dunkle Zustände, also Zustände die ohne Strahlungsemision in einen anderen Zustand übergehen, so nicht direkt möglich.

Die Kombination von strukturauflösenden Beugungsmethoden mit der fs Pump-Probe Technik ermöglicht es die Defizite der unterschiedlichen Techniken auszugleichen und neue Einblicke in die Dynamik von Festkörpern und Molekülen nach Anregung durch einen fs-Laserpuls zu gewinnen. Im Speziellen eignen sich hierzu

² ... im Englischen oft als „Making the Molecular Movie“ bezeichnet

³ ... in ihren unterschiedlichen Ausprägungen wie STEM

⁴ ... Nobelpreis 1999 Chemie: A.H. Zewail

die Kombination der fs-Techniken mit Röntgen- / Elektronenbeugungsmethoden.

Gegenüber der Verwendung von Röntgenstrahlung in Beugungsexperimenten hat die Verwendung von Elektronenpulsen einige Vorteile. Zum einen sind Elektronen durch die Verwendung von magnetischen Linsen und elektrostatischen Elementen vergleichsweise einfach lenk- und formbar. Außerdem ist der elastische Streuquerschnitt der Elektronen um 5-6 Größenordnungen höher, als der für Röntgenphotonen. Während die Elektronen in einem Rutherford/Coulomb-Streuprozess am Atom⁵ gestreut werden, werden Röntgenstrahlen durch Rayleigh-Streuung lediglich durch die Elektronen des Atoms gestreut. Mittels (3.45) ergibt sich für Elektronen mit einer kinetischen Energie von 15 keV ein Streuquerschnitt von ca. 10^{-17} cm^2 in Aluminium. Für Kupfer-(K _{α}) Röntgenphotonen mit einer Energie von 8,05 keV ergibt sich hingegen ein elastischer Streuquerschnitt von ca. $4 \cdot 10^{-23} \text{ cm}^2$ [46]. Zusätzlich ist die Eindringtiefe von Elektronen in eine Probe geringer, als die Eindringtiefe von Röntgenstrahlung. Dies mutet zunächst wie ein Nachteil an, ist jedoch im Fall der Anregung mit 800 nm fs-Laserpulsen hilfreich, da die Eindringtiefe der Photonen in der gleichen Größenordnung, wie die der Elektronen liegt. Das bedeutet, dass die gestreuten Elektronen nur Signal aus dem tatsächlich angeregten Volumen liefern, während Röntgenbeugung im Normalfall noch starke Beiträge aus dem nicht angeregten Volumen einer Probe liefert. Daher wurde entschieden sich auf den Aufbau einer ultraschnellen Elektronenbeugungsanlage zu konzentrieren.

Seit dem Beginn der Entwicklung der ultraschnellen, zeitaufgelösten Elektronenbeugung Anfang der 1990er Jahre [47, 48, 49] ist ein breites Spektrum von Fragestellungen untersucht worden. Ein kleiner Überblick über die durchgeführten Experimente wird in den folgenden Absätzen gegeben.

Die strukturellen Änderungen von Molekülen in der Gasphase wurden in unterschiedlichsten Experimenten untersucht. Von ersten Experimenten an CCl_4 und CF_3I [48] führte der Weg über z.B. die Untersuchung der transienten Zustände bei der Produktion von C_2F_4 aus $C_2F_4I_2$ [50] und die Untersuchung der Ringöffnung von 1,3-Cyclohexadien [51] zu aktuellen Studien. Kürzlich wurden in [52, 53] Untersuchungen zur Photophysik und Photolyse von aromatischen Carbonylen, speziell Benzaldehyd und Acetophenon vorgestellt. Hierbei wurden mittels ultraschneller Elektronenbeugung die strahlungsgesetzlichen Prozesse untersucht, die dabei auftreten. Einen Überblick über weitere Experimente zur Untersuchung von Molekülen in der Gasphase mittels ultraschneller Elektronenbeugung findet sich in [54].

Neben den Untersuchungen in der Gasphase bilden die Untersuchungen von Prozessen an der Oberfläche von Festkörpern ein weiteres aktives Gebiet der ultraschnellen Elektronenbeugung. Erste Experimente unter Verwendung der zeitaufgelösten RHEED⁶ Technik wurden in [49] vorgestellt. In [55] wurde dies in einem

⁵... Streuung durch den abgeschirmten Kern

⁶... Reflection High Electron Energy Diffraction

weiteren frühen Experiment an der Oberfläche eines Natriumchlorid-Kristalls demonstriert. Diese Technik wurde in [56] angewendet, um die Struktur und Dynamik von Wasser auf einer hydrophilen Oberfläche zu untersuchen. Kürzlich wurde in [57] mit einer RHEED Anlage das Schmelzen einer Wismut-Oberfläche als Demonstrationsexperiment vorgestellt. In [58] wurden mit dieser Technik Nicht-Gleichgewichtszustandsänderungen von Cupraten untersucht.

Das Schmelzen von Metallen nach Anregung mit einem fs-Laserpuls wurde auch intensiv mit ultraschneller Elektronenbeugung in Transmissionsgeometrie, wie sie in dieser Arbeit auch vorgestellt wird untersucht. Dabei war speziell Aluminium ein beliebtes Ziel [59, 60, 61]. In [62] konnte im Gegensatz zu den Ergebnissen von [63] gezeigt werden, dass es sich dabei um thermisches Schmelzen handelt. Dies wurde kürzlich durch weitere Messungen in [64] bestätigt. Eine weitere Anwendung findet sich in der Untersuchung der Elektron-Phonon Relaxation, welche in [65] an Silizium untersucht wurde.

Einen weiteren Überblick über Technik und Anwendungen geben die zahlreichen Übersichtsartikel, die in den letzten Jahren zum Thema der ultraschnellen Elektronenbeugung erschienen sind. In [66] wird dabei der Schwerpunkt auf Gasphasenexperimente zu strukturellen Änderungen an Molekülen gelegt. Dieser Schwerpunkt wird auch in [54] aufgegriffen, wobei hier auch auf die Anwendungsmöglichkeiten auf große Biomoleküle eingegangen wird. Einen Überblick über diese Anwendungen bietet auch [67]. Hier wird zusätzlich noch auf zeitaufgelöste RHEED Anwendungen, dort „Ultrafast Electron Crystallography“ genannt, eingegangen und ein Ausblick auf die Entwicklung von bildgebenden Elektronenmikroskopen mit sub-ps Zeitauflösung gegeben. Dieser Aspekt wird auch in [68] beleuchtet. Jedoch liegt der Schwerpunkt hier auf Anwendungen zur Untersuchung von Festkörpern. Dieser Aspekt wird auch in [69] behandelt. Hier wird zusätzlich noch auf Methoden zur Charakterisierung der verwendeten Elektronenpulse eingegangen.

3.2. Experimentelle Aufbauten

In diesem Abschnitt werden die zur Röntgengenerzeugung und Elektronenbeugung verwendeten Aufbauten vorgestellt. Dies gliedert sich in zwei Teilbereiche. Im ersten Teil werden zwei Entwicklungsstufen der, am LZH aufgebauten, Quelle für ultrakurze Röntgenpulse kurz beschrieben. Im zweiten Teil wird dann die Elektronenbeugungsanlage, wie sie im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut wurde, vorgestellt.

3.2.1. Röntgenquellen

Das Prinzip der Erzeugung der Röntgenpulse ist bei beiden Röntgenquellen gleich und ist in Abb. 3.1 schematisch dargestellt.

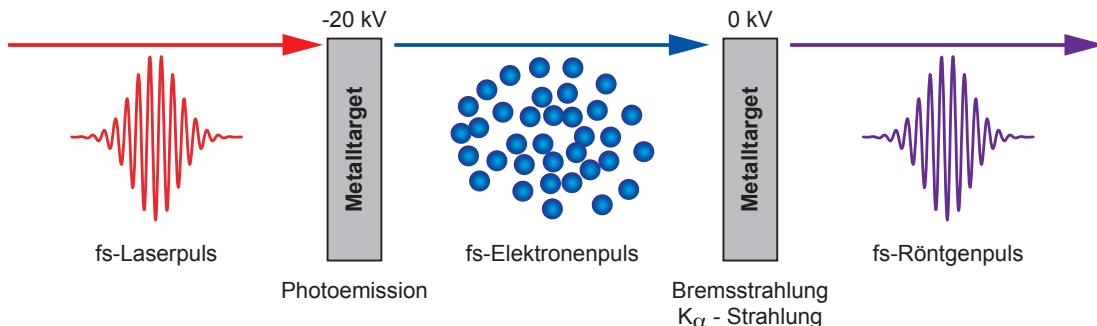


Abbildung 3.1.:

Prinzip der LZH Röntgenquellen. Ein ultrakurzer Laserpuls wird auf ein Metalltarget fokussiert und erzeugt dort Photoelektronen. Die Photoelektronen werden durch ein externes elektrisches Feld beschleunigt und auf eine Metallanode gelenkt. Dort erzeugen die auftreffenden Elektronen Röntgenphotonen in Form von Bremsstrahlung und charakteristischer K_{α} Strahlung. Die Röntgenpulsdauer wird dabei hauptsächlich durch die Propagationszeit der Elektronen zwischen Kathode und Anode bestimmt [70, 71].

Als Ausgangspunkt dient ein fs-Laserpuls. Dieser wird auf ein Metalltarget fokussiert und generiert dort durch Photoemission freie Elektronen. Dabei liegt das Metalltarget auf einem negativen Potenzial im Bereich von einigen 10 kV. Typische Austrittsarbeiten für die unterschiedlichen verwendeten Metalltargets⁷ liegen im Bereich von 4,3 eV. In einem Abstand von weniger als einem Zentimeter befindet sich ein massives Kupfertarget, welches als Anode fungiert und auf Masse liegt. Durch die Potenzialdifferenz werden die Elektronen beschleunigt und treffen auf die Anode. Hier entsteht analog zur klassischen Röntgenröhre Bremsstrahlung und charakteristische (K_{α}) Strahlung mit einer Energie von 8,05 keV [72]. Aufgrund der kurzen Elektronenflugstrecke und der kurzen Erzeugungszeit der Elektronen (fs Anregung) ergeben sich so Röntgenpulse mit einer Zeitdauer im ps bzw. sub-ps Bereich.

Im Gegensatz zu plasmabasierten ultrakurzen Röntgenquellen (z.B. [73, 74, 75]) wird eine vergleichsweise niedrige Pulsenegie benötigt, da die Anregung unterhalb der Plamaschwelle erfolgt. Demgegenüber benötigen die Plasmaquellen keine Beschleunigungsstrecke, da die Beschleunigung der freien Elektronen im Plasma durch das hohe elektrische Feld des Laserpulses geschieht.

⁷... Kupfer, Gold, Silber

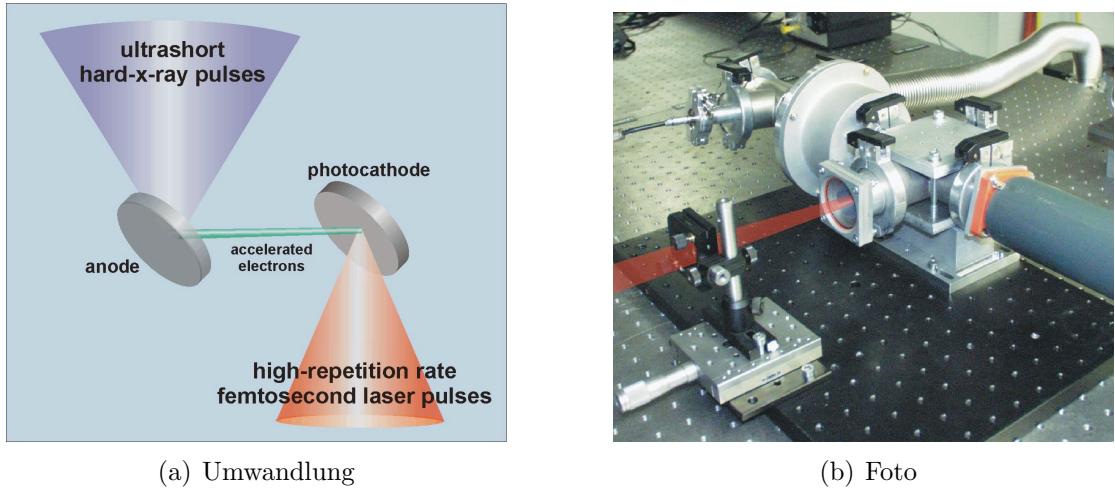


Abbildung 3.2.:

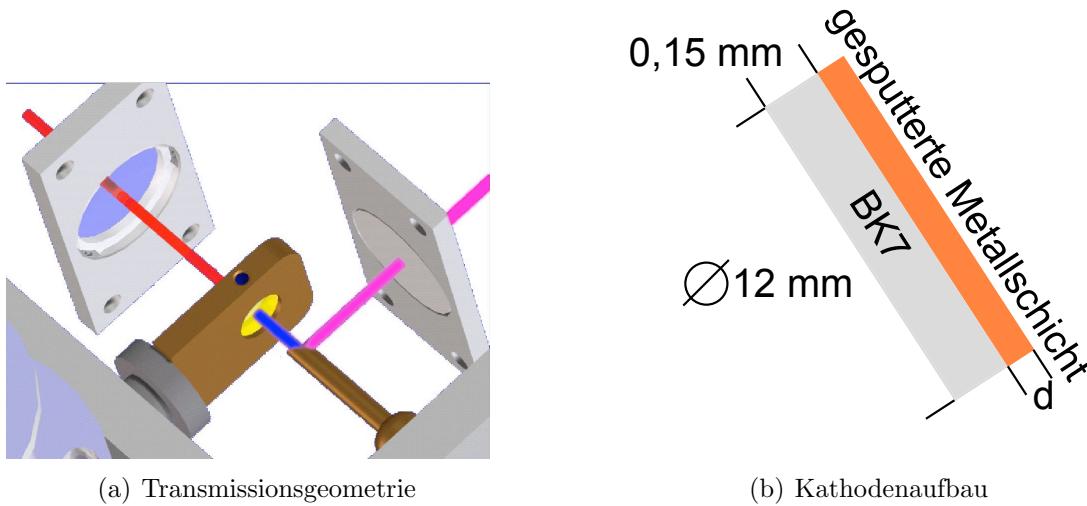
(a) Umwandlung von fs-Laserpulsen in sub-ps Röntgenpulse. Ein intensiver Laserpuls wird auf die Photokathode fokussiert. Der erzeugte Photoelektronenpuls wird zur Anode hin beschleunigt und dort in K_{α} und Bremsstrahlung umgewandelt, die als Röntgenpuls emittiert wird. **(b)** Foto der Röntgenpulsquelle. Schematisch angedeutet ist der fs Laserstrahl, der durch die Linse im linken Teil des Bildes in die Quelle hineinfokussiert wird. Auf der rechten Seite ist die Hochspannungsdurchführung zu sehen. (beides aus [76])

Die Anzahl der erzeugten Photonen pro Sekunde ist bei beiden Quellen vergleichbar in einer Größenordnung von 10^{10} Photonen pro Sekunde in einem Raumwinkel von 4π . Dieser Fluss wird bei den plasmabasierten Quellen in erster Linie durch eine hohe Photonenzahl pro Puls erreicht. Die hier vorgestellten Röntgenquellen erreichen dies in erster Linie durch eine hohe Repetitionsrate⁸. Die Pulsdauern der Plasmaquellen können bis hinunter zu 100 fs betragen [75], während typische Pulsdauern der hier vorgestellten Quellen im Bereich von 1 ps liegen [71].

Erste Generation

Diese Röntgenquelle wurde in „Reflektionsgeometrie“ entworfen. Dies ist in Abb. 3.2(a) gezeigt. Sowohl bei der Kathode, auf die der fs-Laserpuls fokussiert wird, als auch bei der Anode handelt es sich um massive Metalltargets. Hierdurch ist die Quelle sehr robust. Zu hohe Intensitäten führen zwar zu Materialabtrag, zerstören die Kathode jedoch nicht. Für die Kathode kamen als Materialien Kupfer und Molybdän zum Einsatz. Als Anodenmaterial wurde in allen Fällen Kupfer verwendet. Auf Grund der Geometrie sind Grenzen bezgl. des Abstands von Anode und Katho-

⁸... ein Vergleich der unterschiedlichen Quelltypen findet sich in [76]

**Abbildung 3.3.:**

(a) Schemazeichnung der Röntgenquelle der zweiten Generation in Transmissionsgeometrie (von Ulf Hinze, LZH). Die Laserpulse (rot) werden durch Photoemission an der Kathode in Elektronenpulse (blau) umgewandelt, die an der Anode Bremsstrahlung und charakteristische Linienstrahlung als Röntgenpulse (lila) erzeugen. **(b)** Schema der verwendeten Kathoden. Auf ein 0,15 mm dickes BK7 Standardsubstrat mit einem Durchmesser von 12 mm werden Metallschichten aufgesputtert, die, angeregt durch die fs-Laserpulse, Elektronen photoemittieren.

de gesetzt. Ein Mindestabstand von 0,5 cm kann nicht unterschritten werden, da sonst die Kathode durch die Anode abgedeckt wird, bzw. es zu Überschlägen an den Kanten von Kathode und Anode kommen kann, bevor Beschleunigungsspannungen von 20 kV und mehr erreicht werden. Da die eigentliche Elektronenbeugungsanlage auf der zweiten Generation der Röntgenquelle basiert, werden die an dieser Röntgenquelle durchgeführten Experimente der Vollständigkeit halber in Anhang A beschrieben.

Zweite Generation

Basierend auf den Erkenntnissen der ersten Generation wurde die neuere Röntgenquelle so entwickelt, dass zum einen die „Reflektionsgeometrie“ zum Einsatz kommen kann, es jedoch auch möglich ist auf eine „Transmissionsgeometrie“ umzubauen (siehe Abb. 3.3(a)). Bei dieser „Transmissionsgeometrie“ wird als Kathode ein 0,15 mm dickes Glasplättchen mit einer aufgesputterten Metallschicht verwendet. Als Materialien wurden Kupfer, Gold, Silber und Silber auf Nickel/Chrom verwendet. Die Dicke der verwendeten Metallschichten beträgt zwischen 30 nm und

40 nm. Die verschiedenen Metallschichten wurden von L. Martin in der Arbeitsgruppe Experimentalphysik IV an der Universität Kassel und am LZH hergestellt und dort auch charakterisiert.

Der Anregungslaser wird durch die Glasplatte hindurch auf die Metallschicht fokussiert. Die ausgelösten Elektronen werden auf die Anode hin beschleunigt und erzeugen dort einen kurzen Röntgenpuls. Dieser Aufbau erlaubt kleinere Abstände zwischen Anode und Kathode und somit potenziell kürzere Elektronenpulse [5, 70] (siehe auch Abschnitt 3.4.2). Diese Version der Röntgenquelle wurde in Vorexperimenten zum Bau der Elektronenbeugungsanlage verwendet. Es wurden unterschiedliche Kathodenmaterialien auf Stabilität und Elektronenausbeute untersucht. Diese Experimente sind in Abschnitt 3.3.4 beschrieben.

3.2.2. Elektronenbeugungsanlage

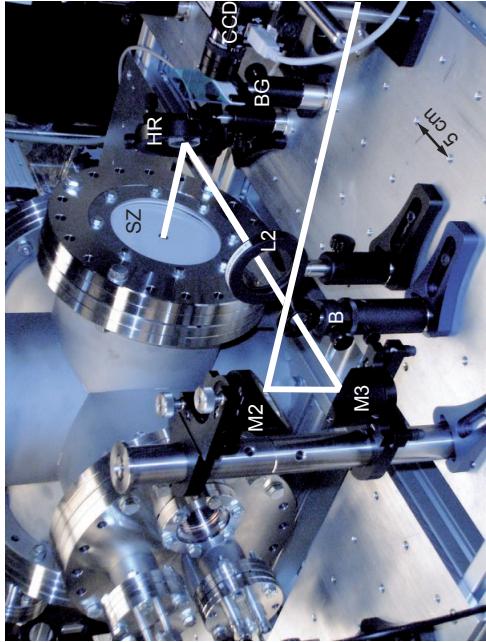
In diesem Abschnitt wird auf die Elektronenbeugungsanlage ULEB, wie sie im Rahmen der Arbeit aufgebaut wurde, eingegangen. Zunächst wird ein kurzer Überblick über den Aufbau gegeben. Auf Details der einzelnen Elemente wird anschließend eingegangen. Detaillierte Konstruktionszeichnungen sind in Anhang D zu finden.

Übersicht

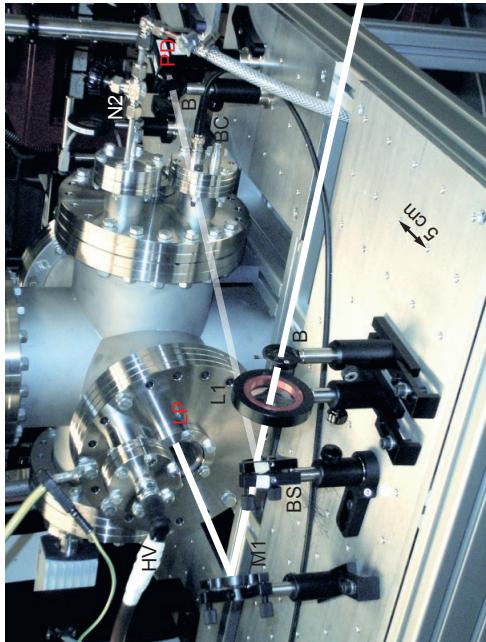
Die ULEB ist in einem CF160DN 6-fach Kreuz von Hositrad aufgebaut (siehe Abb. 3.4, Schemazeichnung in Abb. D.1). Zur Erzeugung des Vakuums kommt eine Kombination aus einer Drehschieberpumpe (Varian DS102, Saugvermögen: 95 l/min) und einer Turbopumpe (Varian Turbo-V301, N₂ Saugvermögen: 250 l/s) zum Einsatz. Der Druck wird über ein Weitbereichsdruckmessgerät (Leybold ITR 90 mit Controller Leybold CENTER ONE) gemessen. Der typische Druck während der Experimente liegt bei $1,1 \cdot 10^{-6}$ bis $8 \cdot 10^{-6}$ mbar. Die Vakuumpumpen sind am unteren Flansch angebracht.

Am vorderen Flansch (siehe Abb. 3.4(a)) in Elektronenflugrichtung ist die Elektronenquelle angebracht. Der Laserstrahl wird zunächst durch eine Linse (L1) mit einer Brennweite von 50 cm gelenkt. Anschließend folgt ein Strahlteiler (BS) der Firma Femtolasers, der 5 % der Pulsenergie auskoppelt und auf eine Photodiode (PD) lenkt. Diese ist angeschlossen an ein Boxcar (Stanford Research SR 250) und dient der Überwachung der Laserpulsenergie. 95 % der Laserleistung werden von dem Strahlteiler transmittiert und über den Einkoppelspiegel (M1) auf die Photokathode der Elektronenquelle gelenkt. Der Strahlteiler führt dabei für den transmittierten Strahl minimale zusätzliche Dispersion ein.

Am linken Seitenflansch befindet sich das Druckmessgerät, sowie ein CF40DN Schauglas und ein CF40DN Port, der das Anbringen zusätzlicher Anschlüsse ermöglicht. Am rechten Flansch sind ein CF40DN Schauglas, ein CF40DN Port mit zwei



(b) Rückseite / Detektorport



(a) Vorderseite / Elektronenquelle

Abbildung 3.4.:

(a) Die Vorderseite der ULEB. Der Strahlengang ist zur besseren Orientierung rot eingezzeichnet. Zu erkennen sind die Linse ($L_1, f = 500 \text{ mm}$) zur Fokussierung des fs-Laserpulses, die Hochspannungsdurchführung (HV, eine eingeschraubte Ziindkerze) und das Schauglas zur Einkopplung des Lasers (LP). Zusätzlich sind zwei Blenden (B) zur Strahljustage und der Einkoppelspiegel (M_1) markiert. Zur Energiemessung während der Experimente ist ein Strahlteiler (BS) im Strahlengang eingebaut. Dieser reflektiert 5 % der Pulsennergie auf eine Photodiode (PD), die über ein Boxcar zur Pulsennergieüberwachung eingesetzt wird. Am rechten Seitenflansch sind die Gasdurchführung zur Belüftung (N2) mit Stickstoff und die BNC Durchführung (BC) zu sehen. (b) Die Rückseite der ULEB. Dieser Flansch dient der Detektion der Beugungsbilder und zur Einkopplung des Lasers für zeitaufgelöste Experimente. Der Laser wird über zwei Spiegel (M_2, M_3) durch ein Blende (B) und eine Fokussierungslinse ($L_2, f = 400 \text{ mm}$) auf einen für 750 nm - 800 nm Wellenlänge hochreflektiven Spiegel (HR) gelenkt. Dieser lenkt den Laser durch einen freien Bereich des Szintillatorschirms (SZ) auf die Probe in der ULEB. Die Phosphoreszenz des Szintillators wird durch diesen Spiegel und einen BG 40 Glasfilter (BG) von einer CCD Kamera (CCD) detektiert.

Gasdurchführungen (eine wird für die Belüftung mit Stickstoff verwendet (N2)) und ein CF40DN Port mit zwei BNC Durchführungen (BC) angebracht.

Am rückseitigen Flansch (siehe Abb. 3.4(b)) ist der Szintillatorschirm zur ortsaufgelösten Detektion des Elektronenbeugungssignals angebracht. Die Detektion bestehend aus Szintillator (SZ), Glasfilter (BG) und CCD Kamera (CCD) wird weiter unten beschrieben. Neben der Detektion dient dieser Flansch auch der Einkopplung des Lasers zur Durchführung zeitaufgelöster Experimente. Der Strahlengang ist schematisch in 3.4(b) eingezeichnet. Über ein Periskop (mit den Spiegeln M2, M3) wird der Laser durch eine Blende (B) und eine Fokussierungslinse (L2, $f = 40$ cm) auf einen dielektrischen Spiegel (HR) geleitet. Dieser koppelt den Laser durch einen freien Bereich im Szintillator in die ULEB ein.

Der dielektrische Spiegel wurde so gewählt, dass er für die Fundamentalwellenlänge des fs Lasers hochreflektiv ist. Die Phosphoreszenzwellenlänge des Szintillators (400 nm) transmittiert der Spiegel, so dass eine Detektion durch den Spiegel hindurch möglich ist.

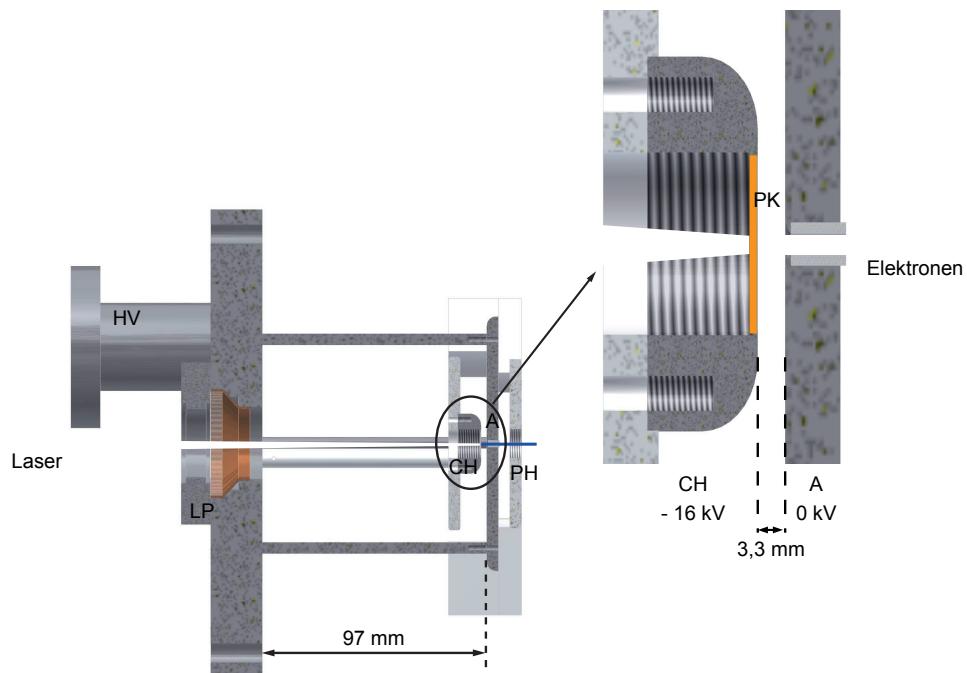
Elektronenquelle

Der Aufbau der Elektronenkanone orientiert sich am in [62] vorgestellten Aufbau, jedoch wurde vakuumtaugliches Teflon⁹ anstelle von Marcor für die isolierenden Teile verwendet. Der Aufbau ist in Abb. 3.5 gezeigt. Die Kathode wird in einen abgerundeten Metallhalter (CH) eingeschraubt. Dieser sitzt auf einer Teflonscheibe, um die Kathode gegen die Anlage zu isolieren. Die Hochspannung wird über den Metallhalter auf die Kathode gegeben. Die Anlage ist geerdet. Als Hochspannungsdurchführung wird eine Zündkerze (Champion FI21501) verwendet, die in einen CF40DN Flansch (HV) eingeschraubt wird. Die Anode (A) besteht aus einer Metallscheibe, die durch Metallstangen mit der Anlage verbunden und somit geerdet ist. In der Anode befindet sich zentral eine 2 mm Bohrung in die ein TEM Gitter mit einer Transmission von 50 % eingesetzt ist¹⁰. Das Gitter dient dazu, ein möglichst gleichförmiges elektrisches Feld sicherzustellen und den Durchgriff des Beschleunigungsfeldes in den feldfreien Raum zu minimieren. Der Abstand von Kathode zu Anode beträgt 3,3 mm. Ohne Durchschlag lassen sich so Beschleunigungsspannungen bis zu 16 kV anlegen.

Der Abstand Fokussierungslinse L1 (vgl. Abb. 3.4(a)) zur Photokathode ist 48,7 cm \pm 0,4 cm. Dies ist deutlich kleiner als die Brennweite der Linse L1 (50 cm). Daher kann der Laserstrahldurchmesser auf der Kathode durch Vermessung des Laserstrahls vor L1 bestimmt werden. Mittels eines CCD Sensors wurde das in Abb. 3.6(a) gezeigte Strahlprofil, während der jeweiligen Experimentvorbereitung gemessen¹¹. Dies war während der, im Folgenden durchgeföhrten, Experimente

⁹ ... welches in der Werkstatt der Universität zur Verfügung stand

¹⁰ ... Stegbreite 25 μm , Lochgröße 60 μm

**Abbildung 3.5.:**

Schema der Elektronenquelle. Vergrößert dargestellt ist der Beschleunigungsbereich mit Photokathodenhalter (CH) und Anode (A). Der Anregungslaser ist in Rot eingezzeichnet. Der Laser wird durch den Laserport (LP) eingekoppelt und trifft auf die Photokathode (PK, orange). Dort werden die Elektronen (blau) ausgelöst und in Richtung Anode beschleunigt. Durch ein Loch ($\varnothing 2 \text{ mm}$) in der Anode erreichen die Elektronen den anschließenden Driftbereich und treffen auf die im Probenhalter (PH) eingebaute Probe. Der Abstand zwischen Photokathode und Anode ist 3,3 mm. Typische Beschleunigungsspannungen an der Photokathode sind -16 kV. Die Spannung wird durch einen CF40DN Flansch (HV) zur Photokathode durchgeführt.

an unterschiedlichen Tagen im Rahmen des Messfehlers konstant. Es handelt sich um ein elliptisches Profil. Die Hauptachse hat eine Länge von 11,7 mm und die Nebenachse von 8 mm. Der Messfehler beträgt 5 %. Für die Radien der Ellipse auf der Kathode r_k ergibt sich mit (siehe Abb. 3.6(b))

$$r_k = r_l \left(1 - \frac{m}{f} \right) \quad (3.1)$$

für die lange Halbachse ein Wert von 0,16 mm. Die kurze Halbachse hat auf

¹¹... mit Webcam

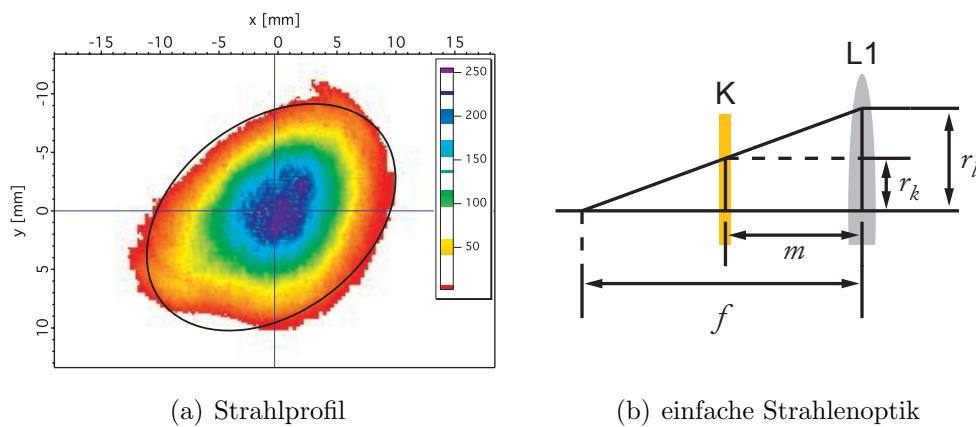


Abbildung 3.6.:

(a) Mit einer Webcam direkt vor L1 (vgl. Abb. 3.4(a)) mit Papier als Abschwächer aufgenommenes Strahlprofil in Falschfarbendarstellung. **(b)** Schematischer Strahlengang zur Berechnung der Spotgröße auf der Photokathode. (L1 = Fokussierungslinse, K = Photokathode, r_l = Strahlradius auf der Linse, r_k = Strahlradius auf der Photokathode, f = Brennweite von L1 = 50 cm, m = Abstand von L1 bis zur Photokathode = 48,7 cm)

der Kathode eine Länge von 0,11 mm. Es ist zu beachten, dass das komplette Strahlprofil verwendet wurde, und nicht die FWHM.

In der Schemazeichnung in 3.5 ist zusätzlich noch ein Teflonhalter für die Befestigung eines Probenhalters/Faradaycups eingezeichnet. Der Teflonhalter wird durch drei Teflonklötzte an der Metallanode fixiert. Die Teflonklötzte dienen dabei gleichzeitig zur Zentrierung der gesamten Elektronenkanone in der Anlage. Der Gesamtabstand Kathode - Probe/Faradaycup ist in dieser Konfiguration 12 mm.

Als Photokathode wurde nach den in 3.3 beschriebenen Untersuchungen ein 150 μm dickes BK7 Substrat mit 12 mm Durchmesser verwendet. Auf dieses wurde eine 2 nm Zwischenschicht aus Nickel/Chrom und die eigentliche 12 nm dicke Photokathodenschicht aus Silber aufgesputtert (siehe Abb. 3.11(b)). Die Photokathoden wurden von T. Weis in der Arbeitsgruppe Ehresmann hergestellt.

Probenbereich

Der Probenhalter ist nicht beweglich ausgeführt, da in den durchgeführten Experimenten lediglich zerstörungsfreie Prozesse untersucht wurden und so keine Repositionierung der Probe während des Experiments notwendig ist. Für die Experimente wurden die Proben in dem in Abb. 3.7 gezeigten Probenhalter befestigt. Dieser wurde in den bereits oben beschriebenen Teflonhalter eingeschraubt. In Abb.

**Abbildung 3.7.:**

Probenhalter und Faraday Cup für den Teflonhalter. Beide sind mit einem Anschluss zur Ableitung der absorbierten Elektronen versehen. Dies dient zur Vermeidung von Raumladungseffekten, sowie zur Messung des Elektronenstroms.

3.7 ist zudem der verwendete Faraday-Cup gezeigt, der anstelle des Probenhalters montiert werden kann.

Detektion

Zur Detektion wird ein Szintillator mit einer P47 Phosphorbeschichtung von Plano verwendet. Der verwendete Phosphor emittiert Licht mit einer Wellenlänge um 400 nm und hat eine Konversionseffizienz von ca. 150 Photonen pro 10 keV [77]. Die Konversionseffizienz von Szintillatoren skaliert dabei linear mit der kinetischen Energie der auftreffenden Elektronen. Die Phosphoreszenz des Szintillators wird von einer Lumenera Kamera mit einem CCD Sensor mit 1392 x 1040 Pixeln aufgenommen, die bei 400 nm ca. 50 % ihrer maximalen Sensitivität erreicht [78]. Durch Multiplikation von Konversionseffizienz, Elektronenenergie und relativer Kamerasensitivität ergibt sich eine Abschätzung für die pro Puls detektierte Photonenanzahl. Für eine Beschleunigungsspannung von 15 kV sind dies 113 Photonen, während bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV 225 Photonen pro Puls erzeugt würden.

Um die, durch die Anlage transmittierte, fs-Laserstrahlung zu filtern, ist zwischen Szintillator und CCD Kamera ein Schott Glasfilter BG40 eingebaut. Die Datenerfassung erfolgt über *LabView*, bzw. das Lumenera Steuerungsprogramm

Lucam.

Zur Verbesserung der Detektionseffizienz wird in der zweiten Entwicklungsstufe ein MCP in Kombination mit einem Szintillationsschirm P43 und der CCD Kamera eingesetzt werden. Durch die Verwendung des MCP in Chevron Konfiguration wird eine Vervielfachung der detektierten Elektronen um einen Faktor 10^6 erreicht [77]. Der veränderte Szintillator hat zudem eine Konversionseffizienz von 350 Elektronen pro 10 keV [77] und wird mit einer Hochspannung von 3 kV zwischen MCP und Szintillator betrieben. Des weiteren ist die Emissionswellenlänge des Szintillators besser an die CCD Kamera angepasst, so dass diese bei ihrer maximalen Sensitivität bei 550 nm betrieben wird [78]. Dies ergibt, analog zur Betrachtung des vorhandenen Aufbaus oben, unter Berücksichtigung der MCP-Verstärkung für 15 kV und 30 kV ca. $100 \cdot 10^6$ Photonen pro Puls. Gegenüber der aktuellen Konfiguration wird also eine Verbesserung um 5-6 Größenordnungen erreicht, so dass die vorhandene Kamera eine ausreichende Sensitivität bietet. Bei den zu erwartenden Photonenanzahlen von 100 pro Pixel bei gleichmäßiger Verteilung über die Detektorfläche besitzen CCD- und intensivierte CCD-Kameras vergleichbare Signal/Rausch-Verhältnisse. Bei höheren Photonenanzahlen ist die CCD besser [79].

3.3. Elektronenerzeugung

In diesem Abschnitt wird der Elektronenerzeugungsprozess innerhalb der ULEB untersucht. Hierzu wird in Abschnitt 3.3.1 ein Modell zur Beschreibung des Photoemissionsprozesses vorgestellt. In Abschnitt 3.3.2 wird dann das, durch das Modell, vorhergesagte Emissionsverhalten in Abhängigkeit unterschiedlicher Laserpulsformen beschrieben. Der verwendete experimentelle Aufbau wird in 3.3.3 vorgestellt. In Abschnitt 3.3.4 werden Experimente zur Quanteneffizienz unterschiedlicher Kathodenmaterialien vorgestellt. Abschnitt 3.3.5 widmet sich der Fluenzabhängigkeit der Elektronenausbeute. Als erstes einfaches Beispiel für den Einsatz geformter Pulse wird in Abschnitt 3.3.6 ein Experiment zur Doppelpulsanregung beschrieben. Experimente zur spektralen Phasenformung werden dann in Abschnitt 3.3.7 gezeigt. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen werden in Abschnitt 3.3.8 zusammengefasst.

3.3.1. Modell zur Beschreibung der Photoemission auf fs-Zeitskalen

In diesem Abschnitt wird ein Modell vorgestellt, welches die Photoemission von dünnen Metallschichten, wie sie in der ULEB als Photokathode verwendet werden, beschreibt. Die in diesem Abschnitt verwendeten Symbole sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst. Um einen Vergleich mit Experimenten zu ermöglichen, muss dieses Modell die pro Puls emittierte Ladung q beschreiben. Die Ladung ergibt sich aus der zeitlichen und räumlichen Integration über die Elektronenstromdichte $\mathcal{J}(t)$:

$$q = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \mathcal{J}(t) dt dr \quad (3.2)$$

Diese Elektronenstromdichte $\mathcal{J}(t)$ lässt sich durch eine Elektronenstromdichte $J(t)$ und einen modifizierenden Term beschreiben, der Raumladungseffekte in der Nähe der Photokathodenoberfläche berücksichtigt [80]:

$$\mathcal{J}(t) = J(t) \cdot \exp \left[-\frac{\Xi \alpha \frac{Q(t) q_e}{R_f}}{kT_e} \right] \quad (3.3)$$

Ξ ist hier im Vergleich zu [80] hinzugefügt worden, um der Verminderung des Raumladungseffektes durch die verwendete Beschleunigungsspannung Rechnung zu tragen. Die Verminderung der Austrittsarbeit durch die Beschleunigungsspannung kann im folgenden vernachlässigt werden (siehe Abschnitt B.1). Die Elektronen-

stromdichte $J(t)$ setzt sich wiederum aus Einzelstromdichten $J_n(t)$ zusammen.

$$J(t) = \sum_{n=0}^{\infty} J_n(t) \quad (3.4)$$

Diese Form der Zusammensetzung der Stromdichte $J(t)$ ist eine in [81] vorgestellte Erweiterung der Fowler-DuBridge Theorie [82, 83]. Die Einzelströme beschreiben basierend auf der Richardson-Dushman Gleichung [84, 85] und der Fowlerfunktion $F(x)$ unterschiedliche Emissionsprozesse:

$$J_n(t) = a_n \left(\frac{q_e}{h\nu} \right)^n A (1 - R)^n I(t)^n T_e(t)^2 F \left(\frac{n h\nu - \varphi}{kT_e(t)} \right) \quad (3.5)$$

Die Fowlerfunktion und ihr Konvergenzverhalten werden in Anhang B diskutiert. Die a_n sind die effektiven n -Photonen Kopplungskonstanten und sind materialabhängig. Lediglich a_0 ist materialunabhängig und konstant Eins, da J_0 die klassische thermionische Emission beschreibt und sich auf die Richardson-Dushman Gleichung reduziert. J_1 modelliert den Emissionsprozess durch ein Photon, J_2 durch zwei Photonen, usw. Hierbei ist anzumerken, dass die Richardson-Konstante A in ihrer nicht modifizierten Form eingeht. Eine ausführliche Beschreibung zur Abhängigkeit der Richardson-Konstante von Beschleunigungsspannung, Reflektionskoeffizienten der Elektronen beim Austritt aus der Kathode und anderen Parametern findet sich in [86].

Die Temperatur T_e des Elektronengases während der Photoemission wird durch das in [87] vorgestellte Zwei-Temperaturmodell (2TM) beschrieben. Dieses Modell berücksichtigt, dass aufgrund der unterschiedlichen Wärmekapazitäten von Elektronengas C_e und Gitter C_l auf einer Femtosekundenzeitskala kein thermodynamisches Gleichgewicht herrscht und beschreibt demzufolge beide Temperaturen durch zwei gekoppelte Differentialgleichungen. Diese können vereinfacht werden, da die Wärmekapazität des Gitters als konstant angenommen werden kann und Diffusionsprozesse auf einer Femtosekundenzeitskala vernachlässigt werden können:

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = -g(T_e - T_l) + \alpha_\omega (1 - R) I(t) \quad (3.6a)$$

$$C_l \frac{\partial T_l}{\partial t} = g(T_e - T_l) \quad (3.6b)$$

Eine detailliertere Diskussion dieser Gleichungen findet sich in Anhang B.3. Die spezifische Wärmekapazität $C_e(T_e)$ des Elektronengases wird durch

$$C_e(T_e) = \frac{\pi^2}{2} R_g \frac{T_e}{T_f} \quad (3.7)$$

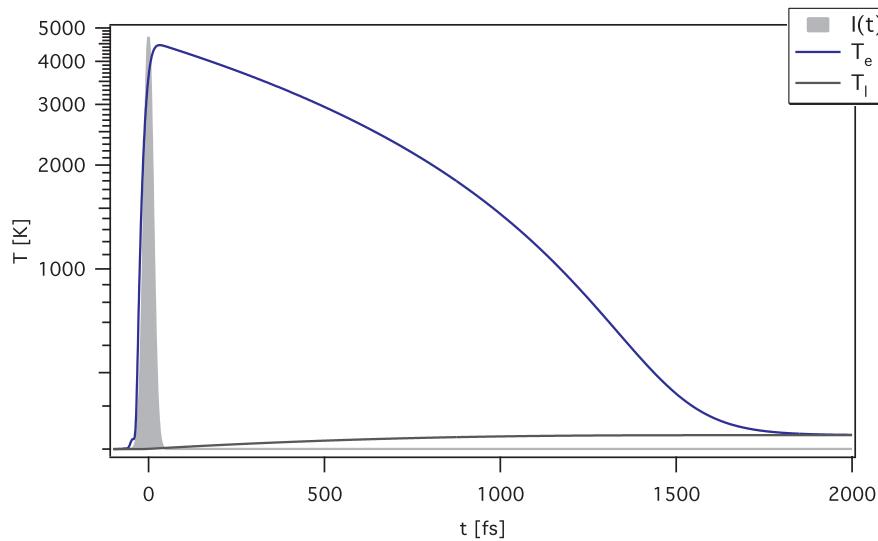
beschrieben [43]. Mit dem 2TM und (3.2) wurden die in den folgenden Abschnitten durchgeführten Modellrechnungen durchgeführt. Gleichung (3.6) und (3.5) zeigen, dass als Quellterm jeweils nur die Intensität des Lasers eingeht. Damit ist zu erwarten, dass sich auch alle Effekte, die durch den Einfluss unterschiedlicher Laserpulsformen zu beobachten sind, auf deren Intensitätsverlauf zurückführen lassen. Außerdem ist somit die maximale Elektronenausbeute für bandbreitebegrenzte Pulse zu erwarten.

In Abb. 3.8 ist ein typischer Temperaturverlauf für eine Intensität von ca. $3 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ für einen 30 fs Gaußpuls gezeigt. Verwendet wurden die für Parameter für Silber, wie sie in Tabelle 3.2 aufgeführt sind. Die Elektronentemperatur steigt sehr schnell auf einige 1000 K an (ca. 10 % T_f), während die Gittertemperatur nur langsam ansteigt. Nach 1700 fs befinden sich Elektronen und Gitter wieder in einem thermodynamischen Gleichgewicht. Die Gleichgewichtstemperatur ist um 10 % höher als die Anfangstemperatur von 300 K. Die Temperaturentwicklung ist vergleichbar mit den in [88] gezeigten Temperaturverläufen. Die Maximaltemperaturen, der verschiedenen Fälle in [88] werden um ca. 10 % überschätzt, wobei in [88] ein komplexeres Modell zur Berechnung des Temperaturverlaufs verwendet wird.

Die Werte der in die Simulation eingehenden Parameter sind in Tabelle 3.2 aufgeführt. Diese wurden aus [80, 88, 89] extrahiert, bzw. durch Anpassung an die experimentellen Ergebnisse in den Abschnitten 3.3.5, 3.3.6, 3.3.7 bestimmt. Für alle mit dieser Simulation durchgeführten Berechnungen wurden diese Parameter konstant gehalten. Lediglich Ξ wurde zwischen dem tabellierten Wert und 0 gewechselt, um die Raumladungseffekte ein, bzw. auszuschalten.

Symbol	Bedeutung
q	emittierte Ladung pro Laserpuls
$\mathcal{J}(t)$	zeitabhängige Elektronenstromdichte mit Raumladung
$J(t)$	zeitabhängige Elektronenstromdichte
Ξ	Verminderung der Raumladung durch Beschleunigungsspannung
α	Geometrieparameter
$Q(t)$	Bis zum Zeitpunkt t emittierte Ladung
q_e	Elementarladung
R_f	Radius des Lasers auf der Kathode
k	Boltzmann Konstante
$T_e(t) = T_e$	Elektronentemperatur
$J_0(t)$	zeitabhängige, thermionisch erzeugte Elektronenstromdichte
$J_n(t)$	zeitabhängige, photoelektrische Elektronenstromdichte ($n = 1, 2, 3, \dots$)
a_n	Kopplungskonstanten der Photoemission
h	Planksches Wirkungsquantum
ν	Photonenfrequenz
n	Nichtlinearitätsparameter
A	Richardsonkonstante
R	Reflektionskoeffizient
$I(t)$	zeitabhängige Intensität des Lasers
$F(x)$	Fowlerfunktion (siehe Abschnitt B.2)
φ	Austrittsarbeit des Metalls
C_e	spezifische Wärmekapazität der Elektronen
C_l	spezifische Wärmekapazität des Festkörpergitters
g	Kopplungsstärke zwischen Elektronen und Phononen
T_l	Temperatur des Festkörpergitters
α_ω	Absorptionskoeffizient des Kathodenmaterials
R_g	Gaskonstante
T_f	Fermitemperatur

Tabelle 3.1.: Symbole der verwendeten Gleichungen.

**Abbildung 3.8.:**

Zeitlicher Verlauf der Elektronen- und Gittertemperatur auf Basis des 2TM. Der anregende 30 fs Gaußpuls, mit einer Intensität von $3 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ist in grau hinterlegt.

Symbol	Wert	Symbol	Wert
Ξ	$5 \cdot 10^{-13}$	α	1,7 [80]
q_e	$1,602 \cdot 10^{-19} \text{ C}$ [90]	R_f	$75 \mu\text{m}$ 3.2.2
k	$1,380 \cdot 10^{-23} \text{ J/K}$ [90]	h	$6,626 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$ [90]
ν	$0,379 \text{ 1/fs}$ $\lambda = 790 \text{ nm}$	A	$120 \frac{\text{A}}{\text{cm}^2 \text{K}^2}$
R	0,89	φ	4,3 eV [91]
g	$2,3 \cdot 10^{12} \frac{\text{W}}{\text{cm}^3 \text{K}}$ [92]	α_ω	0,58
R_g	$8,314 \frac{\text{J}}{\text{mol K}}$ [90]	T_f	63825 K aus $E_f = 5,5 \text{ eV}$
a_0	1	a_1	0
a_2	10^{-17}	a_3	10^{-42}
a_4	10^{-62}		

Tabelle 3.2.: Werte für die in der Simulation verwendeten Konstanten

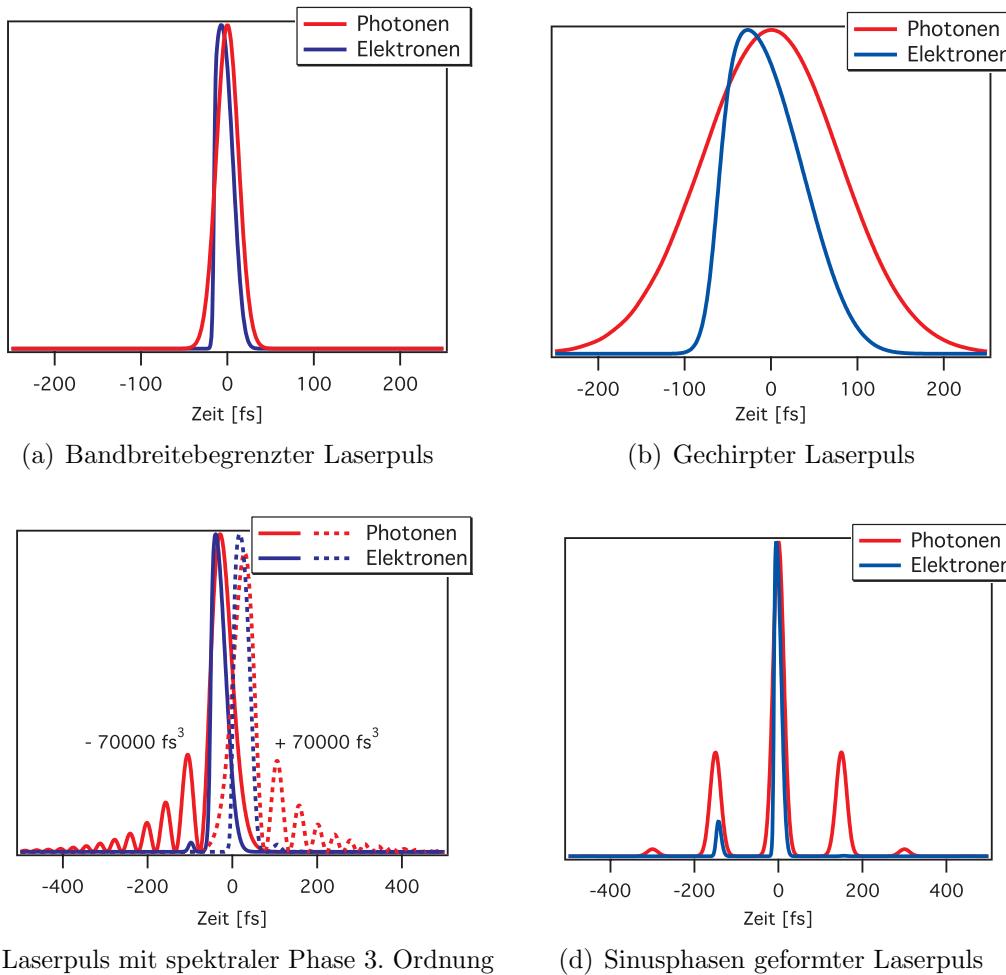
3.3.2. Zeitlicher Emissionsverlauf

In diesem Abschnitt wird der Einfluss der Pulsform des Anregungslasers auf den zeitlichen Verlauf der Photoemission mit Hilfe der Simulation diskutiert. In Abb. 3.9 sind die Ergebnisse der Simulation für unterschiedliche Laserpulsformen gezeigt. Der Intensitätsverlauf der anregenden Laserpulse und der Emissionsverlauf der Elektronen ist dort dargestellt. Die Kurven wurden jeweils auf ihr Maximum normiert.

Als Basis diente ein 30 fs Gaußpuls. Dieser ist in Abb. 3.9 (a) gezeigt. Der Elektronenpuls folgt in seinem Verlauf der Laserpulsform. Im Vergleich zu dem Gaußpuls ist jedoch die ansteigende Flanke deutlich steiler, als die abfallende Flanke des Elektronenpulses. Dies ist noch deutlicher in Abb. 3.9 (b) zu erkennen, in der die Situation für einen Gaußpuls mit einer zusätzlichen Phase nach (1.43) mit $\phi_2 = +2000$ fs dargestellt ist. Das gleiche Verhalten findet sich auch in den Hauptelektronenpulsen, die von Laserpulsen mit Taylorphasen dritter Ordnung (Abb. 3.9 (c)) und mit Sinusphasen (Abb. 3.9 (d)) erzeugt wurden. Zusätzlich ist die Unterdrückung späterer Pulsanteile zu erkennen, was besonders in Abb. 3.9 (d) deutlich ist. Dieser Effekt kann durch die aufgebaute Raumladung erklärt werden, die den Emissionsprozess behindert. Gleichzeitig wäre aufgrund der Raumladungseffekte zu erwarten, dass die abfallende Flanke der Elektronenpulse steiler ist, als die ansteigende Flanke. Dies ist jedoch nicht der Fall. Ein Vergleich mit dem Temperaturverlauf in Abb. 3.8 zeigt, dass der steile Anstieg der Elektronenemission mit dem Erreichen einer Mindesttemperatur korreliert werden kann¹². Ab der Mindesttemperatur wird die Emission durch einen Zwei-Photonen Prozess möglich, welche zu dem erkennbaren steilen Anstieg in der Elektronenausbeute führt. Diese Temperatur wird erst wieder weit nach dem Ende des Laserpulses unterschritten. Demzufolge unterstützt die Elektronentemperatur die Elektronenemission durch den fs-Laserpuls ab einer Mindesttemperatur, so dass es zu einem starken Anstieg in der Quanteneffizienz kommt. Gleichzeitig wird diese Mindesttemperatur für einen Zeitraum, der deutlich größer als die Pulsdauer ist nicht unterschritten und so ist die abfallende Flanke lediglich durch die Laserpulsform und die Raumladungseffekte bestimmt. Dies führt dazu, dass die abfallende Flanke in ihrer Form dem Intensitätsverlauf des Laserpulses gleicht, jedoch aufgrund der Raumladung bereits vor dem Laserpuls abfällt. Dies wird zusätzlich durch Betrachtung der Vorpulse in Abb. 3.9 (d) bestätigt. Hier ist die Mindesttemperatur noch nicht erreicht und der Emissionsverlauf des Vorpulses gleicht dem Verlauf der Laserintensität.

Thermionische Emission spielt hier offenbar keine Rolle, da bei thermionischer Emission ein Elektronenpuls zu erwarten wäre, der dem Temperaturverlauf aus Abb. 3.8 ähnelt.

¹²... in Abb. 3.8 z.B. $T_e \approx 1500 - 2500$ K

**Abbildung 3.9.:**

Normierter, zeitlicher Verlauf der Photoemission in Abhängigkeit von der Laserpulsform.
Anregungen mit einem

- bandbreitebegrenzten, gaußförmigen 30 fs-Laserpuls
- gechirpten Laserpuls (wie (a) mit Phasenformung nach (1.43) mit $\phi_2 = 2000 \text{ fs}^2$)
- Taylorphasen geformten Laserpuls (wie (a) mit Phasenformung nach (1.43) mit $\phi_3 = \pm 70000 \text{ fs}^3$)
- Sinusphasen geformten Laserpuls (wie (a) mit zusätzlicher Phase $\varphi_M(\omega) = 1 \sin(150 \text{ fs } \omega)$)

3.3.3. Experimenteller Aufbau

Vor den Untersuchungen an der ULEB wurden an der Röntgenquelle der zweiten Generation Voruntersuchungen mit unterschiedlichen Kathodenmaterialien durchgeführt. Hierbei wurden Dünnschichtkathoden in Transmissionsgeometrie verwendet. Als Kathodenmaterialien kamen Gold, Kupfer, Silber und Silber auf einer Zwischenschicht aus Nickel und Chrom zum Einsatz. Die Transmissionskathoden wurden bis auf die Goldkathoden alle in der Arbeitsgruppe Experimentalphysik IV an der Universität Kassel im Sputterverfahren hergestellt¹³. Die Goldkathoden wurden am LZH gefertigt. Als Substrate kamen jeweils 0,15 mm dicke und 12 mm durchmessende BK7 Standardsubstrate zum Einsatz.

Basierend auf den Ergebnissen aus Abschnitt 3.3.4 wurden in der ULEB nur noch die Silber/Nickel-Chrom Kathoden eingesetzt. An diesen wurden die Experimente zur Abhängigkeit der Elektronenausbeute von der Fluenz, dem Abstand zweier Pulse einer Doppelpulssequenz und der spektralen Phase durchgeführt. Auch die Experimente zur Optimierung der Elektronenausbeute wurden mit diesen Kathoden durchgeführt.

Für die Untersuchung der Fluenzabhängigkeit wurde die Fluenz des Lasers mittels eines reflektiven Abschwächers variiert. Zur Messung der Energie des Lasers wurde hierbei, wie auch in den anderen Experimenten an der ULEB, ein *Ophir Nova II* Leistungsmessgerät verwendet. Die Laserpulse wurden vor und nach dem Experiment mit einem GRENOUILLE von Swamp Optics charakterisiert. Vor dem GRENOUILLE wurde eine Glasscheibe mit der gleichen Stärke, wie das Schauglas am Laserport der ULEB, in den Strahlengang eingebracht. Dies sorgt für eine vergleichbare Dispersion im Strahlengang zum GRENOUILLE, wie im Strahlengang zur ULEB. Diese Charakterisierung der Laserpulse wurde auch bei den anderen Experimenten in dieser Form durchgeführt.

Die Experimente zur Doppelpulsanregung wurden durch einen Mach-Zehnder Interferometer realisiert (siehe Abb. 3.10(a)). Der Laserpuls wird durch einen Strahlteiler in zwei Replika aufgeteilt. Einer der beiden Pulse wird anschließend über einen Verschiebetisch geleitet, über den man die Verzögerung der beiden Pulse zueinander einstellen kann. Anschließend werden beide Pulsstrecken über einen Strahlteiler wieder zusammengeführt und in die ULEB eingekoppelt.

Die spektrale Phasenabhängigkeit wurde mittels des in [28] beschriebenen Pulsformers durchgeführt. Der schematische Strahlengang ist in Abb. 3.10(b) gezeigt. Der Pulsformer ist in der Lage durch Formung der spektralen Phase die Pulsform zu beeinflussen. In Abschnitt 1.2 ist die theoretische Beschreibung der Pulsformung zu finden. In den Experimenten wurden Taylorphasen bis zur fünften Ordnung

¹³Die Kupfer-, die Silber- und die 40 nm Silber auf 5 nm Nickel-Chrom Kathoden wurden von Lars Martin hergestellt, während die 12 nm Silber auf 2 nm NiCr Kathoden von Tanja Weis erstellt wurden.

untersucht. Außerdem wurde auch die Abhängigkeit von Amplitude, Frequenz und Phase einer spektralen Sinusphase untersucht.

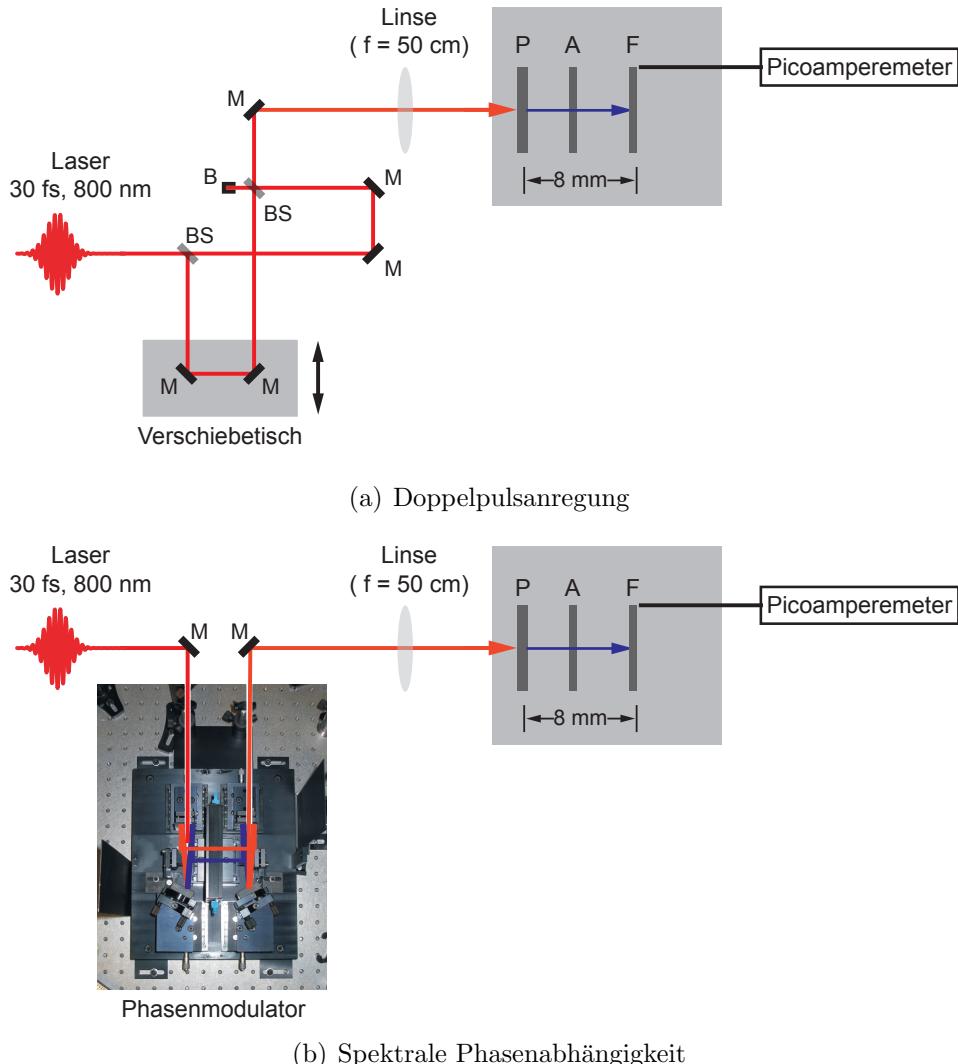


Abbildung 3.10.:

Schematische Aufbauten für die Messungen zur Elektronenausbeute. (Der Strahlenweg ist in beiden Fällen stark vereinfacht dargestellt, um die Übersichtlichkeit zu gewährleisten.) (M = Spiegel, BS = Strahlteiler, B = Strahlblocker, P = Photokathode, A = Anode, F = Faraday Cup) **(a)** Mach-Zehnder-Interferometer zur Doppelpulsanregung der Photoemission. **(b)** Pulsformeraufbau zur Untersuchung der Abhängigkeit der Elektronenausbeute von der spektralen Phasenfunktion des Anregungslasers.

Auch für die Optimierungen der Elektronenausbeute durch Formung der ultrakurzen Laserpulse wurde der Pulsformer [28] verwendet. Als Optimierungsalgorithmus kam der in Anhang C beschriebene evolutionäre Algorithmus zum Einsatz. Zur Einschränkung des Suchraums und besseren Interpretierbarkeit der Ergebnisphasen wurden die Phasenfunktionen auf Taylorphasen eingeschränkt. Die Taylorkoeffizienten bis zur fünften Ordnung wurden als Gene der Individuen ausgewählt. Dabei wurde der Wertebereich der nullten und ersten Ordnung auf 0 beschränkt, d.h. es wurden keine absolute und keine linearen Phasenanteile zur Optimierung verwendet. Diese haben keinen Einfluss auf die Elektronenausbeute, da sie nur die Phase der Einhüllenden zu den Schwingungen der Trägerfrequenz und die zeitliche Verzögerung des Pulses kontrollieren (vgl. Abschnitt 1.2)

Als Messsignal wurden je nach Elektronenquelle unterschiedliche Signale verwendet. Bei der Röntgenquelle der zweiten Generation wurde die emittierte Röntgendiffusionsstrahlung als Messgröße verwendet. In den Experimenten an der ULEB wurde anstelle einer zu untersuchenden Probe ein Faraday-Cup eingebracht, so dass hier der Elektronenstrom am Ort der Probe mittels eines Picoampermeters *Keithley 480* gemessen werden konnte.

3.3.4. Quanteneffizienz unterschiedlicher Kathodenmaterialien

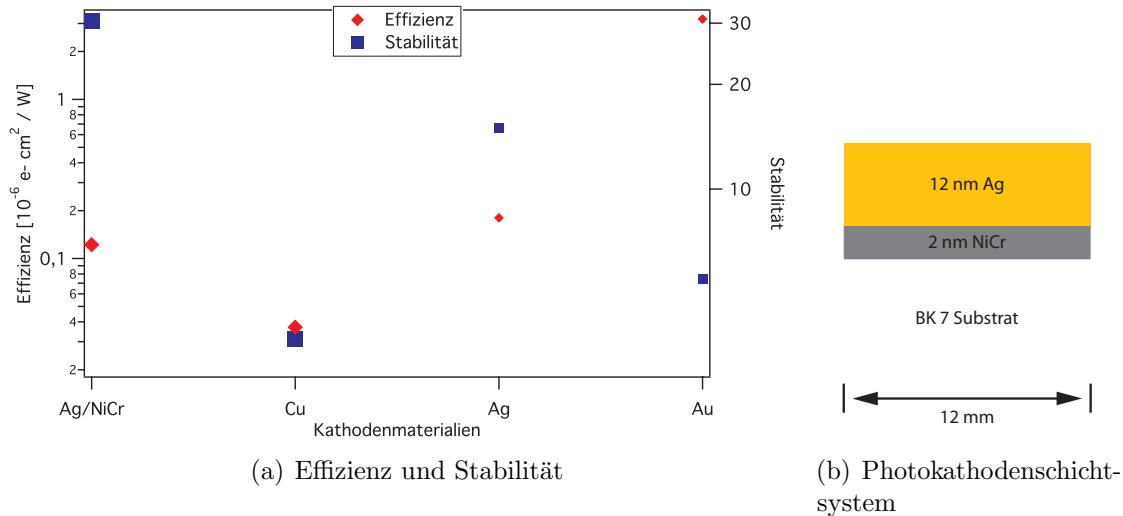


Abbildung 3.11.:

(a) Effizienz und Stabilität unterschiedlicher Kathodenkonfigurationen. Die Kathodenmaterialien sind auf der Abszisse aufgetragen. Die roten Rauten zeigen die Effizienz, die an der linken Achse aufgetragen ist. Die blauen Quadrate zeigen die Stabilität. Höhere Werte bedeuten eine größere Effizienz/Stabilität. Die kleinen Symbole stehen jeweils für eine Schichtdicke von 30 nm und die großen Symbole für eine Gesamtschichtdicke von 45. Bei der Ag/NiCr Kathode teilt sich diese Gesamtschichtdicke auf 40 nm Silber und 5 nm NiCr auf. (b) In der ULEB verwendetes Photokathodenschichtsystem. Auf einem 12 mm durchmessendem BK7 Substrat wird eine 2 nm NiCr-Schicht aufgesputtert, auf der die eigentliche 12 nm dicke Photoemissionsschicht aus Silber aufgesputtert wird.

In diesem Abschnitt werden Untersuchungen der unterschiedlichen Kathoden in der Röntgenquelle der zweiten Generation beschrieben. Als Laser kamen ein Spectra Physics Spitfire Lasersystem mit einer Zentralwellenlänge von 780 nm, einer Repetitionsrate von 1 kHz, einer maximalen Pulsennergie von 1 mJ und einer Pulsdauer von 120 fs, sowie ein Coherent RegA 9000 Lasersystem mit einer Zentralwellenlänge von 780 nm, einer Repetitionsrate von 250 kHz einer maximalen Pulsennergie von 4 μ J und einer Pulsdauer von 160 fs zum Einsatz.

Als Photokathoden wurden Kupfer-, Gold-, Silber- und Silber/Nickel-Chrom Kathoden verwendet. Hierbei handelt es sich um einfach zu handhabende Materialien, die als Photokathoden weit verbreitet sind [91]. Die Austrittsarbeiten der verschiedenen Materialien sind 4,3 eV für Silber[91], Kupfer[91] und Gold[91], sowie 4,4 eV für Nickel [91] und Chrom[93]. Dementsprechend ist für den photoelektrischen Prozess eine entsprechende Anregungsenergie erforderlich.

schen Anteil der Photoemission ein Drei-Photonen Prozessprozess zu erwarten¹⁴. Die Beschleunigungsspannungen waren mit 20 kV für die Messungen an Silber und Kupfer, sowie 22,5 kV für die Gold- und Silber/Nickel-Chrommessungen vergleichbar. Als Schichtdicken wurden 30 nm für Silber- und Goldkathoden, sowie 45 nm für Kupfer- und Ag/NiCr Kathoden verwendet.

Aufgrund der Verwendung unterschiedlicher Schichtdicken ist es möglich, neben der Materialabhängigkeit der Elektronenausbeute und Stabilität, die Schichtdickenabhängigkeit von Elektronenausbeute und Stabilität zu untersuchen.

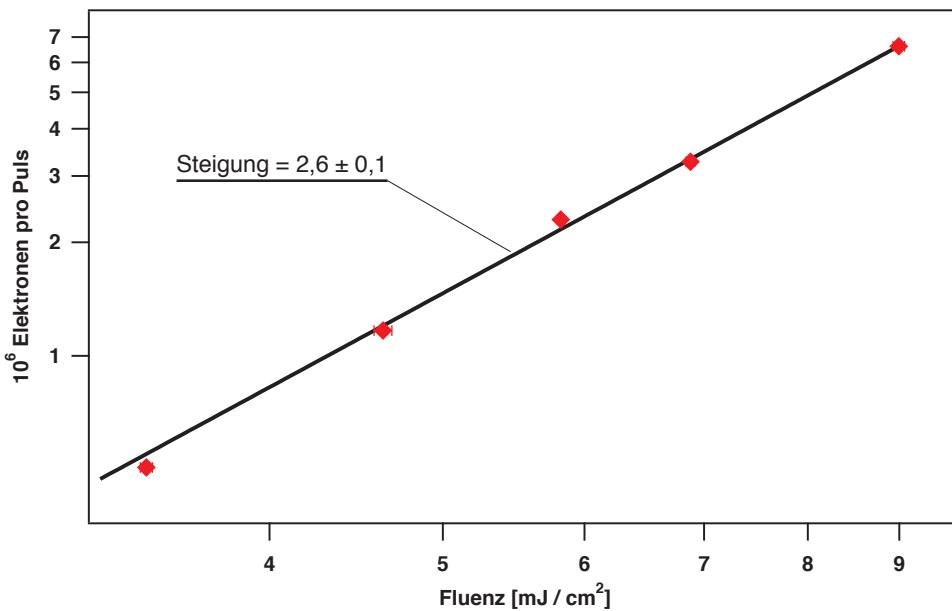
In Abb. 3.11 sind die Ergebnisse der durchgeführten Versuche dargestellt. Als rote Rauten sind die Effizienzen dargestellt, die sich aus der mittleren Elektronenzahl pro Puls pro W/cm² ergeben. Die blauen Quadrate zeigen die Stabilität der einzelnen Kathoden. Hierzu wurde die Elektronenausbeute bei konstanter Laserintensität eine Stunde lang einmal pro Sekunde gemessen. Für jede Kathode wurde die Standardabweichung dieser Messwerte bestimmt. Der Kehrwert dieser Standardabweichung bezogen auf die mittlere Elektronenausbeute wird als Maß für die Stabilität verwendet. Demzufolge entspricht eine Stabilität von 30 einer Standardabweichung von 3 % um die mittlere Elektronenausbeute. Auf der Abszisse sind die verschiedenen Kathodenmaterialien aufgetragen. Die Schichtdicke ist durch die Symbolgröße gekennzeichnet. Große Symbole stehen für 45 nm, kleine für 30 nm Gesamtschichtdicke.

Die Schichtdickenabhängigkeit kann bei Betrachtung der Quanteneffizienz vernachlässigt werden, da die Effizienz von 30 nm Silber und der dickeren 40 nm Silberschicht auf 5 nm Nickel-Chrom fast gleich ist. Die für infrarote Laserpulse zu erwartende höhere Effizienz der dünneren Schicht [94] wird in diesem Fall offenbar durch die leicht höhere Abzugsspannung an der dicken Silberschicht ausgeglichen. Die mit Abstand größte Effizienz zeigen die Goldkathoden.

Bei den Stabilitätsuntersuchungen zeigt sich die Ag/NiCr Kathode als am stabilsten. Auch hier kann die Schichtdickenabhängigkeit vernachlässigt werden. Der Unterschied zwischen der Ag/NiCr und der reinen Silberschicht lässt sich nicht nur auf die größere Dicke zurückführen. Entscheidend ist hier die Zwischenschicht aus Nickel und Chrom, welche die mechanischen Spannungen zwischen der Silberschicht und dem BK7 Substrat offenbar signifikant reduziert.

Aufgrund dieser Ergebnisse und der einfachen Verfügbarkeit wurde für die ULEB das Ag/NiCr Schichtsystem als Kathodenschicht ausgewählt. Außerdem wurde aufgrund der Ergebnisse von Quan et al. [94] die Schichtdicke reduziert. Während Schichtdicken von 30 - 40 nm für UV Laserpulse optimale Quanteneffizienzen erzielen, sind 10 - 20 nm Schichtdicken für die Anregung mit 800 nm fs-Laserpulsen effizienter. Die in der ULEB eingesetzten Kathoden bestehen daher aus einer 12 nm Silberschicht auf einer 2 nm dicken NiCr Zwischenschicht auf BK7. Alle weiteren

¹⁴... Photonenergie bei 790 nm = 1,57 eV

**Abbildung 3.12.:**

Fluenzabhängigkeit der Elektronenausbeute von Ag/NiCr Kathoden in doppelt logarithmischer Darstellung. Die Steigung der angepassten Kurve ist 2,6.

Experimente wurden mit dieser Kathodenart durchgeführt.

3.3.5. Fluenzabhängigkeit der Elektronenausbeute

Die Fluenzabhängigkeit der Elektronenausbeute wird durch die Nichtlinearität des Photoemissionsprozesses bestimmt. Bei Anregung mit Photonen der Wellenlänge 800 nm ist für die eingesetzten Ag/NiCr Kathoden ein 3 Photonenprozess zu erwarten. Dies wurde durch Variation der Laserfluenz untersucht. Die Laserfluenz wurde dabei durch einen reflektiven Abschwächer eingestellt. Die Laserpulsdauer von 30 fs blieb konstant. Die Beschleunigungsspannung betrug 10,2 kV.

In Abb. 3.12 ist die gemessene Fluenzabhängigkeit dargestellt. In der Log-Log Darstellung ergibt sich eine Gerade mit einer Steigung von 2,6, die von der Simulation mit einer Steigung von 2,7 gut reproduziert wird. Bei einem direkten Drei-Photonen Prozess wäre eine Steigung von 3 zu erwarten gewesen. Jedoch ist die Beschreibung des Photoemissionsprozesses komplexer. Die Elektronenstromdichte der einzelnen Emissionsbeiträge (3.5) ist jeweils abhängig von I^n , T_e^2 und dem Parameter der Fowlerfunktion (B.2), welcher selbst wieder von der Elektronentemperatur T_e abhängt. Außerdem ist auch der Raumladungsanteil in (3.3) von der Elektronentemperatur abhängig. Die Temperatur T_e ist dabei wiederum

abhängig von der Laserintensität I (vgl. 2TM (3.6)). Bei konstanter Pulsdauer, wie im Experiment, übersetzen sich diese Intensitätsabhängigkeiten direkt in Fluenzabhängigkeiten. Zudem zeigt der Vergleich der erzeugten Elektronenanzahlen sogar, dass der Zwei-Photonen Emissionsprozess, den Hauptteil der Elektronen erzeugt. Das Verhältnis ist ca. 100:1 für den Zwei-Photonen Prozess gegenüber dem Drei-Photonen Prozess. Die thermionische Emission und Emission durch einen 4-Photonen Prozess erzeugen vernachlässigbare Elektronenanzahlen. Allerdings setzt der Zwei-Photonen Emissionsprozess, wie in Abschnitt 3.3.2 diskutiert, erst ab einer gewissen Mindesttemperatur ein. Nichtsdestotrotz ist er so dominant, dass es ausreicht diesen zur Erklärung der Fluenzabhängigkeit zu betrachten.

Um die aus (3.5) zu erwartende Nichtlinearität der Fluenzabhängigkeit zu bestimmen, ist es zunächst notwendig die Intensitätsabhängigkeit der Elektronentemperatur T_e zu bestimmen. Hierzu kann die maximale Elektronentemperatur in Abhängigkeit der Intensität simuliert werden (siehe Abb. B.2). Daraus ergibt sich für die Abhängigkeit der Elektronentemperatur von der eingestrahlten Laserintensität in etwa eine $T_e \propto I^{0,5}$ Abhängigkeit. Für die Fowlerfunktion lässt sich die Abhängigkeit von T_e im Bereich des Parameters der Fowlerfunktion von -3 bis -5 durch T_e^{-a} mit $a \approx 0,6$ annähern¹⁵. Der Raumladungsanteil aus (3.3) spielt bei der Spanne des betrachteten Intensitätsbereichs im Hinblick auf die Nichtlinearität des Prozesses keine Rolle und kann vernachlässigt werden. Damit ergibt sich aus (3.3) und (3.5) für die Abhängigkeit der Elektronenstromdichte von I unter Annahme eines Zwei-Photonen Emissionsprozesses:

$$\mathcal{J} \approx a_2 \left(\frac{q_e}{h\nu} \right)^2 A (1 - R)^2 I(t)^2 T_e(t)^2 F \left(\frac{2h\nu - \varphi}{kT_e(t)} \right) \cdot \exp \left[-\frac{\Xi \alpha \frac{Q(t)q_e}{R_f}}{kT_e} \right] \quad (3.8)$$

Unter Vernachlässigung der Raumladung und mit der angenäherten Temperaturabhängigkeit der Fowlerfunktion ergibt sich somit

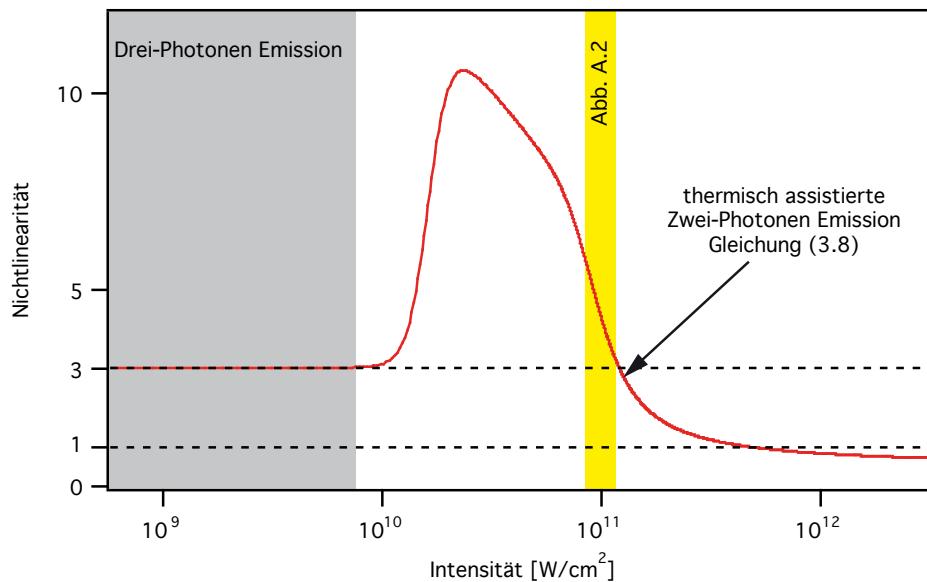
$$\mathcal{J} \propto I^2 T_e^2 T_e^{-a} \quad (3.9)$$

$$\propto I^{2+1} I^{-0,5a} \quad (3.10)$$

$$\propto I^{2,7} \quad (3.11)$$

Die Übereinstimmung mit der beobachteten Nichtlinearität zeigt, dass der Emissionsprozess auf einfache Weise durch den dominierenden Zwei-Photonen Emissionsprozess beschrieben werden kann. Beobachtungen eines solchen thermisch assistierten Photoemissionsprozesses, der zu einer Verringerung der zur Photoemission benötigten Photonenanzahl führt, wurden für Wolfram bereits in [17] gemacht. Für die folgenden Experimente kann somit die rein thermionische Emission vernachlässigt werden, so dass es sich trotz thermischer Unterstützung um

¹⁵... entsprechend $n = 2$ und $T_e \approx 3000$ K (vgl. (B.2))

**Abbildung 3.13.:**

Änderung der Nichtlinearität n des Photoemissionsprozesses in Abhängigkeit der Intensität ($\mathcal{J} \propto I^n$). Im grau hinterlegten Bereich werden die Elektronen durch einen Drei-Photonen Prozess emittiert, die Elektronentemperatur ist in diesem Bereich praktisch unverändert. Mit zunehmender Intensität steigt die Nichtlinearität des Emissionsprozesses stark an. Bei den in Abschnitt A durchgeführten Experimenten wurde der gelb hinterlegte Bereich abgedeckt. Die in diesem Abschnitt vorgestellte Messung zur Fluenzabhängigkeit ist mit einem Pfeil markiert.

einen direkten, photoelektrischen Emissionsprozess handelt. Die unterschiedlichen Intensitätsabhängigkeiten, die bei der Photoemission in Abhängigkeit der eingeschalteten Laserintensität auftreten können, sind in Abb. 3.13 gezeigt. Für niedrige Intensitäten ist eine I^3 Abhängigkeit zu erkennen, die in diesem Bereich aus der Drei-Photonen Emission herrührt. Mit ansteigender Intensität ist eine starke Variation der Nichtlinearität zu erkennen, die bis zu einem Wert von ca. 10 ansteigen kann. Die starke Variation der Abhängigkeit ist letzten Endes auf die Temperaturabhängigkeit der Stromdichte und der Fowlerfunktion zurückzuführen. Ein Teil der nach dem Maximum abfallenden Flanke wurde in Anhang A vermessen. Die hier vorgestellte Messung zur Fluenzabhängigkeit ist in Abb. 3.13 entsprechend gekennzeichnet. Bei noch höheren Intensitäten fällt die Nichtlinearität noch weiter bis zu einer linearen Intensitätsabhängigkeit ab.

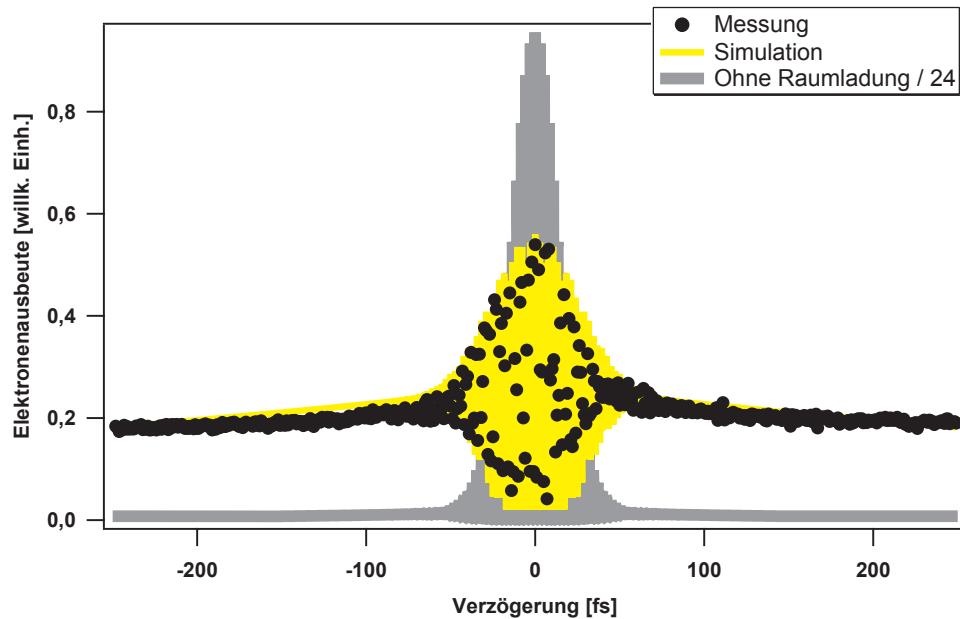


Abbildung 3.14.:

Elektronenausbeute in Abhängigkeit von der Verzögerung zweier anregender Laserpulse zueinander (schwarze Punkte). Gelb im Hintergrund das Ergebnis der Simulation (siehe Abschnitt 3.3.1) gezeigt. Als Vergleich ist die Simulation auch unter Vernachlässigung der Raumladung (dividiert durch 24, grau) gezeigt.

3.3.6. Doppelpulsanregung

Die einfachste Form der Laserpulsformung ist die Aufteilung eines einzelnen unmodulierten Pulses in zwei, oder mehrere Einzelpulse mittels eines Pump-Probe Aufbaus. Daher wird zunächst der Einfluss einer Doppelpulssequenz auf die Elektronenausbeute untersucht.

Die anregenden Doppelpulse wurden, wie in Abschnitt 3.3.3 beschrieben, durch einen Mach-Zehnder Aufbau erzeugt. Als Schrittweite zwischen den einzelnen Pulsverzögerungen wurde 1 fs gewählt, so dass eine interferometrische Autokorrelationsmessung möglich ist.

Das Ergebnis ist in Abb. 3.14 gezeigt. Zum Vergleich ist das Ergebnis der Simulation zur Elektronenerzeugung mit und ohne Raumladung¹⁶ dargestellt. Die Fluenz für die Simulation wurde entsprechend der Fluenz im Experiment gewählt. Alle weiteren in Tabelle 3.2 aufgeführten Parameter wurden konstant gehalten.

Die Übereinstimmung von Simulation mit Raumladung und Messung ist gut. Demzufolge wird der Photoemissionsprozess durch das einfache, in Abschnitt 3.3.1

¹⁶... Zur besseren Darstellung durch 24 geteilt.

vorgestellte, Modell gut beschrieben. Die Raumladungseffekte sind dabei offenbar für eine deutlich verminderte Dynamik der Signals verantwortlich.

3.3.7. Spektrale Phasenabhängigkeit

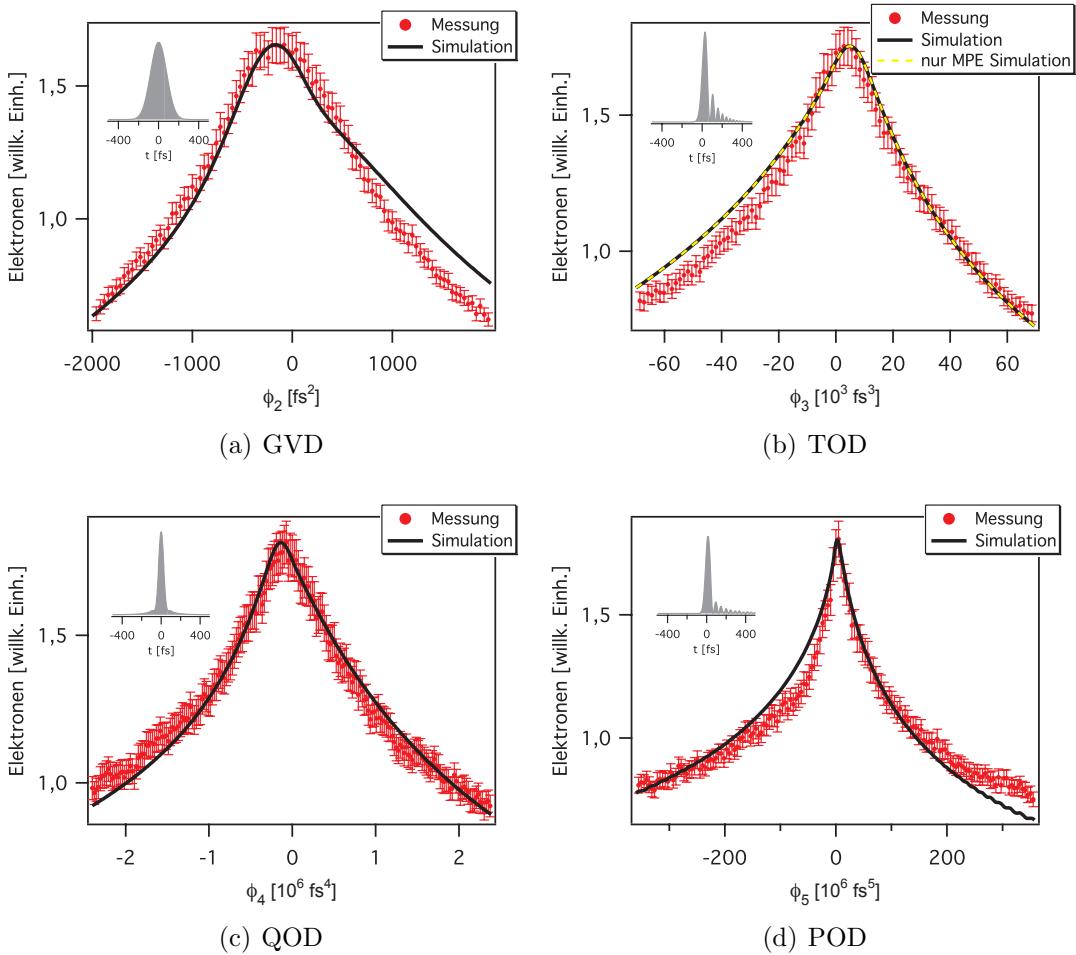
In diesem Teil werden Untersuchungen zur Abhängigkeit der Elektronenausbeute von der spektralen Phase vorgestellt. Zunächst werden die mit Taylorphasen erzielten Ergebnisse besprochen. Im Anschluss wird auf die Experimente mit spektralen Sinusphasen eingegangen. Mit der Besprechung von Experimenten zur Optimierung der Elektronenausbeute durch adaptive Phasenformung wird dieser Abschnitt beschlossen.

Taylorphasen

In Abschnitt 1.2.1 wurde die Beschreibung von Taylorphasen zur Modulation ultrakurzer Laserpulse eingeführt. Im folgenden wird die Abhängigkeit der Elektronenausbeute von den Parametern ϕ_n der Taylorphase untersucht. Hierzu werden die am Pulsformer angelegten spektralen Taylorphasen auf einzelne Terme reduziert. D.h. es wird jeweils nur ein Term in der Taylorreihe betrachtet. Der Parameter ϕ_n der entsprechenden Ordnung wird dann in einem Bereich symmetrisch um die 0 variiert und die Elektronenausbeute wird aufgenommen. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.15 gezeigt.

In Abb. 3.15 sind neben den Messungen auch die Ergebnisse der Simulation aus Abschnitt 3.3.1 eingetragen. Die simulierten Elektronenausbeuten reproduzieren das gemessene Verhalten in Abhängigkeit der spektralen Phase gut. Die Simulationen wurden mit den in Tabelle 3.2 aufgeführten Parametern durchgeführt. In Abb. 3.15(b) ist am Beispiel der Variation von ϕ_3 der Unterschied zwischen der Simulation mit thermionischer und Multiphotonen-Emission ($a_0 = 1$) und nur mit Multiphotonen-Emission ($a_0 = 0$) gezeigt. Offensichtlich ist der Einfluss der thermionischen Emission bei diesen Messungen vernachlässigbar, da sich beide Simulationskurven nicht signifikant voneinander unterscheiden. Es handelt sich also um einen in erster Linie direkten Photoemissionsprozess und thermionisch emittierte Elektronen deutlich nach der Laserpulsanregung sind vernachlässigbar. Demzufolge können die in 3.3.2 gezeigten Elektronenpulse als Anfangsbedingung für die Propagation der Elektronenpulse durch die ULEB angenommen werden (siehe Abschnitt 3.4).

Weiterhin zeigt jede der Messungen in Abb. 3.15 ein Maximum der Elektronenausbeute für den bandbreitebegrenzten Laserpuls. Da in das verwendete Modell als Quellterm lediglich der Intensitätsverlauf der anregenden Laserpulse eingeht und die Simulation die Messkurven gut reproduziert, bestätigt dies, dass der Emissionsprozess lediglich intensitätsabhängig ist. Aus den Variationen der Phase konnte

**Abbildung 3.15.:**

Abhängigkeit der Elektronenausbeute von unterschiedlichen Termen der Taylorreihe. Die Messwerte (rot) wurden durch die Simulation (schwarz) angepasst. Es wurden (a) ϕ_2 (GVD), (b) ϕ_3 (TOD), (c) ϕ_4 (QOD) und (d) ϕ_5 (POD) einzeln variiert. Alle anderen Terme der Taylorreihenrepräsentation der spektralen Phasen sind 0. In (b) wurde neben der vollen Simulation, zum Vergleich auch die Simulation unter Vernachlässigung der thermionischen Emission zur Anpassung verwendet (gelb, gestrichelt). Als Insets sind die jeweiligen Pulsformen für den minimalen angenommenen Wert der variierten Größe angedeutet.

zudem eine nicht kompensierte Restphase von $\phi_3 = -4000 \text{ fs}^3$ bestimmt werden, die bei den folgenden Untersuchungen mit Sinusphasenfunktionen und der Closed-Loop Optimierung berücksichtigt werden muss.

Sinusphasen

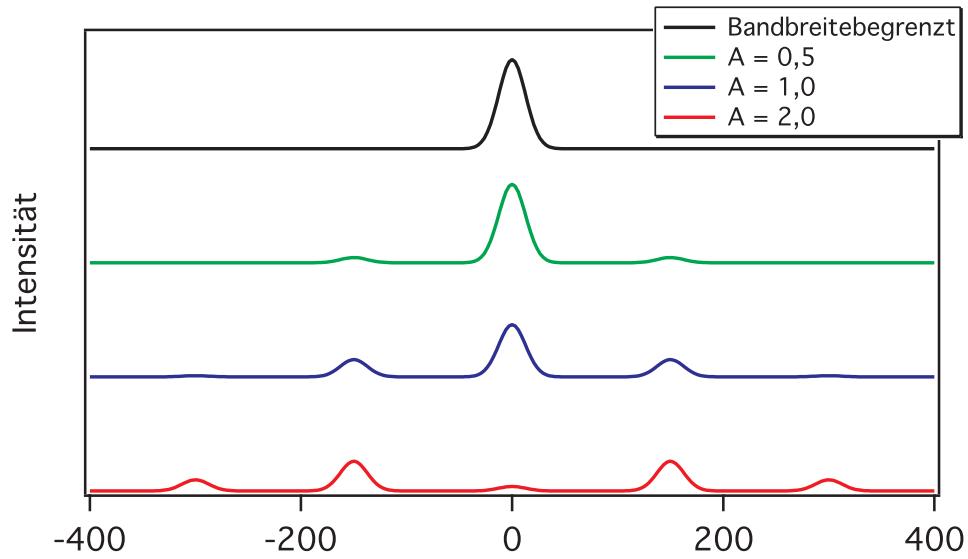
In 1.2.1 wurde die Beschreibung von Sinusphasen zur Modulation ultrakurzer Laserpulse eingeführt

$$\varphi_M(\omega) = A \sin(\Upsilon\omega + p_0) \quad (3.12)$$

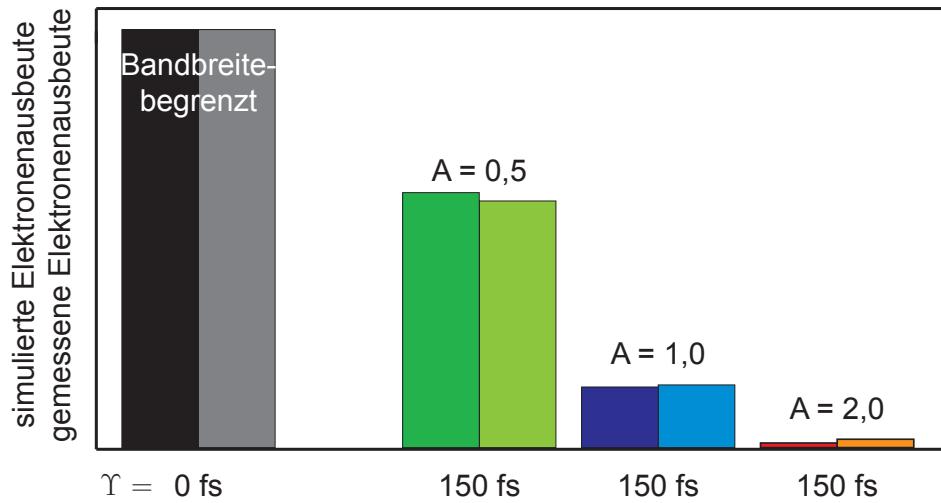
Über die Amplitude A , die absolute Phase p_0 und die spektrale Frequenz Υ kann auf die zeitliche Struktur der ultrakurzen Laserpulse Einfluss genommen werden [22]. Die Abhängigkeit der Elektronenausbeute wurde für jeden dieser drei Parameter untersucht und wird im folgenden besprochen.

Amplitudenabhängigkeit Wie in Abschnitt 1.2.1 beschrieben beeinflusst die Amplitude A bei einer spektralen Phasenfunktion der Form $\varphi_M(\omega) = A \sin(\Upsilon\omega + p_0)$ das Verhältnis der Peakhöhen der erzeugten Pulsreplika zueinander. In Abb. 3.16(a) sind die berechneten Intensitätsverläufe für Phasenfunktionen mit $A = 0,5, 1, 2$ bei $\Upsilon = 150$ fs gezeigt. Zusätzlich ist im Vergleich ein 30 fs Gaußpuls gezeigt, der als Eingangspuls für die spektrale Modulation diente. Die gewählte Kombination aus Υ und Eingangspulsdauer sorgt dafür, dass einzelnen Pulsreplika komplett getrennt sind (siehe Abb. 3.16(a)). Bei einem einfachen n -Photonen Emissionsprozess wäre eine Amplitudenabhängigkeit der Elektronenausbeute zu erwarten, die lediglich von der integrierten, nichtlinearen „Pulsfläche“ $S \propto \int I^n(t) dt$ abhängt. Wie in Abschnitt 3.3.1 diskutiert, handelt es sich jedoch um einen komplexeren Prozess, dessen Nichtlinearität sich im Laufe des Emissionsprozesses in Abhängigkeit der Temperatur des Elektronengases ändert. In Abb. 3.16(b) ist ein Vergleich zwischen Simulation und Messung der Elektronenausbeute für die in Abb. 3.16(a) gezeigten Laserpulse in Abhängigkeit der Amplitude der spektralen Sinusphase gezeigt. Die Verhältnisse im Vergleich zur Ausbeute bei einem bandbreitebegrenzten Gaußpuls stimmen gut überein. Jedoch ist zu erkennen, dass die Simulation gegenüber der Messung einen stärkeren Abfall der Elektronenausbeute zeigt. Dies resultiert aus der Form, wie die Raumladung in das vorgestellte Modell eingeht. Die Raumladung kann im Modell mit der Zeit nur zunehmen. Eine Abbau der Raumladung aufgrund der Bewegung der emittierten Elektronen wird nicht berücksichtigt. Dies führt dazu, dass die späteren Pulsreplika einen kleineren Beitrag liefern. Dies wird umso deutlicher je größer die späten Pulsreplika im Vergleich der Einzelpulse werden, wie es bei $A = 2$ der Fall ist.

In den folgenden Experimenten zur Abhängigkeit der Elektronenausbeute von Υ und p_0 in (3.12) wurde $A = 1$ gewählt.



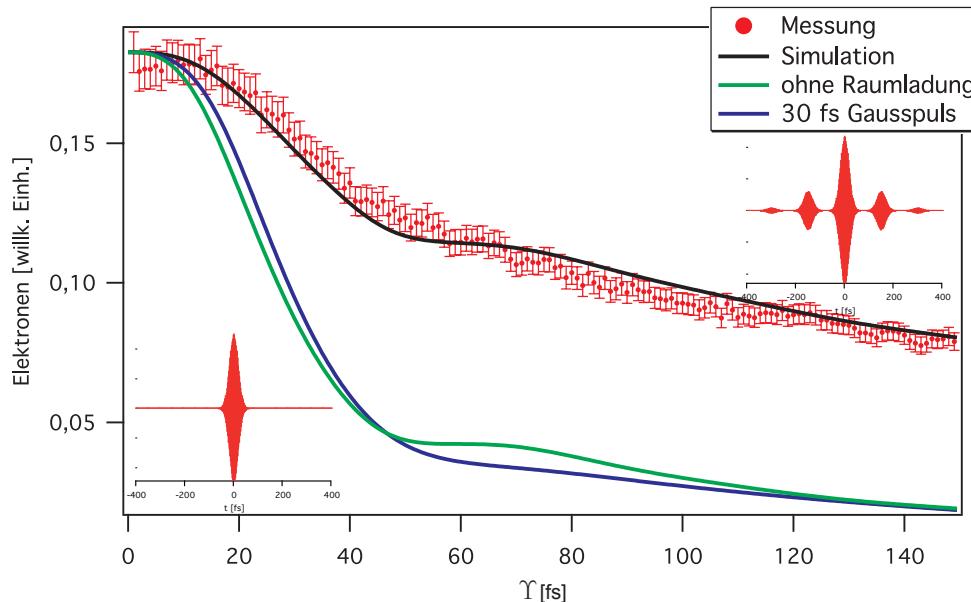
(a) Zeitliche Pulsformen



(b) Pulsflächen und Elektronenausbeuten

Abbildung 3.16.:

(a) Berechnete zeitliche Pulsformen in Abhängigkeit der Amplitude A der spektralen Sinusphase $\varphi_M(\omega) = A \sin(150 \text{ fs} \cdot \omega)$. Als Eingangspuls für die spektrale Phasenmodulation dient ein 30 fs Gaußpuls (schwarz). (b) Vergleich zwischen simulierter (dunkel) und gemessener (hell) Elektronenausbeute der in (a) gezeigten Pulse. Simulation und Messung sind jeweils auf die Werte für den bandbreitebegrenzten Gaußpuls normiert. Die Unterschätzung der Simulation für zunehmende Amplitude lässt sich durch die Vernachlässigung des Abbaus der Raumladung im betrachteten Zeitintervall erklären.

**Abbildung 3.17.:**

Abhängigkeit der Elektronenausbeute von der spektralen Frequenz Υ . Die Messwerte sind als rote Punkte eingezeichnet. Die Simulation wurde für einen bandbreitebegrenzten 30 fs Gaußpuls (blau) und einen aus dem Spektrum berechneten Laserpuls mit der experimentell bestimmten Restphase von $\phi_3 = -4000 \text{ fs}^3$ (grün) ohne Berücksichtigung der Raumladung durchgeführt. Für diesen zweiten Puls wurde die Simulation auch mit Raumladungseffekten (schwarz) berechnet. Die Übereinstimmung zwischen Messung und dieser Simulation ist sehr gut. Als Insets sind die elektrischen Felder des Anregungslasers bei $\Upsilon = 0 \text{ fs}$ und $\Upsilon = 150 \text{ fs}$ gezeigt.

Abhängigkeit von der spektralen Frequenz Die spektrale Frequenz Υ der modulierenden Sinusphase beeinflusst, wie in Abschnitt 1.2.1 beschrieben, den Abstand der erzeugten Pulsreplika zueinander. Mit zunehmender spektraler Frequenz sind die Pulsreplika immer stärker voneinander getrennt. Im Übergangsbereich von einem Einzelpuls zu echt getrennten Pulsen fällt die Elektronenausbeute von der einem Einzelpuls entsprechendem Ausbeute auf eine niedrigere Ausbeute bei getrennten Pulsen ab. In diesem Übergangsbereich ist die Messkurve, aufgrund von Interferenzen der Einzelpulse, sensitiv auf die Pulsform des Eingangspulses.

Zum Verständnis der gemessenen Abhängigkeit der Elektronenausbeute von der spektralen Frequenz werden unterschiedliche Eingangspulse in der Simulation zur Elektronenerzeugung verwendet. Diese werden dann mit den gemessenen Abhängigkeiten verglichen.

In Abb. 3.17 ist dies, anhand eines Vergleichs von einem bandbreitebegrenzten Gaußpuls von 30 fs Dauer mit einem, auf dem tatsächlichen Spektrum des einge-

setzten Lasers basierendem, Laserpuls mit der nicht kompensierten Restphase als Eingangspuls gezeigt. Bei diesem Vergleich wurden Raumladungseffekte noch nicht berücksichtigt. Ihr Einfluss zeigt sich im Vergleich mit der dritten simulierten Elektronenausbeute, bei der die Raumladungseffekte berücksichtigt wurden. Hierbei ist die, in Abschnitt 3.3.6 angesprochene, verminderte Dynamik deutlich zu erkennen.

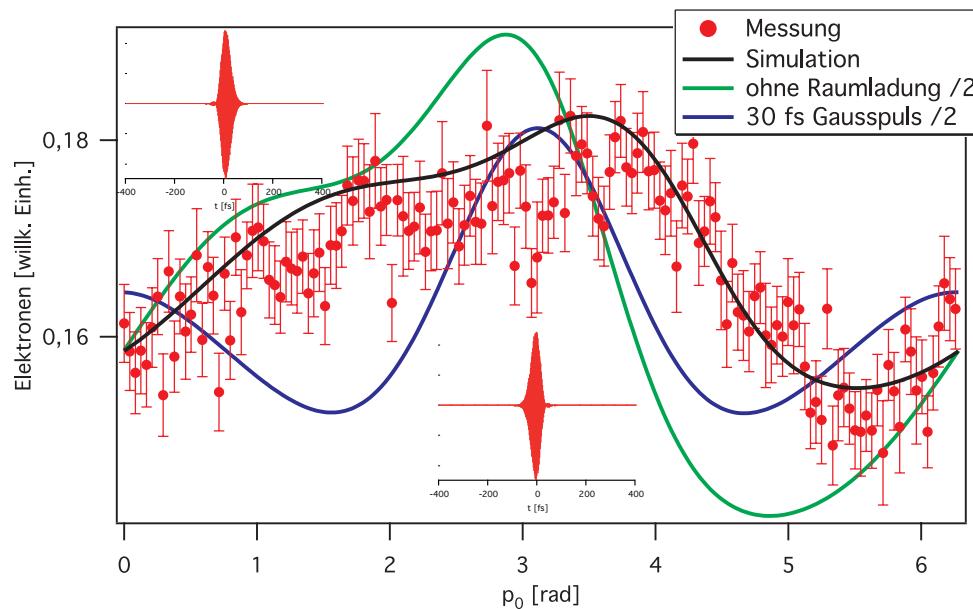
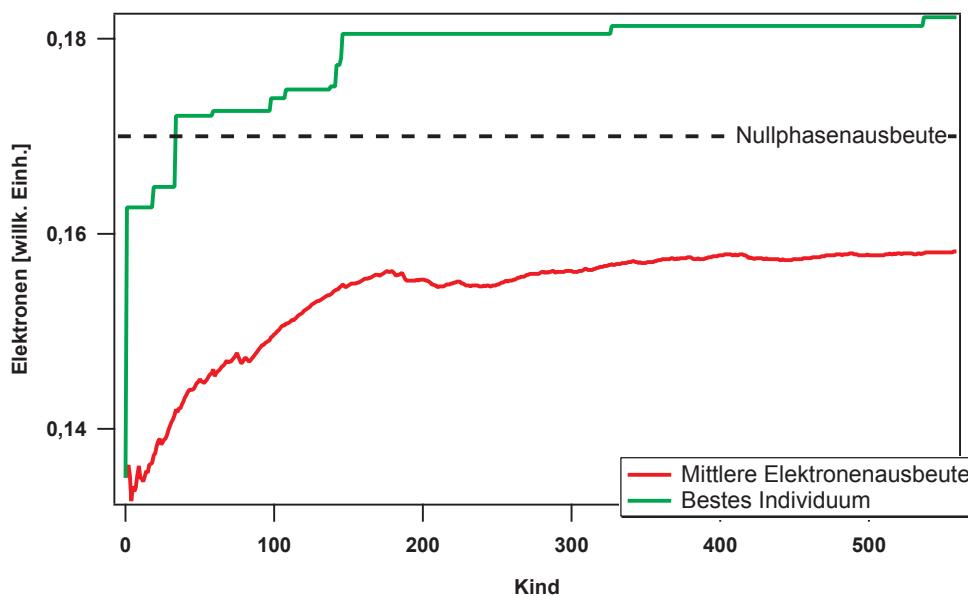


Abbildung 3.18.:

Abhängigkeit der Elektronenausbeute von der Phase p_0 der spektralen Sinusphase $\varphi_M(\omega) = 1 \sin(20 \text{ fs} \cdot \omega + p_0)$. Die Simulation (schwarze Linie) beschreibt die Messung (rote Punkte) gut. Die Simulationen ohne Berücksichtigung der Raumladungseffekte basieren auf einem bandbreitebegrenzten 30 fs Gaußpuls (blaue Linie) und einem aus dem Laserspektrum berechneten Laserpuls unter Berücksichtigung der nicht kompensierten Restphase $\phi_3 = -4000 \text{ fs}^3$. Beide Simulationen ohne Raumladungseffekte wurden halbiert, um im Graph einen ähnlichen Dynamikbereich abzudecken. Als Insets sind die elektrischen Felder des Anregungslasers bei $p_0 = 0$ und $p_0 = \pi$ gezeigt.

Abhängigkeit von der absoluten Phase Die absolute Phase p_0 der spektralen Sinusphasenfunktion beeinflusst die Phase der zeitlichen Pulstreplika zueinander (siehe Abschnitt 1.2.1). Ist Υ so gewählt, dass nicht mehr von einem Einzelpuls gesprochen werden kann und die Pulstreplika des Hauptpulses noch mit diesem überlappen, so ergibt sich, aufgrund der Interferenz der Pulstreplika mit dem Hauptpuls, eine von p_0 abhängige Elektronenausbeute.

**Abbildung 3.19.:**

Verlauf der Closed-Loop Optimierung der Elektronenausbeute. Die Elektronenausbeute für die Nullphase (ohne Kompensation der, durch optische Komponenten eingeführten, spektralen Phase) ist schwarz gestrichelt gekennzeichnet. Die rote Linie zeigt den Verlauf der mittleren Elektronenausbeute der Population, die grüne den der Elektronenausbeute des besten Individuums.

Für $\Upsilon = 20$ fs sind Messung und Simulation in Abb. 3.18 gezeigt. Die Abhängigkeit von p_0 ist gut erkennbar und wird durch die vollständige Simulation gut beschrieben. Der Unterschied zwischen der Abhängigkeit der Elektronenausbeute von p_0 bei einem bandbreitebegrenzten 30 fs Gaußpuls und einem auf dem tatsächlichen Laserspektrum basierenden Laserpuls mit der unkompenzierten Restphase demonstriert die Sensitivität dieser Messung in Bezug auf die Laserpulsform. Der um einen Faktor 2 größere Dynamikbereich, der Simulationen ohne Raumladungseffekte gegenüber der Simulation unter Berücksichtigung von Raumladung, verdeutlicht den starken Einfluss der Raumladung auf die Messung.

Closed-Loop Optimierungen

Zusätzlich zu den Messungen der Abhängigkeiten von einzelnen ϕ_n und Parametern der spektralen Sinusphase wurde mit dem in Anhang C beschriebenen Algorithmus eine Optimierung der Elektronenausbeute durchgeführt. Als zu optimierende Phasenfunktion wurde eine Taylorphase bis zur fünften Ordnung verwendet. Die

Populationsgröße für die Optimierung war 16.

In Abb. 3.19 ist das Ergebnis einer solchen Optimierung gezeigt. Zum Vergleich ist auch die Elektronenausbeute bei Nullphase gezeigt¹⁷. Die mittlere und die maximale Elektronenausbeute der Individuen in der Population beginnen bei einem Wert deutlich unter der Nullphasenausbeute. Beide steigen im Verlauf der Evolution an, wobei die mittlere Elektronenausbeute unterhalb der Nullphasenausbeute bleibt. Die Elektronenausbeute der besten Phasenfunktion ist jedoch bereits ab dem 34. Kind besser als die Nullphasenausbeute. Das Ergebnis der Optimierung ergibt eine Kompensationsphase, die die unabhängig bestimmte Restphase (siehe Abschnitt über Taylorphasen in 3.3.7) von $\phi_3 = -4000 \text{ fs}^3$ kompensiert. Demzufolge ergibt die Optimierung die maximale Elektronenausbeute für bandbreitebegrenzte Anregungspulse.

3.3.8. Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurde auf die Erzeugung der Elektronenpulse in der ULEB eingegangen. Hierzu wurde durch Vorexperimente an der Röntgenquelle der zweiten Generation untersucht, welches Kathodenmaterial in der ULEB zum Einsatz kommt. Als Kompromiss zwischen Quanteneffizienz und Stabilität wurde daraufhin ein Schichtsystem aus Silber auf Nickel-Chrom auf einem BK7 Substrat gewählt. Aufgrund der Ergebnisse von [94] wurden die Schichtdicken mit 12 nm für Silber und 2 nm für die NiCr-Zwischenschicht verwendet (siehe Abb. 3.11(b)).

Zum genaueren Verständnis des Photoemissionsprozesses wurde eine Simulation auf Basis einer erweiterten Fowler-DuBridge Theorie entwickelt, die zusätzlich Raumladungseffekte durch emittierte Elektronen in der Nähe der Photokathodenoberfläche berücksichtigt. Die Temperaturrentwicklung von Elektronen und Gitter wird durch das Zwei-Temperaturmodells modelliert. Die Simulation modelliert sowohl thermionische Emission, als auch Multi-Photon Emission. Als Quellterm geht in die Simulation lediglich der Intensitätsverlauf der erzeugenden Laserpulse ein. Als Anregungslaserpulse können phasenformte Laserpulse verwendet werden.

Mit Hilfe der Simulation ist es möglich den zeitlichen Verlauf der erzeugten Elektronenpulse zu verfolgen. Die Form der Elektronenpulse ähnelt den erzeugenden Laserpulsen. Jedoch sind die Elektronenpulse etwas kürzer als die Laserpulse (siehe Abb. 3.9 (a) und (b)) und spätere Anteile werden durch Raumladungseffekte unterdrückt (siehe Abb. 3.9 (c) und (d)).

Aufgrund der Austrittsarbeit der verwendeten Materialien von je ca. 4,3 eV und einer Photonenergie von 1,57 eV, ist ein Drei-Photonen Emissionsprozess zu erwarten. Eine Messung der Elektronenausbeute in Abhängigkeit der Fluenz

¹⁷... Die entspricht der Ausbeute ohne Kompensation der durch optische Elemente im Strahlengang eingeführten zusätzlichen Phase.

zeigt eine etwas niedrigere Nichtlinearität von 2,6. Diese Nichtlinearität kann mit Hilfe der Simulation reproduziert werden. Dabei zeigt sich, dass es sich beim Photoemissionsprozess in erster Linie um einen thermisch assistierten Zwei-Photonen Emissionsprozess handelt. Die thermionische Emission, die den Elektronenpuls verlängern würde, liefert keinen signifikanten Beitrag.

Inwieweit die Simulation die Elektronenerzeugung in der ULEB beschreibt wurde durch Vergleich mit der Experimenten, in denen unterschiedliche Pulsformen eingesetzt wurden, ermittelt. Einzige variable Parameter in der Simulation waren dabei verwendete Laserfluenz, sowie die eingesetzte Pulsform. Die in Tabelle 3.2 aufgeführten Parameter wurden in allen Fällen konstant gehalten.

Experimente mit einer Phasenmodulation durch Taylorphasen der Form (1.43) mit Variation von nur einem von Null verschiedenen Anteil ϕ_n lassen sich durch die Simulation gut reproduzieren. Ein Vergleich mit der Simulation mit und ohne thermionische Emission zeigt, dass die thermionische Emission vernachlässigbar ist. Zudem wurde eine nichtkomensierte Restphase von $\phi_3 = -4000 \text{ fs}^3$ bestimmt.

Neben der Modulation mit Taylorphasen wurden auch Experimente mit Sinusphasen der Form (3.12) durchgeführt. Bei diesen Experimenten wurden drei Parameter variiert. Die Variation der Amplitude A der Sinusphase zeigt, dass die einfache Behandlung der Raumladung in (3.3) das Phänomen nicht komplett beschreibt. Sie ist für die betrachteten Sinusphasen jedoch ausreichend und liefert eine gute Übereinstimmung mit dem Experiment. Der Einfluss der durch die Taylorphasen-experimente bestimmten Restphase und der Raumladung wurde an Experimenten deutlich gemacht, in denen die spektrale Frequenz Υ , bzw. die absolute Phase p_0 variiert wurden. Dabei wurde zum Vergleich die Simulation unter Vernachlässigung der Raumladungseffekte für einen bandbreitebegrenzten Gaußpuls und einem auf diesem Puls basierenden Laserpuls mit einer Taylorphase von $\phi_3 = -4000 \text{ fs}^3$ durchgeführt. Beide zeigen jeweils keine gute Übereinstimmung mit den Messwerten, jedoch ist der Einfluss der Restphase auf den Kurvenverlauf deutlich zu erkennen. Eine gute Übereinstimmung mit den Messwerten wurde erst durch Berücksichtigung der Restphase und der Raumladung erreicht.

Abschließend wurde mit Hilfe des in Abschnitt C vorgestellten evolutionären Algorithmus ein Optimierungsexperiment mit phasengeformten Laserpulsen durchgeführt. Als Parametrisierung der Modulationsphase wurde eine Taylorphase nach (1.43) verwendet, wobei die Parameter ϕ_0 und ϕ_1 fest auf Null gesetzt. Die Optimierung reproduziert als optimale Phase die zur nicht komensierten Restphase inverse Phasenfunktion. Demzufolge liefert die Optimierung als optimale Pulsform den bandbreitebegrenzten Puls, was aufgrund des dominierenden Multi-Photonen Emissionsprozesses zu erwarten war.

Aufgrund der Experimente und der Modellierung derselben mit Hilfe der Simulation kann demzufolge davon ausgegangen werden, dass die thermionische Emission keine Rolle spielt und von einem direkten Multi-Photonen Emissionsprozess ausge-

gangen werden kann. Die in Abb. 3.9 aufgeführten Elektronenpulse können also als Ausgangspunkt für die im nächsten Abschnitt folgende Diskussion der Propagation der Elektronenpulse in der ULEB dienen.

3.4. Elektronenpropagation

In diesem Abschnitt wird die Propagation der Elektronen vom Ort der Erzeugung (der Kathode) über die Anode zur Probe beschrieben. Hierbei wird speziell die zeitliche Veränderung des Elektronenpulses während der Propagation betrachtet. Zunächst werden in Abschnitt 3.4.1 einige Vorüberlegungen zur Energieverteilung der erzeugten Elektronen gemacht. Dies ist ein wichtiger Parameter für die zeitliche Entwicklung des Elektronenpulses. In Abschnitt 3.4.2 wird dies in den unterschiedlichen Modellen zur analytischen Beschreibung der Elektronenpulspropagation deutlich. Um den Einfluss unterschiedlicher Pulsformen des Anregungslasers auf die Elektronenpulspropagation zu untersuchen, wird in Abschnitt 3.4.3 eine Simulation beschrieben, mit der dies auf Basis der in Abb. 3.9 gezeigten Elektronenpulse möglich ist. Die Simulation wird aufgrund des zeitlichen Rechenaufwands nur für Elektronenpulse eingesetzt, die nicht mehr als 10000 Elektronen enthalten. Daher folgt in Abschnitt 3.4.4 eine Diskussion der Propagation von Elektronenpulsen mit weniger als 10000 Elektronen pro Puls. Hierbei werden die Ergebnisse der analytischen Beschreibungen und der Simulation verglichen. Zusätzlich wird auf den Einfluss unterschiedlicher Elektronenpulsformen zu Beginn der Propagation eingegangen. Da im Experiment jedoch, aufgrund der vorläufig niedrigen Detektionseffizienz, mit Elektronenzahl von ca. 10^6 pro Puls gearbeitet wurde, folgt in Abschnitt 3.4.5 eine Diskussion der Propagation von Elektronenpulsen mit einer entsprechenden Anzahl von Elektronen pro Puls. Dem folgend wird in Abschnitt 3.4.6 das zur Pulsdauerbestimmung der Elektronenpulse durchgeführte Experiment beschrieben. Hierbei wird auf Aufbau und Ergebnisse eingegangen. Als Abschluss folgt in 3.4.7 eine Zusammenfassung dieses Abschnitts.

3.4.1. Energieverteilung der Elektronen

Ein wichtiger Parameter, der die zeitliche Entwicklung der Elektronenpulse während der Propagation beeinflusst, ist die Breite und Form der Elektronenenergieverteilung nach der Emission. Die in den folgenden Abschnitten verwendeten Annahmen werden daher in diesem Abschnitt begründet.

In den vorangegangenen Untersuchungen zum Emissionsprozess (siehe Abschnitt 3.3.8) wurde deutlich, dass der Emissionsprozess der Elektronen von einem thermisch unterstützten Zwei-Photonen Prozess dominiert wird. Thermionische Emission kann vernachlässigt werden. Um die Elektronenenergieverteilung der Elektronen nach der Erzeugung zu modellieren, wird jedoch im folgenden von einem Drei-Photonen Emissionsprozess ausgegangen, wie er bei niedrigen Laserintensitäten zu erwarten ist (vgl. Abb. 3.13). Diese niedrigen Laserintensitäten werden in der nächsten Entwicklungsstufe der ULEB zum Einsatz kommen. Zudem liegen über die Veränderung der Energieverteilung durch den Übergang vom Drei-Photonen

zum thermisch assistierten Zwei-Photonen Emissionsprozess keine Vorhersagen vor, so dass der Drei-Photonen Prozess in diesem Abschnitt der Einfachheit der Diskussion halber für niedrige und hohe Laserintensitäten¹⁸ zum Einsatz kommt.

Da bei Metallen für den Energiebereich in der Nähe der Fermikante in erster Näherung von einer konstanten Zustandsdichte ausgegangen werden kann, ergibt sich eine „stufenförmige“ Energieverteilung der Elektronen nach direkter Photoemission (siehe Abb. 3.20(a)). Für Silber mit einer Austrittsarbeit von 4,3 eV ergibt sich für einen Drei-Photonen Prozess auf Basis des vom Lasersystem gelieferten Spektrums die in Abb. 3.20(b) gezeigte Energieverteilung mit einer Breite von 0,4 eV. Dies wird im weiteren als Basis für die analytischen Beschreibungen und die Simulation verwendet.

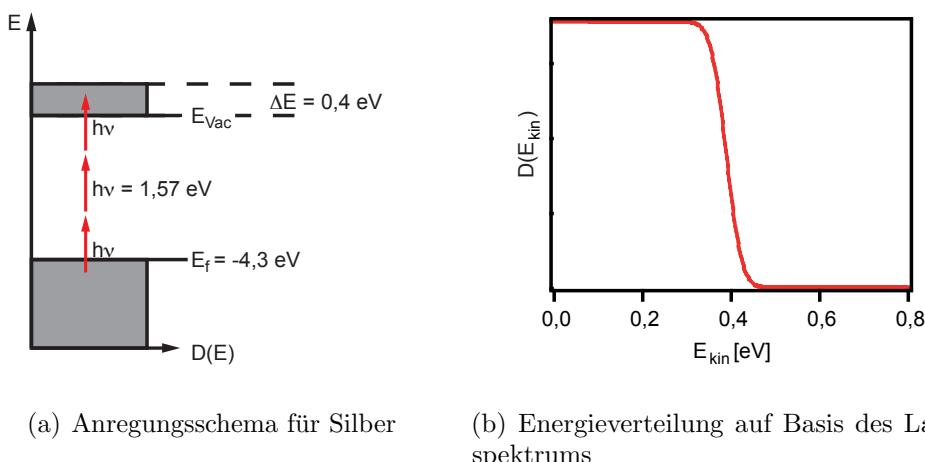


Abbildung 3.20.:
(a) Energieverteilung der Elektronen. Unter der Annahme einer konstanten Zustandsdichte $D(E)$ in der Nähe der Fermikante von Silber werden durch einen Drei-Photonen Prozess Elektronen mit einer kastenförmigen Energieverteilung der Breite $\Delta E = 0,4 \text{ eV}$ emittiert. **(b)** Berechnete Zustandsdichte $D(E_{\text{kin}})$ der Elektronen nach Emission durch einen Drei-Photonen Prozess unter Annahme einer Fermiverteilung bei $T = 0 \text{ K}$ gefaltet mit dem, sich aus dem Spektrum des eingesetzten Lasers ergebenden, Spektrum der dritten Harmonischen.

3.4.2. Analytische Beschreibungen

In diesem Abschnitt werden drei Modelle zur analytischen Beschreibung der Elektronenpulspropagation in einer Elektronenbeugungsanlage vorgestellt.

¹⁸... niedrige und hohe Elektronenanzahlen pro Puls

Die zugrundeliegende Geometrie ist in Abbildung 3.21 gezeigt. Die Elektronen werden an der Photokathode durch einen Rechteck-Laserpuls der Pulsdauer τ_0 erzeugt. Anschließend wird das Elektronenpaket durch die angelegte Beschleunigungsspannung U in z-Richtung beschleunigt. Die Feldverteilung im Beschleunigungsreich, wird als gleichförmig angenommen. Die Länge der Beschleunigungsstrecke ist d . Anschließend folgt der feldfreie Driftbereich bis zur Probe. Aufgrund der Erzeugung der Elektronen durch einen Rechteck-Laserpuls wird in den Modellen von einem zylindrischen Elektronenpuls mit räumlich konstanter Elektronendichte ausgegangen. Somit sind die Modelle nicht in der Lage den Einfluss unterschiedlicher Pulsformen des Anregungslasers zu beschreiben. Zu diesem Zweck wird in Abschnitt 3.4.3 eine Simulation vorgestellt, deren Ergebnisse mit den Modellvorhersagen in Abschnitt 3.4.4 validiert werden.

Cold-Fluid-Model

Das Cold-Fluid-Model (CFM) wurde in [70] vorgestellt. Im CFM wird die laterale Ausdehnung r als konstant angenommen und nur die zeitliche Veränderung der Länge des Elektronenpulses $l(t)$ in Ausbreitungsrichtung untersucht.

Den Ausgangspunkt bildet die Poisson-Gleichung

$$\frac{\partial^2 \Phi}{\partial z^2} = \frac{en(t)}{\varepsilon_0} \quad (3.13)$$

Das elektrische Potenzial wird durch Φ beschrieben, die Elektronendichte durch $n(t)$, die Elektronenladung durch $-e$ und ε_0 ist die Dielektrizitätskonstante des Vakuums. Mit der klassischen Bewegungsgleichung für die Elektronen unter Einfluss des Beschleunigungsfeldes $E = -\frac{\partial \Phi}{\partial z}$ und mit der Geschwindigkeit v in Ausbreitungsrichtung

$$m_e \frac{\partial v}{\partial t} = -e E \quad (3.14)$$

ergibt sich mit (3.13) nach Integration über die Länge l des Elektronenpulses

$$\frac{d^2 l}{dt^2} = \frac{e^2 n_0}{\varepsilon_0 m_e} l_0 \quad (3.15)$$

Dies beschreibt die Geschwindigkeit der Längenänderung des Elektronenpulses aufgrund von Raumladungseffekten. Es sind $n_0 = n(0)$ und $l_0 = l(0)$. Die Elektronendichte lässt sich auf die Gesamtzahl der Elektronen durch

$$n(t) = \frac{N}{V} = \frac{N}{\pi r^2(t) l(t)} \quad (3.16)$$

zurückführen. Dabei gibt N die Gesamtzahl der Elektronen im Elektronenpuls und V dessen Volumen an. Die Anzahl der Elektronen im Puls ist konstant. Damit ergibt sich aus (3.15) die folgende Beschreibung für die Geschwindigkeit der

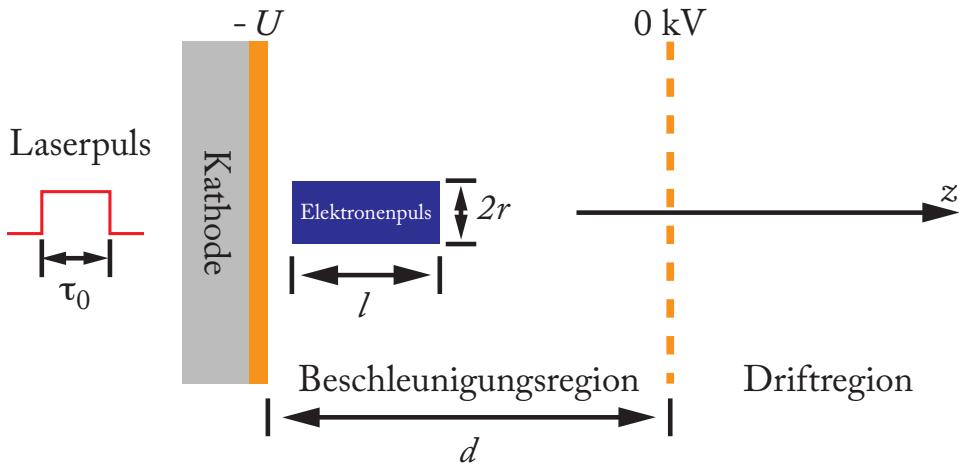


Abbildung 3.21.:

Schema der Elektronenbeugungsanlage, als Basis für die vorgestellten theoretischen Modelle. An der Photokathode zur Erzeugung der Elektronenpulse liegt eine Spannung $-U$ an. Der erzeugende Laserpuls ist in diesen Modellen ein Rechteckpuls der Pulsdauer τ_0 . Der Abstand zwischen Photokathode und Anode (Beschleunigungsbereich) ist d . Der Elektronenpuls hat zylindrische Form. Die Länge des Elektronenpulses in Ausbreitungsrichtung ist l . Der laterale Radius ist r . Die Ausbreitungsrichtung ist die z -Richtung.

Längenänderung des Elektronenpulses

$$\frac{d^2l}{dt^2} = \frac{e^2 N}{m_e \varepsilon_0 \pi r^2(0)} = \text{konstant} \quad (3.17)$$

Diese Gleichung enthält die Effekte aufgrund der Raumladung. Die Pulsverbreiterung aufgrund der unterschiedlichen Elektronenenergien innerhalb des Elektronenpulses (siehe Abschnitt 3.4.1) wird durch die Anfangsbedingungen berücksichtigt. Die Geschwindigkeitsdifferenz in Propagationsrichtung $\Delta v_0 = \frac{dl}{dt} \Big|_{t=0}$ zu Beginn der Propagationsstrecke ergibt sich aus der Breite der Elektronenenergieverteilung ΔE :

$$\frac{dl}{dt} \Big|_{t=0} = \Delta v_0 = \sqrt{\frac{2\Delta E}{m_e}} \quad (3.18)$$

Mean-Field-Modell

Das Mean-Field-Modell (MFM) [5] geht im Gegensatz zu dem im CFM verwendeten Modellpotenzial von einer dünnen Elektronenscheibe aus, deren Länge am

Beginn der Driftregion in Propagationsrichtung vernachlässigt werden kann. Zudem wird es im Gegensatz zum CFM in erster Linie für die Beschreibung der Driftregion verwendet, in der sich der Elektronenpuls deutlich länger aufhält, als in der Beschleunigungsregion.

Daher werden hier der Radius $r(t)$ und die Elektronendichte $n(t)$ als zeitabhängig angenommen. Aufgrund der beschriebenen Annahmen wird für das Potenzial auf der Propagationsachse ein anderer Ansatz gewählt, als beim CFM [5]

$$\Phi(z > 0) = \frac{Ne}{2\varepsilon_0\pi r^2(t)} \left[\sqrt{z^2 + r^2(t)} - z \right] \quad (3.19)$$

Die Gleichung zur Beschreibung der Längenänderung des Elektronenpulses ist damit gegeben durch [5]

$$\frac{d^2l}{dt^2} = \frac{e^2 N}{m_e \varepsilon_0 \pi r^2(t)} \left[1 - \frac{l(t)}{\sqrt{l^2(t) + 4r^2(t)}} \right] \quad (3.20)$$

Auch hier wird die Pulsverlängerung aufgrund der unterschiedlichen Energien der Elektronen durch die Anfangsbedingung (3.18) in das Modell eingeführt.

Two-Dimensional-Model

Das Two-Dimensional-Model (TDM) [95] ist, wie das MFM, eine Erweiterung des CFM unter Verwendung eines anderen Ansatzes für das Potenzial entlang der Propagationsachse. Auch das TDM wird hauptsächlich zur Beschreibung des Driftbereichs verwendet.

In [95] wird gezeigt, dass die Ausdehnung des Elektronenpulses in z-Richtung am Anfang des Driftbereichs normalerweise im Vergleich zur lateralen Ausdehnung vernachlässigbar ist. Dies ergibt jedoch ein unphysikalisches Potenzial, da die zentralen Elektronen des Elektronenpulses ein elektrisches Feld ungleich 0 sehen würden. Bei einer isotropen Verteilung der Elektronen im Puls ist dies nicht zu erwarten. Daher schlägt [95] ein Potenzial unter Berücksichtigung der Ausdehnung des Elektronenpulses in z-Richtung vor. Durch diese Veränderung ergibt sich die folgende Beschreibung der Elektronenpulsdauerentwicklung [95]:

$$\frac{d^2l}{dt^2} = \frac{e^2 N}{m_e \varepsilon_0 \pi r^2(t)} \left[\frac{2}{1 + \frac{l(t)}{r(t)} + \sqrt{1 + \frac{l^2(t)}{r^2(t)}}} \right] \quad (3.21)$$

Die Effekte der unterschiedlichen Elektronenenergien gehen durch die Anfangsbedingung (3.18) ein.

Mit (3.20) und (3.21) wurde zur Überprüfung Abb. 3 in [95] reproduziert.

3.4.3. Simulation der Elektronenpropagation

Da die bisher vorgestellten Modelle zur Elektronenpulspropagation die anfängliche Pulsform des Elektronenpulses nur ungenügend berücksichtigen, wurde eine Monte-Carlo Simulation der Propagation eines Elektronenpulses in der ULEB geschrieben. Dies ermöglicht die Untersuchung des Einflusses der in Abb. 3.9 beschriebenen Elektronenpulsformen. Einschränkungen sind hier die geringe Anzahl an Elektronen, die in die Rechnung eingehen können, um in angemessener Zeit noch zu einem Ergebnis zu kommen, sowie die Annahme eines idealen uniformen Beschleunigungsfeldes zwischen Photokathode und Anode.

Die Simulation arbeitet in zwei Schritten. Zunächst wird die Anfangsverteilung der Elektronen generiert. Anschließend wird diese zeitlich propagiert. Beide Schritte werden im Folgenden beschrieben.

Generierung des Elektronenpulses

Zur Erzeugung der Elektronenverteilung werden die folgenden Parameter verwendet.

- Die Anzahl N der Elektronen¹⁹
- Die Feldstärke V des Beschleunigungsfeldes
- Der Startdurchmesser d_e des Elektronenpulses, der als der Fokussdurchmesser des erzeugenden Laserpulses angenommen wird.
- Die Emissionsdauer τ_0 , welche als zur Laserpulsdauer identisch angenommen wird.
- Die Energieverteilung der emittierten Elektronen ergibt sich aus den Überlegungen in Abschnitt 3.4.1. Als Parameter geht die Breite ΔE der Energieverteilung in die Simulation ein.

Zusätzlich gibt es noch die Möglichkeit die Gesamtzahl der Elektronen auf mehrere Einzelpulse aufzuteilen, die $\Delta\tau$ voneinander getrennt sind. Außerdem ist es noch möglich mit gechirpten Laserpulsen als Anregungspulsen zu arbeiten.

Zur Generierung wird zunächst jedem i . Elektron ein Emissionszeitpunkt t_i^0 zugewiesen. Als zeitliche Verteilung wird dabei eine Normalverteilung mit einer FWHM entsprechend τ_0 angenommen. Diese zeitliche Verteilung kann auch auf einer zeitlichen Elektronenpulsform, wie sie im vorherigen Abschnitt simuliert wurde, basieren (vgl. Abb. 3.9). Dabei ist der Erwartungswert so gewählt, dass nur positive t_i^0 generiert werden. Anschließend wird die kinetische Energie E_i^0 zufällig bestimmt. Die zufällig bestimmten Energiewerte sind dabei im Bereich von

¹⁹... für angemessene Rechenzeiten (kleiner 3 Stunden) ≤ 10000

0 eV bis ΔE gleichverteilt, wie es die in Abschnitt 3.4.1 diskutierte Energieverteilung erwarten lässt. Dort wurde die Breite der Energieverteilung für Silber mit 0,4 eV angegeben. Der Impuls, d.h. die Austrittsrichtung, der Elektronen wird nicht vom vernachlässigbaren Photonenimpuls, sondern vom verwendeten Material bestimmt. Dieses wird aufgrund der Präparation als isotrope Ansammlung von Kristallausrichtungen angenommen. Die Überschussenergie wird daher zufällig²⁰ auf die Raumrichtungen aufgeteilt und so ein Geschwindigkeitsvektor \vec{v}_i^0 erzeugt. Dabei wird die z-Komponente auf die Vorwärtsrichtung beschränkt

$$E_i^0 = \frac{1}{2}m_e |\vec{v}_i^0|^2 \quad (3.22)$$

$$\vec{v}_i^0 = (v_i^x, v_i^y, v_i^z) \quad \text{mit } v_i^z \geq 0 \quad (3.23)$$

Da die Elektronen zu unterschiedlichen Zeiten t_i^0 emittiert werden, muss die z-Komponente der Geschwindigkeit noch modifiziert werden. Die Erzeugung ist erst nach der Emission des letzten Elektrons zum Zeitpunkt $t_{\max} = \max(t_i^0)$ abgeschlossen. In der Zeit zwischen der Erzeugung eines Elektrons und dem Ende des Erzeugungsschrittes erhalten die Elektronen in z-Richtung demnach, aufgrund des Beschleunigungsfeldes, eine erhöhte Anfangsgeschwindigkeit von

$$v_i^z = v_i^0 + \frac{e}{m_e} V (t_{\max} - t_i^0) \quad (3.24)$$

Anschließend wird die Position \vec{r}_i^0 jedes Elektrons zum Zeitpunkt t_{\max} , welcher durch das Ende des fs-Laserpulses festgelegt wird, berechnet. Die Position wird aufgrund der errechneten Geschwindigkeiten berechnet. Bei den lateralen Richtungen kommen Aufschläge ($x_{\text{off}}, y_{\text{off}}$) durch das angenommene gaußsche Strahlprofil hinzu

$$\vec{r}_i^0 = \vec{v}_i^0 t_{\max} + \begin{pmatrix} x_{\text{off}} \\ y_{\text{off}} \\ 0 \end{pmatrix} \quad (3.25)$$

Der Ortsvektor $\vec{r} = (0, 0, 0)$ des Ursprungs gibt dabei das Zentrum der Kathodenoberfläche an. Die so erzeugte Elektronenverteilung wird, wie im Folgenden beschrieben, propagiert.

Propagation des Elektronenpulses

Die Propagation arbeitet mit dem erzeugten Elektronenpuls, oder bietet die Möglichkeit eine zuvor generierte Elektronenverteilung zu laden. Dabei kann es sich auch um eine bereits propagierte Elektronenverteilung handeln. Zur Simulation einer Beschleunigungsstrecke kann eine externe Feldstärke V angegeben werden, die die

²⁰... auch gleichverteilt

Stärke des beschleunigenden Feldes angibt. So ist es in einem zweistufigen Prozess möglich zunächst einen Elektronenpuls zu generieren und durch ein externes Feld zu beschleunigen, die Endverteilung wieder in die Simulation zu laden und bei einer externen Feldstärke von $0 \frac{\text{V}}{\text{cm}}$ frei propagieren zu lassen. Hiermit lässt sich der komplette Elektronenpulspfad von der Kathode bis zur Probenposition simulieren. Der Elektronenpuls wird mit dem Euler-Verfahren zeitlich propagiert. Basisparameter der Propagation sind die Schrittweite Δt_s in fs und die Zielposition Z_f in cm. Im Beschleunigungsbereich ist dieser Wert gleich der Anodenposition relativ zur Kathodenposition. Für die Berechnung der freien Flugstrecke ist Z_f gleich der Probenposition relativ zur Kathodenposition.

Während jedes Simulationsschritts wird zunächst die auf jedes Elektron einwirkende Beschleunigung berechnet. Dabei gibt es zwei Anteile. Der erste Anteil ist die durch das externe Feld V hervorgerufene Beschleunigung in z-Richtung

$$\vec{a}_e = \left(0, 0, \frac{e}{m_e} V \right) \quad (3.26)$$

Der zweite Teil beschreibt die Coulombabstoßung der Elektronen untereinander

$$\vec{a}_c^i = \sum_{i \neq j}^N \frac{e^2}{4m_e \pi \epsilon_0 \left| \vec{d}_{ij} \right|^3} \vec{d}_{ij} \quad (3.27)$$

Hierbei ist $\vec{d}_{ij} = \vec{r}_i - \vec{r}_j$ der Abstandsvektor zwischen dem i -ten und j -ten Elektron, deren Ortsvektoren \vec{r}_i und \vec{r}_j sind (siehe Abb. 3.22). Die Gesamtbeschleunigung \vec{a}_i , die während des jeweiligen Propagationsschrittes auf ein Elektron wirkt, ist somit gegeben als Addition von (3.26) und (3.27)

$$\vec{a}_i = \vec{a}_c^i + \vec{a}_e \quad (3.28)$$

Nachdem für jedes Elektron die aktuelle Beschleunigung berechnet wurde, wird anschließend basierend auf deren aktueller Position \vec{r}_i und aktueller Geschwindigkeit \vec{v}_i die neue Geschwindigkeit und Position berechnet

$$\vec{v}_{i,\text{neu}} = \vec{v}_i + \vec{a}_i \Delta t_s \quad (3.29)$$

$$\vec{r}_{i,\text{neu}} = \vec{r}_i + \frac{1}{2} \vec{a}_i \Delta t_s^2 \quad (3.30)$$

Für die folgenden Betrachtungen wurden diese Parameter für die Simulation und die Modellrechnungen verwendet:

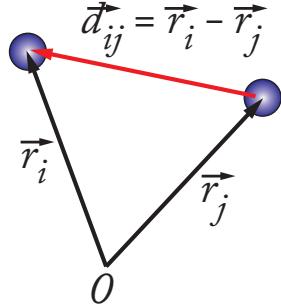


Abbildung 3.22.:

Abstandsvektor \vec{d}_{ij} zwischen zwei Elektronen an den Orten \vec{r}_i und \vec{r}_j

- Emissionsdauer $\tau_0 = 30 \text{ fs}$, entsprechend der Laserpulsdauer des im Experiment eingesetzten Lasersystems.
- Beschleunigungsspannung $V = \frac{15 \text{ kV}}{3,3 \text{ mm}}$
- Der Kathode-Anode Abstand $d = 3,3 \text{ mm}$.
- Lateraler Startdurchmesser des Elektronenpulses $d_e = 150 \mu\text{m}$ entsprechend der Fokussdurchmesser im Experiment (siehe Abschnitt 3.2.2). Der Startdurchmesser ist so groß, dass der Durchmesser des Elektronenpulses in x- und y-Richtung im folgenden als konstant angenommen wird.
- Breite der Elektronenenergieverteilung $\Delta E = 0,4 \text{ eV}$ (siehe Abschnitt 3.4.1). Aufgrund der Aufteilung der Überschussenergie auf die drei Raumrichtungen wird in den Modellrechnungen nur ein Drittel von ΔE als Energiebreite verwendet.

Für die Pulsdauerbestimmung aus den Simulationsdaten wird die FWHM der Elektronenverteilung entlang der Propagationsachse angegeben. Die Umrechnung der Länge des Elektronenpulses in die Dauer des Elektronenpulses geschieht durch Division durch die momentane mittlere Geschwindigkeit des Elektronenpulses.

3.4.4. Niedrige Elektronenanzahlen

In diesem Abschnitt wird auf die Propagation von Elektronenpulsen mit einer niedrigen Anzahl von Elektronen (≤ 10000) eingegangen. Bei diesen Elektronenanzahlen ist es möglich die unterschiedlichen Modelle mit den Ergebnissen der Simulation für die Anregung mit gaußförmigen/rechteckigen Laserpulsen zu vergleichen. Dies dient gleichzeitig zur Validierung des Simulationsprogramms im Vergleich mit den Modellen, von denen das MFM in [5] mit einem ähnlichen Simulationsansatz verglichen wurde. Im Anschluss an diesen Vergleich wird der Einfluss von geformten Elektronenpulsen auf die Elektronenpulsdauer am Probenort mit Hilfe der Simulation diskutiert.

Gaußpuls angeregte Elektronenpulse

Im folgenden sollen Simulation und Modelle anhand der Propagation von Elektronenpulsen, die mit gaußförmigen/rechteckigen fs-Laserpulsen erzeugt wurden, verglichen werden. Hierzu wird zunächst auf den Beschleunigungsbereich eingegangen. Anschließend wird die Pulsdauerentwicklung im Driftbereich der Propagationsstrecke diskutiert. Hierbei kommen das MFM, das TDM und die Simulation zum Einsatz und werden miteinander verglichen.

Beschleunigungsbereich Die Veränderung der Pulsdauer im Beschleunigungsbereich soll hier kurz anhand des CFM und der Simulation diskutiert werden. Zunächst wird anhand des CFM der Einfluss der Raumladung und der Energieverteilung der Elektronen auf die Elektronenpulsdauer am Ende der Beschleunigungsstrecke deutlich gemacht. Anschließend wird dies mit den Ergebnissen der Simulation verglichen.

Aus (3.17) ergibt sich für die Elektronenpulsdauer²¹

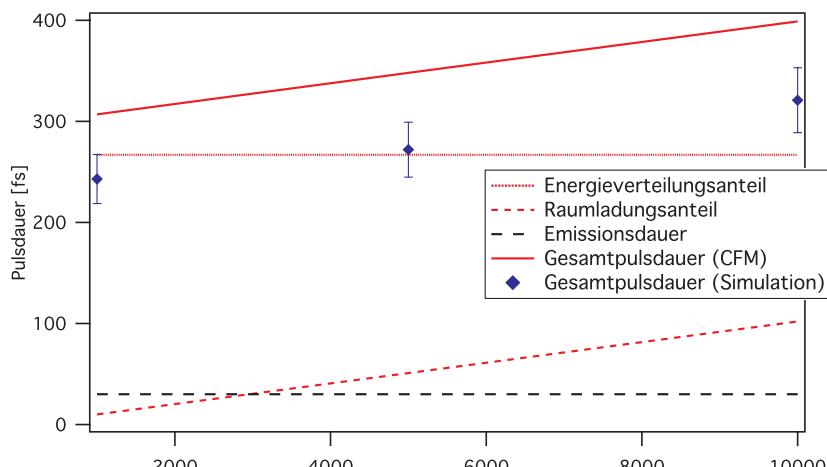
$$\Delta\tau(d) = \sqrt{2em_e} \frac{Nd^2}{\varepsilon_0\pi r^2 V^{\frac{3}{2}}} + \sqrt{2m_e\Delta E} \frac{d}{eV} + \tau_0 \quad (3.31)$$

Der erste Term von Gleichung (3.31) beschreibt die Verbreiterung aufgrund der Raumladung des Elektronenpulses. Der zweite Term gibt den Anteil der Elektronenpulsverlängerung durch die Breite der Energieverteilung der Elektronen an. Der dritte Beitrag ist schließlich die ursprüngliche Emissionsdauer. Die einzelnen Anteile sind in Abb. 3.23 in Abhängigkeit der Elektronenanzahl gezeigt. Dies ist für die momentan verwendete Beschleunigungsspannung von 15 kV und die in der nächsten Entwicklungsstufe angestrebte Beschleunigungsspannung von 30 kV dargestellt. Für 15 kV sind auch die Ergebnisse der Simulation eingetragen. Das Anheben der Beschleunigungsspannung verspricht entsprechend (3.31) eine deutliche Verkürzung der Elektronenpulsdauer. Dies ist im Vergleich der beiden Beschleunigungsspannungen in Abb. 3.23 gut zu erkennen.

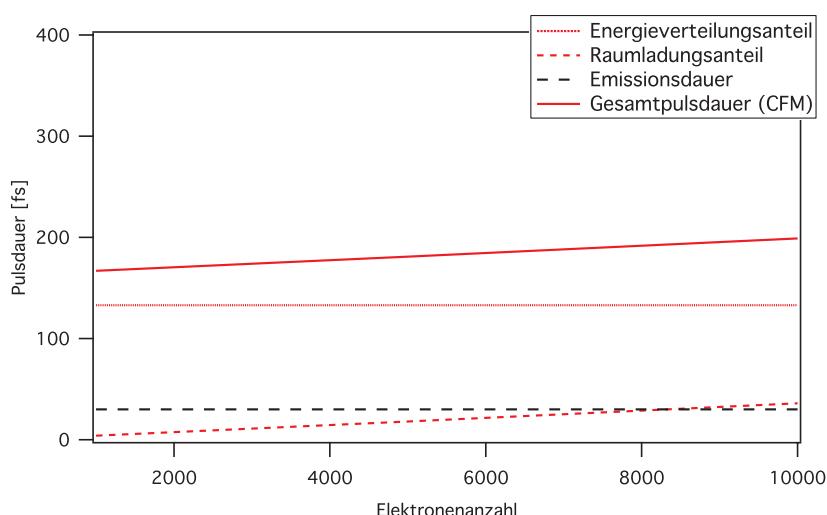
Die Entwicklung der Pulsdauer während der Simulation ist in Abb. 3.24 für unterschiedliche Elektronenanzahlen in Abhängigkeit der zurückgelegten Beschleunigungsstrecke gezeigt. Zu erkennen ist ein starker Anstieg der Elektronenpulsdauer zu Beginn der Propagationsstrecke, der in erster Linie auf die Breite der Energieverteilung der Elektronen zurückzuführen ist, da dieser Anteil für die gezeigten Elektronenanzahlen nahezu gleich ist. Der weitere Anstieg der Pulsdauer wird anschließend durch die Raumladung bestimmt, ist jedoch im Vergleich zur anfänglichen „Explosion“ der Elektronenpulsdauer fast vernachlässigbar. Bei 1000 Elektronen pro Puls ist der Raumladungsanteil so gering (siehe auch Abb. 3.23), dass er für die Beschleunigungsstrecke tatsächlich ignoriert werden kann. Die Pulsdauern am Ende der Beschleunigungsstrecke liegen um einen Faktor von $1,26 \pm 0,02$ unterhalb der vom CFM berechneten Pulsdauer (vgl. Abb. 3.23).

Driftbereich Auch für den Driftbereich werden die Elektronenpulsdauern in Abhängigkeit von Propagationsstrecke und Elektronenanzahl untersucht. Die Modellrechnungen und Simulationen wurden für Beschleunigungsspannungen von 15 kV durchgeführt. Die Ergebnisse für 1000, 5000 und 10000 Elektronen sind in Abb. 3.25 gezeigt.

²¹... Details der kurzen Rechnung siehe [70]



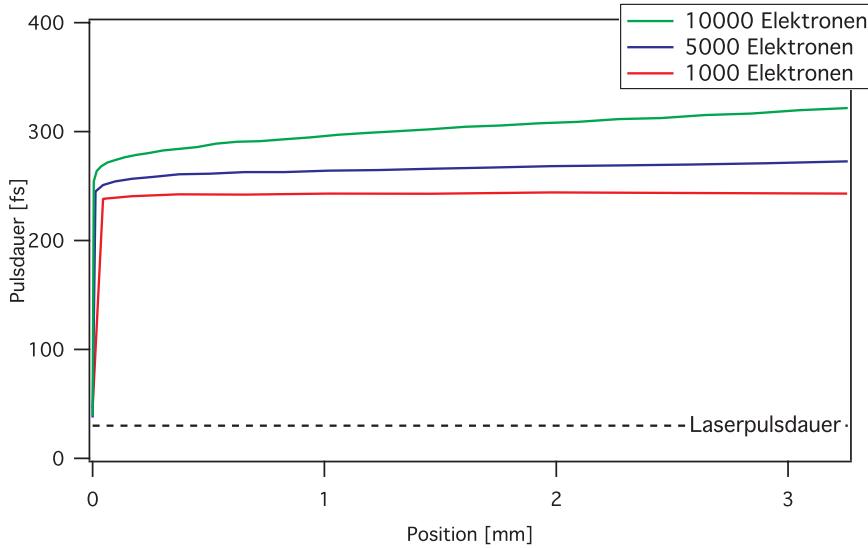
(a) 15 kV Beschleunigungsspannung



(b) 30 kV Beschleunigungsspannung

Abbildung 3.23.:

Elektronenpulsdauer am Ende der Beschleunigungsstrecke. Dargestellt sind die Einzelanteile an der Elektronenpulsdauer am Ende einer Beschleunigungsstrecke von 3,3 mm in Abhängigkeit der Elektronenzahl. Die Emissionsdauer (schwarz, gestrichelt), die Verbreiterung durch die Raumladung (rot, gestrichelt) und die Verbreiterung durch die Energieverteilung der Elektronen (rot, gepunktet) addieren sich zur Pulsdauer des Elektronenpulses (rot, durchgezogen). Für eine Beschleunigungsspannung von 15 kV (a) sind zum Vergleich die Ergebnisse der Simulation eingetragen (blaue Rauten). Das CFM überschätzt die Pulsdauer im Vergleich zur Simulation um einen Faktor von ca. $1,26 \pm 0,02$. Bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV (b) ist der erwartete Rückgang der Einzelanteile im Vergleich zu (a) deutlich zu erkennen.

**Abbildung 3.24.:**

Entwicklung der Elektronenpulsdauer während der Propagation. Die Elektronenpulsbreiten während der Propagation wurden aus der Simulation bestimmt und sind für unterschiedliche Elektronenanzahlen dargestellt. Nach einem rapiden Anstieg zu Beginn bleibt die Elektronenpulsdauer über einen Großteil der Propagationsstrecke nahezu konstant.

Die Driftstrecke ist in Übereinstimmung mit dem momentanen Aufbau 8,7 mm lang. Die Übereinstimmung der Simulation mit beiden Modellen, die für die verwendeten Parameter identische Ergebnisse liefern, ist sehr gut. Jedoch ist auch hier eine Tendenz zur Überschätzung der Pulsdauer durch die Modellrechnungen zu erkennen. Zusätzlich ist im Vergleich der Kurven die Zunahme der Elektronenpulsdauer aufgrund der Elektronenanzahl zu erkennen. Der zunehmende Einfluss der Raumladung mit der Elektronenanzahl macht sich auch in der Form der Pulsdauerkurve bemerkbar. Während bei 1000 die Elektronenpulsdauer bei 1000 Elektronen noch linear zunimmt und damit die Signatur des zweiten Terms in (3.31) aufweist, ist mit zunehmender Elektronenanzahl die Pulsdauerkurve immer stärker parabelförmig. Dies deutet auf einen zunehmenden Einfluss des Raumladungsterms in (3.31) hin, der quadratisch von der zurückgelegten Wegstrecke abhängt. Die Pulsdauer, die bei einer Beschleunigungsspannung von 30 kV für das Ende des Driftbereichs zu erwarten ist, lässt sich auch aus Abb. 3.25 ablesen. Da die Driftgeschwindigkeit im feldfreien Raum konstant ist, kann über die Zeit, die das Elektronenpaket der jeweiligen kinetischen Energie E' für die Driftstrecke s_0 von 8,7 mm benötigt, auf die Distanz s' zurückgerechnet werden, die ein Elektronenpuls mit $E_0 = 15$ keV

kinetischer Energie in dieser Zeit zurücklegt:

$$s' = \sqrt{\frac{E_0}{E'}} s_0 = \sqrt{\frac{15}{30}} 8,7 \text{ mm} = 6,2 \text{ mm} \quad (3.32)$$

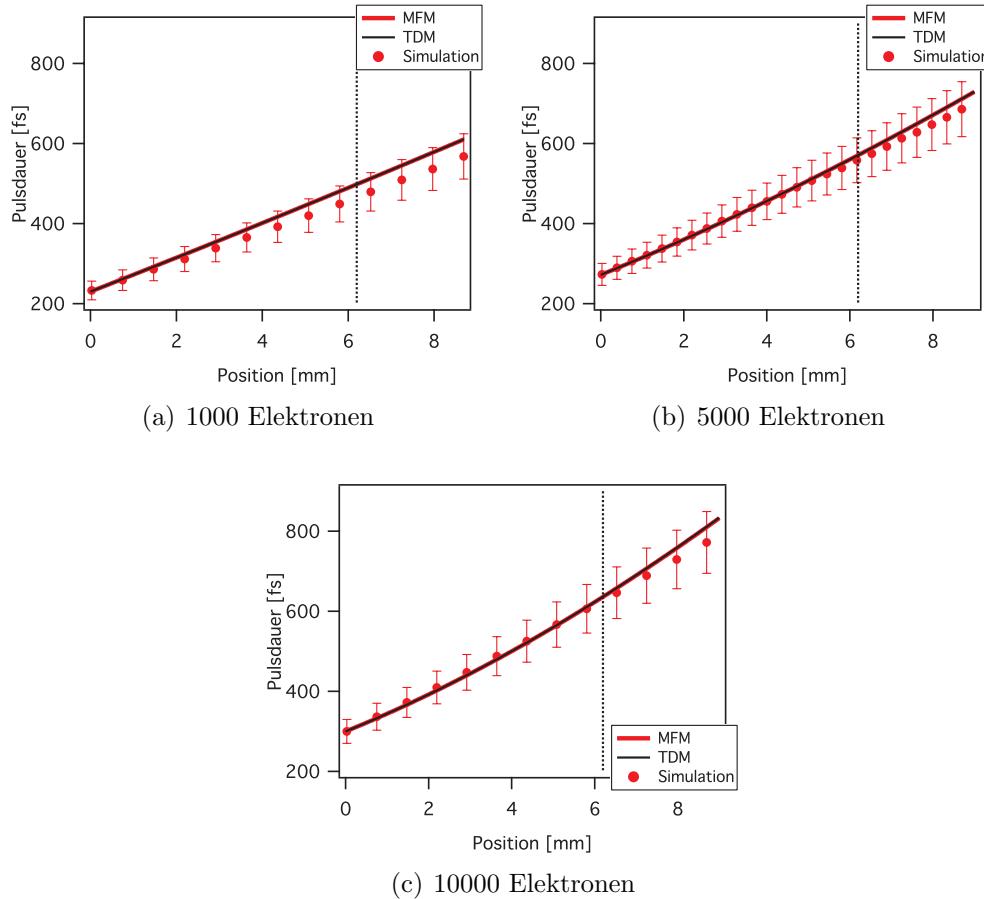


Abbildung 3.25.:

Die Entwicklung der Elektronenpulsdauer im Driftbereich in Abhängigkeit der zurückgelegten Wegstrecke. Gezeigt sind jeweils die Modellrechnungen des MFM (rote Linie), des TDM (schwarze Linie) und die Ergebnisse der Simulation (rote Punkte). Als Anfangspulsdauer dienten die Ergebnisse der Simulation für den Beschleunigungsbereich. Als kinetische Energie wurden 15 keV angenommen. Die Übereinstimmung von Simulation und Modellrechnung ist durchweg akzeptabel, wenn auch die Modelle zu einem leichten Überschätzen der Pulsdauer am Ende der Propagationsstrecke tendieren. Für die verwendeten Parameter stimmen beide Modelle überein. Die, für Elektronenpulse mit einer kinetischen Energie von 30 keV, zu erwartende Pulsdauer ist an der, durch die senkrechte, schwarze, gestrichelte Linie gekennzeichneten Position ablesbar.

Diese Äquivalenzdistanz ist in Abb. 3.25 als gestrichelte senkrechte Linie angedeutet. Bei der angestrebten Beschleunigungsspannung von 30 kV und einer Elektronenanzahl von 5000 - 10000 Elektronen ist demzufolge mit Elektronenpulsen mit einer Pulsdauer im Bereich von 500 fs bis 600 fs zu rechnen.

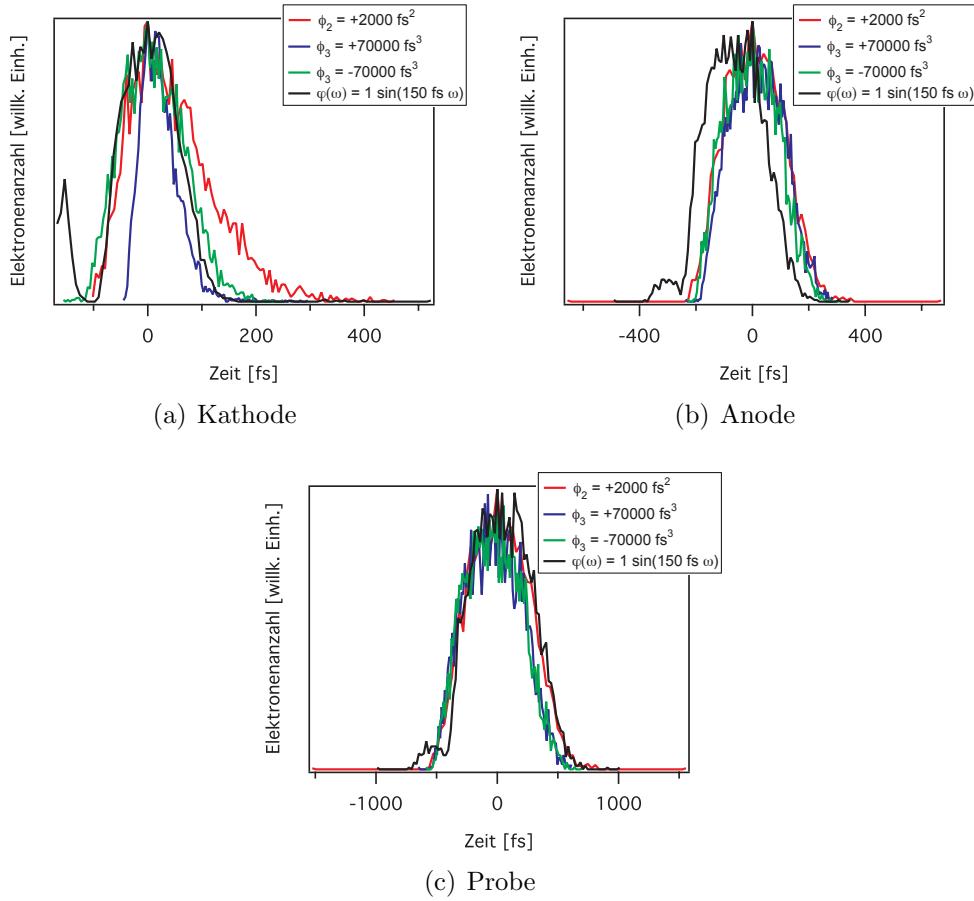


Abbildung 3.26.:

Simulation der Elektronenpulspropagation. Elektronenpulsformen (a) am Beginn der Propagationsstrecke, (b) an der Anode und (c) am Ort der Probe, für 5000 Elektronen pro Puls, bei einer Beschleunigungsspannung von 15 kV. Für die Erzeugung wurden die Laserpulse aus Abb. 3.9 verwendet. Bereits am Ende der Beschleunigungsstrecke sind die Unterschiede zwischen den einzelnen Pulsen marginal. Am Ende der Driftstrecke sind die Unterschiede komplett vernachlässigbar.

Einfluss phasengeformter Anregungslaserpulse

Nachdem im vorigen Abschnitt die Ergebnisse der Simulation und der Modellrechnungen miteinander verglichen wurden und eine gute Übereinstimmung zeigten, wird hier auf den Einfluss phasengeformter Anregungslaserpulse auf die Elektronenpulsdauer am Probenort eingegangen. Als Ausgangspunkt dienen dazu die in Abb. 3.9 gezeigten Elektronenpulse. Pro Puls wurde eine Anzahl von 5000 Elektronen gewählt.

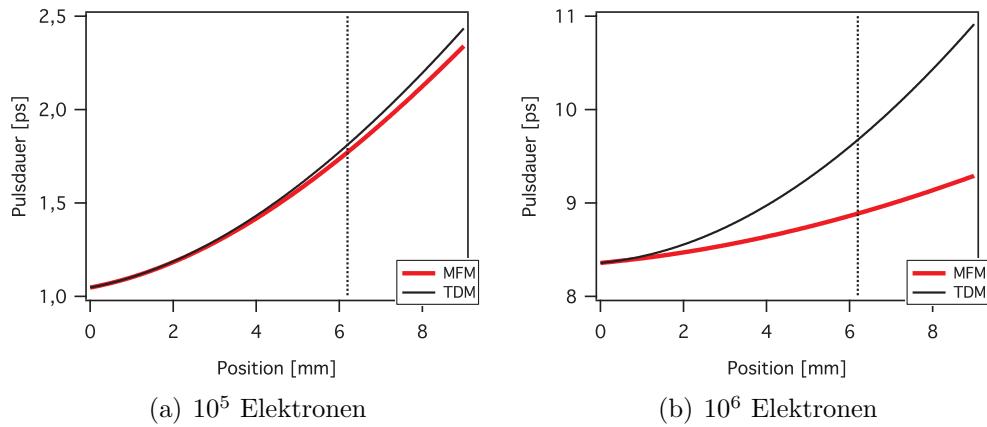
Die Simulationsergebnisse sind in Abb. 3.26 gezeigt. Zu Beginn sind die, durch die unterschiedlichen Laserpulsformen erzeugten, Elektronenpulse deutlich voneinander unterscheidbar. Bereits am Ende der Beschleunigungsstrecke sind fast keine Unterschiede mehr zu erkennen. Die Unterschiede in der Elektronenpulsform und Dauer verringern sich noch weiter zum Ende der Driftstrecke hin. Am Ort der Probe sind alle Elektronenpulse praktisch von gleicher Form und Dauer. Die Pulsdauer liegt bei ca. 740 fs und ist damit um ca. 10% größer als der Wert für Elektronenpulse, die mit einem bandbreitebegrenzten 30 fs Laserpuls erzeugt wurden.

Demzufolge ist es im Falle weniger Elektronen pro Puls nicht möglich die Elektronenpulsdauer am Ort der Probe durch Formung der Anregungslaserpulse zu verkürzen.

3.4.5. Hohe Elektronenanzahlen

Für hohe Elektronenanzahlen (> 10000) ist der Einsatz der Simulation aufgrund der benötigten Rechenzeit nicht praktikabel. Daher wird dieser Bereich am Beispiel von 10^5 und 10^6 Elektronen pro Puls nur mittels der Modellrechnungen diskutiert. Eine Elektronenanzahl von 10^6 pro Puls entspricht den, in den durchgeföhrten Experimenten, verwendeten Anzahlen. Da die Modelle die Elektronenpulsform auf einen zylindrischen Elektronenpuls beschränken, wird nicht auf den Einfluss unterschiedlicher Elektronenpulsformen eingegangen. Die Ergebnisse dieses Abschnitts werden im Anschluss mit dem Ergebnis der experimentellen Pulsdauerbestimmung (siehe Abschnitt 3.4.6) verglichen.

Die Pulsdauer am Ende der Beschleunigungsstrecke wird durch das CFM über (3.31) bestimmt und durch den oben bestimmten Koeffizienten von 1,26 dividiert. Damit ergibt sich für 10^5 Elektronen eine Elektronenpulsdauer von 1047 fs. Der Unterschied zur Elektronenpulsdauer von 1000 Elektronen ergibt sich dabei lediglich durch den Raumladungsanteil, der bei dieser Elektronenanzahl das Vierfache des Energieverteilungsterms in (3.31) beträgt. Bei 10^6 wird dieser Effekt noch dramatischer und der Raumladungsanteil überwiegt mit ca. 40:1. Für diese Anzahl Elektronen ergibt sich eine Pulsdauer von 8358 fs am Ende der Beschleunigungsstrecke.

**Abbildung 3.27.:**

Die Entwicklung der Elektronenpulsdauer im Driftbereich in Abhängigkeit der zurückgelegten Wegstrecke. Gezeigt sind jeweils die Modellrechnungen des MFM (rote Linie), des TDM (schwarze Linie). Als Anfangspulsdauer dienten die Ergebnisse des CFM für den Beschleunigungsbereich. Diese wurden mit dem im Abschnitt 3.4.4 bestimmten Faktor $\frac{1}{1,26}$ skaliert. Als kinetische Energie wurden 15 keV angenommen. Die, für Elektronenpulse mit einer kinetischen Energie von 30 keV, zu erwartende Pulsdauer ist an der, durch die senkrechte, schwarze, gestrichelte Linie gekennzeichneten Position ablesbar. Im Gegensatz zum Fall weniger Elektronen unterscheiden sich die Modelle bei hohen Elektronenanzahlen und damit einem großen Raumladungsanteil deutlich. Je höher die Elektronenanzahl, desto stärker der Unterschied.

Basierend auf diesen Elektronenpulsdauern wurde die Pulsdauerentwicklung mit dem MFM und dem TDM für die Driftstrecke von 8,7 mm bei einer kinetischen Energie von 15 keV bestimmt. Die Ergebnisse sind in Abb. 3.27 gezeigt. Auch hier ist die Äquivalenzdistanz analog zu Abb. 3.25 für 30 keV Elektronenpulse eingetragen. Für zunehmende Elektronenanzahl und somit zunehmendem Einfluss der Raumladung unterscheiden sich die Ergebnisse von MFM und TDM zunehmend. Die Pulsdauern, die das TDM liefert, liegen dabei oberhalb der Pulsdauern, die das MFM liefert. Während die Abweichung bei 10^5 Elektronen nach der Driftstrecke noch im Bereich von 10 % liegt, ist dieser Unterschied bei 10^6 Elektronen pro Puls bereits 20 %.

Da im Experiment Elektronenpulse mit ca. 10^6 Elektronen pro Puls eingesetzt wurden, sind den Modellen zufolge im Experiment Elektronenpulsdauern im Bereich von ca. 10 ps zu erwarten.

3.4.6. Pulsdauerbestimmung von Elektronenpulsen

Zur Bestimmung der Pulsdauer der Elektronenpulse können unterschiedliche Verfahren verwendet werden, von denen eines im Experiment verwendet wurde. Drei sollen hier kurz vorgestellt werden, bevor der verwendete experimentelle Aufbau beschrieben wird.

Korrelation zweier Elektronenpulse

Analog zur Autokorrelation von fs-Laserpulsen zur Bestimmung ihrer Pulsdauer wird in [96] eine Methode zur Korrelation zweier identischer Elektronenpulse vorgeschlagen. Die beiden notwendigen Elektronenpulse werden durch eine Doppel-pulssequenz von identischen Laserpulsen erzeugt. Anschließend werden die Elektronenpulse durch eine magnetische Linse fokussiert. Aufgrund der Raumladung im Fokus kommt es zu einer räumlichen Verbreiterung der Elektronenpulse, die vom Überlapp der beiden Einzelpulse abhängt. Die sich so ergebenden Autokorrelationen von transversaler Breite in Abhängigkeit des Pulsabstandes sind ein Maß für die Elektronenpulsdauer. Jedoch ist es schwierig quantitative Aussagen auf Basis dieser Messung zu machen, da in die räumliche Verbreiterung auch die ursprüngliche transversale Verteilung der Elektronenpulse eingeht. Daher sind mit dieser Methode bisher nur qualitative Aussagen über die Pulsdauer von Elektronenpulsen möglich.

Korrelation mit einem ultrakurzen Laserpuls

Die Korrelation der Elektronenpulse mit ultrakurzen Laserpulsen zur Bestimmung der Elektronenpulsdauer wurde kürzlich in [97] vorgeschlagen und in [98] demonstriert. Hierbei wird der Elektronenpuls mit einem stark fokussierten, intensiven Laserpuls zeitlich und räumlich überlappt. Aufgrund des stark fokussierten elektrischen Feldes des Laserpulses mit Spitzenintensitäten von 10^{17} W/cm^2 [98] erfahren die Elektronen eine ponderomotive Kraft [99, 97]. Diese Ablenkung der Elektronen kann auf einem abbildenden Detektor detektiert werden. Da die Ablenkung nur beim Überlapp von Laserpuls und Elektronenpuls auftritt kann auf diese Weise eine Kreuzkorrelation der Elektronenpulse mit Laserpulsen gemessen werden. Hieraus kann, nach Charakterisierung der Laserpulse, die Elektronenpulsdauer bestimmt werden. Zusätzlich ermöglicht diese Technik auch die Bestimmung des zeitlichen Überlapps auf weniger als 100 fs genau.

Da das vorhandene Lasersystem hierfür keine ausreichende Intensität zur Verfügung stellt und die Detektionseffizienz der Szintillator/Kamerakombination zu gering ist, wurde diese Methode nicht zur Bestimmung der Zeitnull verwendet.

Korrelation mit einer transienten Raumladung

Die Korrelation der Elektronenpulse mit einer transienten Raumladung zur Bestimmung des zeitlichen Überlapps und der Pulsdauer der Elektronenpulse wird in [69] beschrieben. Bei dieser Charakterisierungstechnik handelt es sich um eine Elektron-Elektron Korrelation.

Bei diesem Experiment wird ein zweiter ultrakurzer Laserpuls auf ein in den Probenhalter eingesetztes TEM Gitter aus Kupfer fokussiert. Dort wird auf diese Weise durch Photoemission eine transiente Raumladungsdichte erzeugt, welche zur Korrelation mit den Elektronenpulsen verwendet wird (Aufbau siehe Abb. 3.28). Durch die Coulombabstößung zwischen den so erzeugten Elektronen und den Elektronenpulsen wird das Bild der Elektronen auf dem Detektor gestört (siehe Abb. 3.29). Die Messung der Störung ergibt ein Maß für die Pulsdauer der Elektronenpulse.

Der Zeit für den Aufbau einer transienten Raumladung am TEM Gitter, die zu einer deutlichen Veränderung des Szintillatorsignals führt, wurde in einem vergleichbaren Aufbau in [69] mit ca. 1,2 ps bestimmt. Daher wird der Aufbau der transienten Raumladungsdichte als näherungsweise instantan angenommen werden. Da die Messung auf der Interpretation der räumlichen Abbildung des Elektronenpulses basiert, geht in diese Zeit auch die räumliche Auflösung des Szintillators ein. Diese bestimmt die Sensitivität mit der Änderungen des Szintillatorbildes detektiert werden können.

Unter Annahme von zeitlich gaußförmigen Elektronenpulsen und dem instantanen Aufbau der Korrelationselektronendichte entspricht der Anstieg der Abweichung der Faltung einer Stufenfunktion mit dem gaußförmigen Elektronenpuls. Dies ergibt die Fehlerfunktion $\text{Erf}(t)$ ²². Demzufolge kann die Pulsdauer und der zeitliche Überlapp durch Anpassung von $\text{Erf}(t)$ an den Anstieg der Abweichung bestimmt werden. Die Breite der zeitlichen Gaußfunktion, die sich als Ableitung von $\text{Erf}(t)$ ergibt, ist dann ein Maß für die Elektronenpulsdauer. Der Einfluss eines von einer Stufenfunktion abweichenden Verlaufs der Störung des Szintillatorbildes ist in Abb. 3.31 am Beispiel der Messung gezeigt.

Experimenteller Aufbau

Dieser Aufbau basiert auf der Korrelation der Elektronenpulse mit einer ultraschnell erzeugten Elektronendichte, wie sie im vorherigen Unterabschnitt beschrieben wurde.

Der Anregungslaser wird in zwei Strahlengänge aufgeteilt. Ein Teilstrahl, der Erzeugungsstrahl, wird über den bereits in 3.2.2 vorgestellten Strahlengang zur Erzeugung der Elektronenpulse verwendet. Der andere Teilstrahl, der Korrelati-

²²... Die Faltung einer Funktion mit der Stufenfunktion entspricht einer Integration [33].

onsstrahl, wird über einen Verschiebetisch geleitet. Hierüber kann die Verzögerung der erzeugten Teilpulse zueinander variiert werden.

Mittels einer Linse ($f = 40 \text{ mm}$) wird dieser Teilstrahl dann über einen für den Spektralbereich des fs-Lasersystems hochreflektiven Spiegel durch eine zentrale, freie Fläche im Szintillatormaterial auf die Probenposition fokussiert. Im Experiment betrug die Pulsennergie $12 \mu\text{J}$ und die Spotgröße an der Probenposition war $160 \mu\text{m}$. Anstelle einer Probe befindet sich in diesem Fall ein TEM Gitter mit einer Stegbreite von $26 \mu\text{m}$ und einer Lochgröße von $101 \mu\text{m}$. Das Gitter hat einen Durchmesser von 3 mm .

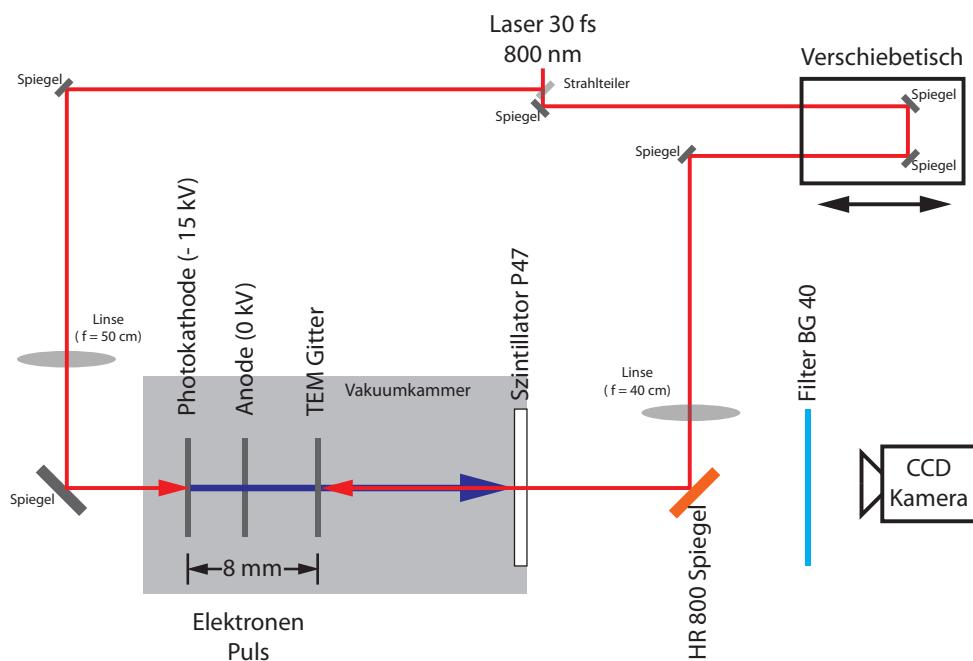


Abbildung 3.28.:

Der Aufbau zur Bestimmung der Zeitnull am Ort der Probe. Der fs Laser wird durch einen Strahlteiler in zwei Strahlengänge aufgeteilt. Der eine Teil des Strahls wird zur Generierung des Elektronenpulses verwendet (links). Der zweite Strahlengang (rechts) wird über einen Verschiebetisch geleitet, um die Verzögerung der Pulse der beiden Strahlengänge gegeneinander einzustellen. Durch eine Linse ($f = 40 \text{ mm}$) und einen für 800 nm hochreflektierenden Spiegel wird dieser zweite Strahlengang auf ein TEM Gitter fokussiert, welches anstelle der Probe in die Anlage eingebracht wurde. Die fs-Laserpulse erzeugen hier eine transiente Raumladungsverteilung, die bei zeitlichem und räumlichen Überlapp mit den Elektronenpulsen, diese ablenkt. Die Ablenkung der Elektronenpulse wird über die CCD Kamera detektiert.

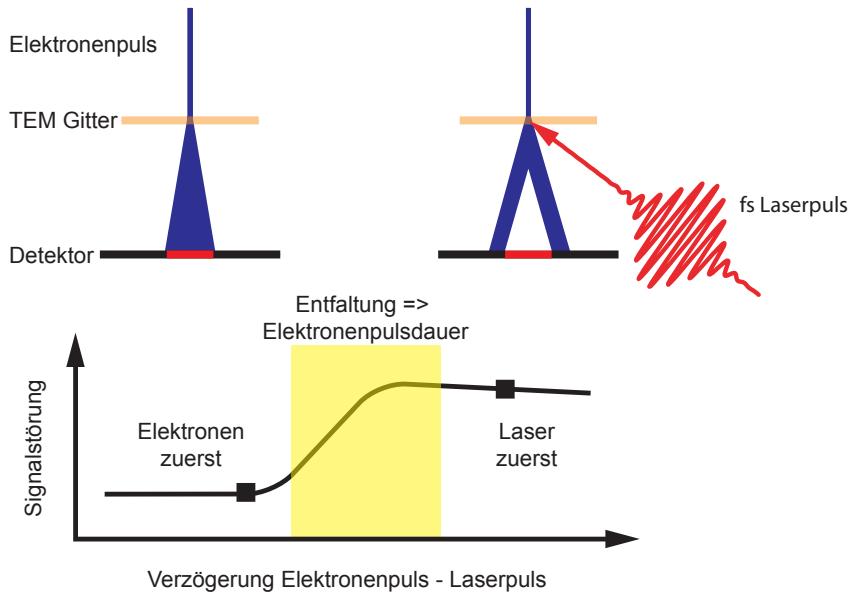


Abbildung 3.29.:

links: Bestimmung des Integrationsfensters (rot) zur Messung der Korrelation der Elektronenpulse mit einer transienten Raumladung. Bei ungestörter Propagation des Elektronenpulses durch das Gitter wird der phosphorizierende Szintillatorbereich als Integrationsfenster definiert. **rechts:** Bei zeitlichem Überlapp zwischen dem Erzeugungsschuss und dem Elektronenpuls wird der Elektronenpuls abgelenkt und das integrierte Signal nimmt ab. Über eine Entfaltung des Abfalls des integrierten Signals kann die Elektronenpulsdauer abgeschätzt und die Zeitnull bestimmt werden.

Der räumliche Überlapp der Elektronenpulse und des Korrelationsstrahls wird dabei sichergestellt, indem der Korrelationsstrahl so eingekoppelt wird, dass er auf dem hochreflektiven 800 nm Spiegel und dem Einkoppelspiegel des Erzeugungsstrahls mit diesem räumlich überlappt. Die Elektronenpulse werden mit der, in 3.2.2 beschriebenen, Szintillator / CCD Kamera Kombination detektiert. Die Verzögerung des Korrelationsstrahls über den Verschiebetisch und die Detektion, sowie Mittelung und Maskierung des Elektronensignals auf dem Szintillator wird mit dem Programm *ElectronLaserCorrelationScan(ELCS).vi* durchgeführt.

Zuerst wird ein Bild des ungestörten Elektronenpulses aufgenommen. Anhand dieses Bildes wird der Bereich der auftreffenden Elektronen als Integrationsfenster definiert (vgl. Abb. 3.29 links). Anschließend wird in Abhängigkeit der Verzögerung zwischen Korrelations- und Erzeugungsstrahl das über das Integrationsfenster aufsummierte Signal aufgezeichnet. Wie im vorigen Teilabschnitt beschrieben, ist für den Fall des zeitlichen Überlapps der Elektronenpulse mit der, durch den Korre-

lationsstrahl am Ort des TEM Gitters erzeugten, Elektronendichte ein niedrigeres Summensignal zu erwarten, als im ungestörten Fall (siehe Abb. 3.29 rechts). Im Experiment war die Schrittweite, mit der die Verzögerung der beiden Pulse zueinander eingestellt wurde, 2,5 ps. Aufgrund dieser Schrittweite kann in der Auswertung von einem nahezu instantanen Aufbau der transienten Raumladung ausgegangen werden. Diese relativ grobe Schrittweite ist aufgrund der hohen Elektronenanzahl pro Puls (ca. 10^6) möglich. Für diese Elektronenanzahlen sind nach dem MFM und TDM Elektronenpulsdauern im Bereich von 10 ps zu erwarten. Außerdem war bei kleineren Schrittweiten keine ausreichende Strahlpositionsstabilität des Anregungslasers über die gesamte Dauer einer Messung gegeben.

Experimentelle Ergebnisse

Zur Bestimmung der Elektronenpulsdauer und der Zeitnull zwischen Korrelatonspuls und Elektronenpuls wurde die Verzögerung zwischen beiden Pulsen, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben, in 2,5 ps Schritten variiert und das integrierte Signal aufgenommen. Dies wurde sechsmal durchgeführt und der Mittelwert der Messwerte wurde für jeden Verzögerungsschritt bestimmt.

Das Ergebnis ist in Abb. 3.30 gezeigt. Negative Verzögerungen bedeuten, dass der Elektronenpuls vor dem Laserpuls auf das TEM Gitter trifft. Von links und von rechts wurden Fehlerfunktionen angepasst. Die von links angepasste Fehlerfunktion wurde anschließend differenziert, um über die Breite der sich ergebenden Gaußfunktion eine Abschätzung für die Elektronenpulsdauer und den zeitlichen Überlapp zu erhalten. Das Maximum dieser Funktion entspricht dem zeitlichen Überlapp. Die Elektronenpulsdauer, die FWHM der Gaußfunktion, wurde zu 11 ± 3 ps bestimmt.

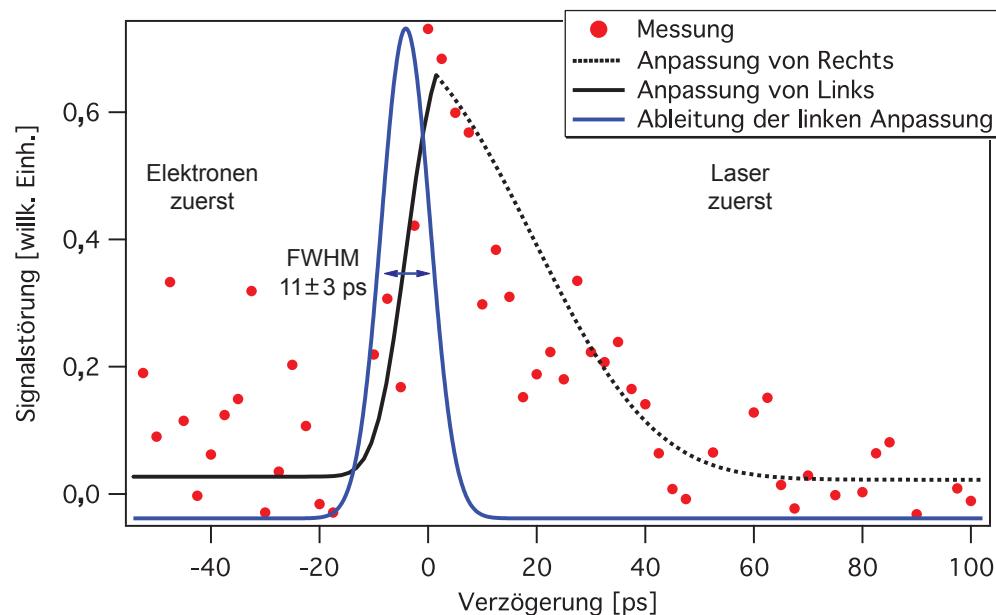


Abbildung 3.30.:

Bestimmung der Zeitnull und der Elektronenpulsdauer. Die Mittelung von 6 Einzelmessungen ist als rote Punkte dargestellt. Von Links (durchgezogene Linie) und Rechts wurden Fehlerfunktionen angepasst. Die FWHM der Ableitung der linken Anpassung gibt ein Maß für die Elektronenpulsdauer und bestimmt die Zeitnull (siehe Abschnitt 3.4.6 zur Korrelation mit einer transienten Raumladung). Bei der gezeigten Messung ist die FWHM der Ableitung 11 ± 3 ps. Dies ist eine obere Grenze für die Elektronenpulsdauer.

Der Einfluss eines von einer Stufenfunktion abweichenden Verlaufs der Änderungen des Szintillatorbildes ist in Abb. 3.31 gezeigt. Hier wurden als abweichende Faltungsfunktionen, aufgrund des Kurvenverlaufs in Abb. 3.30, ein symmetrisches Dreieck mit einer Anstiegs- und Abfallzeit von 20 ps und ein asymmetrisches Dreieck mit einer Anstiegszeit von 3 ps und einer Abfallzeit von 20 ps angenommen (siehe Abb. 3.31(a)). Diese wurden mit einer 11 ps (FWHM) breiten Gaußfunktion gefaltet. Anschließend wurde jeweils von links eine Fehlerfunktion angepasst und deren Ableitung bestimmt (siehe Abb. 3.31(b)). Die zum Vergleich auch verwendete Stufenfunktion reproduziert die Eingangsfunktion mit einer Pulsdauer von 11 ps. Die asymmetrische Dreiecksfunktion ergibt eine Pulsdauer von 9 ps und die symmetrische Dreiecksfunktion 15 ps. Demzufolge kann der durch die unterschiedlichen Korrelationsfunktionen eingebrachte Fehler mit ca. 3 ps. abgeschätzt werden.

Die Pulsdauer von 11 ps ist im Vergleich zu den in Abschnitt 3.4.5 durch die Modelle vorhergesagten Pulsdauern in sehr guter Übereinstimmung mit dem TDM, während die Abschätzung durch das MFM mit 9 ps einen um 20% kleineren Wert ergibt. Der langsame Abfall der Signalstörung (entsprechend einem Anstieg des integrierten Signals auf den ungestörten Wert) beschreibt den langsameren Abbau der, durch den Korrelationspuls erzeugten, transienten Raumladung an der Gitteroberfläche.

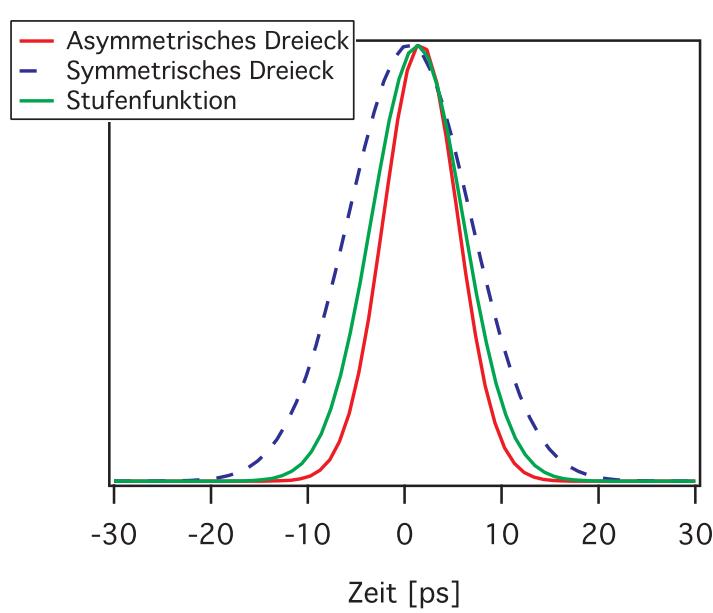
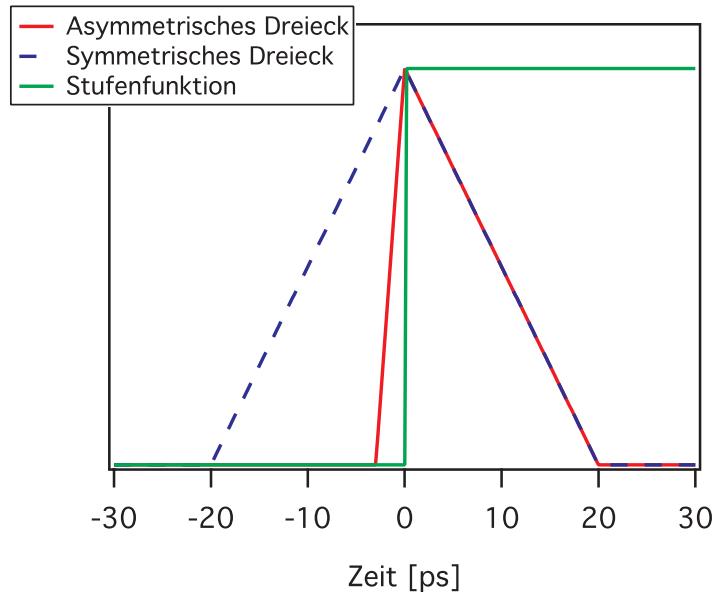


Abbildung 3.31.:

(a) Von der Stufenfunktion (grün) abweichende Faltungsfunktionen: symmetrisches Dreieck (blau), asymmetrisches Dreieck (rot) (b) Durch Anpassung einer Fehlerfunktion und deren Ableitung bestimmte Gaußpulse, basierend auf der Faltung eines 11 ps Gaußpulses mit einer Stufenfunktion (grün), einem symmetrischen Dreieck (blau) und einem asymmetrischen Dreieck.

3.4.7. Zusammenfassung

In diesem Abschnitt wurde aufbauend auf der Diskussion zur Elektronenerzeugung im vorherigen Abschnitt die Propagation von Elektronenpulsen durch die ULEB untersucht.

Basierend auf dem Ergebnis, dass der dominierende Prozess bei der Elektronenpulserzeugung die direkte Photoemission ist, wurde die Annahme einer „stufenförmigen“ Energieverteilung der erzeugten Elektronen begründet. Diese Energieverteilung, bzw. ihre Kenngrößen, wie die Energiebreite ΔE gehen in die theoretischen Beschreibungen der Elektronenpropagation ein.

Hierzu wurden drei verbreitete, analytische Modelle und eine Monte-Carlo Simulation vorgestellt. Das Cold-Fluid-Model ist das einfachste und wurde zur Beschreibung der Propagation im Beschleunigungsbereich verwendet. Das Mean-Field-Model und das Two-Dimensional-Model sind Erweiterungen dieses einfachen Modells und wurden zur Beschreibung des Beschleunigungsbereichs eingesetzt. Die Simulation wurde entwickelt, um den Einfluss unterschiedlicher Elektronenpulsformen, wie sie im vorherigen Abschnitt eingeführt wurden, auf die Pulsdauer des Elektronenpulses zu untersuchen. Dies ist aufgrund der notwendigen Rechenzeit jedoch nur für Elektronenpulse mit weniger als 10000 Elektronen möglich. Für diese Elektronenzahlen wurde ein Vergleich zwischen Simulation und Modellen für einen ungeformten Elektronenpuls durchgeführt. Im Beschleunigungsbereich zeigt sich, dass das einfache CFM die Elektronenpulsdauer gegenüber der Simulation um einen Faktor $1,26 \pm 0,02$ überschätzt (siehe Abb. 3.23). Um einen gleichen Ausgangspunkt für MFM und TDM, sowie die Simulation im Driftbereich zu haben, wurden die Pulsdauern der Simulation am Ende der Beschleunigungsstrecke als Startpunkt für das MFM und TDM verwendet. Die beiden Modelle liefern für die verwendeten Parameter identische Ergebnisse. Die Übereinstimmung zwischen den Simulationsergebnissen und den Modellen ist sehr gut (siehe Abb. 3.25). Für die angestrebten Parameter der nächsten Entwicklungsstufe der ULEB, d.h. 30 kV Beschleunigungsspannung, 5000 - 10000 Elektronen, ergeben die Modelle und die Simulation eine Pulsdauer von ca. 500 fs am Probenort.

Der Einfluss von unterschiedlichen Elektronenpulsformen am Anfang der Propagationsstrecke wurde mit der Simulation für 5000 Elektronen pro Puls untersucht. Ein Einfluss der verwendeten Pulsformen (siehe Abb. 3.9) konnte bei diesen Elektronendichten nicht festgestellt werden (siehe Abb. 3.26).

Um eine Vorhersage für die Elektronenpulsdauer bei den momentanen Bedingungen, d.h. 15 kV Beschleunigungsspannung und ca. 10^6 Elektronen pro Puls, zu erhalten, wurden TDM und MFM auch für diese Parameter ausgewertet. In diesem Fall unterscheiden sich die Modelle in ihren Ergebnissen für das Ende der Propagationsstrecke um 20 % (siehe Abb. 3.27). Während das MFM eine Pulsdauer von ca. 9 ps vorhersagt, liefert das TDM eine Pulsdauer von ca. 11 ps.

Im Anschluss wurden drei Methoden zur Bestimmung der Pulsdauer von Elektronenpulsen vorgestellt. Hierbei handelt es sich um Korrelationsexperimente, bei denen der Elektronenpuls einmal mit einer Replika seiner selbst, einmal mit einem ultrakurzen Laserpuls, oder einmal mit einer transienten Raumladung korreliert wird. Von diesen Methoden wurde die Korrelation mit einer transienten Raumladung ausgewählt und experimentell durchgeführt. Das Experiment lieferte ein Pulsdauer von $11 \text{ ps} \pm 3 \text{ ps}$. Dies ist in sehr guter Übereinstimmung mit der Voraussage des TDM.

3.5. Statische Elektronenbeugung

Nachdem im vorhergehenden Abschnitt die Zeitstruktur der Elektronenpulse der geplanten Beugungsexperimente beleuchtet wurde, wird in diesem Abschnitt auf die Elektronenbeugung an der Probe eingegangen. Zunächst wird in Abschnitt 3.5.1 kurz die notwendige Theorie der statischen Elektronenbeugung eingeführt. Anschließend wird in 3.5.2 der experimentelle Aufbau, der zur Aufnahme der Beugungsbilder verwendet wurde, beschrieben. Die Ergebnisse werden in Abschnitt 3.5.3 präsentiert. Zum Abschluss folgt eine Zusammenfassung in Abschnitt 3.5.4.

3.5.1. Theorie

In diesem Teil wird auf die Theorie zur Elektronenbeugung eingegangen. Zunächst wird mit einem Überblick über Kristallgitter und den reziproken Raum ein Ausflug in die Kristallographie unternommen. Es folgt eine kurze Beschreibung der für die Experimente notwendigen Konzepte der elastischen Streuung²³. Abschließend wird auf Eindringtiefe und Transmission der Elektronen in eine Probe eingegangen.

Kristallgitter und der reziproke Raum

Im Experiment wurden Messungen an Aluminium, bzw. Aluminiumoxid durchgeführt. Die Kristallstruktur von Aluminium ist eine fcc Struktur²⁴ [100] (siehe Abb. 3.32(a)). Bei Aluminiumoxid handelt es sich um eine Korundstruktur. Dabei bilden die Sauerstoffionen eine hexagonal dichteste Kugelpackung, bei der in 2/3 der Oktaederlücken ein Aluminiumion sitzt. In Abb. 3.32(b) ist diese basierend auf einem trigonalen Kristallgitter mit einer zehnatomigen Basis (4 Al, 6 O) und den Gitterkonstanten $a = 3,621 \text{ \AA}$ und $c = 0,257 \text{ \AA}$ dargestellt [101].

Jeder Gittervektor \vec{r}_n des Gitters im Ortsraum lässt sich als Linearkombination der Translationsvektoren der Einheitszelle \vec{a} , \vec{b} und \vec{c} schreiben. Dies kann für den reziproken Raum ganz analog geschehen [4]:

$$\vec{r}_n = n_1 \vec{a} + n_2 \vec{b} + n_3 \vec{c} \quad (3.33)$$

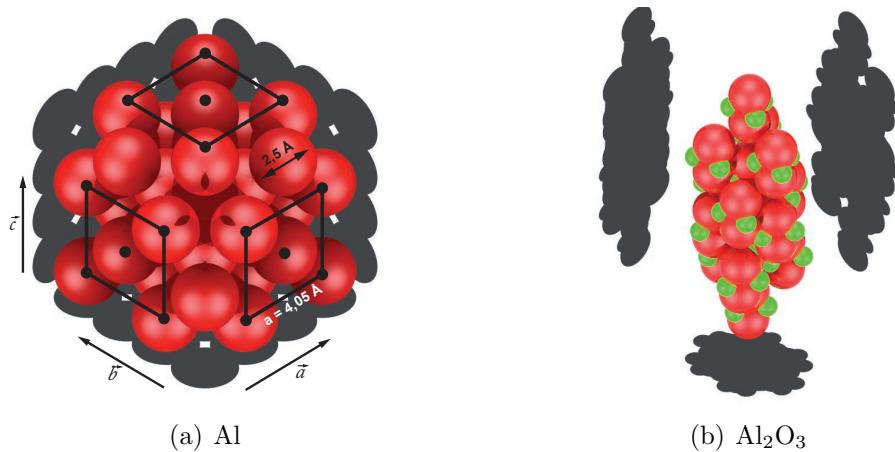
$$\vec{r}_n^* = m_1 \vec{a}^* + m_2 \vec{b}^* + m_3 \vec{c}^* \quad (3.34)$$

Hierbei sind die Vektoren im reziproken Raum durch * gekennzeichnet. Die Faktoren n_i und m_i sind jeweils ganze Zahlen. Die Einheitsvektoren des reziproken Raums sind so definiert, dass gilt:

$$\vec{a}^* = \frac{\vec{b} \times \vec{c}}{V_c} \quad \text{mit} \quad V_c = \vec{a} \cdot (\vec{b} \times \vec{c}) \quad (3.35)$$

²³... eine detaillierte Beschreibung findet sich in den einschlägigen Lehrbüchern, wie z.B. [43]

²⁴... Face Centered Cubic

**Abbildung 3.32.:**

Kristallstrukturen der verwendeten Kristalle. (a) fcc Struktur von Aluminium mit der Gitterkonstante $a = 4,05 \text{ \AA}$ [100] und einem Atomdurchmesser von $2,5 \text{ \AA}$ [102]. (b) Korundstruktur von Al_2O_3 . Es handelt sich um eine trigonale Struktur mit einer 10 Atome (4 Al (rot), 6 O (grün)) enthaltenden Basis.

Dabei ist V_c das Volumen der Einheitszelle. Es ist zu erkennen, dass \vec{a}^* senkrecht auf der von \vec{b} und \vec{c} aufgespannten Ebene steht. Die Definition gilt analog für die beiden anderen Translationsvektoren des reziproken Raums

$$\vec{b}^* = \frac{\vec{c} \times \vec{a}}{V_c} \quad \text{und} \quad \vec{c}^* = \frac{\vec{a} \times \vec{b}}{V_c} \quad (3.36)$$

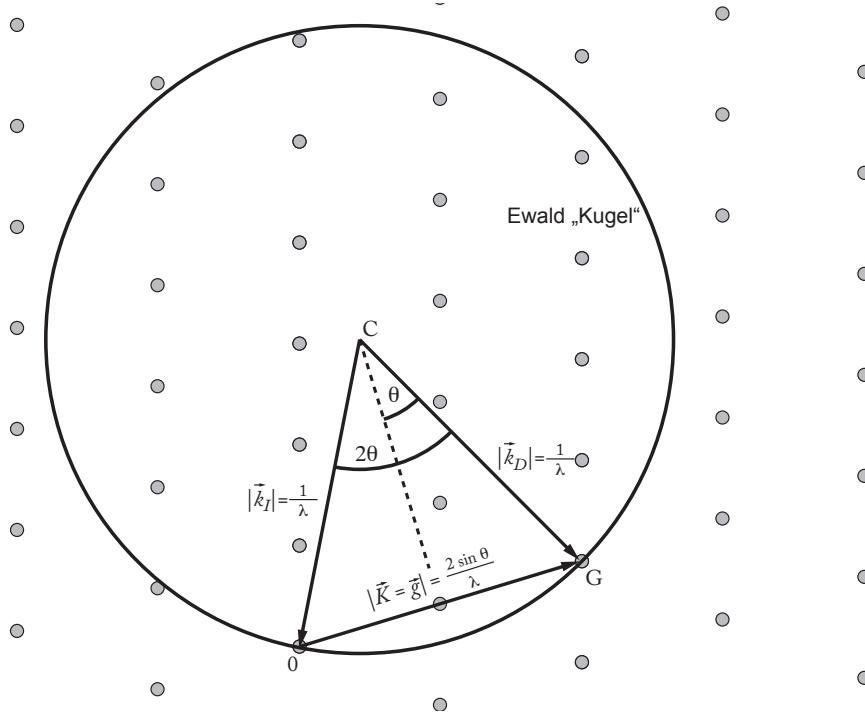
Üblicherweise wird der Gittervektor \vec{g}_{hkl} folgendermaßen definiert

$$\vec{g}_{hkl} = h\vec{a}^* + k\vec{b}^* + l\vec{c}^* \quad (3.37)$$

Die Zahlen h, k und l sind die Millerindizes der Ebene (hkl) , welche die Einheitsvektoren der a , b und c Achse bei $1/h$, $1/k$ und $1/l$ schneidet. Die Länge des Gittervektors ist durch den Abstand zweier paralleler (hkl) Ebenen d_{hkl} gegeben

$$d_{hkl} = \frac{1}{|\vec{g}_{hkl}|} \quad (3.38)$$

Im folgenden wird die hkl Indizierung weggelassen. Gittervektor und Gitterebenenabstand $d = \frac{1}{|\vec{g}|}$ bezeichnen dann eine beliebige Ebenenkonfiguration.

**Abbildung 3.33.:**

Schnitt durch die Ewaldkugel und das reziproke Gitter. Im reziproken Raum dient die Ewaldkugel als Hilfe zur Identifizierung der Beugungsmaxima unter der Annahme elastischer Streuung. Der Wellenzahlvektor der einfallenden Elektronenwelle \vec{k}_i dient zur Konstruktion der Ewaldkugel (siehe z.B. [4]). Alle Gitterpunkte des reziproken Gitters, die die Ewaldkugel schneiden können zum Beugungsbild beitragen. Exemplarisch sind die, für die Bragg- und die Lauebedingung, wichtigen Größen, wie der Streuvektor \vec{K} , der Gittervektor \vec{g} , der Wellenzahlvektor der gestreuten Elektronenwelle \vec{k}_d und der halbe Beugungswinkel θ eingezeichnet.

Beugungsbedingung und -intensität

Die Streuung an einem Gitter kann durch die Laue-, oder die Braggsbedingung beschrieben werden. Hierzu wird im reziproken Raum der Wellenzahlvektor \vec{k}_i der einfallenden Elektronenwelle betrachtet. Die Elektronenwelle wird in diesem Fall vereinfacht als ebene Welle angenommen. Die Länge des Wellenzahlvektors ist gegeben durch die Wellenlänge λ der Elektronenwelle

$$|\vec{k}_i| = \frac{1}{\lambda} \quad \text{mit } \lambda = \frac{h}{\sqrt{2m_e e V_0}} \quad (3.39)$$

Hier ist m_e die Elektronenmasse, h das Planck'sche Wirkungsquantum und V_0 die Beschleunigungsspannung. Für die im Experiment verwendeten Beschleuni-

gungsspannungen von ≤ 16 kV können relativistische Effekte noch vernachlässigt werden. Die Wellenlänge der Elektronen liegt hier im Bereich von ca. 10 pm. Der Wellenzahlvektor der gestreuten Elektronenwelle wird mit \vec{k}_d bezeichnet. Da für diese einfache Betrachtung von elastischer Streuung ausgegangen wird, gilt für die Länge $|\vec{k}_d|=|\vec{k}_i|$. Der Streuvektor \vec{K} ergibt sich aus

$$\vec{K} = \vec{k}_d - \vec{k}_i = \xi \vec{a}^* + \eta \vec{b}^* + \chi \vec{c}^* \quad (3.40)$$

Mit diesen Definitionen lässt sich die Laue-Bedingung für konstruktive Interferenz der gestreuten Wellen als

$$\vec{K} = \vec{g} \quad (3.41)$$

schreiben. Der Streuvektor muss also mit einem Gittervektor übereinstimmen. Die möglichen Streuvektoren können durch Konstruktion über die Ewaldkugel bestimmt werden (siehe Abb. 3.33). Alle Gitterpunkte des reziproken Gitters, die diese Kugel schneidet, können zum Beugungsbild beitragen. Da der Radius der Ewaldkugel $1/\lambda$ ist, wird eine weitere Eigenschaft der Elektronenbeugung deutlich. Während der Radius der Ewaldkugel für Röntgenwellen in der Größenordnung von $1/d \approx 1 \text{ \AA}^{-1}$ liegt, ist der Radius für Elektronenwellen selbst bei den verwendeten niedrigen Beschleunigungsspannungen mit ca. 10 \AA^{-1} deutlich größer und kann somit mehr Punkte des reziproken Gitters schneiden, die dann zum Beugungsbild beitragen.

Der Winkel zwischen \vec{k}_i und \vec{k}_d ist der Streuwinkel 2θ . Die Braggbedingung verknüpft diesen Winkel mit dem Gitterebenenabstand d und der Elektronenwellenlänge λ .

$$\lambda = 2d \sin \theta \quad (3.42)$$

Für jede Kombination aus Gitterebenenabstand und λ ergibt sich ein Winkel, unter dem konstruktive Interferenz entsteht. Dieser Winkel wird auch als Braggwinkel bezeichnet.

Für Einkristalle ergeben sich diskrete Beugungsmaxima. Für polykristalline Proben ergeben sich durch die unterschiedliche Orientierung der einzelnen Ausrichtungsdomänen ringförmige Beugungsmuster. Während für große Korngrößen die Ringe noch erkennbar aus einzelnen Punkten bestehen, nimmt die Strukturierung der Ringe mit abnehmender Korngröße ab (vgl. [4] Seite 274). Die verwendete Probe ist eine polykristalline Probe mit geringen Korngrößen, so dass keine einzelnen Beugungspunkte, sondern Beugungsringe zu erwarten sind.

Der Radius a eines Beugungsrings auf dem Szintillator und die effektive Kamerалänge l (näherungsweise der Abstand Probe-Szintillator) sind mit dem zugehörigen Braggwinkel über die folgende Gleichung verbunden

$$\tan(2\theta) = \frac{a}{l} \quad (3.43)$$

Eindringtiefe und Transmission

Der atomare Streufaktor $f(\theta)$ beschreibt die Amplitude der an einem isolierten Atom gestreuten Elektronenwelle. Für den differentiellen Streuquerschnitt des Atoms gilt:

$$\frac{d\sigma(\theta)}{d\Omega} = |f(\theta)|^2 \quad (3.44)$$

Die in den Winkel θ gestreute Intensität ist demzufolge proportional zu $|f(\theta)|^2$. Um einen Eindruck von den Trajektorien in der Probe zu erhalten, wurde auf Basis des modifizierten Rutherfordschen Streuquerschnitts [4]

$$\frac{d\sigma(\theta)}{d\Omega} = \frac{\lambda^4 Z^2}{64\pi^4 a_0^2 \left(\sin^2 \frac{\theta}{2} + \left(\frac{\theta_0}{2} \right)^2 \right)^2} \quad (3.45)$$

eine Monte-Carlo Simulation entwickelt²⁵. In (3.45) ist Z die Ordnungszahl des streuenden Atoms, a_0 der Bohrradius und nach [4]

$$\theta_0 = \frac{0,117 Z^{\frac{1}{3}}}{E_0^{\frac{1}{2}}} \quad (3.46)$$

der Abschirmungsparameter. Die mittlere freie Weglänge λ_m zwischen zwei Streuergebnissen ist gegeben durch [4]

$$\lambda_m = \frac{m_a}{N_A \sigma_t \rho}, \quad (3.47)$$

Hierbei ist m_a das Atomgewicht, ρ die Dichte der Probe, N_A die Avogadrozahl und σ_t der totale Streuquerschnitt für ein isoliertes Atom. Für Aluminium bei 15 kV Beschleunigungsspannung ergibt sich eine mittlere freie Weglänge von 18 nm. Die Reichweite der Elektronen in Aluminium kann aus [103] aus Tafel 1.6.1.1 bestimmt werden und beträgt ca. 3 μm .

In Abb. 3.34 sind exemplarisch die Trajektorien für 1000 Elektronen durch eine 100 nm dicke Aluminium Probe nach einer Beschleunigung mit 15 kV gezeigt. Wechselwirkungen der Elektronen untereinander wurden vernachlässigt. Als Simulationsschrittweite wurde eine Flugstrecke von 1 nm für die einzelnen Elektronen verwendet. In Abb. 3.34(a) starten die Elektronen alle am gleichen Eintrittspunkt in die Probe. Die Streuung führt zu einer deutlichen Verbreiterung der Elektronenverteilung am Austritt (ca. 30 nm Radius). In Abb. 3.34(b) starten die Elektronen an den Orten, die sie nach der Propagation von der Kathode zur Probe in der ULEB haben. Aufgrund des großen Durchmessers der Eingangsverteilung (ca. 200 μm) ist die Verbreiterung von bis zu 80 nm (vgl. Abb. 3.34(a)) vernachlässigbar. Von den eintretenden Elektronen werden in beiden Fällen ca. 90 % transmittiert.

²⁵... *UED_MonteCarloScatterSim-v2.vi*

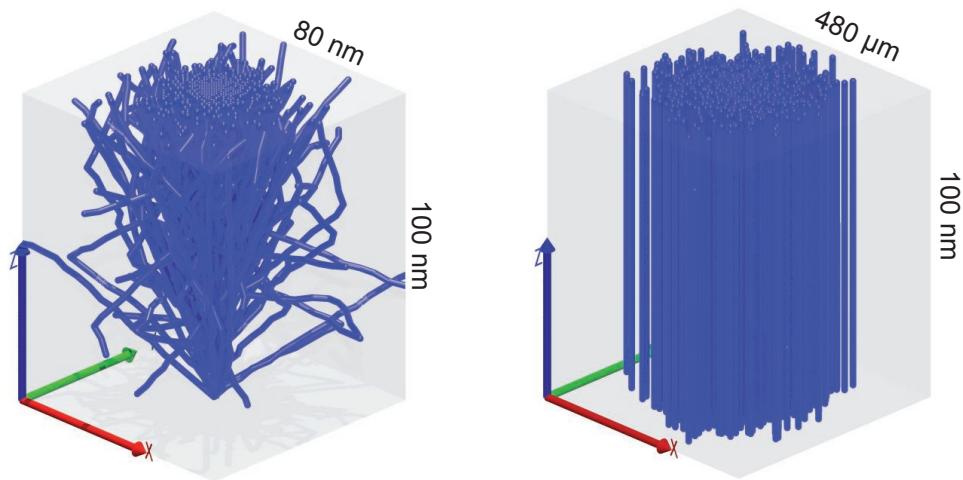


Abbildung 3.34.:

Trajektorien von 1000 Elektronen durch eine Aluminium Probe mit einer Dicke von 100 nm. Der Ort der Einzelelektronen nach jedem 5. Propagationsschritt ist gezeigt. **(a)** Die Trajektorien beginnen alle in der xy-Ebene am Ursprung und propagieren entlang der z-Richtung. **(b)** Nach Simulation der Propagation des Elektronenpulses durch die ULEB. Zu beachten sind die stark unterschiedlichen Skalierungen der Achsen. Die Streuprozesse haben in diesem Fall keinen signifikanten Einfluss auf die Austrittsbreite. In (a) und (b) werden jeweils ca. 90 % der Elektronen transmittiert.

3.5.2. Experimenteller Aufbau

Als experimenteller Aufbau dient der in Abschnitt 3.2.2 vorgestellte Aufbau. Die Laserpulsenergie betrug ca. $8 \mu\text{J}$. Das Strahlprofil auf der Fokussierungslinse hatte eine elliptische Form. Die Hauptachse hatte eine Länge von 13 mm und die Nebenachse eine Länge von 6 mm (vgl. auch Abb. 3.6).

Um die Einkopplung des Lasers zu erleichtern wurden die von der Probe absorbierten Elektronen mit einem Pikoamperelementer *Keithley 480* gemessen. Die mit einem *Ophir NOVA2* mit einem zugehörigen Photodiodenkopf *PD300* gemessene Laserleistung vor der Fokussierungslinse war 9 mW. Zunächst wurde der Laser so eingekoppelt, dass der Stromfluss durch das Pikoamperelement maximal wurde. Anschließend wurde noch eine Feinjustage vorgenommen. Hierbei wurde die Einkopplung des Lasers so angepasst, dass auf dem Szintillator maximale Phosphoreszenz erreicht wurde. Als Probe kam ein 31,2 nm dicker, polykristalliner Aluminiumbeugungsstandard S108 der Firma *Plano* zum Einsatz.

Die CCD Kamera wurde mit dem *LuCam* Programm des Kameraherstellers ausgelesen. Hier wurde ein Gammawert von 1, und ein Verstärkungsfaktor von

5 eingestellt. Bei höheren Verstärkungen ist das thermische Rauschens der ungekühlten CCD Kamera zu stark. Über das Steuerprogramm wurde die Kamera in den 16 Bit Modus versetzt. Die Integrationszeiten der Kamera wurden im Bereich zwischen 10 Sekunden und einer Minute variiert. Zusätzlich wurden auch unterschiedliche Beschleunigungsspannungen eingesetzt. Für jeden Parametersatz aus Beschleunigungsspannung und Integrationszeit wurde auch ein Bild bei 0 kV Beschleunigungsspannung aufgenommen. Dieses Bild zeigt nur Elemente, die durch die Laserphotonen erzeugt werden, die durch die komplette Anlage inkl. Szintillator propagieren und anschließend die CCD Kamera treffen. Zusätzlich zeigt dieses Bild auch noch den Einfluss des restlichen Umgebungslichtes.

Die Datenanalyse wurde mit dem Programm *quickdiff.vi* und *IGOR Pro* durchgeführt und im folgenden Abschnitt beschrieben.

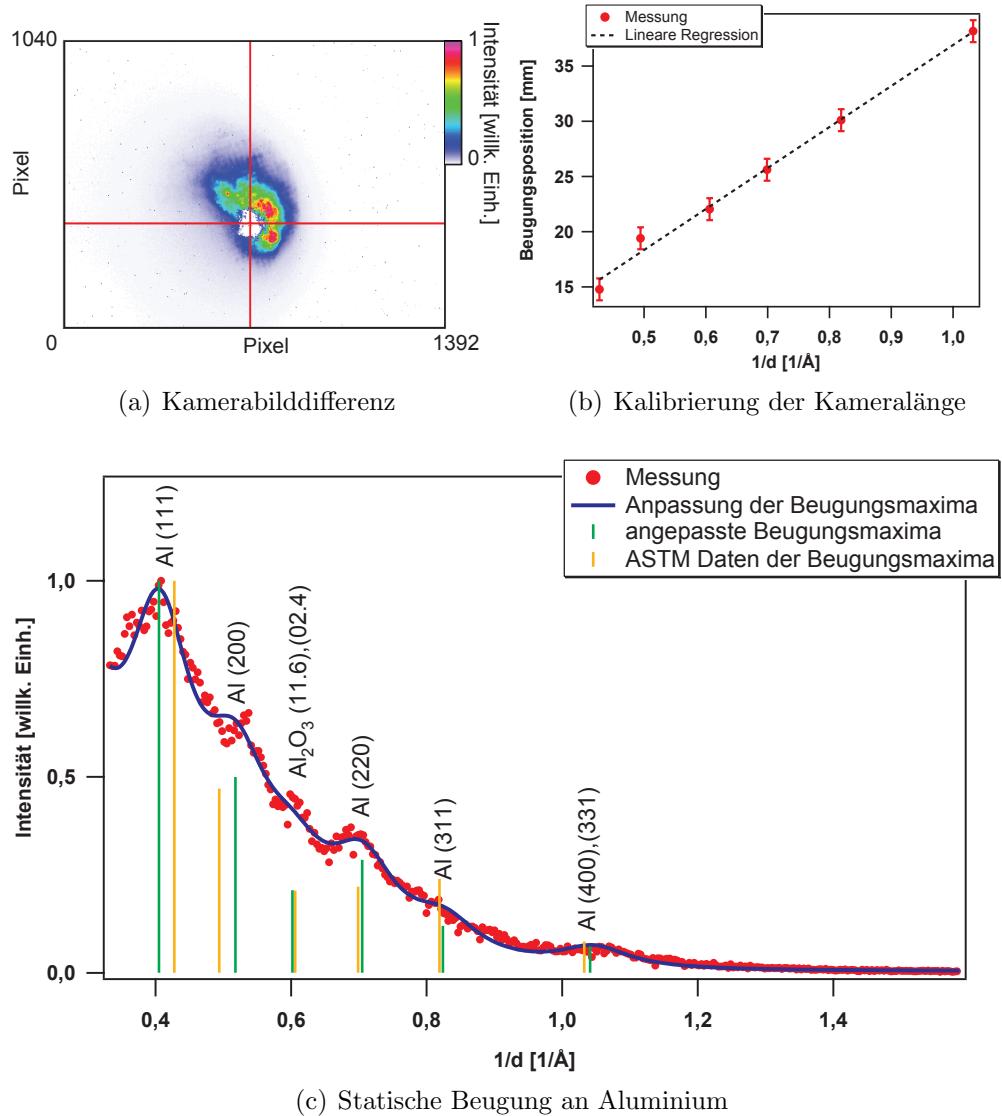
3.5.3. Experimentelle Ergebnisse

Die im folgenden gezeigten Daten wurden mit einer Beschleunigungsspannung von 15 kV bei einer Integrationszeit der Kamera von 60 Sekunden erzielt. Die Integrationszeit ist die maximal mögliche Zeit, bei der die ungebeugten Elektronen und die residualen Laserphotonen bei der gegebenen Verstärkung die CCD Kamera gerade sättigen.

Mit den angegebenen Parametern wurden zwei Beugungsbilder, sowie ein Bild bei 0 kV aufgenommen. Aufgrund der Schwankungen der Laserstrahlrichtung ist eine Verwendung von mehr als zwei Beugungsbildern nicht möglich. Von jedem der beiden Einzelbilder wurde das 0 kV Bild abgezogen und anschließend die Summe der beiden Differenzbilder gebildet. Parallel wurde in den Einzelbildern ohne Abzug des 0 kV Bildes der Mittelpunkt der Intensitätsverteilung durch das Maximum bestimmt. Das Ergebnis dieser Bearbeitungsschritte ist in Abb. 3.35(a) gezeigt. Anschließend wurde das in Abb. 3.35(a) gezeigte Bild radial um den Mittelpunkt aufsummiert²⁶.

Das Ergebnis ist in Abb. 3.35(c) in Rot gezeigt. Über die bekannten Beugungsmaxima der Gitterebenen von Aluminium [104] und die bekannte Länge zwischen Probe und Szintillator, wurden die zu erkennenden Beugungsmaxima den entsprechenden Gitterebenen zugeordnet. Anschließend wurde aus dem erwarteten inversen Gitterebenenabstand $1/d$ und dem Abstand a der Beugungsmaxima vom Mittelpunkt die Kameralänge l bestimmt. Hierzu wurde eine lineare Regression durchgeführt (siehe Abb. 3.35(b)). Unter Annahme der Kleinwinkelnäherung gilt mit der Braggbedingung (3.42) und (3.43)

²⁶... Pixel mit gleichem Abstand zum bestimmten Mittelpunkt wurden jeweils aufsummiert

**Abbildung 3.35.:**

(a) Bearbeitung der Kamerabilder. Gezeigt ist die Summe zweier Beugungsbilder bei 15 kV Beschleunigungsspannung und 60 Sekunden Integrationszeit, nachdem von beiden das Bild ohne Beschleunigungsspannung abgezogen wurde. Der Mittelpunkt ist durch das rote Kreuz gekennzeichnet. (b) Bestimmung der Kameralänge. Die Steigung des Abstands a der Beugungsmaxima in Abhängigkeit vom inversen Gitterebenenabstand $1/d$ ist $l\lambda = 37,1 \text{ mm } \text{\AA}$. Mit $\lambda(15 \text{ kV}) = 0,0994 \text{ \AA}$ ist die Kameralänge $(37,3 \pm 0,3) \text{ cm}$. (c) Messung zur statischen Beugung an Aluminium. Das Signal der polykristallinen Probe wurde radial um den direkten Strahl aufsummiert. Dieser Teil ist aufgrund der Sättigung der Kamera in diesem Bereich nicht gezeigt. Auf der Abszisse ist der reziproke Gitterabstand d^{-1} aufgetragen. Die angepassten Intensitäten und Positionen der Beugungsmaxima (grün) und deren erwartete Positionen und Intensitäten (orange) sind eingezeichnet. In Blau ist die Summe der Gaußkurven der einzelnen angepassten Beugungsmaxima dargestellt. Die zu den Beugungsmaxima zugehörigen Gitterebenen sind eingetragen. Die Intensitäten sind auf die Intensität des Al(111) Maximums normiert. Die Intensität des Al₂O₃ Maximums wurde gleich dem gemessenen Wert gesetzt.

$$a = l\lambda \frac{1}{d} \quad (3.48)$$

Mit einer linearen Regression wurde $l\lambda$ zu 37,1 mm Å bestimmt. Die Elektronenwellenlänge λ bei 15 kV Beschleunigungsspannung ist 0,0994 Å. Damit ergibt sich eine Kameralänge von $(37,3 \pm 0,3)$ cm.

In Abb. 3.35(c) ist zusätzlich zur Messung auch eine Anpassung der Messkurve durch mehrere Beugungsmaxima gezeigt (blau). Hierzu wurde die **Multipeak Fitting** Funktion des Programms *Igor Pro 6* verwendet. Die Intensitäten und Positionen der angepassten und der erwarteten Beugungsmaxima sind zum Vergleich eingetragen. Hierbei wurden die Intensitäten auf die Intensität des Al(111) Maximums normiert. Zusätzlich zu den Beugungsmaxima des Aluminium konnte auch noch ein Maximum des Oxids Al₂O₃ identifiziert werden²⁷. Aufgrund der Lagerung an Luft ist eine ca. 4 nm dicke Oxidschicht zu erwarten [106]. Die mittlere Breite der angepassten Beugungsmaxima ist 0,03 1/Å, entsprechend ca. 3 mrad. Dementsprechend ist es bei einigen Maxima nicht möglich, diese von benachbarten Maxima anderer Netzebenen zu trennen²⁸. Lage und Intensität der angepassten Maxima stimmen mit den erwarteten Beugungsmaxima gut überein. Die mittlere Breite wird als Maß für die Auflösung im reziproken Raum verwendet.

3.5.4. Zusammenfassung

Zunächst wurden die Kristallgitter der, für die statischen Beugungsexperimente verwendeten, Proben vorgestellt und auf die Theorie zur Erzeugung der Beugungsbilder eingegangen. Anschließend wurden der experimentellen Aufbau und die Durchführung beschrieben.

An einem TEM Beugungsstandard aus polykristallinem Aluminium wurden die statischen Beugungsexperimente durchgeführt. Die experimentell bestimmten Beugungsmaxima wurde mit den Referenzdaten [104] verglichen. Der Vergleich zeigt eine gute Übereinstimmung. Die mittlere Breite der Beugungsringe wurde zu 0,03 1/Å, entsprechend 3 mrad bestimmt. Dies ist ein Maß für die Auflösung der ULEB in der momentanen Konfiguration. Mit Elektronenbeugungsmessungen in Transmissions Elektronen Mikroskopen werden Auflösungen im Bereich von 0,01 mrad erreicht [107].

Durch die Verwendung höherer Beschleunigungsspannungen, eines sensitiveren Detektors in Form einer Multi-Channel Plate/Szintillator/CCD Kamera Kombination und den Einsatz einer magnetischen Linse zur Optimierung der Abbildungseigenschaften sollte sich die Auflösung für weitere Experimente signifikant verbessern

²⁷... Zur Viererindex-Notation zur Beschreibung der Al₂O₃ Ebenen siehe [105]

²⁸... zum Beispiel beim Aluminiumoxid Maximum und bei den Al(400), Al(331) Maxima.

lassen. Jeder der drei Verbesserungspunkte ist für die zweite Entwicklungsstufe der ULEB in Planung.

3.6. Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde der Aufbau einer ultraschnellen Elektronenbeugungsanlage (ULEB) beschrieben.

Der Aufbau ist als kompaktes 6-fach Vakuumkreuz ausgeführt. In der vorgestellten ersten Entwicklungsstufe sind maximal 16 kV Beschleunigungsspannung möglich, bevor es zu Überschlägen in der Anlage kommt. Diese Spannung wird auf einen Abstand von 3,3 mm von Photokathode zu Anode angelegt. Durch Verzicht auf eine magnetische Linse war es möglich die komplette Propagationsstrecke auf 12 mm zu beschränken. Die Probe ist nicht repositionierbar. Als Detektorsystem kommt eine Kombination aus Szintillator und CCD Kamera zum Einsatz, die keine Einzelelektronendetektion zulässt.

Zunächst wurden Experimente zur Elektronenerzeugung vorgestellt, deren Messergebnisse durch eine Simulation auf Basis einer erweiterten Fowler-DuBridge Theorie reproduziert wurden. Als Emissionsprozess dominiert ein thermisch unterstützter Zwei-Photonen Prozess. Thermionische Emission kann vernachlässigt werden. Zusätzlich konnte demonstriert werden, dass zur Erklärung der Messdaten Raumladungseffekte in der Nähe der Photokathodenoberfläche berücksichtigt werden müssen. Die Pulsdauern der in Abb. 3.9 gezeigten, erzeugten Elektronenpulse liegen daher im Bereich der Pulsdauern der erzeugenden Laserpulse. Die maximale Elektronenausbeute wurde durch bandbreitebegrenzte fs-Laserpulse erreicht. Es wurden Elektronenausbeuten im Bereich von 10^6 Elektronen pro Puls erreicht.

Anschließend wurde die Propagation von Elektronenpulsen durch die ULEB diskutiert. Dies geschah anhand einer Simulation, welche es für Elektronenpulse von bis zu 10000 Elektronen ermöglicht, die Propagation von Elektronenpulsen durch die ULEB zu verfolgen. Für gaußförmige Elektronenpulse liefert die Simulation mit den Modellen aus [5] und [95] übereinstimmende Ergebnisse. Für die geplante zweite Entwicklungsstufe der ULEB mit 30 kV Beschleunigungsspannung und Elektronenpulsen mit 5000 - 10000 Elektronen sagen Simulation und Modelle eine Elektronenpulsdauer von ca. 500 fs am Probenort voraus. Zusätzlich wurde die Möglichkeit genutzt, in der Simulation unterschiedliche Anfangspulsformen für die Elektronenpulse zu verwenden. Es konnte demonstriert werden, dass die in Abb. 3.9 gezeigten Elektronenpulse keinen signifikanten Einfluss auf die Elektronenpulsdauer und -form am Probenort haben. Die Pulsdauer in der aktuellen Konfiguration mit 15 kV Beschleunigungsspannung und 10^6 Elektronen wurde von Modell aus [5] mit 9 ps abgeschätzt. Das Modell aus [95] sagt demgegenüber eine Pulsdauer von 11 ps voraus. Ein Experiment, bei dem die Elektronenpulsdauer durch Korrelation der Elektronenpulse mit einer fs-Laser erzeugten, transienten Raumladung bestimmt wurde, ergab eine Elektronenpulsdauer von 11 ± 3 ps.

Abschließend wurden Experimente zur statischen Elektronenbeugung an einem Aluminiumkalibrierstandard gezeigt. Die Beugungsmaxima konnten, im Rahmen

der Auflösung, eindeutig bestimmt werden. Für die Auflösung im reziproken Raum wurde ein Wert von $0,03 \text{ } 1/\text{\AA}$, entsprechend 3 mrad Winkelauflösung, bestimmt. Gegenüber üblichen Strukturmessungen mit Elektronenbeugung ist die Winkelauflösung um 2 Größenordnungen schlechter.

4. Zusammenfassung und Ausblick

4.1. Zusammenfassung

In dieser Arbeit wurde demonstriert, wie sich Elektronen, erzeugt durch fs-Laserpulse, zur Messung von zeitlichen und räumlichen Strukturen im konjugierten Raum eignen. Als zeitliche Strukturen wurden fs-Laserpulse vermessen, während zur Messung der räumlichen Strukturen eine Anlage zur ultraschnellen Elektronenbeugung basierend auf fs-Laseranregung aufgebaut wurde.

Da beide Teile auf der Verwendung von fs-Laserpulsen aufbauen, wurde in Kapitel 1 zunächst deren Beschreibung eingeführt. Dort wurde auch die theoretische Beschreibung der Phasenformung von fs-Laserpulsen beschrieben. Dabei wurde gezeigt, dass bereits die Modulation mit einfachen spektralen Phasen zu komplexen zeitlichen Pulsformen führen kann. Bei diesen Pulsformen versagt die gängige Definition der Pulsdauer eines fs-Laserpulses über die FWHM. Daher wurde die statistische Pulsdauer basierend auf dem zeitlichen Erwartungswert und der zeitlichen Varianz der Intensitätsverteilung eines Laserpulses eingeführt. Für diese wurde für den Fall eines Gaußpulses und einer einfachen polynomiellen Phase mit (1.46) eine analytische Beschreibung der Abhängigkeit der statistischen Pulsdauer vom aufgeprägten Phasenterm hergeleitet und anhand von Tabelle 1.1 illustriert.

Kapitel 2 demonstриerte die Messung von zeitlichen Strukturen im konjugierten Raum. Hierzu wurde zunächst die Analogie zwischen der Propagation von Materiewellenpaketen im Vakuum und Laserpulsen in dispersiven Medien gezeigt. Der physikalische Prozess wurde im Bild der Wignerverteilung am Beispiel einer Doppelpulsstruktur diskutiert. Hierbei wird das Zusammenspiel zwischen Interferenz und Dispersion bei der Propagation besonders deutlich. Als Ergebnis der Propagation konvergiert die Form der räumlichen Verteilung des Wellenpaketes gegen die Form der Impulsverteilung. Dies wurde durch die Messung der Impulsverteilung eines Wellenpaketes im Ortsraum mittels eines TOF Spektrometers in 2.2 demonstriert.

Diese Technik wurde anschließend als Basis für die Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen mittels kohärenter Materiewellen verwendet. Hierzu wurde das erste ATI-Maximum als Messsignal verwendet. Dies führt die zur Charakterisierung notwendige Nichtlinearität ein und verhindert gleichzeitig die Beeinflussung der Messung durch resonante Zwischenniveaus und deren Lebensdauern. Das interferometrische, spektral aufgelöste ATI Signal lässt sich durch Fourierfilterung in eine SHG-FROG Spur umwandeln. Aus dieser Spur lässt sich mit einem Standardalgo-

rithmus [40] die Pulsform und -phase der ionisierenden fs-Laserpulse zurückrechnen. Der Vergleich der mit 800 nm Laserpulsen durchgeführten Messung mit einer konventionellen, optischen Autokorrelation zweiter Ordnung zeigte eine gute Übereinstimmung und bestätigte so die Anwendbarkeit des Verfahrens.

In Kapitel 3 wurde die Messung von räumlichen Strukturen im konjugierten Raum demonstriert. Hierzu wurde der Aufbau einer Anlage zur Durchführung von zeitaufgelösten Elektronenbeugungsexperimenten beschrieben. Die Elektronenbeugung erlaubt die Messung räumlicher Strukturen im „*k*-Raum“. In Verbindung mit Elektronenpulsen mit einer Pulsdauer im sub-ps Bereich erlaubt diese Technik das direkte Beobachten von strukturellen Änderungen auf einer sub-ps Zeitskala. Die während des Aufbaus durchgeführten Experimente zur Elektronenpulserzeugung, Elektronenpulspropagation und zur statischen Elektronenbeugung wurden in den Abschnitten 3.3, 3.4 und 3.5 besprochen. In diesen Abschnitten wurden auch die entsprechenden theoretischen Grundlagen der einzelnen Aspekte dargelegt.

Zu Beginn des Kapitels wurde der Aufbau der Elektronenbeugungsanlage vorgestellt. Dabei wurde auch auf die am LZH aufgebauten Kurzpuls-Röntgenquellen eingegangen, welche die Vorläufer der hier vorgestellten Anlage sind. Als Elektronenquelle dient eine von hinten mit einem fs-Laser beschienene Photokathode aus BK7 mit einer 12 nm Silberschicht auf einer 2 nm Nickel-Chrom Zwischenschicht. Die erzeugten Elektronen werden von der Photokathode zu einer Anode hin beschleunigt. In der Anode befindet sich ein TEM Gitter, durch welches die Elektronen in den dahinter liegenden feldfreien Raum eintreten und bis zur Probe propagieren. An der Probe werden die Elektronen gebeugt und das Beugungsmuster kann mit dem dahinter befindlichen Detektor gemessen werden. In der beschriebenen Version der Anlage wird auf eine magnetische Linse zur Kollimation des Elektronenstrahls verzichtet, um die Propagationsstrecke der Elektronen möglichst kurz zu halten. Dies vermindert die räumliche Auflösung der Anlage, verbessert jedoch die zeitliche Auflösung deutlich, da hierfür die Propagationsstrecke ein entscheidender Parameter ist. Als Detektor wird eine Kombination aus Szintillator und CCD Kamera verwendet. Eine Repositionierung der Probe im Vakuum ist momentan nicht möglich.

Zunächst wurden an der Anlage Experimente zur Elektronenpulserzeugung durchgeführt. Dies wird in Abschnitt 3.3 beschrieben. Hierbei wurde die Abhängigkeit der Effizienz der Elektronenerzeugung von unterschiedlichen Laserparametern untersucht. Hierzu wurde in Abschnitt 3.3.1 ein Modell zur Simulation der emittierten Elektronenladung in Abhängigkeit der verwendeten Laserpulse vorgestellt. Dieses Modell berücksichtigt sowohl thermionische Emission, als auch direkte Multi-Photonen Emission. Aufgrund der verwendeten Photokathoden ist zunächst ein Drei-Photonen Prozess zu erwarten¹. Eine Messung der Elektronenausbeute in

¹... Photonenergie 1,57 eV und Austrittsarbeit von Silber ca. 4,3 eV

Abhängigkeit der Laserfluenz ergibt einen Nichtlinearität von $2,6 \pm 0,1$. Diese verminderte Nichtlinearität wird durch die Simulation reproduziert und kann durch einen dominierenden, thermisch assistierten Zwei-Photonen Emissionsprozess erklärt werden. Die thermionische Emission liefert keine signifikanten Beiträge zur Elektronenausbeute. Gleichzeitig zeigt die Simulation starke Variationen in der Nichtlinearität der Intensitätsabhängigkeit der Elektronenausbeute (siehe Abb. 3.13), die bei niedrigen Intensitäten den Übergang zu einem reinen Drei-Photonen Emissionsprozess zeigt.

Neben der reinen Fluenzabhängigkeit wurde auch die Abhängigkeit von verschiedenen Pulsformen untersucht. Als einfachste Variante wurde ein Doppelpulssequenz verwendet. Hier wurde der Abstand zwischen den Einzelpulsen variiert. Komplexere Pulsformen wurden durch Taylor- und Sinusphasenmodulation erzeugt. Die Simulation konnte in allen Fällen die Messergebnisse gut reproduzieren. Mit Hilfe der Simulation konnte gezeigt werden, dass thermionische Emission keine Rolle spielt und das Raumladungseffekte in der Nähe der Photokathodenoberfläche berücksichtigt werden müssen. Außerdem konnte gezeigt werden, dass die maximale Quanteneffizienz durch Verwendung bandbreitebegrenzter Pulse erreicht wird. Dies wurde durch ein Experiment zur Optimierung der Quanteneffizienz, mittels des in Anhang C vorgestellten evolutionären Algorithmus, bestätigt. Die erzeugten Elektronenanzahlen pro Puls sind mit ca. 10^6 mehr als ausreichend für die durchzuführenden Experimente.

Die Propagation der erzeugten Elektronenpulse wurde in Abschnitt 3.4 untersucht. Der Fokus lag dabei auf der Entwicklung der Elektronenpulsdauer während der Propagation von der Photokathode zur Probe. Die Diskussion der Elektronenpulsdauerentwicklung wurde dabei anhand von Modellen aus [5], [70] und [95] und einer Monte-Carlo Simulation diskutiert. Ein wichtiger Parameter in diesen Modellen ist die Breite der Elektronenenergieverteilung. Da im Abschnitt zur Elektronenerzeugung gezeigt werden konnte, dass der Emissionsprozess als direkter Multi-Photonen Prozess aufgefasst werden kann, wurde eine Elektronenenergieverteilung mit einer Breite von 0,4 eV angenommen (vgl. Abb. 3.20). Da die Simulation sehr rechenintensiv ist wurde die Diskussion der Propagation in zwei Abschnitte unterteilt. Zunächst wurden Elektronenpulse mit maximal 10000 Elektronen betrachtet. Hierfür ist die Simulation noch einsetzbar. Der Vergleich zwischen der Simulation und den Modellen zeigte eine gute Übereinstimmung. Für die geplante zweite Entwicklungsstufe der ULEB² wurde auf diese Weise eine Elektronenpulsdauer am Ort der Probe von ca. 500 fs vorhergesagt. Zusätzlich konnte durch die Simulation gezeigt werden, dass die Form der erzeugenden Laserpulse keinen signifikanten Einfluss auf die Elektronenpulsform am Probenort hat. Für den aktuellen Status³ der Anlage wurde anschließend durch die Modelle eine Elektronenpulsdauer

²... 5000 - 10000 Elektronen pro Puls, 30 kV Beschleunigungsspannung

am Probenort von 9 ps bis 11 ps vorhergesagt. Mittels eines Pump-Probe Aufbaus (siehe Abb. 3.28) wurde eine Korrelation zwischen den Elektronenpulsen und einer, durch einen Teil des fs-Anregungslasers am Ort der Probe erzeugten, transienten Raumladung gemessen. Mit dieser Methode war es möglich die Zeitnull zwischen den Elektronenpulsen und dem die Raumladung am Ort der Probe erzeugenden Laserpuls zu bestimmen. Zudem war durch Anpassung einer geeigneten Funktion eine Bestimmung der momentanen Pulsdauer möglich. Bei den verwendeten 10^6 Elektronen pro Puls lag diese bei 11 ± 3 ps und bestätigt damit die Modellvorhersagen.

Abschließend wurde in Abschnitt 3.5 kurz die statische Elektronenbeugung behandelt. Hierzu wurde zunächst ein kleiner Überblick über die notwendigen kristallographischen Grundlagen gegeben und die Bragg- und Laue-Bedingung eingeführt. Anhand eines TEM-Kalibrationsstandards aus Aluminium wurde ein statisches Beugungsbild aufgenommen und die Beugungsmaxima identifiziert. Die mittlere Breite der Beugungsringe wurde zu $0,03 \text{ } 1/\text{\AA}$, entsprechend 3 mrad Winkelauflösung, bestimmt. Gegenüber üblichen Strukturmessungen mit Elektronenbeugung ist die Winkelauflösung um 2 Größenordnungen schlechter.

Insgesamt zeigen die Ergebnisse der Experimente zur Elektronenerzeugung, -propagation und -beugung, dass die Anlage in der Lage ist ultraschnelle Elektronenbeugungsexperimente durchzuführen und somit zeitaufgelöst räumliche Strukturen im „*k*-Raum“ zu untersuchen.

4.2. Ausblick

Beide Teilprojekte bieten Anknüpfungspunkte für weitere Arbeiten. Die Charakterisierung von ultrakurzen Laserpulsen mittels kohärenter Materiewellen wurde bisher nur auf Laserpulse mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm angewandt. Da der Messprozess lediglich einen nicht-linearen, nicht-resonanten Ionisationsprozess erfordert, ist die Anwendung auf Pulse im XUV Bereich ein nächster Schritt. Die Detektion von ATI in Edelgasen [41] wurde bereits demonstriert. Für die Anwendung auf Attosekundenpulse ist jedoch zusätzlich noch eine konstante Ionisationswahrscheinlichkeit über die gesamte Bandbreite des Pulses notwendig. Außerdem muss der Ionisationsprozess schneller sein, als die Pulsdauer des zu untersuchenden Pulses.

Die ultraschnelle Elektronenbeugungsanlage soll zunächst zur Messung von Photonen in HOPG verwendet werden. Versuche zur Präparierung der HOPG-Proben werden bereits durchgeführt. Zudem bietet der Aufbau selber noch Möglichkeiten zur Optimierung. Momentan ist die für die Durchführung von Experimenten benötigte Elektronenanzahl noch im Bereich von 10^6 , was zu einer starken Pulsdauer

³... 10^6 Elektronen pro Puls, 15 kV Beschleunigungsspannung

verbreiterung führt. Wie in Abschnitt 3.2.2 beschrieben kann durch den Einsatz eines MCP-Detektors eine deutliche Verbesserung der Sensitivität erreicht werden, so dass nur noch 5000 - 10000 Elektronen pro Puls notwendig sind. Gleichzeitig ist es möglich durch Änderungen am Photokathodenhalter die verwendbare Beschleunigungsspannung auf 30 kV zu erhöhen. Die räumlich Auflösung soll in der nächsten Entwicklungsstufe der ULEB durch eine dünne magnetische Linse verbessert werden.

A. Experimente an der Röntgenquelle der ersten Generation

An der Röntgenquelle der ersten Generation (siehe Abb. 3.2 [71, 72, 76] wurden Experimente zur Optimierung der Effizienz der nichtlinearen Photoemissionsprozesse durchgeführt. Hierzu wurden relevante Laserparameter (Pulsleistung und Pulsdauer) eines fs Lasersystems verändert. Zum Einsatz kam ein *Femtolasers FemtoPro* System, dessen Zentralwellenlänge bei 790 nm liegt¹. Als Photokathode wurde eine massive Kupferkathode eingesetzt. Die Austrittsarbeit von Kupfer ist 4,3 eV [91]. Demzufolge ist die Absorption von drei Photonen für die Überwindung der Austrittsarbeit notwendig.

In Abb. A.1 ist die Photoelektronenausbeute in Abhängigkeit einer spektralen Modulationsphase nach (1.43) gezeigt. Variiert wurde dabei nur ϕ_2 im Bereich von -2000 fs² bis 2000 fs². Aus dieser Messung lässt sich die Intensitätsabhängigkeit bei konstanter Pulsdauer ($\phi_2 = \text{konst.}$) und bei konstanter Fluenz ($\phi_2 \neq \text{konst.}$) ablesen. ϕ_2 wurde, wie schon in Abschnitt 3.3.7, durch den, in [28] vorgestellten, Pulzformer eingestellt. Die Pulsdauer des ungeformten Laserpulses wurde mittels eines SHG-Frog bestimmt und war $\tau_0 = 40$ fs (siehe Abb. A.3(a)).

In Abb. A.2(a) ist die Abhängigkeit der Photoelektronenausbeute von der Laserfluenz bei $\phi_2 = 0$ fs² in einem log-log Graphen gezeigt. Die Steigung ist ca. 3 und entspricht damit dem, für einen I^3 Prozess, erwarteten Wert. In Abb. A.2(b) ist diese Steigung über den unterschiedlichen, in Abb. A.1 verwendeten, ϕ_2 aufgetragen. Die Nichtlinearität variiert in Abhängigkeit von ϕ_2 . Mit zunehmendem ϕ_2 wird die Steigung größer, d.h. die Nichtlinearität des Elektronenemissionsprozesses steigt an. Während der Emissionsprozess bei $\phi_2 = 0$ fs² eine I^3 Abhängigkeit aufweist, entspricht die Steigung bei $\phi_2 = -2000$ fs² einer I^5 Abhängigkeit. Die Zunahme der Nichtlinearität mit zunehmendem $|\phi_2|$ wird auch durch das in Abschnitt 3.3.1 beschriebene Modell vorhergesagt. Da das Zunehmen von $|\phi_2|$ eine Pulsverlängerung und somit eine Intensitätsverringerung bedeutet, entspricht dies einer Zunahme der Nichtlinearität mit sinkender Laserintensität. Die Variation der Abhängigkeit der Elektronenausbeute von der Intensität ist in Abb. 3.13 für einen größeren Intensitätsbereich gezeigt. Der hier vermessene Abschnitt ist dort markiert. Vergleichbare Beobachtungen wurden bereits in [89] gemacht.

Zusätzlich wurde bei der Maximalfluenz in Abb. A.1 eine Pump-Probe Messungen

¹... äquivalent 1,56 eV

durchgeführt. Während bei den in Abschnitt 3.3.6 vorgestellten Messungen die Schrittweite eine interferometrische Messung erlaubte, wurde die Schrittweite mit 10 fs so gewählt, dass lediglich eine Intensitätsautokorrelation, analog zu [89], gemessen wurden. Die in Abb. A.3(b) gezeigte Messung wurde mit einer Fluenz von 1,1 mJ/cm² aufgenommen. Die Breite der Autokorrelationsfunktion ist 48 fs. Dies ist in guter Übereinstimmung mit einer Breite von 49 fs, wie sie bei einer, durch eine I^3 Abhängigkeit generierte, Autokorrelationsfunktion dritter Ordnung bei einer Pulsdauer von 40 fs (siehe Abb. A.3(a)) zu erwarten ist.

Zusätzlich zu den bereits beschriebenen Messungen wurden auch Optimierungsexperimente mit einem Feedback gesteuerten evolutionären Algorithmus durchgeführt. Verwendet wurde eine frühe Version des in Anhang C vorgestellten EvoWeb-Algorithmus. Die Ergebnisse der Optimierungen sind in Abb. A.4 gezeigt. Die Optimierungsexperimente wurden bei einer konstanten Laserfluenz von 1,9 mJ/cm² durchgeführt. Die Photoelektronenausbeute diente als Feedbacksignal. Da entsprechend der Diskussion in Abschnitt 3.3.1 für bandbreitebegrenzte Laserpulse die maximal mögliche Elektronenausbeute zu erwarten ist, wurde der Prismenkompres-

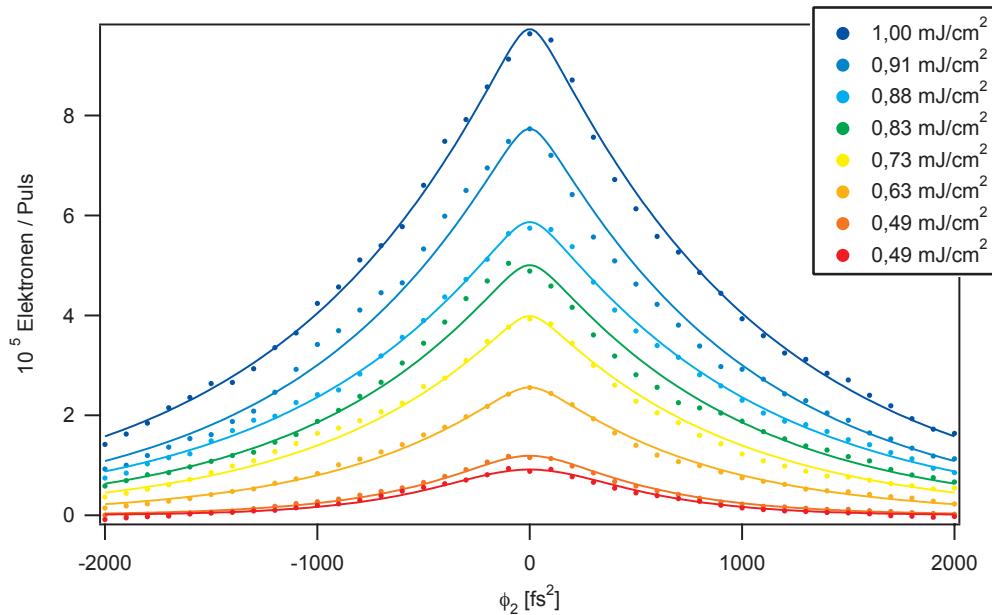
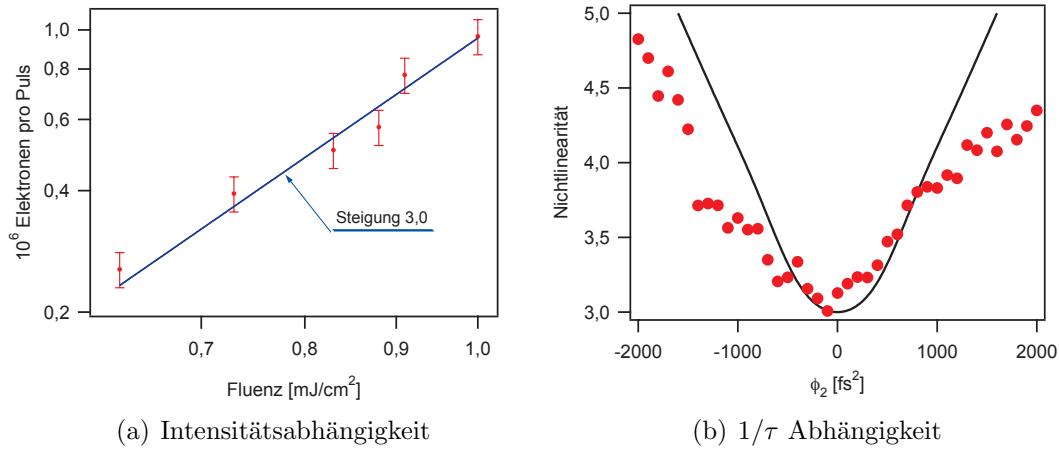


Abbildung A.1.:

Abhängigkeit der Photoelektronenausbeute von Fluenz und ϕ_2 . Bei unterschiedlichen Fluenzen wurde ϕ_2 im Bereich von -2000 fs² bis 2000 fs² variiert. Die Messungen sind als Punkte gezeigt. Die durchgezogenen Linien dienen der einfacheren Erkennbarkeit des jeweiligen Kurvenverlaufs.

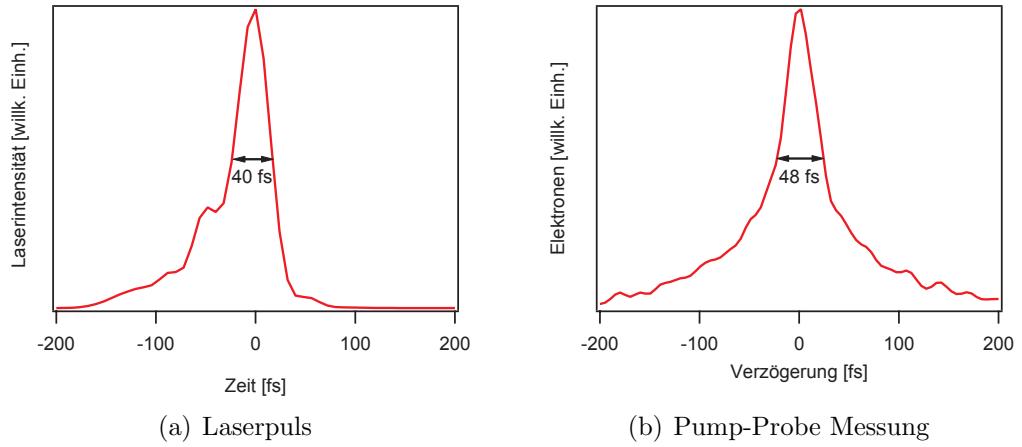
**Abbildung A.2.:**

- (a) Intensitätsabhängigkeit der Photoelektronenausbeute für konstantes $\phi_2 = 0 \text{ fs}^2$.
- (b) Nichtlinearität des Photoemissionsprozesses in Abhängigkeit von ϕ_2 gemessen (rote Punkte) und simuliert (schwarze Linie).

sor des fs-Lasersystems vor Beginn der Optimierungsexperimente so verstellt, dass die vom Lasersystem erzeugten Pulse nicht mehr bandbreitebegrenzt waren. Eine SHG-Frog Spur der Eingangspulse ist in Abb. A.5 zu sehen. Die Pulsdauer dieser Pulse betrug ca. 140 fs.

Es wurden zwei unterschiedliche Repräsentationen für die aufgeprägte spektrale Phase angewandt. Die freie Repräsentation, deren Ergebnisse in Abb. A.4(a) gezeigt sind, verwendete frei einstellbare Phasenwerte für 64 spektrale Komponenten des Femtosekundenlaserpulses. Hier war die Populationsgröße 64. Die polynomiale Repräsentation, deren Ergebnisse in Abb. A.4(b) gezeigt sind, verwendete ein Polynom 4. Ordnung zur Darstellung der spektralen Phase. Hierbei wurde eine Populationsgröße von 20 Individuen verwendet. In beiden Fällen startet die Evolution mit zufälligen spektralen Phasen.

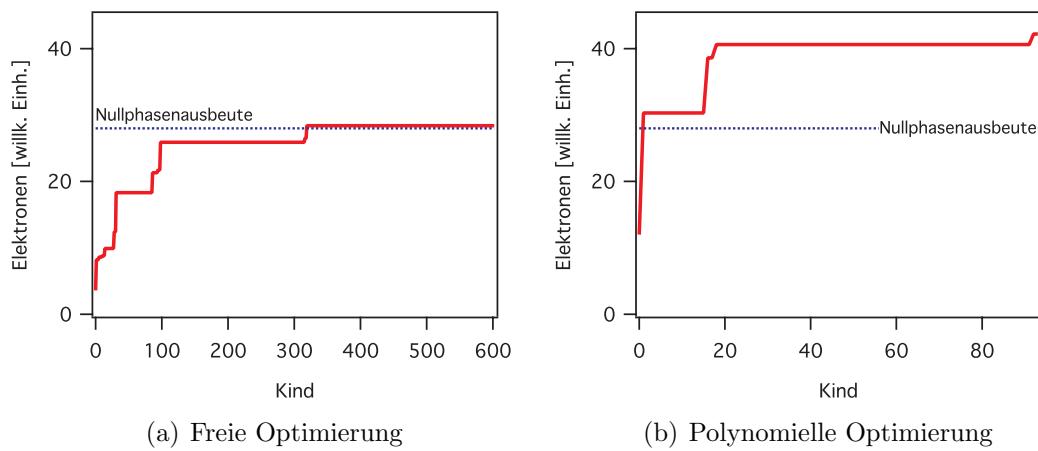
Bei der freien Optimierung ist nach 600 Kindern nur eine nicht signifikante Verbesserung der Photoelektronenausbeute gegenüber dem Eingangspuls zu erkennen. Die Einschränkung der Repräsentation auf eine polynomiale Phase führt zu einer deutlich schnelleren Optimierung, da sie bereits auf das Problem der spektralen Phasenformung angepasst ist. In diesem Fall ist bereits nach einem sechsten der Kinder eine deutliche Verbesserung der Photoelektronenausbeute zu erkennen. Offenbar ist die gefundene Kompensationsphase bereits sehr nah an der optimalen Kompensationsphase, da der Algorithmus bereits für die letzte Ausbeuteverbesserung 75 % der Suchzeit verwendet hat. Daher wurde die Optimierung zu diesem

**Abbildung A.3.:**

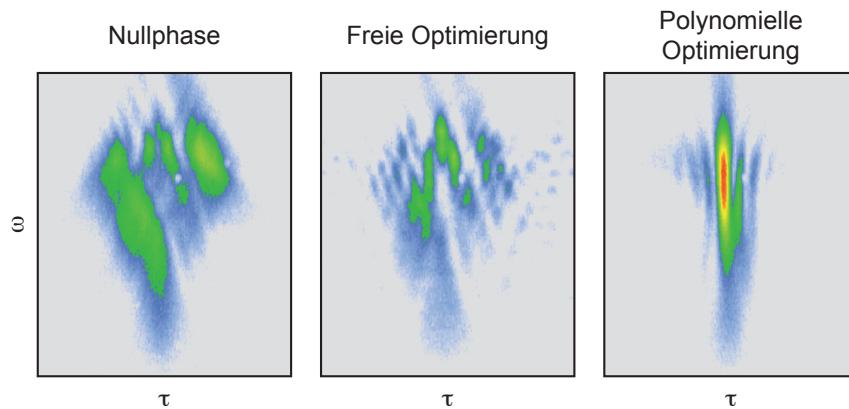
(a) Laserpulsform der verwendeten Laserpulse. Die FWHM Pulsbreite ist 40 fs. (b) Pump-Probe Messung an der Kupferkathode. Über der Verzögerungszeit der Doppel-pulssequenz ist die Elektronenausbeute bei einer Fluenz von $1,1 \text{ mJ/cm}^2$ aufgetragen. Die Breite der Autokorrelationskurve ist 48 fs und entspricht der erwarteten Breite für eine Autokorrelation dritter Ordnung.

Zeitpunkt beendet. Die optimierte Photoelektronenausbeute ist um einen Faktor 1,8 größer als beim Eingangspuls. Die gemessene SHG-Frog Spur zeigt, eine im Gegensatz zum Eingangspuls und dem besten Laserpuls der freien Optimierung (siehe Abb. A.5), deutlich verbesserte Pulssstruktur. Die Pulsdauer des optimierten Laserpulses ist in diesem Fall 35 fs. Die Verbesserung der Pulsdauer ist aufgrund der Ausführungen in Abschnitt 3.3.1 auch zu erwarten gewesen, da bei gegebener Fluenz die Intensität für einen bandbreitebegrenzten Puls maximal ist.

Aufbauend auf den Ergebnissen, der in diesem Abschnitt vorgestellten Experiment, wurde die Röntgenquelle der zweiten Generation (siehe Abb. 3.3) entworfen. Und schließlich die ULEB aufgebaut.

**Abbildung A.4.:**

Optimierungsverläufe für (a) freie und (b) polynomielle Repräsentation. Eingetragen ist die Ausbeute des jeweils besten Individuums aus der Population. Zum Vergleich ist die Ausbeute des Ausgangspulses eingetragen.

**Abbildung A.5.:**

Qualitativer Vergleich der SHG-Frog Spuren [108] vor und nach Optimierung. Ganz links ist die SHG-Frog Spur bei angelegter Nullphase $\varphi_m(\omega) = 0$ gezeigt. Der fs-Laserpuls wurde durch Justage des Prismenkompressors in der Verstärkerstufe des Lasersystems auf eine Pulsdauer von ca. 140 fs eingestellt. Dies diente als Eingangspuls für die Optimierung der Pulsform auf Basis der Röntgenphotonenausbeute. Mit einer freien Optimierung (siehe Text) wurde auch nach 600 neuen Individuen keine deutliche Verbesserung gegenüber dem Eingangspuls erreicht (vgl. mittlere SHG-Frog Spur mit Eingangspuls). Durch Eingrenzung des Suchraums auf polynomielle Kompensationsphasen wurde mit der Überprüfung von nur 80 neuen Individuen eine deutliche Pulskompression erreicht (rechte SHG-Frog Spur).

B. Simulation zur Elektronenerzeugung

B.1. Schottky-Effekt

Die Verringerung ΔW der Austrittsarbeit φ durch das angelegte Beschleunigungsfeld wird durch den Schottky-Effekt[109] beschrieben:

$$\Delta W = \sqrt{\frac{e^3 E}{4\pi\varepsilon_0}}. \quad (\text{B.1})$$

Für die in den Experimenten maximal auftretenden Feldstärken E von ca. $5 \cdot 10^6$ V/m ergibt sich eine Verringerung von 84 meV. Gegenüber der Austrittsarbeit von 4,3 eV und der Photonenergie von 1,57 eV ist dies vernachlässigbar.

B.2. Fowlerfunktion

Die Fowlerfunktion $F(x)$ ist definiert über [82, 17]:

$$F(x) = \begin{cases} \sum_{m=1}^{\infty} (-1)^{m+1} e^{mx} / m^2 & \text{für } x \leq 0 \\ \frac{\pi^2}{6} + \frac{x^2}{2} - \sum_{m=1}^{\infty} (-1)^{m+1} e^{-mx} / m^2 & \text{für } x > 0 \end{cases} \quad (\text{B.2})$$

Die Fowlerfunktion und ihr Konvergenzverhalten sind in Abb. B.1 gezeigt. Lediglich im Bereich von $x = -1$ bis $x = 0,5$ ist mehr als ein Term zur Konvergenz der Reihe notwendig. In diesem Bereich konvergiert die Funktion erst ab der Berücksichtigung von mindestens 4 Termen.

B.3. Zwei-Temperatur Modell

Das von Anisimov in [87] eingeführte Zwei-Temperatur Modell (2TM) beschreibt die Temperaturrentwicklung der Temperatur von Gitter T_l und Elektronengas T_e während und nach der Anregung mit einem ultrakurzen Laserpuls. Dies ist notwendig, da auf den entsprechenden Zeitskalen aufgrund der unterschiedlichen spezifischen

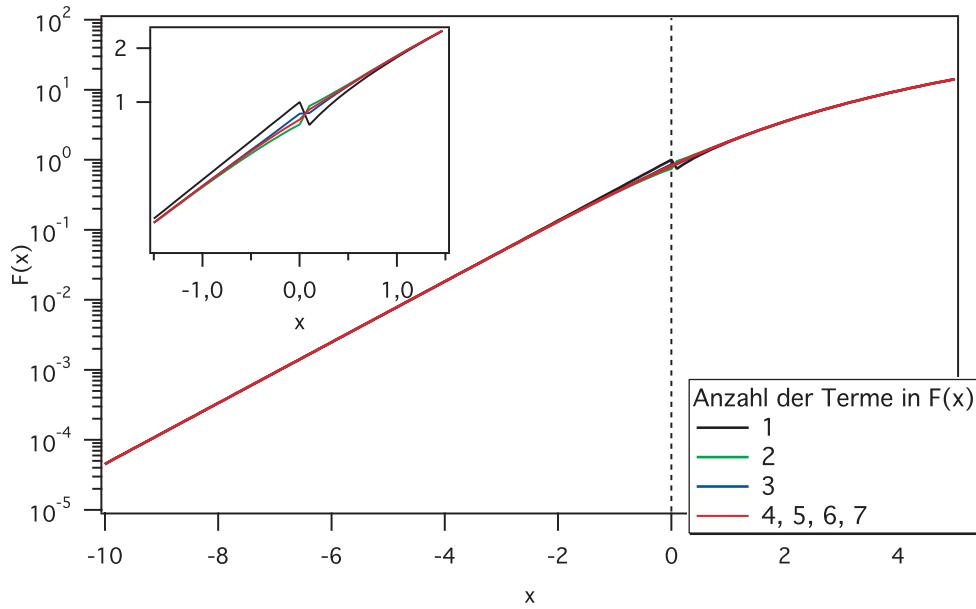


Abbildung B.1.:

Graph der Fowlerfunktion $F(x)$. Die Fowlerfunktion ist im Bereich von -10 bis +5 gezeigt. $F(-10)$ entspricht in etwa $n = 1$ bei $T_e = 3000$ K, während $F(5)$ etwa $n = 3$ und $T_e = 1000$ K in (3.5) entspricht. Für $n = 3$ und $T_e = 5000$ K ergibt sich als Parameter der Fowlerfunktion 0,95. Die Reihen in der Funktion wurden nach dem 1. (schwarz), 2. (grün), 3. (blau), 4., 5., 6., 7. Summanden abgebrochen. Für $|x| > 2$ ist bereits der erste Summand ausreichend. Konvergenz über den gesamten Bereich ist ab 4 Summanden gegeben.

Wärmekapazitäten stark unterschiedliche Temperaturen in beiden Systemen auftreten. Die Thermalisierungszeit aufgrund von Elektron-Elektron Stößen liegt in der Größenordnung von einigen 10 fs. Die Thermalisierung zwischen Elektronen und Gitter wird jedoch durch Elektron-Phonon Stöße vermittelt und die entsprechenden Zeiten sind im Bereich von einigen 100 fs bis Pikosekunden. Grundannahme des Modells ist außerdem ein lokales thermisches Gleichgewicht der beiden Teilsysteme. Die Grundgleichungen sind gegeben durch

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot (K \nabla T_e) - \nabla \varepsilon + \mathbf{J}(t) \quad (\text{B.3a})$$

$$C_l(T_l) \frac{\partial T_l}{\partial t} = \nabla \varepsilon \quad (\text{B.3b})$$

Die Bedeutungen der einzelnen Symbole sind in Tabelle 3.1 aufgeführt.

Der erste Term in (B.3a) beschreibt den Temperaturtransport durch Diffusion.

Dabei ist K die thermische Leitfähigkeit. Die beiden Gleichungen sind über die Elektron-Phononen Kopplung verbunden, die durch

$$\nabla \varepsilon = g(T_e - T_l) \quad (\text{B.4})$$

beschrieben wird. Dabei wird der Kopplungsparameter g im Allgemeinen als unabhängig von der Gittertemperatur T_l betrachtet. Als Quellterm fungiert in (B.3a)

$$\mathbf{J}(\vec{r}, t) = \alpha_\omega(1 - R)I(t), \quad (\text{B.5})$$

Hierbei wird die Wärmeleitung des Gitters genauso vernachlässigt, wie die Thermalisierungszeit des Elektronengases aufgrund von Elektron-Elektron Stößen. Beides wird in einer Erweiterung von Chen et al. [88] berücksichtigt. Da bei T_e von ca. 3000 K die Thermalisierungszeit der Elektronen untereinander deutlich kleiner als die Pulsdauer ist¹ und von einer homogenen Anregung der Dünnschichtkathoden ausgegangen werden kann [110] ist das einfache 2TM ausreichend. Dies kann weiter vereinfacht werden, da die Wärmekapazität des Gitters in guter Näherung als konstant angenommen werden kann und Diffusionsprozesse auf den betrachteten Zeitskalen keine Rolle spielen. Mit diesen Vereinfachungen ergibt sich das verwendete Gleichungssystem (3.6). In Abb. B.2 ist die Abhängigkeit der erreichten Maximaltemperatur von der eingestrahlten Laserintensität I aufgetragen. Die Maximaltemperatur steigt dabei mit \sqrt{I} an.

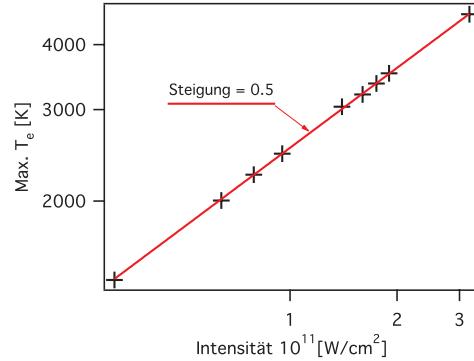


Abbildung B.2.:

Abhängigkeit der Maximaltemperatur von der eingestrahlten Laserintensität I . Die Maximaltemperatur steigt mit \sqrt{I}

¹... < 10 fs [88]

C. Optimierungsalgorithmus

In diesem Abschnitt wird der entwickelte und in 3.3.7 verwendete Optimierungsalgorithmus beschrieben. Zusätzlich wird der Algorithmus auch noch in anderen Arbeitsgebieten der Arbeitsgruppe eingesetzt. Zum Beispiel zur routinemäßigen Restphasencompensation und Experimenten [111, 112].

C.1. Grundlagen

Der entwickelte Optimierungsalgorithmus, im folgenden mit EvoWeb bezeichnet, gehört zur Kategorie der evolutionären Algorithmen. In diesem Abschnitt soll zum besseren Verständnis der folgenden Beschreibung des Algorithmus ein kurzer Überblick über das Gebiet dieser Algorithmen gegeben werden, der sich an [113] orientiert.

Evolutionäre Algorithmen orientieren sich an einfachen Elementen der Evolution, um Lösungen für gegebene Probleme zu finden. Als Basis dient eine Population, die in den meisten Fällen eine konstante Anzahl von Individuen enthält. Diese Individuen werden im Laufe der Evolution der Population weiterentwickelt. Hierbei werden Individuen selektiert, gekreuzt und mutiert. Wobei die Selektion auf der Fähigkeit der Individuen das gegebene Problem zu lösen, der Fitness, beruht. Kreuzung und Mutation von Individuen sorgen dabei für eine allgemeine Heuristik bei der Lösungsfundung.

Die grundlegende Struktur solcher Algorithmen ist in Abbildung C.1 gezeigt. Zunächst wird die Population erzeugt und jedem Individuum eine Fitness zugewiesen. Anschließend folgt die Evolution der Population. Dabei kommt es in jedem Evolutionsschritt zu Selektion und Kreuzung und/oder Mutation. Die Selektion wird dabei oft in zwei Schritte aufgespalten: die Auswahl der Eltern und das Überleben. Bei der Auswahl der Eltern werden Anzahl und Eltern bestimmt, die für die Kreuzung und Mutation als Ausgangspunkte verwendet werden. Zudem wird in diesem Schritt die Anzahl der erzeugten Kinder festgelegt. Die Kinder, also die neuen Individuen, werden aus den ausgewählten Eltern anschließend durch Kreuzung/Mutation erzeugt.

Basierend auf diesem allgemeinen Ablauf existiert eine nahezu unüberschaubare Anzahl an Implementierungen. Im folgenden werden drei sehr grundlegende Strömungen im Bereich der evolutionären Algorithmen kurz vorgestellt, die zum einen für die Entwicklung des in diesem Abschnitt beschriebenen Algorithmus wichtig waren

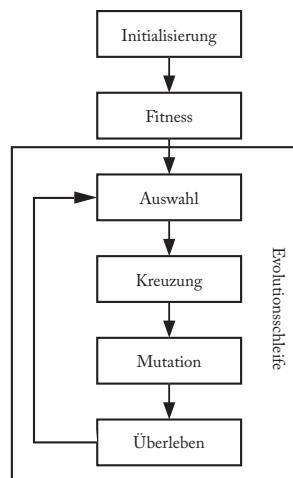


Abbildung C.1.:

Allgemeines Schema eines Evolutionären Algorithmus (nach [113]). Zunächst wird die Population initialisiert. Anschließend die Fitness der Individuen gemessen. Es folgt die Evolutionsschleife mit der Auswahl der Eltern, der Kreuzung und Mutation, sowie dem Überlebensschritt, in dem auch die Fitness der Kinder bestimmt wird.

und zum anderen eine Kategorisierung der meisten vorhandenen Implementationen ermöglichen. Bei den Varianten handelt es sich um evolutionäre Programmierung [114], Evolutionsstrategie [115] und genetische Algorithmen [116].

C.1.1. Evolutionäre Programmierung

Das Konzept der evolutionären Programmierung (EP) wurde von Fogel et al. 1966 entwickelt [114]. Das zu bearbeitende Problem gibt hier vor, in welcher Form die Individuen die Lösungsansätze beschreiben. So kann ein Individuum bei einem Phasenformungsexperiment als ein Vektor dargestellt werden, welcher die Taylorkoeffizienten der aufgeprägten Phase enthält. Denkbar wäre auch eine Liste von Wavelets, die den geformten Puls beschreibt, etc. Der Ablauf entspricht dem in Abb. C.1 gezeigten. Bei der Selektion der Eltern wird jedes Individuum selektiert. Jedes dieser Individuen erzeugt durch Mutation ein Kind, wobei die Mutationsrate¹ und die Mutationsstärke² flexibel sind und oft auch an die einzelnen Individuen gebunden sind. Kreuzung zwischen Individuen findet nicht statt. Im Überlebensschritt werden die Startindividuen der neuen Generation zufällig aus Eltern und Kindern

¹... Häufigkeit des Auftretens einer Mutation

²... Größe der Änderung beim Auftreten einer Mutation

ausgewählt, wobei Individuen mit einer größeren Fitness einer höhere Chance auf das Überleben haben.

C.1.2. Evolutionsstrategie

Das Konzept der Evolutionsstrategie (ES) wurde 1973 von I. Rechenberg entwickelt [115]. Die Repräsentation der Individuen wird, wie bei der evolutionären Programmierung, durch das Problem vorgegeben. Im Selektionsschritt wird hier jedoch die Anzahl der zu erzeugenden Kinder vorgegeben. Die jeweiligen Eltern werden zufällig ausgewählt basierend auf ihrem Rang innerhalb der Population³. Anschließend folgt evtl. ein Kreuzungsschritt, wobei die Anzahl der Kreuzungen vorgegeben ist. Alle ausgewählten Eltern werden anschließend mutiert. Mutationsrate und Mutationsstärke werden, bei modernen Implementierungen, bei jedem Individuum individuell angepasst. Der Überlebensschritt selektiert schließlich die Individuen mit der besten Fitness aus den Kindern, oder Kindern und Ausgangspopulation⁴. Im Unterschied zur evolutionären Programmierung ist in diesem Schema die Kreuzung von Individuen vorgesehen, jedoch nicht zwingend vorgeschrieben.

C.1.3. Genetische Algorithmen

Das Konzept der genetischen Algorithmen (GA) wurde von Holland 1975 vorgestellt [116]. In der klassischen Variante des genetischen Algorithmus wird das Problem binärcodiert. Es gibt jedoch neuere Ansätze, die auch mit anderen Darstellungen arbeiten. Im Selektionsschritt wird eine Anzahl von Eltern zufällig ausgewählt, wobei die Wahrscheinlichkeit zur Auswahl mit der relativen Fitness der Individuen gewichtet ist. Anschließend werden die Eltern gekreuzt, um eine gleiche Anzahl Kinder zu erzeugen. Diese werden schließlich schwach mutiert und ersetzen Individuen der Ausgangspopulation. Im Gegensatz zu den vorherigen Algorithmen überleben hier die Kinder immer und der Schwerpunkt liegt auf der Kreuzung und nicht der Mutation.

C.1.4. Einordnung der Algorithmen

In [117] wurden einige moderne Varianten der hier vorgestellten Ansätze an einem Modellproblem zur Ausrichtung von Molekülen mittels fs-Laserpulsen untersucht. Dort zeigte sich, dass sich die unterschiedlichen Varianten in Geschwindigkeit und Zuverlässigkeit unterscheiden. Hierbei hatten „moderne“ Algorithmen Vorteile gegenüber älteren Varianten. Jedoch gibt es nicht die ideale Variante für alle Probleme.

³... höhere Fitness = höherer Rang

⁴... je nach Variante

Tatsächlich sind speziell auf ein Problem angepasste Algorithmen, allgemeineren Formulierungen meist überlegen [118]. Im folgenden wird der EvoWeb Algorithmus beschrieben, wie er im Rahmen dieser Arbeit entwickelt wurde. Dieser Algorithmus bedient sich aus allen Bereichen der evolutionären Algorithmen.

C.2. Aufbau des Algorithmus

Der EvoWeb Algorithmus ist eine Mischung aus einer Weiterentwicklung des klassischen GA, dem GENITOR Algorithmus [119], und der ES und EP. Zum einen wird der Suchraum nicht binärkodiert, wie beim GA, zum anderen sind Mutationsrate und Mutationsstärke nicht fest eingestellt, was den Algorithmus in den Bereich der ES stellt. Zudem wird die Selektion der Eltern nicht fitnessbasiert, sondern rangbasiert durchgeführt. Dies ist auch beim GENITOR Algorithmus der Fall, der jedoch zu den GAs gezählt wird. Von diesem erbt der entwickelte Algorithmus noch die Änderung der Selektionstemperatur mit der Zeit und die Generierung nur eines Kindes pro Schritt⁵. Im Laufe der Zeit hat sich der Algorithmus immer wieder in Details verändert. Hier wird nur die aktuelle Version vorgestellt.

Ein Ablaufdiagramm von EvoWeb ist in Abb. C.2 gezeigt. Als Eingabe erhält der Algorithmus die Anzahl N der Individuen in der Population und eine Beschreibung der Repräsentation, sowie ein Subprogramm zur Bestimmung der Fitness. Die Repräsentation eines Individuum ist als ein Vektor von reellen Zahlen (Genen) realisiert. Die Anzahl der Gene wird vom Nutzer vorgegeben. Jedem Gen kann der Nutzer einen individuellen Wertebereich zugewiesen (für ein reales Beispiel siehe Abschnitt C.4).

Der Algorithmus beginnt mit einem Initialisierungsschritt, in dem die Population, die Rangtabelle und die Operatorwahrscheinlichkeiten initialisiert werden. Die Gene der einzelnen Individuen der Population werden zufallsbasiert innerhalb des jeweiligen Wertebereichs initialisiert.

Die Rangtabelle wird basierend auf dem vom Nutzer eingegebenen Selektionstemperatur r initialisiert. Hierbei wird jedem Rang eine Wahrscheinlichkeit zugewiesen, mit der das zugehörige Individuum als Elter⁶ ausgewählt wird.

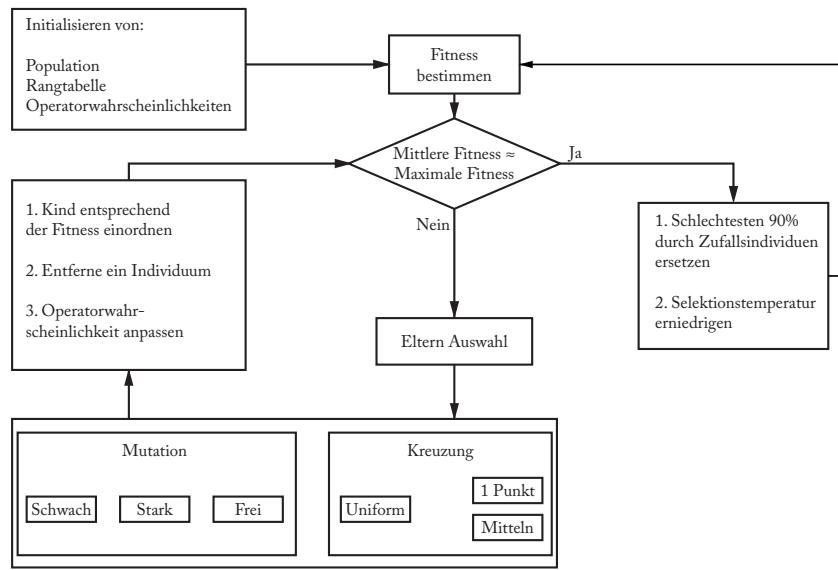
Die Wahrscheinlichkeit p für den i . Rang ist dabei gegeben durch

$$p(i) = 1 - \left(\frac{i}{N} \right)^{1,5r} \quad (\text{C.1})$$

Hierbei wird von einer Sortierung mit absteigender Fitness ausgegangen und der Index des Ranges läuft von 1 bis N . Der Parameter r bewegt sich im Bereich

⁵... Steady-State Methode

⁶... ein Elternteil

**Abbildung C.2.:**

Schema des EvoWeb Algorithmus. Der Startpunkt ist die Initialisierung von Population, Rangtabelle und den Operatorwahrscheinlichkeiten. Anschließend wird für jedes Individuum die Fitness bestimmt. Es folgt die eigentliche Evolutionsschleife. Vor der Elternselektion wird noch überprüft, ob die Population degeneriert ist, indem die Fitness des besten Individuums mit der durchschnittlichen Fitness der Population verglichen wird. Sind beide Werte nah beieinander, so wird eine neue Population erzeugt und die Selektionstemperatur gesenkt. Andernfalls wird die normale Evolutionsschleife weiter durchlaufen. Hier werden zunächst die Eltern selektiert und anschließend einer von 5 Evolutionsoperatoren (schwache Mutation, starke Mutation, freie Mutation, uniforme Kreuzung, 1-Punkt Kreuzung / Mittelung) auf die Eltern angewandt, um ein Kind zu erzeugen. Welcher Operator angewendet wird, wird zufällig bestimmt. Die Wahrscheinlichkeit jedes Operators variiert abhängig von seinen bisherigen Erfolgen. Anschließend wird das neu erzeugte Kind in die Population entsprechend seines Ranges eingefügt. Hierbei kann es (absichtlich) zu einer Fehleinordnung kommen. Dann wird das schlechteste Individuum getötet und die Operatorwahrscheinlichkeiten werden angepasst. Es folgt der nächste Schleifendurchlauf.

zwischen $(0,1, 0,66]$, wobei 0,66 für eine hohe Selektionstemperatur steht und 0,1 nahe dem absoluten Nullpunkt der Selektionstemperatur ist. Je niedriger die Selektionstemperatur, desto stärker der Selektionsdruck und somit die Bevorzugung der Individuen auf den besten Rängen (siehe Abb. C.3 für ein Beispiel mit einer Populationsgröße von 50).

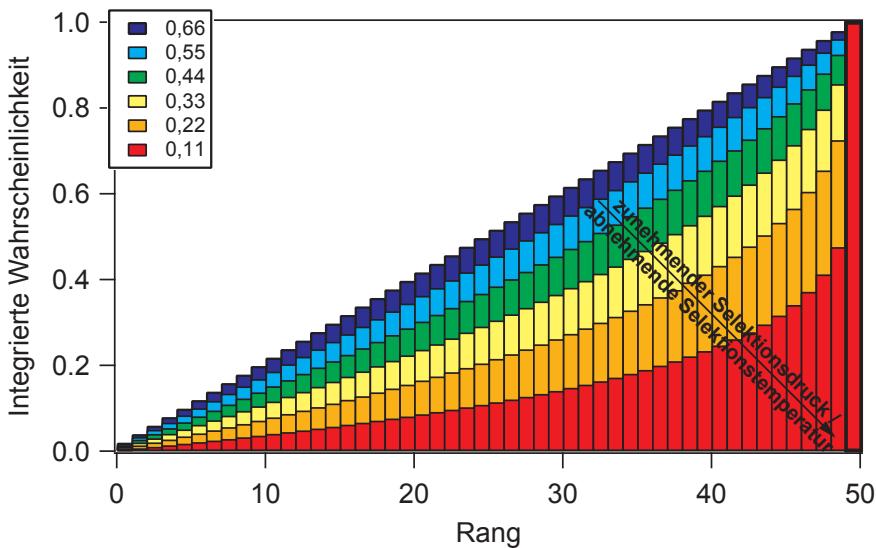


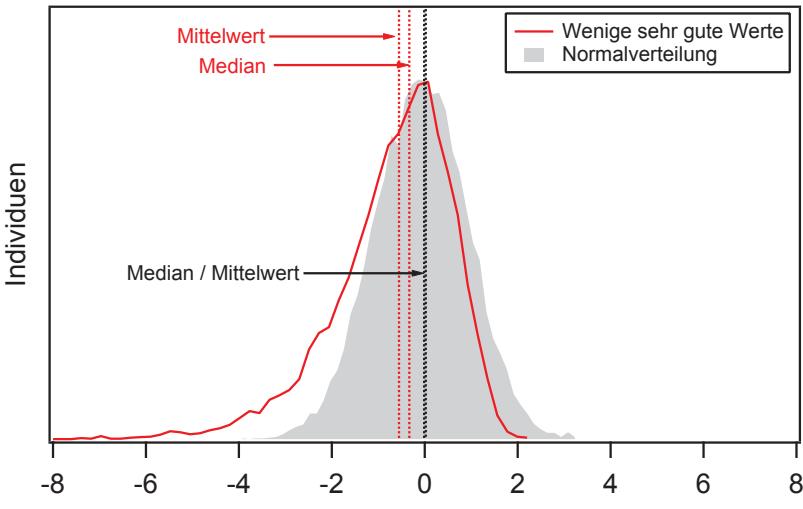
Abbildung C.3.:

Verschiedene Rangtabellen für den Parameter r . Mit abnehmendem Betrag von r steigt der Selektionsdruck und die Selektionstemperatur wird niedriger. Dargestellt ist die integrierte Wahrscheinlichkeitsfunktion. D.h. der Wert des jeweiligen Ranges (hier für 50 Individuen) gibt die Wahrscheinlichkeit an, dass dieser Rang, oder ein schlechterer ausgewählt wird. Dementsprechend ist die „Wahrscheinlichkeit“ des besten Rangs (50) eins. Der Parameter r kann zwischen 0,66 und 0,1 variieren.

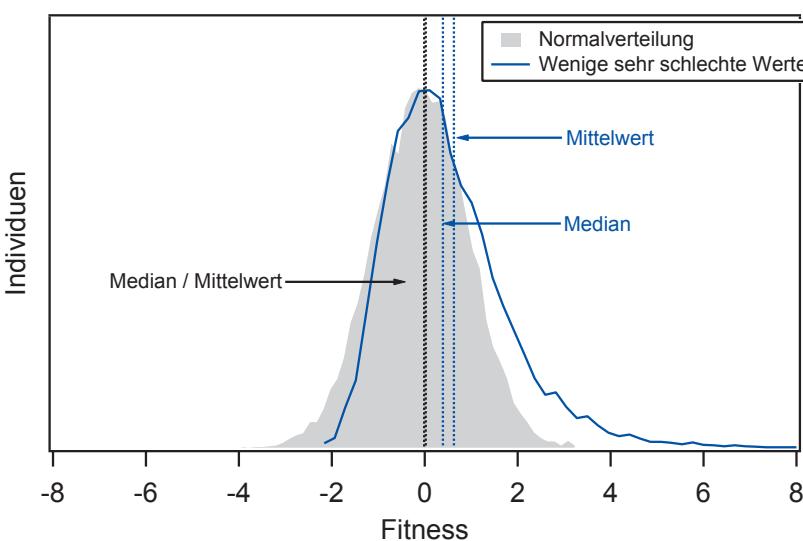
Die Operatorwahrscheinlichkeiten werden gleichverteilt initialisiert, d.h. zu Anfang hat jeder der 5 Evolutionsoperatoren eine Wahrscheinlichkeit von 0,2, ausgewählt zu werden.

Nach der Initialisierung wird, entweder durch einen Messprozess im Experiment, oder durch Simulation, die Fitness der einzelnen Individuen bestimmt. Basierend auf der Fitness wird jedem Individuum ein Rang zugewiesen.

Anschließend folgt der erste Schritt der eigentlichen Evolutionsschleife. Hierbei wird überprüft, ob die Population degeneriert ist, d.h. die Individuen sich sehr ähnlich sind. Dies geschieht, indem die Fitness des besten Individuums mit der durchschnittlichen Fitness der gesamten Population verglichen wird. Ist die relative Differenz $\leq 10^{-8}$, folgt eine Neuinitialisierung von Population und Rangtabelle. In diesem Fall werden die schlechtesten 90 % der Population durch zufällig erzeugte neue Individuen ersetzt, um neues Genmaterial in die Population einzubringen. Anschließend wird wieder die Fitness aller Individuen gemessen und die Rangfolge bestimmt.



(a) Wenige gute Werte



(b) Wenige schlechte Werte

Abbildung C.4.:

Zur Anpassung der Selektionstemperatur wird der Unterschied zwischen dem Median m und dem Mittelwert μ der Fitnessverteilung herangezogen. In beiden Graphen ist grau hinterlegt eine Normalverteilung mit Median und Mittelwert zum Vergleich eingezeichnet. (a) Im Fall, dass die Population noch sehr weit verstreut ist, d.h. mehr schlechte Fitnesswerte als gute in der Population existieren (rot), ist $\mu - m < 0$ und r wird langsam verringert. (b) Bei Populationen deren Individuen fast durchgängig eine Fitness nahe dem momentanen Maximalwert aufweisen (blau) ist $\mu - m > 0$ und r wird langsam erhöht.

Die Rangtabelle wird in jedem Evolutionsschritt angepasst. Dabei wird die Selektionstemperatur entsprechend der momentanen Verteilung der Fitness der Individuen angepasst. Als Maß wird die Differenz zwischen dem Median m und dem Mittelwert μ der Fitnessverteilung verwendet (siehe Abb. C.4). Bei Populationen aus denen die besten Individuen herausragen, d.h. es überwiegen die Individuen mit einer „schlechten“ Fitness, ist $\mu - m < 0$ und die Selektionstemperatur wird verringert, um die durchschnittliche Fitness der Population schneller anzuheben. Befinden sich in der Population überwiegend Individuen mit einer „guten“ Fitness, so ist $\mu - m > 0$ und r wird erhöht, um die Gleichberechtigung der Individuen zu fördern.

Ist die Population nicht degeneriert, folgt der nächste Schritt in der Evolutionsschleife. Es werden ein Evolutionsoperator und die dazu notwendige Anzahl an Eltern zufällig auf Basis der Operatorwahrscheinlichkeiten und der Rangtabelle ausgewählt.

Anschließend wird der ausgewählte Evolutionsoperator auf die selektierten Eltern angewendet und genau ein Kind erzeugt. Die Operatoren funktionieren dabei wie folgt:

- **Mutation** Bei jedem der drei vorhandenen Mutationsoperatoren kann die Mutationsrate, d.h. die Wahrscheinlichkeit mit der eines der Gene mutiert wird eingestellt werden. Es wird nur ein Elter benötigt.
 - *Schwache Mutation* Bei diesem Operator sorgt die Mutation für eine kleine Änderung ($< 10\%$) um den aktuellen Wert des zu mutierenden Gens. Diese Mutationsstärke ist einstellbar.
 - *Starke Mutation* Bei diesem Operator sorgt die Mutation für eine mittelgroße Änderung ($< 33\%$) um den aktuellen Wert des zu mutierenden Gens. Diese Mutationsstärke ist einstellbar.
 - *Freie Mutation* Bei diesem Operator wird dem zu mutierenden Gen ein neuer zufälliger Wert im zulässigen Wertebereich zugewiesen.
- **Kreuzung** Die uniforme Kreuzung ist der Standardkreuzungsoperator. Der 1-Punkt Kreuzungsoperator und der Mittelungsoperator stehen wahlweise zur Verfügung. Der 1-Punkt Operator ist bei einer großen Anzahl von Genen (> 10) sinnvoll, während der Mittelungsoperator auch bei wenig Genen einsetzbar ist, jedoch nur bei nicht binärkodierten Genen Sinn macht. Es werden zwei Eltern benötigt.
 - *Uniforme Kreuzung* Für jedes Gen des Kindes wird basierend auf einer Kreuzungsrate entschieden, von welchem der beiden Elternteile das Gen übernommen wird. Hierbei favorisieren Kreuzungsraten von $> 0,5$ den zweiten Elternteil, während bei $< 0,5$ der erste Elternteil bevorzugt wird.

- *1-Punkt Kreuzung* Bei diesem Operator wird zufällig ein Kreuzungsindex bestimmt, der angibt bis zu welchem Index die Gene des Kindes von dem ersten Elter kommen, während sie ab dem Kreuzungsindex vom zweiten Elter kommen.
- *Mittelung* Jedes der Gene des Kindes wird durch den Mittelwert der entsprechenden Gene der Eltern gebildet.

Für das neu erzeugte Kind wird anschließend in Experiment, oder Simulation eine Fitness bestimmt und es wird in die Population entsprechend seiner Fitness eingefügt. Um Variationen durch „schlechte“ Kinder zu erlauben wird jedoch in einem Drittel der Fälle das Kind in einem zufälligen Rang eingesortiert. Anschließend wird das Individuum auf dem niedrigsten Rang aus der Population entfernt. Die so erzeugte Population dient für den nächsten Durchlauf der Evolutionsschleife als Ausgangspopulation.

Vor dem Beginn des nächsten Durchlaufs werden die Operatorwahrscheinlichkeiten verändert. Ist der Rang des erzeugten Kindes besser als der der Eltern, so wird die Wahrscheinlichkeit diesen Operator auszuwählen leicht angehoben, während sie, falls das Kind einen schlechteren Rang hat als die Eltern herabgesetzt wird. Keine der Operatorwahrscheinlichkeiten kann unter 0,05 fallen.

Die Erzeugung von nur einem Kind pro Durchlauf der Evolutionsschleife bringt für die Anwendung im Experiment Vorteile, da die Informationen, die das Kind über den Suchraum enthält, direkt in den nächsten Schritt einfließen.

C.3. Benchmark des Algorithmus

Um die Leistungsfähigkeit des Algorithmus zu überprüfen wurden zwei künstliche Tests durchgeführt. Ein Test bestand im Finden des Minimums einer mathematischen Funktion. Bei diesem Test wurde ein Referenzalgorithmus zum Vergleich herangezogen. Der zweite Test bestand im Problem des Handlungsreisenden. Hier fand kein Vergleich mit dem Referenzalgorithmus statt, da keine einfache Anpassung der Programme auf das Problem des Handlungsreisenden möglich war. Als Referenz diente der zuvor in der Arbeitsgruppe verwendete Algorithmus, wie er in [120] beschrieben wird.

C.3.1. Minimierung

Bei diesem Test bestand die Aufgabe des Algorithmus darin, das globale Minimum einer vorgegebenen Funktion zu finden. Als Testfunktion wurde verwendet:

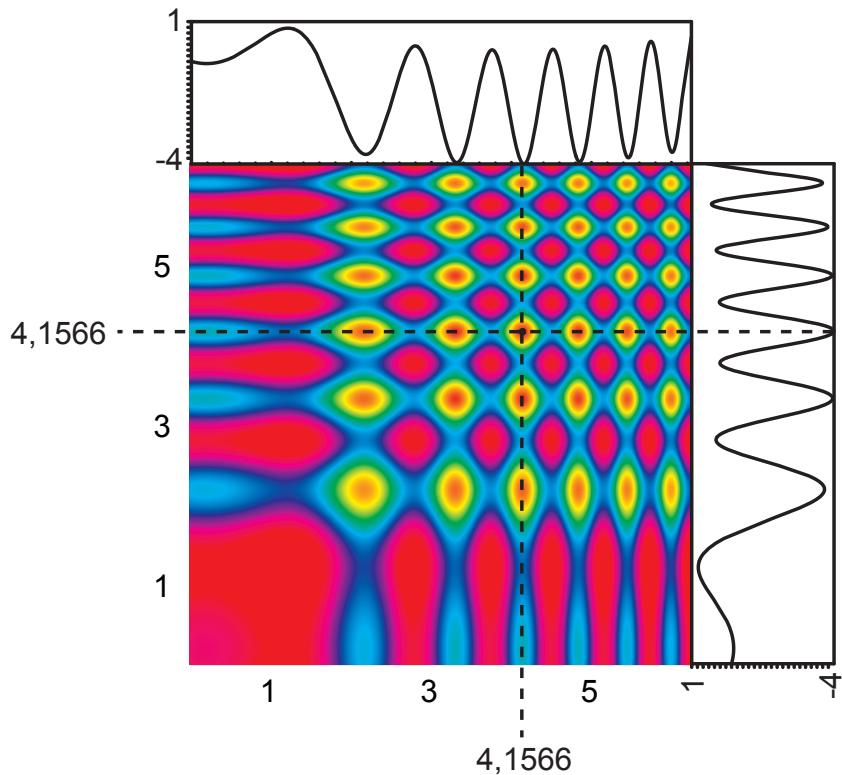


Abbildung C.5.:

Die verwendete Testfunktion. Entlang der Koordinaten des absoluten Minimums sind Schnitte gelegt, die verdeutlichen wie gering die Unterschiede benachbarter Minima sind.

$$f(x, y) = \frac{1}{10}(x - 4)^2 + \frac{1}{10}(y - 4)^2 + 2 \sin(x^2) + 2 \cos(y^2) \quad (\text{C.2})$$

Die Funktion ist in Abb. C.5 gezeigt, wobei entlang der Koordinaten des absoluten Minimums noch Schnitte gezeigt sind. Die dem absoluten Minimum nächstgelegenen Minima sind um weniger als ein Prozent höher, als das absolute Minimum. Um die Leistungsfähigkeit zu vergleichen, wurde der oben erwähnte Referenzalgorithmus als Maßstab herangezogen.

Da der Suchraum mit nur zwei Parametern sehr klein ist und bei einer Echtzahlkodierung die Kreuzungsoperationen nicht sinnvoll einsetzbar sind, wurden beide Parameter als 16 Bit Ganzzahlen binärkodiert. Zur Abbildung auf einen sinnvollen Wertebereich der beiden Parameter werden die Ganzzahlen durch 5000 geteilt und somit auf einen Bereich [0, 13,107] abgebildet.

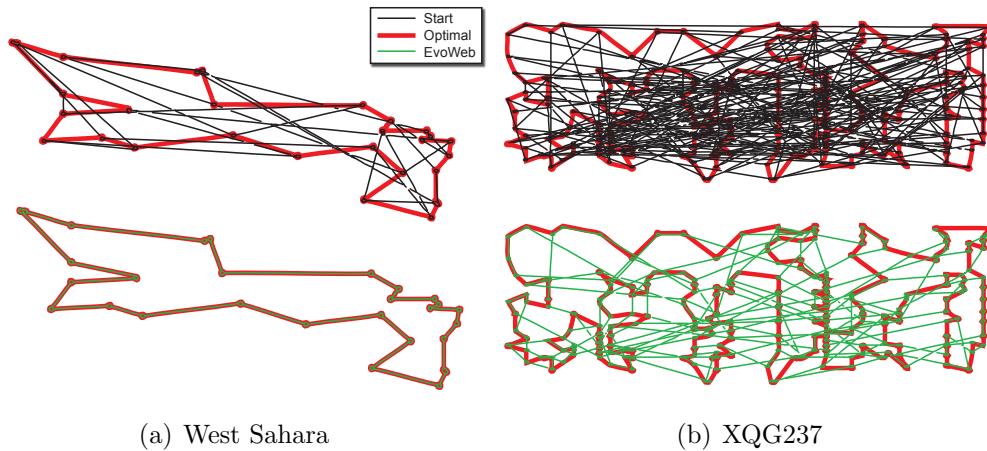


Abbildung C.6.:

Lösung des TSP für (a) die West Sahara und (b) XQG237. Die beste Route der Startpopulation ist in Schwarz, die beste Route der Endpopulation in Grün gezeichnet. Die optimale Route ist Rot. Die Testdaten wurden aus [121] entnommen.

Als Konvergenzkriterium wurde eine Abweichung vom Zielfunktionswert -4 von $0,375\%$ für das beste Individuum definiert. Als Maß für die Konvergenzgeschwindigkeit wurde die Anzahl der durchgeführten Messungen, d.h. Bestimmungen der Fitness, verwendet.

Der Referenzalgorithmus erzielte im Mittel bei 10 Durchläufen nach 4694 Einzelmessungen Konvergenz. Die Standardabweichung der Anzahl der im Mittel durchgeführten Einzelmessungen betrug 3000, was 64% entspricht. Der EvoWeb Algorithmus konvergierte bei 13 Durchläufen im Mittel nach 1798 Einzelmessungen und die Standardabweichung der im Mittel durchgeführten Einzelmessungen betrug 800, entsprechend 44%. Die mittlere Anzahl an Einzelmessungen ist hier ein Maß für die Konvergenzgeschwindigkeit, während deren Standardabweichung ein Maß für die Zuverlässigkeit, mit der der Algorithmus nach einer bestimmten Anzahl an Einzelmessungen Konvergenz erreicht, ist.

C.3.2. Problem des Handlungsreisenden

Beim Problem des Handlungsreisenden⁷ handelt es sich um ein NP-äquivalentes Optimierungsproblem. Das Problem besteht darin, für einen gegebenen Satz von Orten, von denen paarweise bekannt ist, wie „teuer“ es ist, von einem zum anderen zu kommen, die kürzeste Rundreisestrecke zu bestimmen, bei der kein Ort zweimal

⁷... Travelling Salesman Problem(TSP)

besucht wird. Eine ausführliche Beschreibung und auch die verwendeten Testdaten sind bei [121] zu finden.

Um den EvoWeb Algorithmus auf das TSP anzuwenden, wurde die im Folgenden beschriebene Codierung des Problems verwendet. Zunächst werden die Koordinaten der zu bereisenden Städte geladen und jeder Stadt wird ein Index zugeteilt. Dieser Index entspricht dem zur Stadt gehörigen Gen. Für jede Stadt steht also ein Gen, deren Wertebereich $[0, 1]$ ist. Die Reihenfolge der Städte auf dem Reiseweg, den ein Individuum beschreibt, wird durch die aufsteigende Sortierung der zugehörigen Gene gegeben. Die Stadt, deren Gen den Wert 0 hat, wird als Startpunkt genommen, während die Stadt, deren Gen den Wert 1 hat, als letzte Stadt bereist wird, bevor zur Startstadt zurückgereist wird. Auf die echtzahligen Gene können so alle Evolutionsoperatoren angewandt werden und es ist sichergestellt, dass keine Stadt doppelt besucht wird und nur erlaubte Routen generiert werden. Die zurückgelegte Wegstrecke wird durch Abstandsberechnung der Städte in der entsprechenden Reihenfolge ermittelt und ist der Fitnesswert, den es zu minimieren gilt. Die Repräsentation ist jedoch nicht ideal gewählt. Für eine besser geeignete Repräsentation wären jedoch größere Anpassungen des Testprogramms notwendig gewesen.

Da kein evolutionärer Algorithmus zum Vergleich zur Verfügung stand, der auf dieses Problem angewendet werden konnte, soll bei diesem Test nur die Konvergenz des Algorithmus unter erschwerten Bedingungen überprüft werden. Die verwendeten Testdaten wurden von [121] entnommen. Ausgewählt wurden drei Datensätze: West Sahara, XQG237 der VLSI Testdaten und Luxemburg. Die Probleme besitzen unterschiedliche Komplexitäten. Während es sich bei der West Sahara um einen nur 29 Städte umfassendes Problem handelt, enthält bereits der XQG237 Datensatz 237 Städte und Luxemburg sogar 980. Für die West Sahara ist das Ergebnis in Abb. C.6(a) dargestellt. Der Algorithmus findet die optimale Tour und konnte so die Routenlänge innerhalb von 1 Stunde von 73392 auf 27748 reduzieren. Für den Testdatensatz XQG237 wurde der Testlauf nach 48 Stunden beendet. In dieser Zeit wurde eine Reduzierung der Routenlänge von 11646 auf 2805 erreicht. Das Ergebnis ist in Abb. C.6(b) gezeigt. Die optimale Route hat eine Länge von 1019. Auch bei dem Luxemburg Datensatz wurde die Optimierung nach 48 Stunden abgebrochen. Hier wurde eine signifikante Reduzierung der Weglänge von 296833 auf 191658 erreicht. Die optimale Tour hat eine Länge von 11340.

C.3.3. Zusammenfassung

Wie in Abschnitt C.3.2 demonstriert, konvergiert der EvoWeb Algorithmus auch bei schwierigen Problemen, für deren Lösung die Programmstruktur angepasst werden müsste. Die Geschwindigkeit der Konvergenz wurde in C.3.1 im Vergleich zu dem vorher eingesetzten Algorithmus überprüft. Der EvoWeb Algorithmus konvergiert

im Mittel 60 % schneller bei höherer Zuverlässigkeit. Neben der besseren und robusteren Konvergenz bietet die Implementierung des Algorithmus als Steady-State den Vorteil, dass die Ergebnisse jeder Messung sofort in die Generierung des nächsten Kindes einfließen.

C.4. Anwendungsbeispiel: Pulsdaueroptimierung

Neben der in `//fourier/exp3-all/Lab-View-8/Evolution/EvoWeb_71/PowerPoint-Docu/EvoWeb_Docu.ppt` abgelegten Dokumentation im Powerpoint-Format soll in diesem Abschnitt noch ein typisches Beispiel aus dem Laboralltag zur Dokumentation dienen⁸. Der EvoWeb-Algorithmus ist in `//fourier/exp3-all/Lab-View-8/Evolution/EvoWeb_71/EvoWeb_72_twoloop.vi` als Labviewprogramm⁹ implementiert.

Als Beispiel wird hier die Optimierung der Pulsdauer nach einem komplexen optischen Aufbau¹⁰ mittels eines Pulsformers¹¹ verwendet. Ein Ausschnitt der Eingabemaske mit den relevanten Parametern für den Algorithmus ist in Abb. C.8 zu sehen. Die Initialisierung der Messapparatur geschieht über das in **Initialization VI Path** angegebene VI. Details zu den Voraussetzungen der Initialisierungs VIs finden sich in der oben erwähnten Dokumentation. Eine Einzelmessung und die Bestimmung der Fitness wird durch das in **Measurement VI Path** angegebene VI durchgeführt. Die **Population Parameters** beschreiben die allgemeinen Eigenschaften der Population. In diesem Fall handelt es sich um eine Population mit 128 Individuen, von je 10 Genen. In **Boundaries** sind die verwendeten Grenzen für die Gene eingesetzt. In diesem Fall stellen die Gene die Parameter für eine Taylorphase dar, welche der Pulsformer dem Eingangspuls aufprägt. Hierbei beschreibt das erste Gen die Kreisfrequenz ω_0 , um die die Taylorreihe entwickelt wird. Die folgende Gene beschreiben die Taylorfaktoren der entsprechenden Terme. Dies startet bei der nullten Ordnung und endet bei der achten Ordnung. Die verwendeten Bereiche sind in Tabelle C.1 zusammengefasst.

Die **Operator Parameters** beschreiben die Parameter der einzelnen Evolutionsoperatoren, wie sie oben beschrieben wurden. Die in Abb. C.8 abgebildeten Werte sind ganz typisch für die tägliche Arbeit im Labor. Jedoch kann durch Anpassung der Werte für ein spezielles Problem oft auch eine schnellere Konvergenz erreicht werden.

Die Ergebnisse der Pulsdaueroptimierung mit den hier verwendeten

⁸... Die Daten und Bilder wurden dankenswerterweise von Marc Krug und Jens Köhler zur Verfügung gestellt

⁹... ein sogenanntes Virtuelles Instrument (VI)

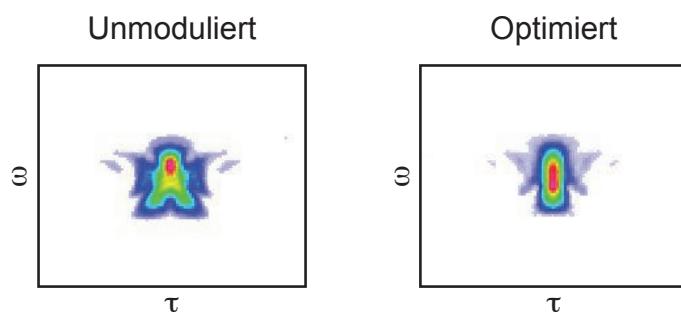
¹⁰... in diesem Fall der Polarisationsformer [27]

¹¹... hier wurde der Polarisationsformer im Pulsformungsmodus [27] eingesetzt

	Minimum	Maximum		Minimum	Maximum
ω_0	2,30 fs	2,45 fs	ϕ_4	$-4 \cdot 10^5 \text{ fs}^4$	$4 \cdot 10^5 \text{ fs}^4$
ϕ_0	0	0	ϕ_5	$-1 \cdot 10^6 \text{ fs}^5$	$1 \cdot 10^6 \text{ fs}^5$
ϕ_1	0 fs	0 fs	ϕ_6	$-4 \cdot 10^6 \text{ fs}^6$	$4 \cdot 10^6 \text{ fs}^6$
ϕ_2	-10000 fs^2	10000 fs^2	ϕ_7	$-1 \cdot 10^7 \text{ fs}^7$	$1 \cdot 10^7 \text{ fs}^7$
ϕ_3	$-1 \cdot 10^5 \text{ fs}^3$	$1 \cdot 10^5 \text{ fs}^3$	ϕ_8	$-5 \cdot 10^8 \text{ fs}^8$	$5 \cdot 10^8 \text{ fs}^8$

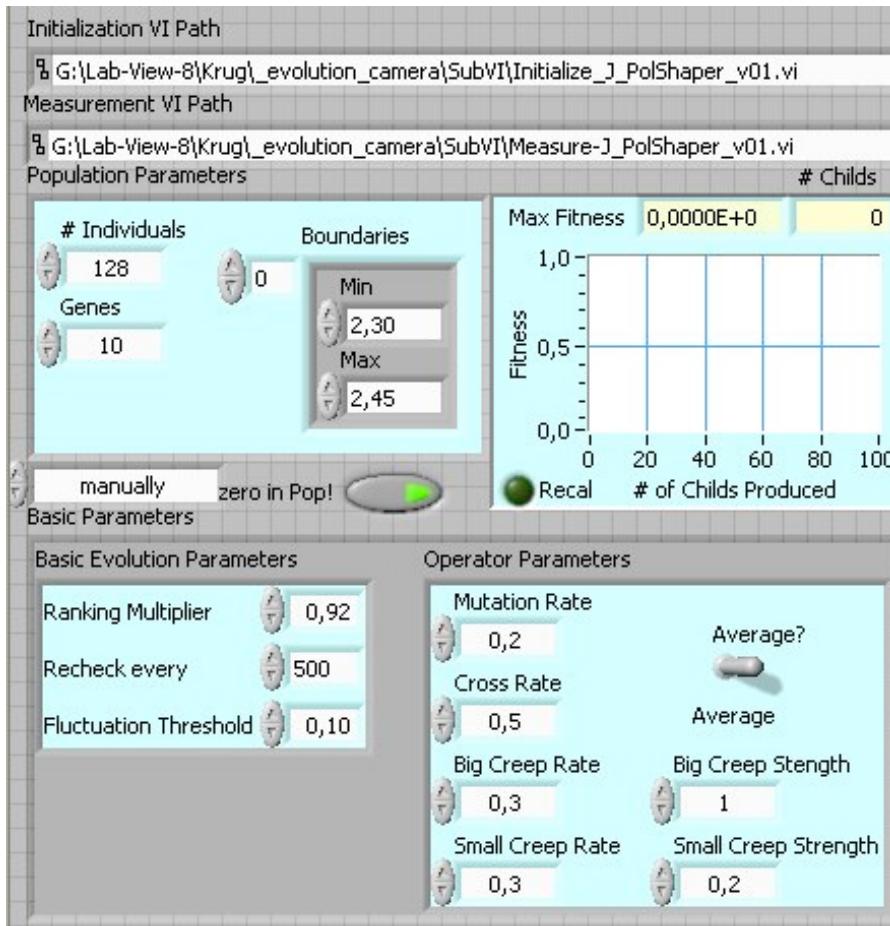
Tabelle C.1.:

Die in diesem Anwendungsbeispiel verwendeten Grenzen für die einzelnen Wertebereiche der Gene für eine Taylorphase, die durch den Polarisationsformer im Phasenformungsmodus auf die Eingangspulse aufgeprägt wird.

**Abbildung C.7.:**

Optimierung der Pulsdauer durch Phasenformung. Im Vergleich zur Frogspur unmodulierten Puls nach dem Polarisationsformer ist die Frogspur der optimierten Pulsform deutlich einfacher bei einer Reduzierung der Pulsdauer um 20 %.

Initialisierungs- und Mess-VIs sind im Vorher-Nachher Vergleich in Abb. C.7 gut zu erkennen. Als Rückkopplungssignal wurde hier direkt die FROG-Spur verwendet.

**Abbildung C.8.:**

Parameter der EvoWeb Implementierung. Der Initialization VI Path gibt das VI, welches die Initialisierung des Experiments übernimmt an. Der Measurement VI Path bestimmt das VI zur Messung und Erzeugung der Fitness eines Individuums. Die Population Parameters beschreiben die allgemeinen Eigenschaften der Population. In Boundaries sind die verwendeten Grenzen für die Gene eingesetzt. Die Operator Parameters beschreiben die Parameter der einzelnen Evolutionsoperatoren

D. Konstruktionszeichnungen

In diesem Anhang sind die Konstruktionszeichnungen der Einzelemente der ULEB zusammengefasst. Als Konstruktionsprogramm wurde *Autodesk Inventor 7* verwendet. Es sind jeweils die zugehörigen Dateien angegeben. Die Dateien finden sich auf dem Fileserver der Gruppe im Verzeichnis */exp3-all/Projects/Konstruktionsdaten/Marc_Winter/1stGenULEB_v2*.

Zunächst werden die Konstruktionszeichnungen für das Gestell gezeigt. Anschließend folgen die Details zum Vakuumkörper, sowie den zugehörigen Flanschen. Die Details zur Elektronenquelle werden nach Kathode, Anode und Probenhalter aufgeteilt. Jeder Abschnitt beginnt mit einer 3D Zeichnung als Überblick, dem die Detailzeichnungen, wie sie an die mechanische Werkstatt der Universität weitergegeben wurden, folgen. Alle Maßangaben sind in Millimetern.

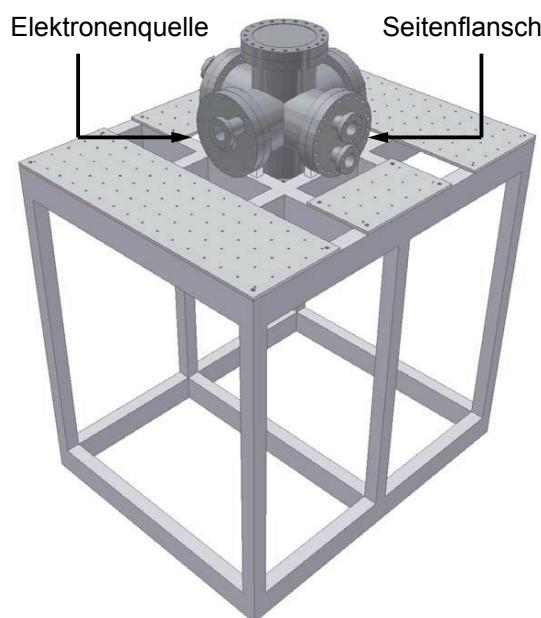


Abbildung D.1.:

Überblick über die fertige Anlage (vgl. Abb. 3.4). Zu sehen sind das Gestell, das CF160DN Kreuz, der Flansch der Elektronenquelle und ein Seitenflansch, der in identischer Weise auf der anderen Seite auch angebracht ist. Der obere Anschluss ist mit einem Blindflansch, verschlossen und für weitere Einbauten frei.

D.1. Gestell

Das Gestell ist bereits in Abb. D.1 gut zu erkennen. In Abb. D.2 sind die Maße des item-Gestells gezeigt. Abbildung D.3 zeigt einen von vier Haltern auf denen das 6-fach Vakuumkreuz auf die Anlage aufgesetzt wird. Es werden keine zusätzlichen Fixierungen verwendet. In Abb. D.4) sind die Befestigungsplatten gezeigt, die zur Anbringung von optischen Elementen rund um die Anlage dienen.

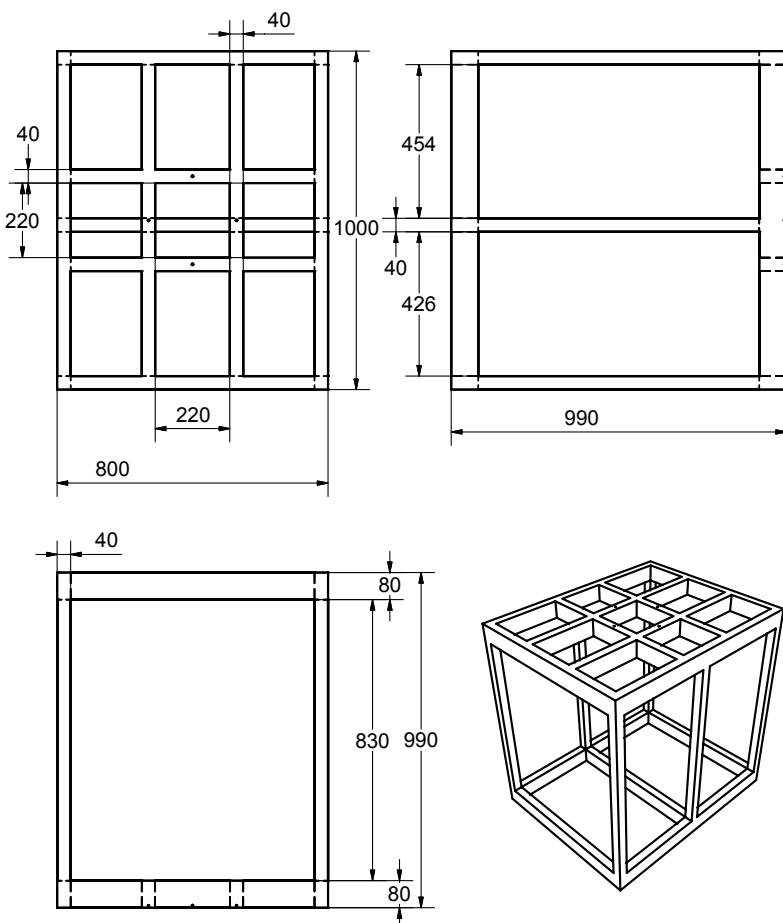
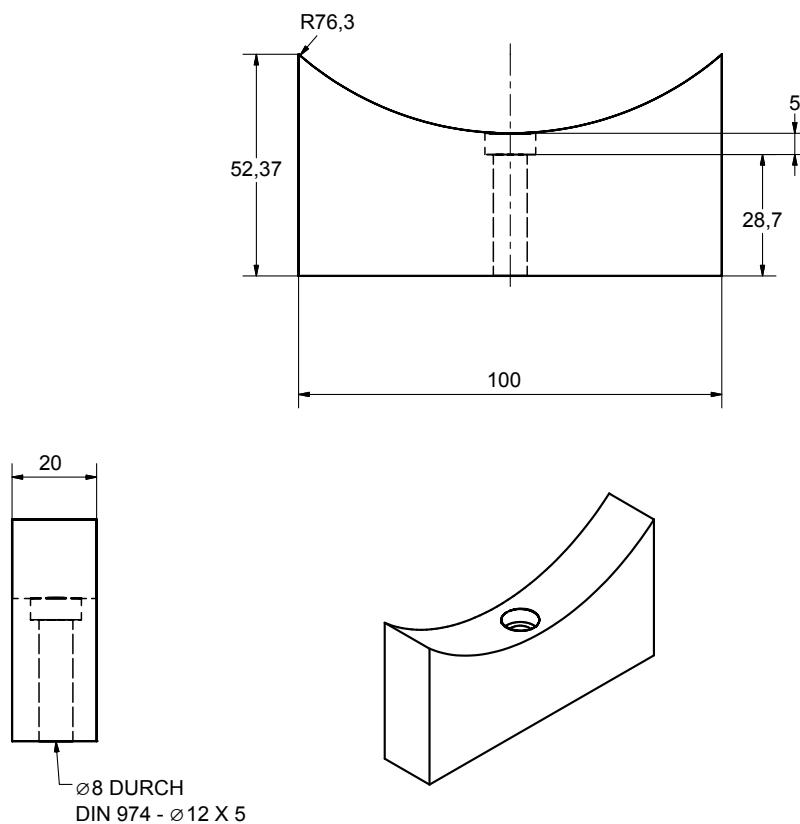
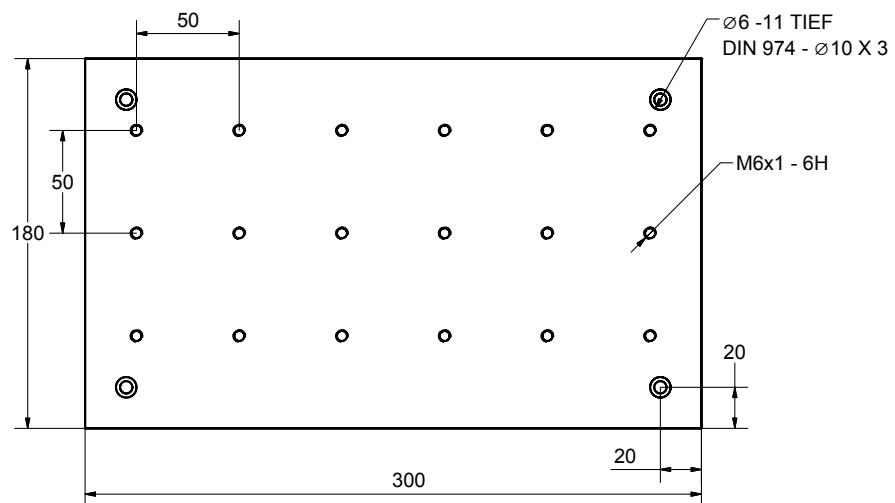


Abbildung D.2.:

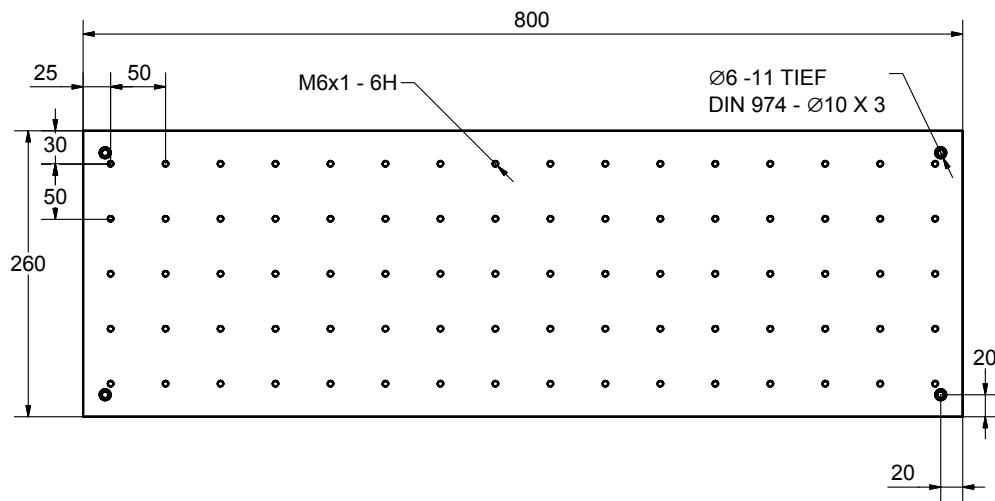
Der Zeichnung folgend wurde ein Gestell aus item-Profilen angefertigt.

**Abbildung D.3.:**

Einer von vier Kunststoffhaltern auf denen das 6-fach Kreuz aufgesetzt wird.



(a) kurze Befestigungsplatte



(b) lange Befestigungsplatte

Abbildung D.4.:

Befestigungsplatten zur Anbringung von optischen Komponenten um die Anlage herum.

D.2. Vakuumkörper und Flansche

Der Vakuumkörper ist ein CF160DN 6-fach Kreuz. Die Flansche sind entsprechend gewählt. Im Detektorflansch ist eine 100 mm Schauglas mit P47 Szintillatorbeschichtung eingesetzt. In Abb. D.5 ist der Flansch für die Elektronenquelle gezeigt. In Abb. ist D.6 einer der beiden identischen Seitenflansche zu sehen.

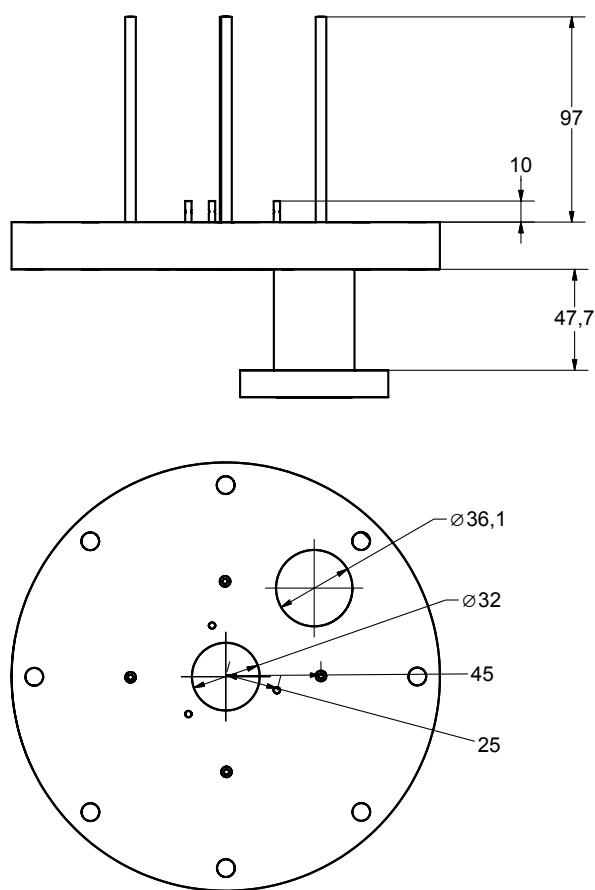


Abbildung D.5.:

Elektronenquellenflansch mit Durchführungsanschluss für die Hochspannungsleitung, einem Anschluss für eine Schauglas und den Stäben zur Befestigung der Anode.

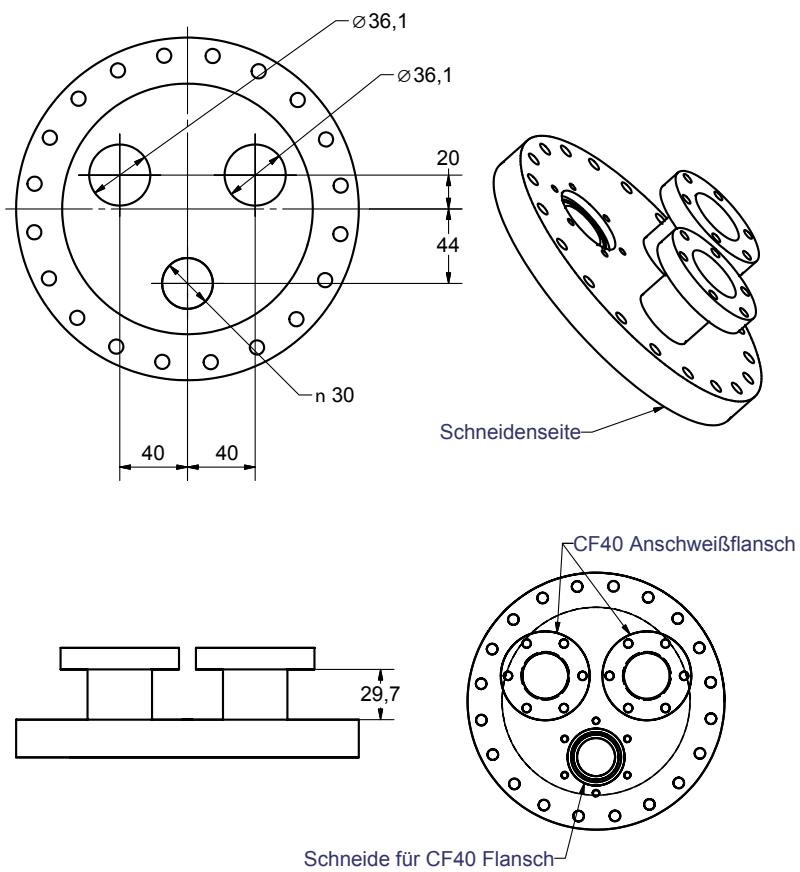


Abbildung D.6.:

Seitenflansch mit zwei Durchführungsanschlüssen und einem Anschluss für ein Schauglas.

D.3. Elektronenquelle und Probenhalter

Basis der Elektronenquelle ist der Flansch. Er enthält einen Anschluss für die Durchführung der Hochspannung und ein Schauglas zur Einkopplung des fs Lasers. Wie in Abb. D.7 gezeigt, wird die Kathode über einen aus Teflon bestehenden Grundkörper und Teflonstäbe am Flansch angebracht. Dies gewährt eine Isolation gegenüber der auf Masse liegenden Anlage. Die Anode wird mit dem Flansch über Metallstäbe verbunden und ist somit auch auf Masse gelegt. Statt einer Blende wird ein TEM Gitter (Anodengitter) eingesetzt, welches durch den Anodengitterhalter in der Anode fixiert wird.

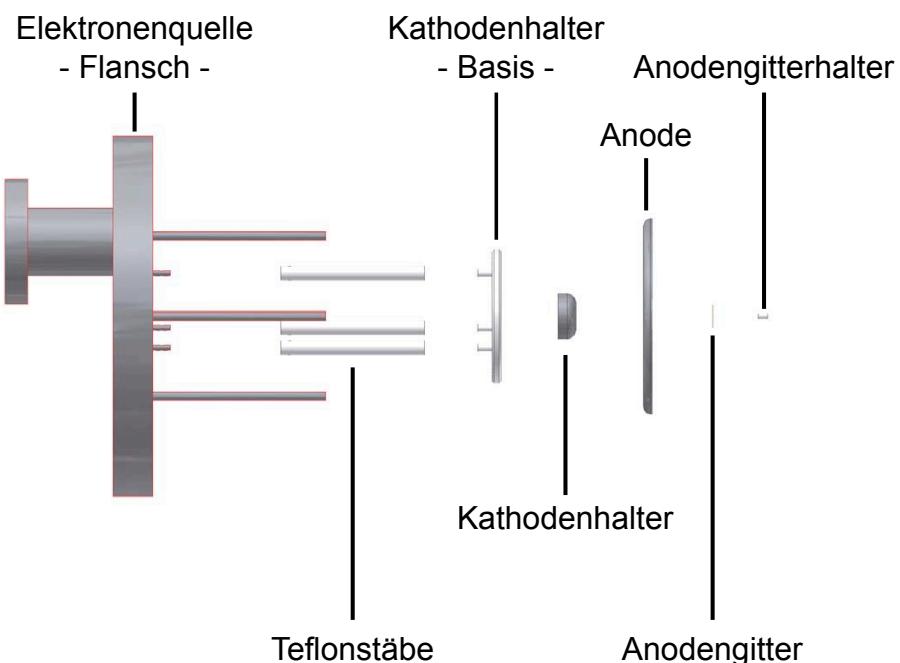


Abbildung D.7.:

Explosionszeichnung der Elektronenquelle. Auf den Elektronenquellenflansch werden die Teflonstäbe montiert, auf die die Kathodenhalterbasis aufgeschraubt wird. Auf dieser Basis aus Teflon sitzt der eigentliche Kathodenhalter aus Stahl. Die Anode wird auf den am Flansch angebrachten Metallstäben befestigt. Das Anodengitter wird durch den Anodengitterhalter in der Anode fixiert.

D.3.1. Kathode

Aus Teflon sind die Stäbe in Abb. D.8, die Kathodenhalterbasis in Abb. D.9 und der Kathodenhaltereinsatz (Abb. D.11) zur Fixierung der eigentlichen Kathode. Der Kathodenhalter in Abb. D.10 ist aus Stahl gefertigt.

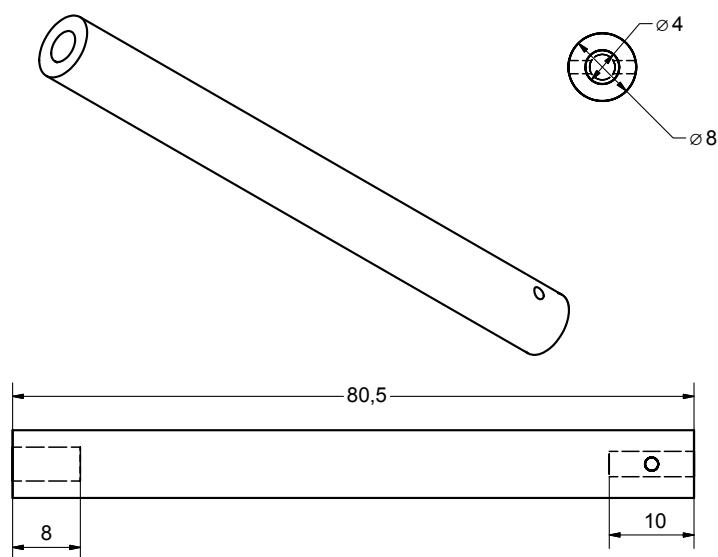
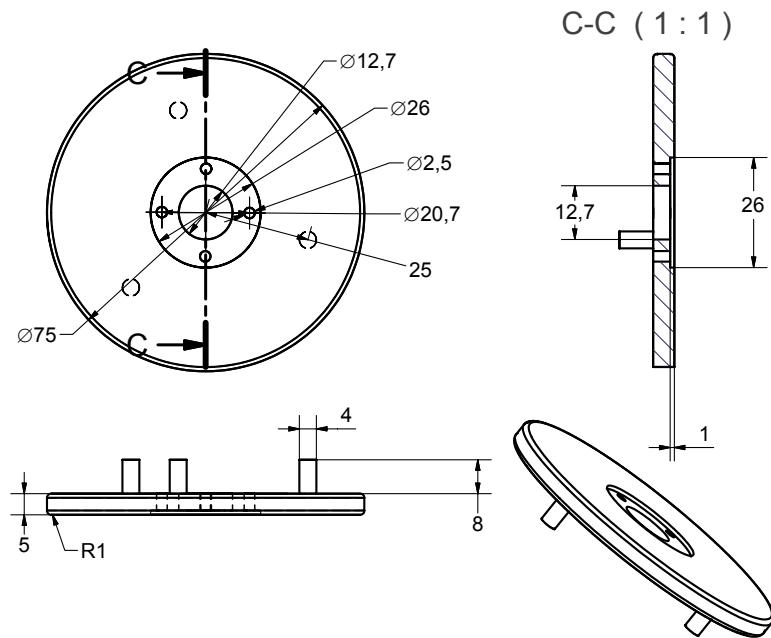


Abbildung D.8.: Teflonstab zur Halterung der Kathodenbasis

**Abbildung D.9.:**

Kathodenbasis aus Teflon. Die Basis wird über Teflonstäbe am Elektronenquellenflansch befestigt. Auf die Basis wird der Kathodenhalter aufgeschraubt.

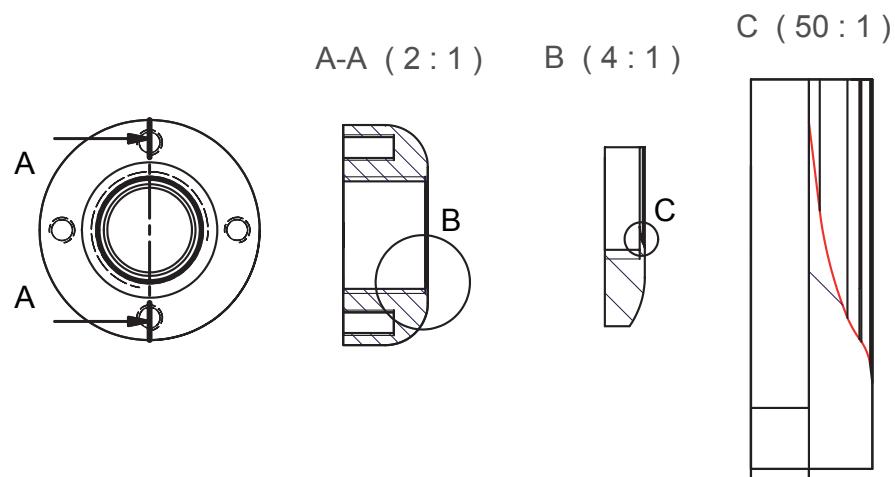
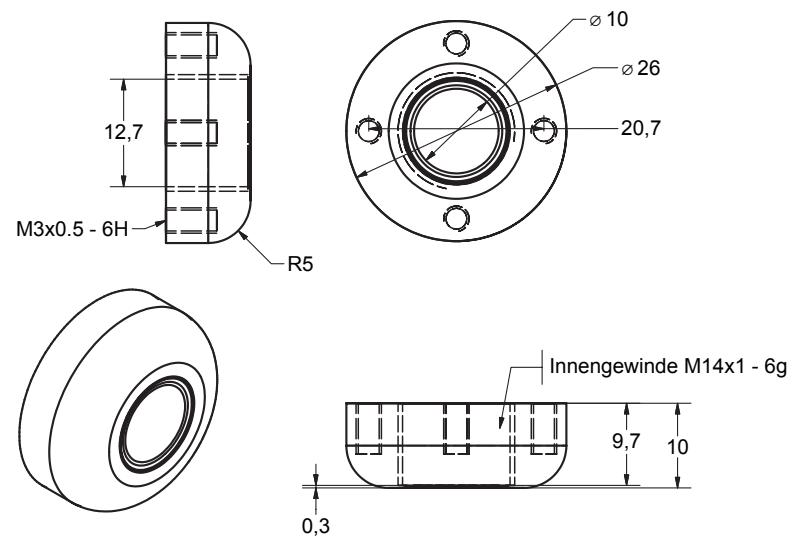
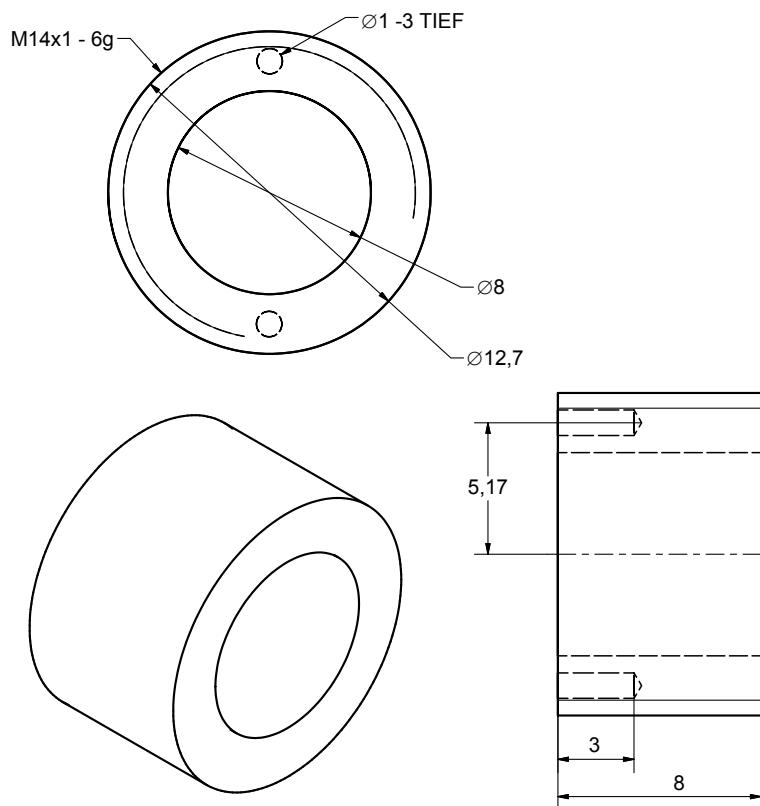


Abbildung D.10.:

Kathodenhalter aus Stahl. Die Kathode wird von unten eingesetzt und mit einem Schraubeinsatz gegen den Überstand gedrückt, der im unteren Teil der Abbildung detailliert gezeigt ist.

**Abbildung D.11.:**

Schraubeinsatz aus Teflon zur Fixierung der Kathode im Kathodenhalter.

D.3.2. Anode

In Abb. D.12 ist die Anodenplatte aus Stahl gezeigt. In die zentrale Bohrung wird ein TEM Gitter anstelle einer Blende eingesetzt und mit einem Teflonring befestigt.

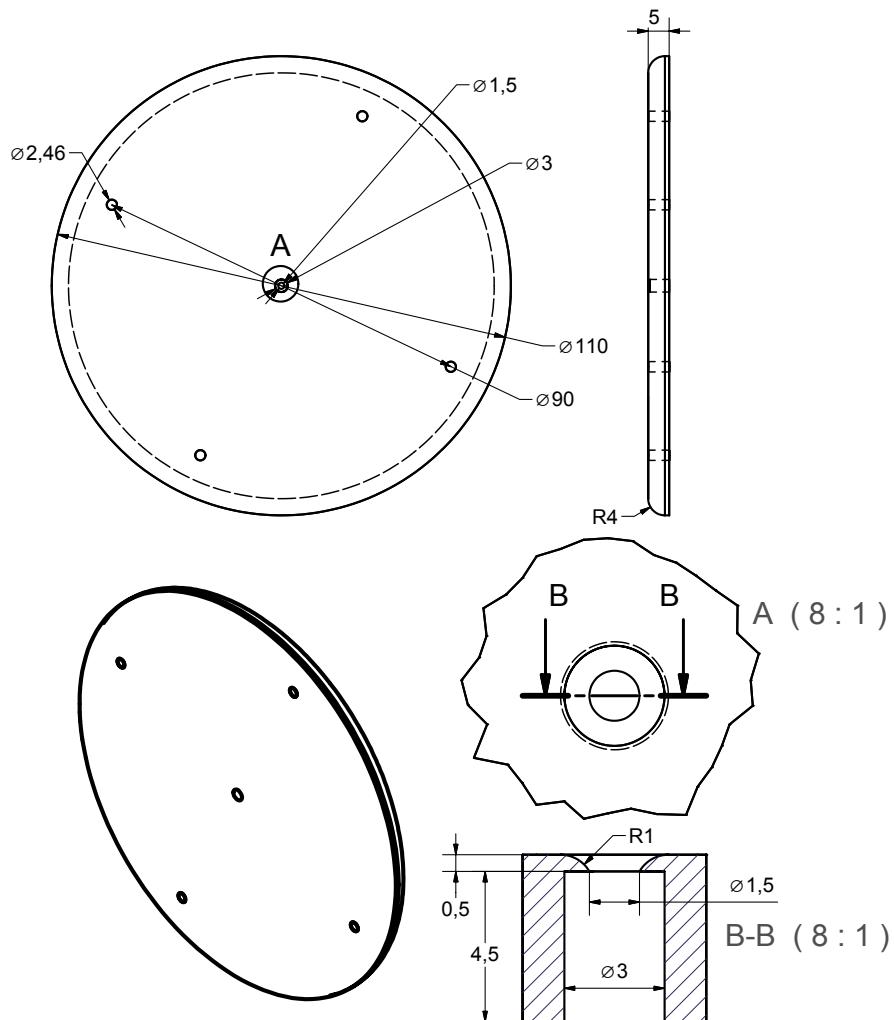


Abbildung D.12.: Anode aus Stahl mit Einsatz für das Anodengitter in Detailansicht.

D.3.3. Probenhalter

In Abb. D.13 ist die Anbringung des Probenhalters an der Anode zu erkennen. Mittels der Befestigungsklötzte wird er direkt an der Anode befestigt. So ist gewährleistet, dass Kathode, Anode und Probe zum Elektronenquellenflansch zentriert sind. Ein Befestigungsklotz ist detailliert in Abb. D.14 gezeigt. Der eigentliche Probenhalter ist in Abb. D.15 zu sehen. Hier können die Einsätze aus Abb. 3.7 eingeschraubt werden.

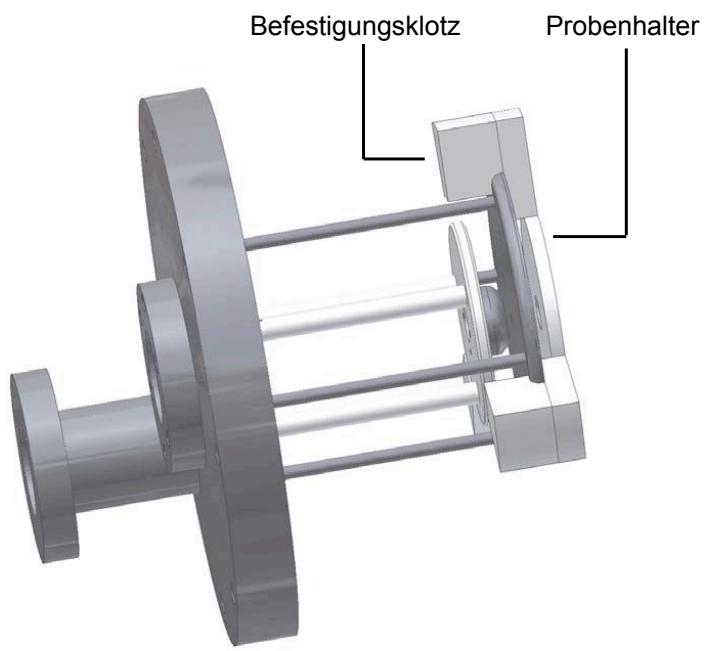


Abbildung D.13.:

Anbringung des Probenhalters an der Elektronenquelle. Der Probenhalter wird mit drei Befestigungsklötzten an der Anode befestigt. Die Probe wird in den Probenhalter eingeschraubt. Die beiden realisierten Einsätze sind in Abb. 3.7 gezeigt.

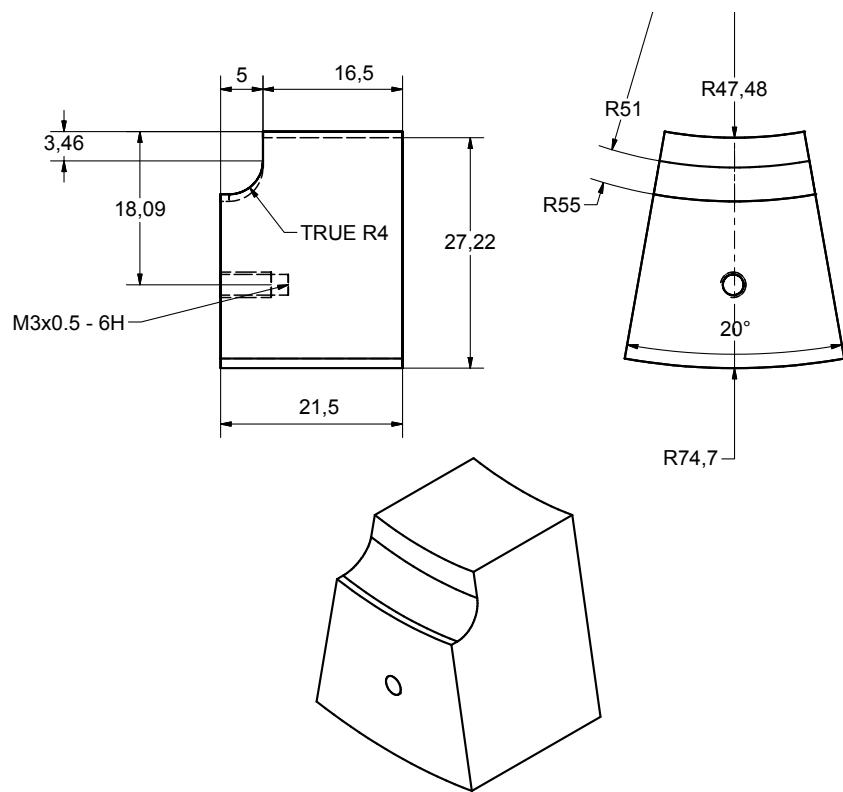
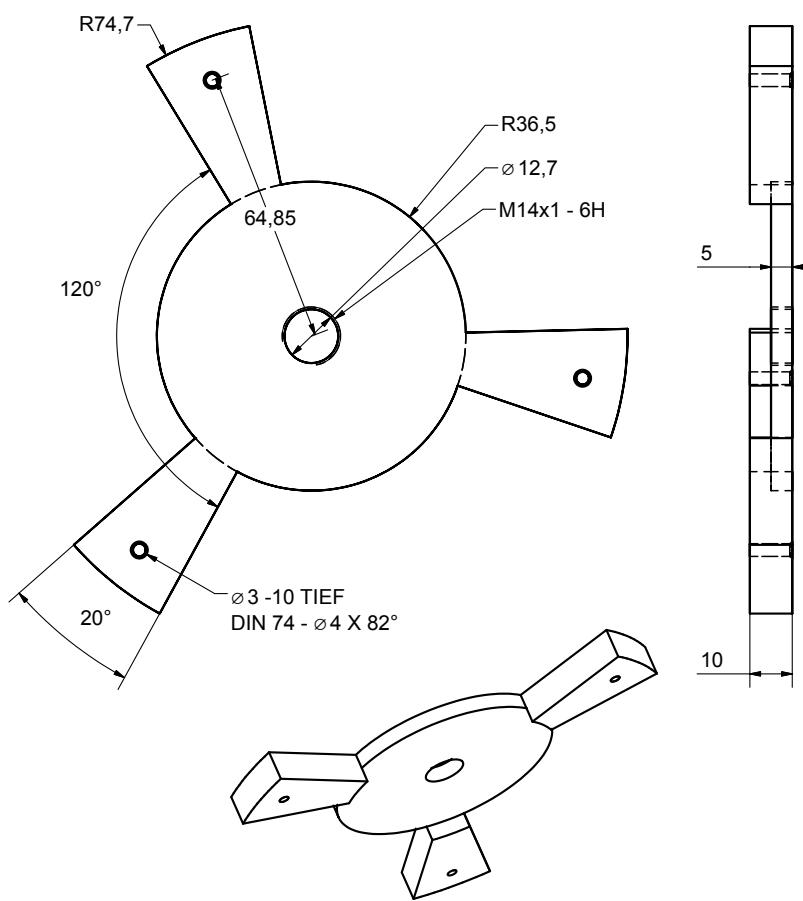


Abbildung D.14.:

Befestigungsklotz aus Teflon zur Fixierung des Probenhalters an der Anode.

**Abbildung D.15.:**

Probekörper aus Teflon. In das zentrale Gewinde können die in Abb. 3.7 gezeigten Einsätze eingeschraubt werden.

Literaturverzeichnis

- [1] DAVISSON, C. und L. H. GERMER: *Diffraction of Electrons by a Crystal of Nickel.* Phys. Rev., 30(6):705–740, Dec 1927.
- [2] MOLIÈRE, K.: *50 Jahre Elektroneninterferenzen.* Naturwissenschaften, 64:310 – 316, 1977.
- [3] GOODMAN, P. (Herausgeber): *Fifty Years of Electron Diffraction.* D. Reidel Publishing Company, 1981.
- [4] WILLIAMS, D. B. und C. B. CARTER: *Transmission electron microscopy: a textbook for materials science.* Plenum Press, New York, 1996.
- [5] SIWICK, B. J., J. R. DWYER, R. E. JORDAN und R. J. DWAYNE MILLER: *Ultrafast electron optics: Propagation dynamics of femtosecond electron packets.* J. Appl. Phys., 92(3):1643 – 1648, 2002.
- [6] WILLIAMSON, J. CHARLES, JIANMING CAO, HYOTCHERL IHEE, HANS FREY und AHMED H. ZEWAIL: *Clocking transient chemical changes by ultrafast electron diffraction.* Nature, 386(6621):159–162, 1997.
- [7] AZAÑA, J., L. R. CHEN, M. A. MURIEL und P. W. E. SMITH: *Experimental demonstration of real-time Fourier transformations using linearly chirped fibre Bragg gratings.* Electr. Lett., 35:2223–2224, 1999.
- [8] WINTER, M., M. WOLLENHAUPT und T. BAUMERT: *Coherent Matter Waves for Ultrafast Laser Pulse Characterization.* Opt. Comm., 264:285 – 292, 2006.
- [9] WOLLENHAUPT, M., A. ASSION, D. LIESE, C. SARPE-TUDORAN, T. BAUMERT, S. ZAMITH, M. A. BOUCHENE, B. GIRARD, A. FLETTNER, U. WEICHMANN und G. GERBER: *Interferences of Ultrashort Free Electron Wave Packets.* Phys. Rev. Lett., 89(17):173001–1–173001–4, 2002.
- [10] LINDNER, F., M. G. SCHÄTZEL, H. WALTHER, A. BALTUSKA, E. GOULIELMAKIS, F. KRAUSZ, D. B. MILOSEVIC, D. BAUER, W BECKER und G. G. PAULUS: *Attosecond Double-Slit Experiment.* Phys. Rev. Lett., 95:040401–1–040401–4, 2005.

- [11] WOLLENHAUPT, M., A. PRÄKELT, C. SARPE-TUDORAN, D. LIESE und T. BAUMERT: *Strong field quantum control by selective population of dressed states.* J. Opt. B, 7(10):S270–S276, 2005.
 - [12] TZALLAS, P., D. CHARALAMBIDIS, N. A. PAPADOGIANNIS, K. WITTE und G. D. TSAKIRIS: *Direct observation of attosecond light bunching.* Nature, 426:267 – 271, 2003.
 - [13] TZALLAS, P., D. CHARALAMBIDIS, N. A. PAPADOGIANNIS, K. WITTE und G. D. TSAKIRIS: *Second-order autocorrelation measurements of attosecond XUV pulse trains.* J. Mod. Opt., 52(2-3):321–338, 2005.
 - [14] LOPEZ-MARTENS, R., J. MAURITSSON, A. JOHANSSON, J. NORIN und A. L'HUILIER: *Time-frequency characterization of high-order harmonic pulses.* Eur. Phys. J. D, 26(1):105–109, 2003.
 - [15] SEKIKAWA, T., T. KATSURA, S. MIURA und S. WATANABE: *Measurement of the intensity-dependent atomic dipole phase of a high harmonic by frequency-resolved optical gating.* Phys. Rev. Lett., 88(19):193902–1–193902–4, 2002.
 - [16] SEKIKAWA, T., T. KANAI und S. WATANABE: *Frequency-Resolved Optical Gating of Femtosecond Pulses in the Extreme Ultraviolet.* Phys. Rev. Lett., 91(10):103902–1–103902–4, 2003.
 - [17] YEN, R., J. LIU und N. BLOEMBERGEN: *Thermally Assisted Multiphoton Photoelectric Emission from Tungsten.* Opt. Commun., 35(2):277 – 282, 1980.
 - [18] WILHELMI, B. und J. HERRMANN: *Lasers for ultrashort light pulses.* North-Holland, Amsterdam, 1987.
 - [19] AKHMANOV, S. A., V. A. VYSLOUKH und A. S. CHIRKIN: *Optics of Femtosecond Pulses.* American Institute of Physics, New York, 1992.
 - [20] DIELS, J. C. und W RUDOLPH: *Ultrashort Laser Pulse Phenomena.* Academic Press, San Diego, 1996.
 - [21] RULLIÈRE, C. E. (Herausgeber): *Femtosecond Laser Pulses.* Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, 1998.
 - [22] WOLLENHAUPT, M., A. ASSION und T. BAUMERT: *Springer Handbook of Lasers and Optics*, Kapitel 12, Seiten 937 – 983. Springer Science and Business Media, New York, 2007.
-

- [23] HORN, C.: *Vektorielle Quantenkontrolle an Molekülen mit Hilfe von maßgeschneiderten Femtosekundenlaserpulsen*. Doktorarbeit, Universität Kassel, Kassel, 2007.
- [24] WEINER, A. M.: *Femtosecond pulse shaping using spatial light modulators*. Review of Scientific Instruments, 71(5):1929–1960, 2000.
- [25] WALMSLEY, I., L. WAXER und C. DORRER: *The role of dispersion in ultrafast optics*. Rev. Sci. Instr., 72(1):1–29, 2001.
- [26] PRÄKELT, A.: *Hochleistungspulsformer in Kompaktbauweise für Femtosekundenlaser - Entwicklung und Realisierung -*. Diplomarbeit, Universität Kassel, Kassel, 2003.
- [27] KÖHLER, J.: *Aufbau eines hochauflösenden Polarisationspulsformers für Femtosekunden-Laserpulse*. Diplomarbeit, Universität Kassel, Kassel, 2006.
- [28] PRÄKELT, A., M. WOLLENHAUPT, A. ASSION, C. HORN, C. SARPE-TUDORAN, M. WINTER und T. BAUMERT: *Compact, robust and flexible setup for femtosecond pulse shaping*. Rev. Sci. Instr., 74(11):4950–4953, 2003.
- [29] COHEN, L.: *Time-Frequency Analysis*. Prentice Hall, Upper Saddle River, 1995.
- [30] WOLLENHAUPT, M.: *Observation and Coherent Control of Atomic and Molecular Dynamics*. Habilitation, Universität Kassel, Kassel, 2004.
- [31] LIESE, D.: *Zeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie in Kaliumatomen in intensiven Femtosekundenlaserfeldern*. Doktorarbeit, Universität Kassel, Kassel, 2007.
- [32] FLIESSBACH, T.: *Lehrbuch der theoretischen Physik*, Band 3. Quantenmechanik. Spektrum, Akademischer Verlag, Heidelberg, Berlin, Oxford, 2. überarb. Aufl. Auflage, 1995.
- [33] BRACEWELL, R. N.: *Fourier Transform and Its Applications*. McGraw-Hill Higher Education, 1999.
- [34] QUIAN, S. und D. CHEN: *Joint time-frequency analysis; Methods and Applications*. Prentice Hall, New Jersey, 1996.
- [35] SCHLEICH, W. P.: *Quantum Optics in Phase Space*. Wiley-VCH, Weinheim, 2001.

- [36] DELONE, N. B. und V. P. KRAINOV: *Multiphoton Processes in Atoms*. Springer series on atoms + plasmas. Springer Verlag, Berlin, Heidelberg, New York, 2nd enlarged and updated edition Auflage, 1999.
- [37] WIENER, N.: *Generalized harmonic analysis*. Acta Mathematica, 55(1):117 – 258, 1930.
- [38] KHINTCHINE, A.: *Korrelationstheorie der stationären stochastischen Prozesse*. Mathematische Annalen, 109:604 – 615, 1934.
- [39] AAMAT-ROLDÁN, I., I. G. CORMACK, P. LOZA-ALVAREZ, E. J. GUALDA und D. ARTIGAS: *Ultrashort pulse characterisation with SHG collinear-FROG*. Optics Express, 12(6):1169–11778, 2004.
- [40] KANE, D.: *Recent progress toward real-time measurement of ultrashort laser pulses*. IEEE J. Quantum Electron., 35(4):421–431, 1999.
- [41] MIYAMOTO, N., M. KAMEI, D. YOSHITOMI, T. KANAI, T. SEKIKA-WA, T. NAKAJIMA und S. WATANABE: *Observation of two-photon above-threshold ionization of rare gases by xuv harmonic photons*. Phys. Rev. Lett., 93(8):083903–1–083903–4, 2004.
- [42] NIKOLOPOULOS, L. A. A., E. P. BENIS, P. TZALLAS, D. CHARALAMBIDIS, K. WITTE und G. D. TSAKIRIS: *Second order autocorrelation of an XUV attosecond pulse train*. Phys. Rev. Lett., 94(11):113905–1–113905–4, 2005.
- [43] KITTEL, C.: *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, München, 14 Auflage, 2006.
- [44] PEDERSEN, S., J. L. HEREK und A. H. ZEWAIL: *The Validity of the "Diradical" Hypothesis: Direct Femtosecond Studies of the Transition-State Structures*. Science, 266(5189):1359–1364, 1994.
- [45] ASSION, A., M. GEISLER, J. HELBING, V. SEYFRIED und T. BAUMERT: *Femtosecond Pump-Probe Photoelectron Spectroscopy: Mapping of Vibrational Wave-Packet Motion*. Phys. Rev. A, 54(6):4605–4608, 1996.
- [46] STORM, L. und H. I. ISRAEL: *Photon cross sections from 1 keV to 100 MeV for elements Z=1 to Z=100*. Atomic Data and Nuclear Data Tables, 7(6):565–681, 1970.
- [47] WILLIAMSON, JC und AH ZEWAIL: *Structural Femtochemistry: Experimental Methodology*. Proceedings of the National Academy of Sciences, 88(11):5021–5025, 1991.

- [48] WILLIAMSON, J. C., M. DANTUS, S. B. KIM und A. H. ZEWAIL: *Ultrafast diffraction and molecular structure*. Chemical Physics Letters, 196(6):529–534, 1992.
- [49] AESCHLIMANN, M., E HULL, J. CAO, C. A. SCHUTTENMAER, L. G. JAHN, Y. GAO, H. E. ELSAYED-ALI und D. A. MANTELL: *A picosecond electron gun for surface analysis*. Rev. Sci. Instr., 66(2):1000–1009, 1995.
- [50] CAO, JIANMING, HYOTCHERL IHEE und AHMED H. ZEWAIL: *Ultrafast electron diffraction and direct observation of transient structures in a chemical reaction*. Proceedings of the National Academy of Sciences, 96(2):338–342, 1999.
- [51] DUDEK, R.C. und P.M. WEBER: *Ultrafast Diffraction Imaging of the Electrocyclic Ring-Opening Reaction of 1,3-Cyclohexadiene*. Journal of Physical Chemistry A, 105(17):4167–4171, 2001.
- [52] PARK, S. T., J. S. FEENSTRA und A. H. ZEWAIL: *Ultrafast electron diffraction: Excited state structures and chemistries of aromatic carbonyls*. J. Chem. Phys., 124:174707–1 – 174707–23, 2006.
- [53] FEENSTRA, J. S.: *Ultrafast Electron Diffraction: Direct Determination of Structural Dynamics of Molecular Excited States*. Doktorarbeit, California Institute of Technology Pasadena, California, 2006.
- [54] SHOROKHOV, D., S. T. PARK und A. H. ZEWAIL: *Ultrafast Electron Diffraction: Dynamical Structures on Complex Energy Landscapes*. Chem. Phys. Chem., 6:2228 – 2250, 2005.
- [55] ELSAYED-ALI, H. E. und G. A. MOUROU: *Picosecond reflection high-energy electron diffraction*. Appl. Phys. Lett., 52(2):103–104, 1988.
- [56] RUAN, CHONG-YU, VLADIMIR A. LOBASTOV, FRANCO VIGLIOTTI, SON-GYE CHEN und AHMED H. ZEWAIL: *Ultrafast Electron Crystallography of Interfacial Water*. Science, 304(5667):80–84, 2004.
- [57] A. JANZEN, B. KRENZER, O. HEINZ, P. ZHOU, D. THIEN, A. HANISCH, F.-J. MEYER ZU HERINGDORF, D. VON DER LINDE und M. HORN VON HOEGEN: *A pulsed electron gun for ultrafast electron diffraction at surfaces*. Rev. Sci. Instr., 78:013906–1 – 013906–7, 2007.
- [58] GEDIK, NUH, DING-SHYUE YANG, GENNADY LOGVENOV, IVAN BOZOVIC und AHMED H. ZEWAIL: *Nonequilibrium Phase Transitions in Cuprates Observed by Ultrafast Electron Crystallography*. Science, 316(5823):425–429, 2007.

- [59] CAO, J., Z. HAO, H. PARK, C. TAO, D. KAU und L. BLASZCZYK: *Femtosecond electron diffraction for direct measurement of ultrafast atomic motions.* Applied Physics Letters, 83(5):1044–1046, 2003.
- [60] SIWICK, BRADLEY J., JASON R. DWYER, ROBERT E. JORDAN und R. J. DWAYNE MILLER: *An Atomic-Level View of Melting Using Femtosecond Electron Diffraction.* Science, 302(5649):1382 – 1385, 2003.
- [61] HASTINGS, J. B., F. M. RUDAKOV, D. H. DOWELL, J. F. SCHMERGE, J. D. CARDOZA, J. M. CASTRO, S. M. GIERNAN, H. LOOS und P. M. WEBER: *Ultrafast time-resolved electron diffraction with megavolt electron beams.* Applied Physics Letters, 89(18):184109, 2006.
- [62] SIWICK, B. J.: *Femtosecond Electron Diffraction Studies of Strongly-Driven Structural Phase Transitions.* Doktorarbeit, Department of Physics, University of Toronto, 2004.
- [63] GUO, C., G. RODRIGUEZ, A. LOBAD und A. J. TAYLOR: *Structural Phase Transition of Aluminum Induced by Electronic Excitation.* Phys. Rev. Lett., 84(19):4493–4496, 2000.
- [64] KANDYLA, M., T. SHIH und E. MAZUR: *Femtosecond dynamics of the laser-induced solid-to-liquid phase transition in aluminum.* Phys. Rev. B, 75:214107–1 – 214107–7, 2007.
- [65] HARB, M., R. ERNSTORFER, T. DARTIGALONGUE, C. T. HEBEISEN, R. E. JORDAN und R. J. D. MILLER: *Carrier Relaxation and Lattice Heating Dynamics in Silicon Revealed by Femtosecond Electron Diffraction.* J. Phys. Chem. B, 110:25308 – 25313, 2006.
- [66] SRINIVASAN, R., V. A. LOBASTOV, C.-Y. RUAN und A. H. ZEWAIL: *Ultrafast Electron Diffraction (UED) – A New Development for the 4D Determination of Transient Molecular Structures.* Helv. Chim. Acta, 86:1763 – 1838, 2003.
- [67] ZEWAIL, A. H.: *4D Ultrafast Electron Diffraction, Crystallography, and Microscopy.* Annu. Rev. Phys. Chem., 57:65 – 103, 2006.
- [68] KING, W. E., G. H. CAMPBELL, A. FRANK, B. REED, J. F. SCHMERGE, B. J. SIWICK, B. C. STUART und P. M. WEBER: *Ultrafast electron microscopy in materials science, biology, and chemistry.* J. Appl. Phys., 97:111101–1 – 111101–27, 2005.

- [69] DWYER, J. R., C. T. HEBEISEN, R. ERNSTORFER, M. HARB, V. B. DEYIRMENJIAN, R. E. JORDAN und R. J. D. MILLER: *Femtosecond electron diffraction: ‘making the molecular movie’*. Philos. Trans. R. Soc. London, Ser. A, 364(1840):741 – 778, 2006.
- [70] QIAN, B.-L und H. E. ELSAYED-ALI: *Electron pulse broadening due to space charge effects in a photoelectron gun for electron diffraction and streak camera systems*. J. Appl. Phys., 91(1):462–468, 2002.
- [71] HINZE, U., A. EGBERT, B. CHICHKOV und K. EIDMANN: *Generation of picosecond hard-x-ray pulses in a femtosecond-laser-driven x-ray diode*. Opt. Lett., 29(17):2079–2081, 2004.
- [72] EGBERT, A., B. MADER, B. TKACHENKO, C. FALLNICH, B. N. CHICHKOV, H. STIEL und P. V. NICKLES: *High-repetition rate femtosecond laser-driven hard-x-ray source*. Appl. Phys. Lett., 81(13):2328 – 2330, 2002.
- [73] ZHAVORONKOV, N., Y. GRITSAI, G. KORN und T. ELSAESSEN: *Ultra-short efficient laser-driven hard X-ray source operated at a kHz repetition rate*. Appl. Phys. B, 79:663 – 667, 2004.
- [74] ZHAVORONKOV, N., Y. GRITSAI, M. BARGHEER, M. WOERNER und T. ELSAESSEN: *Generation of ultrashort Kalpha radiation from quasipoint interaction area of femtosecond pulses with thin foils*. Appl. Phys. Lett., 86:244107, 2005.
- [75] BARGHEER, M., N. ZHAVORONKOV, M. WOERNER und T. ELSAESSEN: *Recent Progress in Ultrafast X-ray Diffraction*. Chem. Phys. Chem, 7:783–792, 2006.
- [76] EGBERT, A. und B. N. CHICHKOV: *High-repetition-rate compact ultrashort x-ray source and applications*. In: NEEV, J., A. OSTENDORF und C. B. SCHAFFER (Herausgeber): *Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers III*, Band 4978 der Reihe *Proceedings of the SPIE*, Seiten 92 – 100. SPIE, 2003.
- [77] EL-MUL TECHNOLOGIES, LTD., Yavne, Israel: *Detector Catalog*.
- [78] LUMENERA CORPORATION: *Lu130 Data Sheet*.
- [79] ANDOR TECHNOLOGY: *CCD, EMCCD and ICCD Camera Comparisons*. Technischer Bericht, 2007.

- [80] RIFFE, D. M., X. Y. WANG, M. C. DOWNER, D. L. FISHER, T. TAJIMA, J. L. ERSKINE und R. M. MORE: *Femtosecond thermionic emission from metals in the space-charge-limited regime*. J. Opt. Soc. Am. B, 10(8):1424 – 1435, 1993.
- [81] BECHTEL, J. H., W. LEE SMITH und N. BLOEMBERGEN: *Two-photon photoemission from metals induced by picosecond laser pulses*. Phys. Rev. B, 15(10):4557 – 4563, 1977.
- [82] FOWLER, R. H.: *The Analysis of Photoelectric Sensitivity Curves for Clean Metals at Various Temperatures*. Phys. Rev., 38:45 – 56, 1931.
- [83] DUBRIDGE, L. A.: *Theory of the Energy Distribution of Photoelectrons*. Phys. Rev., 43:727 – 741, 1933.
- [84] RICHARDSON, O. W.: *Electron Emission from Metals as a Function of Temperature*. Phys. Rev., 23(2):153–155, Feb 1924.
- [85] DUSHMAN, S.: *Thermionic Emission*. Rev. Mod. Phys., 2(4):381–476, Oct 1930.
- [86] HERRING, C. und M. H. NICHOLS: *Thermionic Emission*. Rev. Mod. Phys., 21(2):185–270, Apr 1949.
- [87] ANISIMOV, S. I., B. L. KAPELIOVICH und T. L. PEREL'MAN: *Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses*. Sov. Phys. JETP., 39(2):375 – 377, 1974.
- [88] CHEN, J.K., D.Y. TZOU und J.E. BERAUN: *A semiclassical two-temperature model for ultrafast laser heating*. International Journal of Heat and Mass Transfer, 49(1 – 2):307 – 316, 2006.
- [89] FUJIMOTO, J. G., J. M. LIU, E . P. IPPEN und N. BLOEMBERGEN: *Femtosecond Laser Interaction with Metallic Tungsten and Nonequilibrium Electron and Lattice Temperatures*. Phys. Rev. Lett., 53(19):1837 – 1840, 1984.
- [90] MOHR, P.J., B.N. TAYLOR und D.B. NEWELL: *The 2006 CODATA Recommended Values of the Fundamental Physical Constants*, <http://physics.nist.gov/constants>, 2007.
- [91] SRINIVASAN-RAO, T., J. FISCHER und T. TSANG: *Photoemission studies on metals using picosecond ultraviolet laser pulses*. J. Appl. Phys., 69(5):3291 – 3296, 1991.

- [92] GROENEVELD, R. H. M., R. SPRIK und A. LAGENDIJK: *Ultrafast relaxation of electrons probed by surface plasmons at a thin silver film.* Phys. Rev. Lett., 64(7):784–787, Feb 1990.
- [93] LIDE, D. R. (Herausgeber): *CRC Handbook of chemistry and physics : a ready-reference book of chemical and physical data.* Taylor & Francis, Boca Raton, Florida, 2005.
- [94] YUN-QUAN, L., Z. JIE und L. WEN-XI: *Interaction of femtosecond laser pulses with metal photocathode.* Chin. Phys., 14(8):1671 – 1675, 2005.
- [95] QIAN, B.-L und H. E. ELSAYED-ALI: *Comment on „Ultrafast electron optics: Propagation dynamics of femtosecond electron packets“[J. Appl. Phys. 92, 1643 (2002)].* J. Appl. Phys., 94(1):803–806, 2003.
- [96] BAUM, P. und A. H. ZEWAIL: *Breaking resolution limits in ultrafast electron diffraction and microscopy.* PNAS, 103(44):16105 – 16110, 2006.
- [97] SIWICK, B. J., A. A. GREEN, C. T. HEBEISEN und R. J. D. MILLER: *Characterization of ultrashort electron pulses by electron-laser pulse cross correlation.* Optics Letters, 30(9):1057 – 1059, 2005.
- [98] HEBEISEN, C. T., R. ERNSTORFER, M. HARB, T. DARTIGALONGUE, R. E. JORDAN und R. J. D. MILLER: *Femtosecond electron pulse characterization using laser ponderomotive scattering.* Optics Letters, 31(23):3517 – 3519, 2006.
- [99] KIBBLE, T. W. B.: *Mutual Refraction of Electrons and Photons.* Phys. Rev., 150(4):1060 – 1069, Oct 1966.
- [100] WITT, W.: *Absolute Präzisionsbestimmung von Gitterkonstanten an Germanium- und Aluminium-Einkristallen mit Elektroneninterferenzen.* Zeitschrift für Naturforschung, 22A:22, 1967.
- [101] NAVAL RESEARCH LABORATORY CENTER FOR COMPUTATIONAL MATERIALS SCIENCE: *Crystal Lattice Structures: Corundum,* http://cst-www.nrl.navy.mil/lattice/struk/d5_1.html.
- [102] SLATER, J. C.: *Atomic Radii in Crystals.* The Journal of Chemical Physics, 41(10):3199–3204, 1964.
- [103] ARDENNE, M. VON: *Tabellen zur angewandten Physik*, Band 1. VEB Deutscher Verlag der Wissenschaften, 2. Auflage, 1973.

- [104] TAMBUYSER, P: *A simple method for the direct measurement of diffraction patterns in the EM400 T transmission electron microscope.* Journal of Physics E: Scientific Instruments, 16(6):483–486, 1983.
- [105] FRANK, F. C.: *On Miller–Bravais indices and four-dimensional vectors.* Acta Crystallographica, 18(5):862–866, May 1965.
- [106] FEHLNER, F. P. und N. F. MOTT: *Low-temperature oxidation.* Oxidation of Metals, 2(1):59–99, 1970.
- [107] FERRIER, R P und R T MURRAY: *The observation of fine structure surrounding the undiffracted beam in electron diffraction.* Journal of Physics D: Applied Physics, 1(2):207–209, 1968.
- [108] TREBINO, R.: *Frequency-Resolved Optical Gating: The Measurement of Ultrafast Laser Pulses.* Kluwer Academic Publishers, Norwell, Massachusetts, 2000.
- [109] SCHOTTKY, W.: *Über den Einfluß von Strukturwirkungen, besonders der Thomsonschen Bildkraft, auf die Elektronenemission der Metalle.* Physik. Zeitschr., 15:872, 1914.
- [110] LUGOVSKOY, A. V. und I. BRAY: *Ultrafast electron dynamics in metals under laser irradiation.* Phys. Rev. B, 60(5):3279 – 3288, 1999.
- [111] HORN, C., M. WOLLENHAUPT, M. KRUG, T. BAUMERT, R. DE NALDA und L. BANARES: *Adaptive control of molecular alignment.* Phys. Rev. A, 73:031401–1 – 031401–4, 2006.
- [112] WOLLENHAUPT, M., A. PRÄKELT, C. SARPE-TUDORAN, D. LIESE und T. BAUMERT: *Quantum control and quantum control landscapes using intense shaped femtosecond pulses.* J. Mod. Opt., 52(16):2187 – 2195, 2005.
- [113] SPEARS, W. M., K. A. DE JONG, T. BÄCK, D. B. FOGEL und H. DE GARIS: *An Overview of Evolutionary Computation.* In: BRAZDIL, P. B. (Herausgeber): *Proceedings of the European Conference on Machine Learning (ECML-93)*, Band 667, Seiten 442 – 459, Wien, Österreich, 1993. Springer Verlag.
- [114] FOGEL, L. J., A. J. OWENS und M. J. WALSH: *Artificial Intelligence through Simulated Evolution.* John Wiley Sons, New York, 1966.
- [115] RECHENBERG, I.: *Evolutionsstrategie : Optimierung technischer Systeme nach Prinzipien der biologischen Evolution*, Band 15 der Reihe Problemata. Fromann-Holzboog, Stuttgart - Bad Cannstatt, 1973.
-

- [116] HOLLAND, J. H.: *Adaptation in Natural and Artificial Systems*. University of Michigan Press, Ann Arbor, 1975.
- [117] SIEDSCHLAG, CH., O. M. SHIR, TH. BACK und M. J. J. VRACKING: *Evolutionary algorithms in the optimization of dynamic molecular alignment*. Optics Communications, 264(2):511–518, 2006.
- [118] WHITLEY, D.: *A Genetic Algorithm Tutorial*. Samizdat Press, <http://samizdat.mines.edu/>, Computer Science Department - Colorado State University, 1993.
- [119] WHITLEY, D.: *The GENITOR Algorithm and Selective Pressure: Why Rank-Based Allocation of Reproductive Trials is Best*. In: *Proceedings of the Third International Conference on Genetic Algorithms*, Seiten 116 – 121. Fairfax, 1989.
- [120] SEYFRIED, V.: *Beobachtung und Kontrolle molekularer Dynamik durch Femtosekundenpulse*. Doktorarbeit, Universität Würzburg, Würzburg, 1998.
- [121] COOK, W.: *Traveling Salesman Problem*, <http://www.tsp.gatech.edu/index.html>, 2007.

E. Liste der Veröffentlichungen

Kapitel 2 wurde in leicht verkürzter Fassung in

- WINTER, M., M. WOLLENHAUPT und T. BAUMERT:
Coherent Matter Waves for Ultrafast Laser Pulse Characterization.
Opt. Commun., **264**:285 – 292, 2006.

veröffentlicht. Des weiteren wurde im Rahmen meiner Promotion noch folgende Veröffentlichungen publiziert:

- SARPE-TUDORAN, C., A. ASSION, M. WOLLENHAUPT, M. WINTER und T. BAUMERT:
Plasma dynamics of water breakdown at a water surface induced by femtosecond laser pulses
Appl. Phys. Lett., **88**:261109-1 – 261109-3, 2006.
- WOLLENHAUPT, M., A. ASSION, O. GRAEFE, C. HORN, D. LIESE, C. SARPE-TUDORAN, M. WINTER und T. BAUMERT:
Quantum control beyond spectral interference and population control: Can resonant intense laser pulses freeze the population?
In: MARTIN, M. M. und J. T. HYNES (Herausgeber): *Femtochemistry and Femtobiology*, Seiten 139–142. Elsevier, 2004.
- WOLLENHAUPT, M., A. ASSION, O. BAZHAN, C. HORN, D. LIESE, C. SARPE-TUDORAN, M. WINTER und T. BAUMERT:
Control of interferences in an Autler-Townes doublet: Symmetry of control parameters.
Phys. Rev. A, **68**:015401, 2003.
- ASSION, A., M. WOLLENHAUPT, L. HAAG, F. MAIOROV, C. SARPE-TUDORAN, M. WINTER, U. KUTSCHERA und T. BAUMERT:
Femtosecond laser-induced-breakdown spectrometry for Ca^{2+} analysis of biological samples with high spatial resolution.
Appl. Phys. B, **77**(4):391 – 398, 2003.
- PRÄKELT, A., M. WOLLENHAUPT, A. ASSION, C. HORN, C. SARPE-TUDORAN, M. WINTER und T. BAUMERT:
Compact, robust and flexible setup for femtosecond pulse shaping.
Rev. Sci. Instr., **74**(11):4950–4953, 2003.

- WOLLENHAUPT, M., A. ASSION, O. GRÄFE, D. LIESE, C. SARPE-TUDORAN, M. WINTER und T. BAUMERT:
Changes of the electronic structure along the internuclear coordinate studied by ultrafast photoelectron spectroscopy: the $^2\Sigma_u^+$ Na_2 double-minimum-state.
Chem. Phys. Lett., **376**:457 – 464, 2003.

F. Danksagung

An dieser Stelle möchte ich mich bei den Personen bedanken, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

An erster Stelle ist Prof. Dr. Baumert zu nennen, der es ermöglicht hat, durch diese Arbeit in den spannenden Bereich der „molecular movies“ einzusteigen und mir gleichzeitig genug Spielraum gewährt hat, um die, in der Diplomarbeit begonnenen, Arbeiten zur Pulscharakterisierung weiterzuführen. Seine ständige Bereitschaft zum „Fordern und Fördern“ hat viel zum Gelingen der Arbeit beigetragen.

Besonderer Dank gilt Priv. Doz. Dr. M. Wollenhaupt für viele interessante und hilfreiche Gespräche, ohne die diese Arbeit nicht in der jetzigen Form entstanden wäre.

Lars Martin und Tanja Weiß aus der Experimentalphysik IV möchte ich für die Herstellung der unterschiedlichen Transmissionsphotokathoden danken.

Björn Mader und Ulf Hinze vom LZH gilt Dank für die Zusammenarbeit bei den Experimenten an den Röntgenquellen des LZH im Rahmen des SPP 1134.

Für die Beratung zum Aufbau der Vakuumanlage danke ich ganz besonders Marc Krug, der mit vielen interessanten und hilfreichen Vorschlägen, sowie der Montage der Gaszu- und ableitungen viel zum Funktionieren der Anlage beigetragen hat.

Außerdem ist Cristian Sarpe-Tudoran für die liebevolle Pflege des Lasersystems zu danken. Genauso ist Dirk Liese und Oksana Graefe für die Betreuung der Molekularstrahlanlage zu danken.

Lars Haag gilt Dank für den Aufbau und die Unterhaltung der hervorragenden IT Infrastruktur der Arbeitsgruppe.

Außerdem möchte ich mich noch bei Tim Bayer, Lars Englert, Petra Kasper, Andrea Klumpp¹, Jens Köhler, Ute Meier-Dietrich, Jutta Mildner, Johannes Schneider und allen aktuellen und ehemaligen Mitgliedern der Arbeitsgruppe für Rat und Tat, sowie die angenehme Arbeitsatmosphäre in der Arbeitsgruppe bedanken.

Zusätzlich sei an dieser Stelle auch die „Teerunde“ [23] erwähnt, deren informeller Gedankenaustausch immer wieder neue Impulse gab.

Meinen Eltern möchte ich ganz besonders für ihre vielfältige Unterstützung danken, die vieles in den letzten Jahren vereinfacht, oder sogar erst möglich gemacht hat. Ein ganz besonders großes Dankeschön geht an Annnette, die mich immer unterstützt hat und mir über die mannigfachen, im Laufe so einer Arbeit auftretenden, schwierigen Momente hinweg geholfen hat.

¹... nicht zuletzt für die hervorragende Verköstigung, während langer Rollenspielabende

