

Marc Krug

# Kohärente Kontrolle winkelaufgelöster Photoelektronenspektren

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. Arno Ehresmann

Tag der mündlichen Prüfung

28. April 2010

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. 2010

ISBN print: 978-3-89958-920-7

ISBN online: 978-3-89958-921-4

URN: <http://nbn-resolving.de/urn:nbn:de:0002-9213>

© 2010, kassel university press GmbH, Kassel  
[www.upress.uni-kassel.de](http://www.upress.uni-kassel.de)

Printed in Germany



# Inhaltsverzeichnis

<b>Einleitung</b>	<b>7</b>
<b>1 Grundlagen</b>	<b>11</b>
1.1 Mathematische Beschreibung ultrakurzer Laserpulse . . . . .	11
1.2 Formung ultrakurzer Pulse . . . . .	14
1.2.1 Dispersive Medien . . . . .	14
1.2.2 Phasenmodulation . . . . .	14
1.3 Abbildende Photoelektronenspektroskopie . . . . .	21
1.3.1 Funktionsweise eines PEIS . . . . .	21
1.3.2 Der pBasex-Algorithmus . . . . .	26
1.4 Numerische Simulation von Photoelektronenspektren . . . . .	40
<b>2 Experimenteller Aufbau</b>	<b>43</b>
2.1 Lasersysteme . . . . .	43
2.1.1 Nd:YAG-Laser . . . . .	44
2.1.2 Ti:Saphir Femtosekunden-Oszillator . . . . .	44
2.1.3 Ti:Saphir Femtosekunden-Verstärkersystem . . . . .	45

2.1.4	Phasenmodulator . . . . .	47
2.2	Die Vakuumanlage . . . . .	52
2.3	Kalibrierung . . . . .	55
2.4	Restphasenkompensation . . . . .	61
<b>3</b>	<b>Kohärente Starkfeld-Anregung von Natrium-Atomen</b>	<b>65</b>
3.1	Durchführung der Messung . . . . .	68
3.2	Experiment und Ergebnisse . . . . .	70
3.3	Diskussion . . . . .	76
3.3.1	Fünf-Niveau Modell . . . . .	76
3.3.2	Mehr-Niveau System . . . . .	80
3.4	Zusammenfassung . . . . .	82
<b>4</b>	<b>Erweiterung der Grundlagen</b>	<b>85</b>
4.1	Formung der Polarisaton . . . . .	85
4.1.1	Wellenplatten . . . . .	86
4.1.2	Spektrale Polarisationsformung . . . . .	89
4.2	3D-Simulationen der Photoelektronenverteilungen . . . . .	92
<b>5</b>	<b>Tomographie dreidimensionaler Elektronen-Wellenpakete</b>	<b>97</b>
5.1	Motivation . . . . .	98
5.1.1	Kontrolle der Photoelektronenspektren . . . . .	100

5.2	Autler-Townes Doublett . . . . .	106
5.3	Tomographie-Algorithmus . . . . .	108
5.3.1	Rekonstruktion von 2D-Schnitten . . . . .	108
5.3.2	Rekonstruktion von 3D-Intensitätsverteilungen . . . . .	109
5.4	Experimenteller Aufbau . . . . .	112
5.4.1	Polarisationsformer . . . . .	113
5.4.2	Phasenverschiebungen . . . . .	116
5.5	Rekonstruktionsmethoden: Tomographie- und pBasex-Algorithmus . . . . .	118
5.5.1	Testmessung $ f, m = 0\rangle$ . . . . .	118
5.5.2	Testmessung für polarisations-geformte Laserpulse . . . . .	119
<b>6</b>	<b>Kohärente Kontrolle dreidimensionaler Elektronen-Wellenpakete</b>	<b>121</b>
6.1	Kontrolle durch Elliptizität . . . . .	122
6.2	Kontrolle durch das Anregungsspektrum . . . . .	128
6.3	Kontrolle durch Intensität . . . . .	133
6.3.1	Messung mit Oszillator . . . . .	136
6.4	Kontrolle durch Polarisationsformung . . . . .	138
6.5	Evolutionäre Optimierung . . . . .	143
6.5.1	Beispiel $\Phi$ . . . . .	143
6.5.2	Beispiel $I$ . . . . .	149
6.6	Zusammenfassung . . . . .	154

## INHALTSVERZEICHNIS

---

<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>157</b>
<b>A Tomographie-Algorithmus Erweiterung</b>	<b>159</b>
<b>B Photoelektronen-Winkelverteilungen</b>	<b>163</b>
<b>C Programme</b>	<b>167</b>
C.1 Kontrollprogramme . . . . .	167
C.1.1 Hochspannungs-Kontrollprogramm . . . . .	168
C.1.2 Mess- und Steuerprogramm . . . . .	170
C.2 Analyseprogramm . . . . .	172
C.3 Auswertungsprogramm . . . . .	175
<b>D Das Natrium-Atom</b>	<b>177</b>
<b>E Dispenserhalter V3</b>	<b>179</b>
<b>Liste der Veröffentlichungen</b>	<b>181</b>
<b>Danksagung</b>	<b>183</b>

# Einleitung

Unsere Gesellschaft profitiert seit Jahrzehnten von den Errungenschaften der Lasertechnologie. Schneiden von Metall und anderen Werkstoffen mit rasender Geschwindigkeit, Bohren von Löchern mit sehr hoher Präzision, Beschichten von Oberflächen, Belichten der Trommeln in Laserdruckern, optische Diagnose von schwer erreichbaren Stellen wie dem Augenhintergrund und Anwendung in der Chirurgie oder Zahnmedizin sind nur einige der Anwendungsfelder, in denen Laser heute eingesetzt werden. Daneben ist auch die primär auf Lasern basierende optische Informationsspeicherung auf Datenträgern wie DVD's und BluRay's zunehmend wichtiger. In der Wissenschaft spielt der Laser nach wie vor eine große Rolle, da seine Eigenschaften wie Kohärenz und die hohe im Strahl transportierte Leistung für viele Experimente von Interesse sind.

Gepulste Lasersysteme sind in neuerer Zeit durch immer kürzere Pulsdauern interessant geworden, die seit einigen Jahren schon in den Bereich weniger Femtosekunden ( $1 \text{ fs} = 10^{-15} \text{ s}$ ) bis einigen hundert Attosekunden ( $1 \text{ as} = 10^{-18} \text{ s}$ ) vordringen. Diese als ultrakurz bezeichneten Laserpulse haben neben ihrer sehr kurzen Pulsdauer die Eigenschaft eines sehr breiten Spektrums, da durch den fundamentalen Zusammenhang zwischen Frequenz- und Zeitraum, der durch die Fouriertransformation gegeben ist, beide Größen über die Unschärferelation miteinander verbunden sind. Beide Eigenschaften von Ultrakurzpulslasern, die kurze Pulsdauer sowie das breite Spektrum, sind für Arbeiten, die zu Nobelpreisen geführt haben, entscheidend gewesen. Der Nobelpreis für Chemie 1999 ging an A.H. Zewail, der die kurze Pulsdauer eines Femtosekunden-Lasersystems verwendete, um ein neues Forschungsfeld zu begründen, die Femtochemie. Diese beschäftigt sich mit der Analyse der Übergangszustände von chemischen Reaktionen und stellt auch heute noch eine der Hauptanwendungsfelder der Femtosekundenlaser dar. Der Nobelpreis für Physik 2005 ging zu jeweils 1/4 an J.L. Hall und an T.W. Hänsch für ihren Beitrag zur Entwicklung der laser-basierten Präzisions-Spektroskopie mit der optischen Frequenzkamm-Methode, die durch die sehr breiten Spektren ultrakurzer Laser erst möglich wird.

Die Steuerung chemischer Reaktionen ist eines der Ziele, das mit ultrakurzen Laser-

---

pulsen auf dem Gebiet der kohärenten Kontrolle verfolgt wird. Dazu ist es wichtig, zu zeigen, dass mit den ultrakurzen Laserpulsen eine Form der Kontrolle überhaupt möglich ist. Die Phasenmodulation und auch die Polarisationsformung stellen interessante Werkzeuge zur Verfügung, um die Eigenschaften der ultrakurzen Laserpulse zu steuern. Um zu zeigen, dass solche phasenmodulierten und polarisationsgeformten Laserpulse Einfluss auf die Anregung elektronischer Systeme haben, werden in dieser Arbeit Eielektronensysteme wie Natrium und Kalium verwendet, die im Vergleich mit molekularen Systemen deutlich leichter zu verstehen sind, aber dennoch viele Möglichkeiten der Anregung bieten. Zur Analyse der Reaktionen des atomaren Systems wird hier die abbildende Photoelektronenspektroskopie verwendet, bei der die gesamte auslaufende Elektronenwelle auf einen ortsauflösenden Detektor abgebildet wird. Die angeregten Zustände in den Atomen führen bei der Ionisation gemäß ihrer energetischen Lage und der zusätzlichen Photonenenergie zu entsprechenden kinetischen Energien der Photoelektronen und somit zu Ringen mit verschiedenen Radien auf dem ortsauflösenden Detektor. Die Winkelverteilung der Ringe ist aufgrund der Drehimpulserhaltung abhängig von dem Drehimpuls des gebundenen Zustands und dem Drehimpuls der zur Ionisation verwendeten Photonen. Das Abbildende Spektrometer kann somit mehr Informationen zur Verfügung stellen als ein klassisches Elektronenspektrometer, das lediglich die Energie der Photoelektronen messen kann. Um die Winkelverteilungen und die energetische Struktur der Photoelektronen aus den Messungen zu rekonstruieren, muss die bei der Abbildung der sphärischen Expansion der Photoelektronen auf dem ortsauflösenden Detektor stattfindende Abel-Transformation durch eine Abel-Inversion rekonstruiert werden.

In einem ersten Kapitel werden zunächst die Grundlagen beschrieben, die für die abbildende Photoelektronenspektroskopie von atomaren Systemen mit phasenmodulierten ultrakurzen Laserpulsen notwendig sind. In einem weiteren Kapitel wird der experimentelle Aufbau mit dem Phasenmodulator und dem Abbildenden Spektrometer beschrieben. Hier wird auch auf die Kalibrierung des Abbildenden Spektrometers eingegangen, sowie auf die für die verschiedenen Experimente notwendige Restphasenkompensation. Dann wird die kohärente Stark-Feld Anregung von Natrium-Atomen mit phasenmodulierten Laserpulsen gezeigt, bei der besonders die verschiedenen Winkelverteilungen zu Erkenntnissen bezüglich der aktiven Anregungsmechanismen führen. Es wird weiterhin dargestellt, dass eine selektive Anregung der unterschiedlichen Energieniveaus nahe der Schwelle durch Variation eines einzelnen Parameters, dem linearen Chirp  $\varphi_2$ , möglich ist<sup>1</sup>.

In den darauf folgenden Kapiteln werden Experimente zur Anregung von Kalium-Atomen gezeigt. Dazu werden zunächst weitere Grundlagen dargestellt, die zum Verständnis der folgenden Experimente notwendig sind. Die vorher verwendete

---

<sup>1</sup>Diese Experimente sind in [1] publiziert worden.

---

Phasenmodulation wird um die Polarisationsformung erweitert und der Simulation energieaufgelöster Photoelektronenspektren folgt ein Modell zur Bestimmung der dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilung. Hierbei werden entsprechende Simulationen und Vorexperimente gezeigt, um die einzelnen Effekte zu veranschaulichen.

Anschließend wird motiviert, warum Kontroll Szenarien, wie die am Natrium-Atom demonstrierten, deutlich ausgeweitet werden können, indem ein atomares System mit polarisationsgeformten Laserpulsen angeregt wird. Es wird gezeigt, dass mit dem zusätzlichen vektoriellen Freiheitsgrad der Laserpulse ein deutlich höheres Maß an Kontrolle erreicht werden kann<sup>2</sup>. Die Abel-Inversion zur Rekonstruktion der Struktur der Photoelektronen ist dann jedoch nicht mehr möglich und eine andere Methode zur Rekonstruktion wird erforderlich. Hierfür wird eine komplett neue Rekonstruktionsmethode vorgestellt, die auf der tomographischen Messung einer dreidimensionalen Intensitätsverteilung basiert. Die Messmethode mit der entsprechenden Rekonstruktion wird beschrieben und Beispiele gezeigt, die illustrieren wie gut die tomographische Rekonstruktion von Photoelektronen-Winkelverteilungen funktioniert<sup>3</sup>.

In dem abschließenden Kapitel wird gezeigt, auf welche Art Kontrolle auf die dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung ausgeübt werden kann. Verschiedene Methoden werden dargestellt: von der Kontrolle durch die Elliptizität, das Anregungsspektrum und die Intensität der Laserpulse bis hin zur Kontrolle durch Polarisationsformung werden die verschiedenen Methoden mit Beispielen beschrieben und die jeweiligen Auswirkungen auf die dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilungen dargestellt. Als Abschluss werden zwei Beispiele für die evolutionäre Optimierung der Projektionen mit polarisationsgeformten ultrakurzen Laserpulsen beschrieben und die daraus gewonnenen dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilungen gezeigt.

---

<sup>2</sup>Erste Messungen hierzu sind in [2] publiziert worden.

<sup>3</sup>Diese Methoden sind in [3] publiziert worden.

---



# Kapitel 1

## Grundlagen

In diesem Kapitel wird in einem ersten Abschnitt zunächst die mathematische Beschreibung ultrakurzer Pulse dargestellt und deren spektrale Phasenmodulation erklärt. In dem darauf folgenden Abschnitt wird das Konzept der abbildenden Photoelektronenspektroskopie erläutert und die zur Analyse der Messdaten notwendige Abel-Inversion anhand mehrerer Beispiele durchgeführt. Abschließend wird in einem kurzen Abschnitt die numerische Simulation von Photoelektronenspektren beschrieben.

### 1.1 Mathematische Beschreibung ultrakurzer Laserpulse

In diesem Abschnitt wird die mathematische Beschreibung linear polarisierter ultrakurzer Laserpulse eingeführt (für eine detailliertere Beschreibung siehe [4–6]). Eine Beschreibung von Laserpulsen mit einem zeitabhängigen Polarisationszustand wird in Kapitel 5.4.1 dargestellt.

Ein linear polarisierter Laserpuls ist gegeben durch ein skalares elektrisches Feld  $E(t)$  im Zeitbereich, bzw.  $\tilde{E}(\omega)$  im Frequenzraum. Beide sind über die Fouriertransformation miteinander verknüpft:

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

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

Da hier reelle Felder im Zeitbereich betrachtet werden, d.h.  $E(t)$  reellwertig ist, folgt daraus die Hermitezität von  $\tilde{E}(\omega)$ :

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

Im Frequenzbereich läßt sich somit das elektrische Feld beschreiben mit:

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

oder

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

Im folgenden betrachten wir daher nur noch  $\tilde{E}^+(\omega)$ . Dessen Fouriertransformierte  $E^+(t) = \mathcal{F}^{-1}[\tilde{E}^+(\omega)]$  und  $\tilde{E}^+(\omega)$  selbst sind komplexwertige Funktionen und können in eine Einhüllende und eine Phase zerlegt werden

$$E^+(t) = |E^+(t)| e^{i\Phi(t)} \quad (1.6)$$

$$\tilde{E}^+(\omega) = |\tilde{E}^+(\omega)| e^{-i\varphi(\omega)}, \quad (1.7)$$

Das ursprüngliche  $E(t)$  bzw.  $\tilde{E}(\omega)$  kann man wie folgt extrahieren

$$E(t) = 2 \operatorname{Re} [E^+(t)] \quad (1.8)$$

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}^+(\omega) + \tilde{E}^-(\omega) = \tilde{E}^+(\omega) + [\tilde{E}^+(-\omega)]^*, \quad (1.9)$$

Der zeitlichen Verlauf der Phase bestimmt die instantane Frequenz  $\omega(t)$  des elektrischen Feldes.

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

## 1.1. MATHEMATISCHE BESCHREIBUNG ULTRAKURZER LASERPULSE

---

Die Frequenz  $\omega_{ref}$  ist hierbei eine Referenzfrequenz, die im Idealfall der Zentralfrequenz  $\omega_0$  entspricht. Hiermit ist es möglich, eine komplexwertige Einhüllende im Zeitbereich zu definieren, die ohne den schnell oszillierenden Anteil auskommt:

$$\mathcal{E}(t) = |E^+(t)| e^{i\zeta(t)} \quad (1.11)$$

Die Beschreibung im Frequenzbereich ist gegeben durch die Fouriertransformierte von  $\mathcal{E}(t)$

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

Die Gruppenverzögerung  $T_g$ , die die relative Verschiebung der Spektralanteile zueinander beschreibt, kann, ähnlich wie oben  $\omega(t)$ , folgendermaßen beschrieben werden

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

Die Intensität eines Laserpulses mit der komplexen Einhüllenden berechnet sich aus [5]

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

mit der Dielektrizitätskonstanten  $\varepsilon_0$ , der Vakuumlichtgeschwindigkeit  $c$  und dem Brechungsindex des umgebenden Mediums  $n$ . Die spektrale Intensität ergibt sich analog

$$I(\omega) = \frac{1}{\pi} \varepsilon_0 c n \tilde{E}^2(\omega) = \frac{1}{\pi} \varepsilon_0 c n |\mathcal{E}(\omega)|^2, \quad (1.15)$$

Mit Hilfe der Intensitäten können nun zwei entscheidende Größen ultrakurzer Pulse bestimmt werden, die Pulsdauer und die spektrale Breite. Die weitverbreitetste Definition der Pulsdauer bzw. spektralen Breite ist die volle Breite auf halber Höhe (FWHM - Full Width at Half Maximum)  $\Delta t$  bzw.  $\Delta\omega$ . Die beiden Größen sind über das Bandbreiteprodukt miteinander verknüpft

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

Die Konstante  $K$  wird durch die Pulsform bestimmt. Für eine gaußförmige Einhüllende hat  $K$  einen Wert von  $4 \ln 2$ . Gilt in obiger Gleichung sogar das Gleichzeichen, so ist der Laserpuls bandbreitenlimitiert und hat die kürzest mögliche Pulsdauer. Im folgende Abschnitt wird dem Laserpuls durch spektrale Phasenmodulation eine komplizierte Pulsform gegeben.

## 1.2 Formung ultrakurzer Pulse

In diesem Abschnitt wird der Einfluß dispersiver Medien auf ultrakurze Laserpulse und die Formung ultrakurzer Pulse mittels spektraler Phasenmodulation diskutiert.

### 1.2.1 Dispersive Medien

Durchläuft ein Laserpuls ein dispersives Medium, so erfährt er eine Amplitudenmodulation  $A_M(\omega)$ , da die unterschiedlichen Spektralanteile unterschiedlich transmittiert werden. Weiterhin erfährt der Laserpuls eine Modulation der Phase  $\varphi_M(\omega)$ , da unterschiedliche spektrale Anteile in den meisten Gläsern unterschiedliche Ausbreitungsgeschwindigkeiten haben, also dispersiv sind. Die Transferfunktion für ein lineares optisches Element ist somit

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

und wird auf das elektrische Feld angewendet

$$\tilde{E}_{out}^+(\omega) = \tilde{M}(\omega) \cdot \tilde{E}_{in}^+(\omega), \quad (1.18)$$

Je schmaler das verwendete Spektrum und je länger damit die Laserpulse, desto unbedeutender wird der Phasen-Effekt bei gleichem  $\varphi_M$ . Werden die Laserpulse aber so kurz, das sehr breite Spektren beteiligt sind, muss auf Verwendung von Gläsern verzichtet werden. Selbst Metallspiegel führen durch ihre Schutzschichten Dispersion ein. Diese Phasen- und Amplitudeneffekte sind materialspezifisch und zumeist unerwünscht. Die Kontrolle solcher Effekte wird als Dispersionmanagement bezeichnet. Neben verschiedenen Methoden, solche Effekte zu kompensieren (siehe Kapitel 2.4) besteht auch die Möglichkeit, gezielt Phasen und Amplituden einzuführen. Dies wird im nächsten Abschnitt erläutert.

### 1.2.2 Phasenmodulation

Die spektrale Phasenmodulation ist die Methode, um dem Spektrum der Laserpulse definierte Phasen aufzuprägen und damit Kontrolle auf die resultierenden Laserpulse auszuüben. In diesem Kapitel werden nur die für diese Arbeit notwendigen Phasenfunktionen besprochen. Für einen Einblick in die Vielzahl der Möglichkeiten sei auf [4] verwiesen.

Bei der Phasenmodulation in dieser Arbeit konzentriert man sich auf Modulation im Spektralbereich. Die technische Umsetzung der Phasenmodulation kann in Kapitel 2.1.4 nachgelesen werden. In den Experimenten in Kapitel 3.2 wird ausschließlich Phasenmodulation verwendet, Amplitudenformung bzw. Polarisationsformung wird in Kapitel 4.1.2 beschrieben. Die verwendeten Phasenfunktionen basieren auf einer Taylorreihenentwicklung, wobei im Experiment das Taylorpolynom zweiter Ordnung verwendet wird.

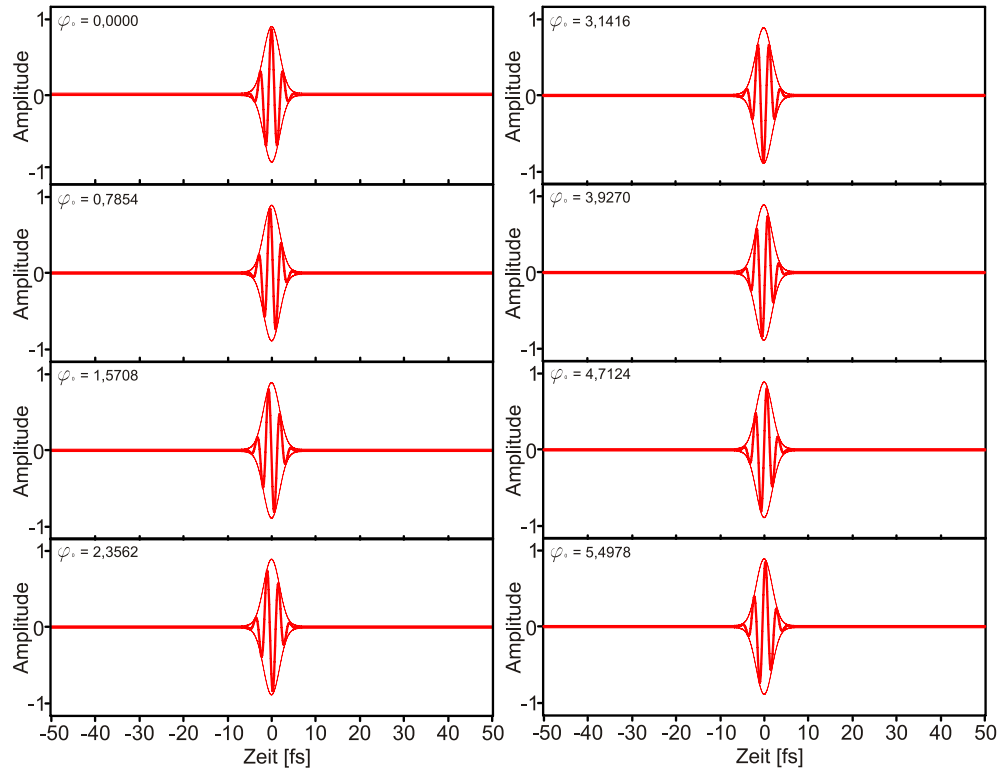
### Phasenmodulation mit Taylorkoeffizienten

In den Experimenten in Kapitel 3 wird die Phasenmodulation durch Variation der Taylorkoeffizienten durchgeführt. Diese ergeben sich aus der Entwicklung der spektralen Phase um die Zentralfrequenz  $\omega_0$  in eine Taylorreihe (betrachtet werden die Koeffizienten bis zur zweiten Ordnung)

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

$$= \varphi(\omega_0) + \varphi_1(\omega_0) \cdot (\omega - \omega_0) + \frac{\varphi_2(\omega_0)}{2} \cdot (\omega - \omega_0)^2 + \dots, \quad (1.20)$$

daraus ergeben sich die Taylorkoeffizienten  $\varphi_0(\omega_0)$ ,  $\varphi_1(\omega_0)$  und  $\varphi_2(\omega_0)$ , die zusammen mit der Zentralfrequenz die entscheidenden Parameter sind, um die Phasenmodulation zu beschreiben. Der Koeffizient  $\varphi_0(\omega_0)$  beschreibt hierbei die relative Lage der Oszillationen zur Lage der Einhüllenden des Laserpulses. Bei Verwendung eines Laserpulses mit 25 fs FWHM ist der Einfluss vernachlässigbar und wird nicht weiter beachtet. Entscheidender ist dieser Einfluß bei noch kürzeren Laserpulsen, bei denen die "Carrier-Envelope Phase" stabilisiert sein sollte, um ungewollte Intensitätsschwankungen zu vermeiden, die durch das "Durchlaufen" der Oszillationen unter der Einhüllenden hervorgerufen werden [7].

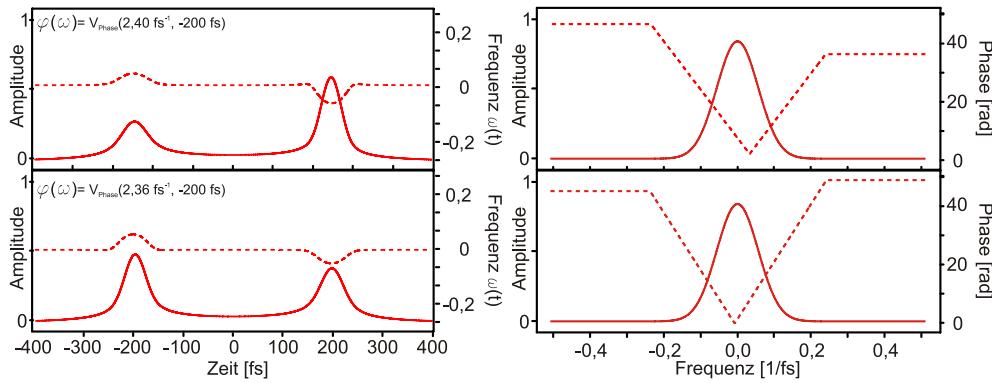


**Abbildung 1.1:** Einfluss der absoluten Phase  $\varphi_0$  auf einen 3 fs FWHM langen Laserpuls bei 800 nm mit gaussförmiger Einhüllenden. Variation von  $\varphi_0$  führt zum “Durchlaufen” der Oszillationen unter der Einhüllenden und damit zu einer Schwankung der maximalen Intensität, da  $|E(t)|^2$  nicht konstant bleibt.

Der Parameter  $\varphi_1(\omega_0)$  steht für die sogenannte lineare Phase, die lediglich eine Verschiebung der zeitlichen Einhüllenden über die Oszillationen hervorruft. Allerdings ist diese Art der Phasenmodulation ein Ausgangspunkt für viele interessante Ansätze in der kohärenten Kontrolle. Als ein einfaches Beispiel für die Anwendung des  $\varphi_1$ -Parameters sei auf die sogenannte V-Phase hingewiesen [8].

Die V-Phase (siehe Abbildung 1.2) hat in einem Teil des Spektrums eine andere lineare Phase als in einem weiteren Teil des Spektrums, in der Regel die negative lineare Phase, was zu einem farbigen Doppelpuls führt. Die blauen Spektralanteile werden beispielsweise zu früheren Zeiten und die roten Spektralanteile zu späteren Zeiten verschoben. Die entscheidenden Parameter sind zum einen die Grenzfrequenz  $\omega_c$  bei der die beiden Spektralbereiche aufeinander treffen und die Steigungen der beiden linearen Phasen. In Abhängigkeit vom Laserspektrum kann man durch Verschiebung der Grenzfrequenz die relative Intensität der einzelnen Laserpulse zueinander kontrollieren, während die Differenz der beiden Steigungen

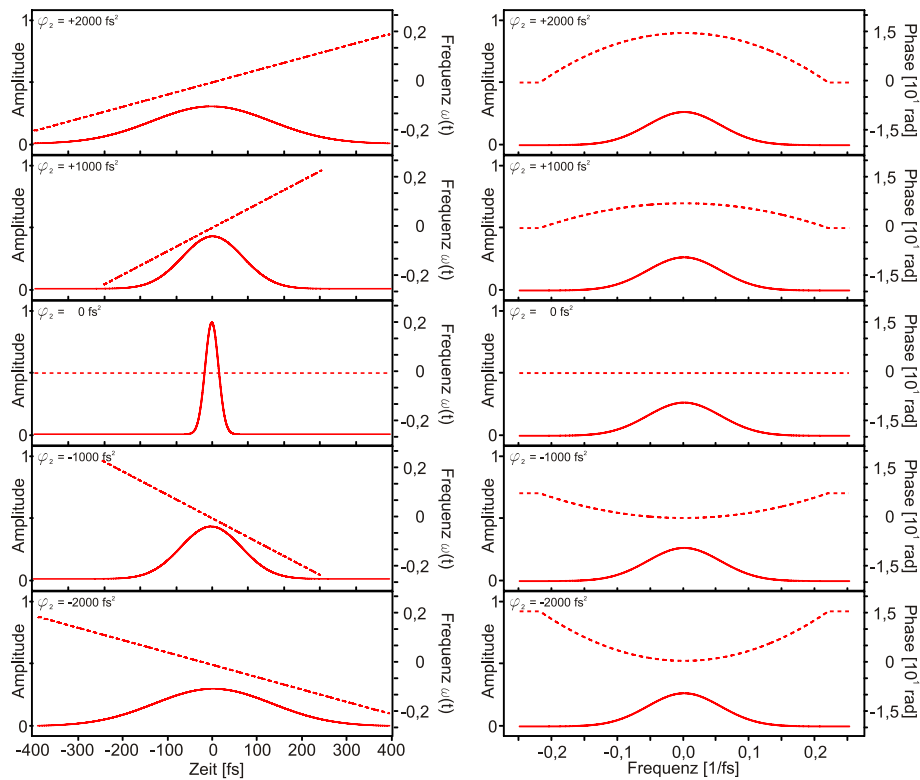
die zeitliche Pulsseparation bestimmt. Die beiden entstehenden Laserpulse besitzen hierbei jedoch jeweils ein schmaleres Spektrum, was zu längeren Sub-Pulsen führt, anders als zum Beispiel bei Sinus-Phasenmasken. Zudem sind durch den harten Übergang an einer scharfen Grenze im Spektrum des Laserpulses die beiden Sub-Pulse nicht mehr gaussförmig. Es kommt zwischen den Pulsen zu Artefaktbildung, die beide Pulse miteinander verbindet. Dadurch ist eine Anwendung in kohärenten Systemen schwierig, da eine nicht differenzierbare Stelle in der Phase des Spektrums zu einer schnellen Veränderung der Momentanfrequenz führt [2]. Für nicht kohärente Systeme sind die V-Phasen jedoch optimal geeignet, da schnell zwischen verschiedenen Doppelpulssequenzen umgeschaltet werden kann und die Intensität jedes Einzelpulses direkt durch die Phase eingestellt werden kann. Eine Anwendung der V-Phase wird im Kapitel 6.4 gezeigt.



**Abbildung 1.2:** Beispiele für die V-Phase. Links: Das elektrische Feld  $E(t)$  (durchgezogene Linie) mit zeitabhängiger Frequenz  $\omega(t)$  (gestrichelt). Rechts: Einhüllende von  $\tilde{E}(\omega)$  (durchgezogene Linie) mit der spektralen Phase  $\varphi(\omega)$  (gestrichelt). In Abhängigkeit der spektralen Position der Spitze der V-Phase  $\omega_c$  verändern sich die relativen Amplituden der beiden Sub-Pulse. Ist  $\omega_c$  exakt auf der Zentralfrequenz der verwendeten Laserpulse, so sind beide Sub-Pulse gleich groß. In den oberen Graphen sieht man  $E(t)$  und  $\tilde{E}(\omega)$  von einer V-Phase mit einem  $\omega_c$  von  $2,40 \text{ fs}^{-1}$  und einem  $\varphi_1 = -200 \text{ fs}$  für  $\omega < \omega_c$ , sowie  $\varphi_1 = +200 \text{ fs}$  für  $\omega > \omega_c$ . In den unteren Graphen ist die V-Phase mit einem  $\omega_c$  von  $2,36 \text{ fs}^{-1}$  und einem  $\varphi_1 = -200 \text{ fs}$  für  $\omega < \omega_c$ , sowie  $\varphi_1 = +200 \text{ fs}$  für  $\omega > \omega_c$ .

Eine universellere Anwendung der linearen Phase ist gegeben, wenn mehr als zwei Spektralbereiche mit unterschiedlichen linearen Phasen verwendet werden. Es entstehen Mehrfachpulssequenzen, deren Pulslängen mit der Breite ihrer Spektren variieren und deren einzelne Pulsabstände exakt über die Phase eingestellt werden können. Beispiele die untersucht wurden, sind u.a. die U-Phase mit drei spektralen

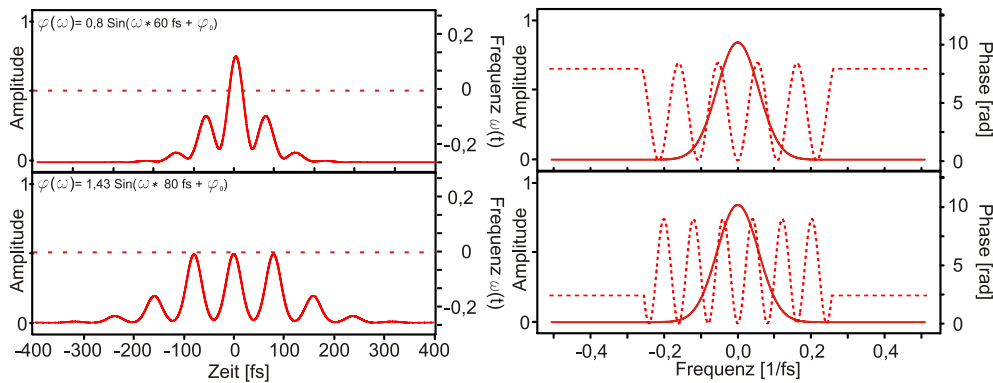
Bereichen mit drei unterschiedlichen linearen Phasenkoeffizienten oder Phasenmasken mit bis zu 80 linearen Phasenkoeffizienten für 80 Spektralbereiche, die dann nicht mehr als einzelne Pulse einer Pulssequenz betrachtet werden können, sondern in ihrer Gesamtheit eine komplexe Pulsform darstellen. Diese Pulsform kann man sich, wegen des Effekts der linearen Phase, genähert vorstellen, während z.B. die freie Wahl von 128 unterschiedlichen konstanten Phasen für die einzelnen Pixel eines Pulsformers (siehe Kapitel 2.1.4) sehr komplex geformte Pulsformen ergeben.



**Abbildung 1.3:** Beispiele für quadratische Phasenfunktionen. Links: Das elektrische Feld  $E(t)$  (durchgezogene Linie) mit zeitabhängiger Frequenz  $\omega(t)$  (gestrichelt). Rechts: Einhüllende von  $\tilde{E}(\omega)$  (durchgezogene Linie) mit der spektralen Phase  $\varphi(\omega)$  (gestrichelt). In Abhängigkeit des Parameters  $\varphi_2(\omega_0)$  sind die entstehenden elektrischen Felder, sowie deren Spektrum und Phase dargestellt. Die Amplitude der einzelnen Pulse verringert sich mit steigendem  $\varphi_2(\omega_0)$ . Die Pulslänge eines Laserpulses vergrößert sich mit steigendem  $\varphi_2(\omega_0)$ , ist aber für positive wie negative  $\varphi_2(\omega_0)$  bei gleichem Betrag gleich. Die instantane Frequenz steigt mit zunehmender Zeit an, bzw. fällt mit zunehmender Zeit ab, je nach Vorzeichen von  $\varphi_2(\omega_0)$ .



Der Parameter  $\varphi_2(\omega_0)$  steht für die Phase zweiter Ordnung, auch Chirp<sup>1</sup> genannt (siehe Abbildung 1.3). Der physikalisch interessante Effekt des Parameters  $\varphi_2(\omega_0)$  entspricht der Dispersion, die von Gläsern verursacht wird, da die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex in ihrer Wirkung näherungsweise einer quadratischen Phasenfunktion entspricht. Daher wird der Parameter  $\varphi_2(\omega_0)$  auch als Gruppengeschwindigkeitsdispersion beschrieben. Vorteil eines Phasenmodulators ist aber auch, das nicht nur positiver Chirp eingestellt werden kann, sondern auch negative Dispersion und somit die Effekte von Gläsern vorkompensiert werden können. Dies wird auch in Kapitel 2.4 zur Kompression der Laserpulse am Ort des Experiments zum Einsatz gebracht. Beim Laserpuls führt der Parameter  $\varphi_2(\omega_0)$  zu einer zeitlichen Verbreiterung, d.h. einer Verringerung der maximalen Feldstärke, die für positiven Chirp und negativem Chirp gleich ist. Die Momentanfrequenz ist nicht konstant, der Laserpuls geht bei positivem Chirp von den roten Spektralanteilen kontinuierlich in die blauen Spektralanteile über. Bei negativem Chirp ist dieses Verhalten genau umgekehrt, was in den in Kapitel 3.2 beschriebenen Experimenten verwendet wird, um das atomare System anzuregen und zu kontrollieren.



**Abbildung 1.4:** Beispiele für sinusförmige Phasenfunktionen. Links: Das elektrische Feld  $E(t)$  (durchgezogene Linie) mit zeitabhängiger Frequenz  $\omega(t)$  (gestrichelt). Rechts: Einhüllende von  $\tilde{E}(\omega)$  (durchgezogene Linie) mit der spektralen Phase  $\varphi(\omega)$  (gestrichelt). Durch Variation der Amplitude der spektralen Phase kann die Anzahl der Sub-Pulse und deren Intensität zueinander verändert werden. Durch Veränderung von  $\tau$  kann die Pulsseparation eingestellt werden. Die Phase der Sinusfunktion hat auf gauss-förmige Spektren keinen Einfluss.

Höhere Ordnungen des Parameters  $\varphi_n(\omega_0)$  werden in dieser Arbeit nicht betrachtet, sind aber besonders im Zusammenspiel mit hoch-dispersiven Gläsern wichtig, bei

<sup>1</sup>Engl. to chirp - zwitschern

denen Vorkompensation durch den Parameter zweiter Ordnung nicht ausreicht. Ein anderes Beispiel für die Verwendung von  $\varphi_3(\omega_0)$  ist die Mikromaterialbearbeitung [9].

In Kapitel 6 werden auch Mehrfach-Pulssequenzen verwendet, die durch sinusförmige Phasenmasken erzeugt werden.

$$\varphi(\omega) = A \cdot \sin(\omega \cdot \tau + \varphi_0)$$

Hierbei bezeichnet  $A$  die Amplitude der Sinusfunktion,  $\tau$  den Pulsabstand der einzelnen Sub-Pulse und  $\varphi_0$  die Phase der Sinusfunktion. Zwei Beispiele zu diesen Phasenmasken sind in Abbildung 1.4 gezeigt.

## 1.3 Abbildende Photoelektronenspektroskopie

In diesem Abschnitt wird die abbildende Photoelektronenspektroskopie erläutert. Die Messung der kinetischen Energie von Elektronen, die bei der licht-induzierten Anregung und Ionisation von Atomen und Molekülen entstehen, ist auf verschiedenste Art und Weise möglich. Als Beispiele sei hier das “magnetic-bottle”-Spektrometer [10] genannt. Das im Rahmen dieser Doktorarbeit verwendete abbildende Photoelektronenspektrometer [11] hat im Vergleich zu anderen Arten von Elektronen-Spektrometern den Vorteil, dass neben der kinetischen Energie der Photoelektronen auch deren Winkelverteilung gemessen wird, was zusätzliche Informationen über die angeregten Zustände, von denen die Photoelektronen stammen, erbringt. In der Geschichte von abbildenden Photoelektronenspektrometern (PhotoElectron Imaging Spectrometer - PEIS) sind verschiedene Entwicklungsschritte von Bedeutung, wie die Anregung von Edelgasen in kleinen kompakten Anlagen mit Pikosekundenlasern [12] über die Entwicklung der “velocity-map-imaging” Anordnung der Elektroden [13], die erst zum eigentlichen abbildenden Spektrometer führt, bis zur komplexen Anregung von Atomen mit phasen- und polarisationsgeformten Femtosekunden-Laserpulsen [2] und der Detektion der unterschiedlichsten Winkelverteilungen.

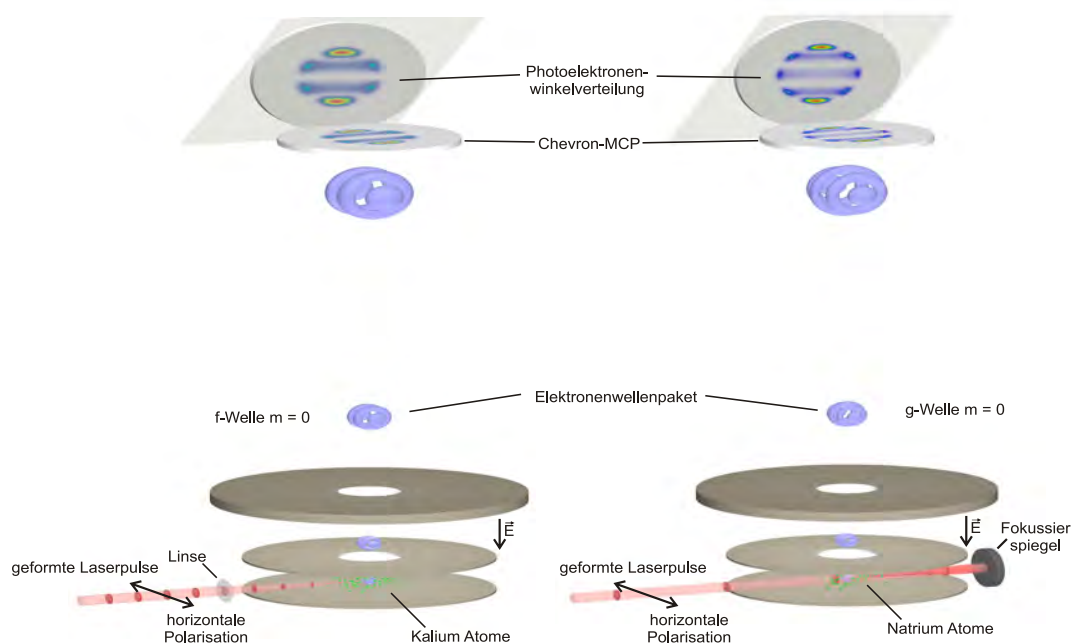
In diesem Abschnitt soll erklärt werden, wie ein PEIS die Energie und die Winkelverteilung der emittierten Elektronen messen kann und welche Vorteile dies bei der Analyse bringt. Im weiteren Verlauf des Abschnitts werden die gemessenen zweidimensionalen Daten weiter verarbeitet, um schließlich die “echte” dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung zu erhalten. Dafür stehen verschiedene Algorithmen zur Verfügung, deren Leistungsfähigkeit sich stark voneinander unterscheidet. Ausführlich wird der sogenannte pBasex-Algorithmus [14] beschrieben, der unter den gegebenen experimentellen Parametern die beste Leistung liefert (siehe Kapitel 1.3.2).

### 1.3.1 Funktionsweise eines PEIS

Um von Photoelektronen die kinetische Energie zu bestimmen, werden häufig Flugzeit-Spektrometer (sog. electron time-of-flight-spectrometer) benutzt. Bei dieser Art von Elektronenspektrometer werden die bei der Licht-Materie Wechselwirkung freigesetzten Elektronen von einem Startpunkt, dem Interaktionsgebiet von Laser und Atomen oder Molekülen, auf einer Flugbahn zu einem Detektor gelenkt, der meist aus einer Viel-Kanal-Platte (Multi-Channel-Plate - MCP) besteht, werden dort verstärkt und detektiert. Die unterschiedlichen kinetischen Anfangs-

energien der Elektronen resultieren in unterschiedlichen Geschwindigkeiten – die schnellen Elektronen benötigen weniger Zeit zum Detektor als die langsamen Elektronen. Mit einem Startzeitpunkt und einer Energie-zu-Flugzeit-Kalibrierung kann aus den Ankunftszeiten die kinetische Energie der einzelnen Elektronen bestimmt werden. Um ausreichend Signal zu erhalten ist es wünschenswert, soviel Elektronen wie möglich aus dem Interaktionsgebiet in Richtung des Detektors zu schicken. Die Elektronen fliegen jedoch von dem Interaktionsgebiet sphärisch in alle Richtungen davon, mit einer Winkelverteilung, die von dem Anregungspfad und der Laserpolarisation abhängig ist. Man kann verschiedene Methoden nutzen, um mehr Teilchen zum Detektor zu bringen. Eine der Methoden ist das "magnetic-bottle"-Spektrometer [10], bei dem durch ein starkes inhomogenes magnetisches Feld die zum Detektor gerichtete Hemisphäre der sich ausbreitenden Elektronenwelle komplett in Richtung des Detektors gelenkt wird. Dafür werden die seitlich emittierten Elektronen in Richtung Detektor umgelenkt und dann in einer von dem abgestrahlten Winkel abhängigen schraubenförmigen Flugbahn stabil zum Detektor geführt. Wenn die Magnetfelder abgestimmt sind, ist die Auflösung der Flugzeiten für Photoelektronen gleicher Energie aber unterschiedlicher Richtung sehr gut (siehe [10]) und damit auch die Auflösung der kinetischen Energie.

Verschiedene Probleme tauchen bei dieser Art des Elektronenspektrometers auf. Zum Einen sind die emittierten Elektronen sehr anfällig gegenüber äußeren elektrischen und magnetischen Störfelder. Da die Elektronen im Verhältnis sehr lange in dem Spektrometer unterwegs sind, um eine lange Flugzeit und damit eine hohe Auflösung zu bekommen, kann ein äußeres Feld lange auf sie einwirken. Man unterdrückt diesen Effekt, indem man die Elektronen auf einer schraubenförmigen Bahn in einem homogenen Magnetfeld fliegen lässt. Ein weiterer Nachteil ist, dass man sehr stark von der Wiederholfrequenz des eingesetzten Lasersystems abhängig ist, da nach dem Ionisieren eines Atoms oder Moleküls eine gewisse Zeit vergeht, bis das Elektron detektiert wird. Erzeugt man vorher bereits weitere Elektronen, wird die Zuordnung schwierig bzw. unmöglich, sobald schnelle Elektronen des späten Ereignisses zum gleichen Zeitpunkt detektiert werden, wie langsame Elektronen des frühen Ereignisses. Bei typischen Detektionszeiten der "magnetic-bottle"-Spektrometer von etwa  $2\ \mu\text{s}$  entspricht dies etwa einer Laserwiederholrate von 500 kHz. Typische Oszillatorsysteme von fs-Lasern mit Repetitionsraten von 5,5 MHz bis mehr als 80 MHz können somit nicht direkt mit "magnetic-bottle"-Spektrometern verwendet werden. Abschließend sei erwähnt, dass die Winkelverteilung der Photoelektronen bei den sehr unterschiedlichen Flugbahnen der Elektronen nicht konserviert wird und diese Information zugunsten eines besseren Signal-zu-Rausch-Verhältnis aufgegeben wird.



**Abbildung 1.5:** Zwei mögliche Schemata des abbildenden Photoelektronenspektrometers. Im unteren Bereich beider Bilder erkennt man den Strahlengang des Lasers, der links durch eine Linse ins Interaktionsgebiet fokussiert wird, bzw. rechts mittels eines sphärischen Spiegels hinter dem Interaktionsgebiet zurückfokussiert wird. Die roten Scheiben stellen einzelne Laserpulse dar. Die drei Elektroden von unten nach oben: Repeller-, Extraktor- und Ground-Elektrode zur Fokussierung der Elektronenwellenpakete auf den Detektor. Zur Illustration sind verschiedene simulierte Elektronenwellenpakete auf ihrem Weg zum Detektor dargestellt und deren simuliertes Messsignal auf dem Detektor. Links: Wellenpaket mit  $f$ -Symmetrie aus Anregung von Kalium-Atomen (siehe auch Kapitel 5) - Rechts: Welle mit  $g$ -Symmetrie aus Anregung von Natrium-Atomen (siehe Kapitel 3).

In dieser Arbeit wird ein abbildendes Spektrometer verwendet, das einige dieser Probleme umgeht und andererseits nur wenig Kompromisse eingehen muss, um vergleichbare Resultate zu erzielen. Bei einem abbildenden Spektrometer wird nicht die Flugzeit gemessen, sondern die Flugzeit auf eine Ortskoordinate abgebildet. Dieser Transfer in Kombination mit einem ortsauflösenden Detektor macht es möglich, sowohl die Flugzeit und damit die kinetische Energie der Photoelektronen zu bestimmen, als auch deren Winkelverteilung. Praktisch wird dies durchgeführt, indem man das bei der Ionisation von Atomen und Molekülen entstehende expandierende Photoelektronen-Wellenpaket mit einem elektrischen Feld auf einen ortsauflösenden Detektor projiziert. Man erhält das senkrecht zum

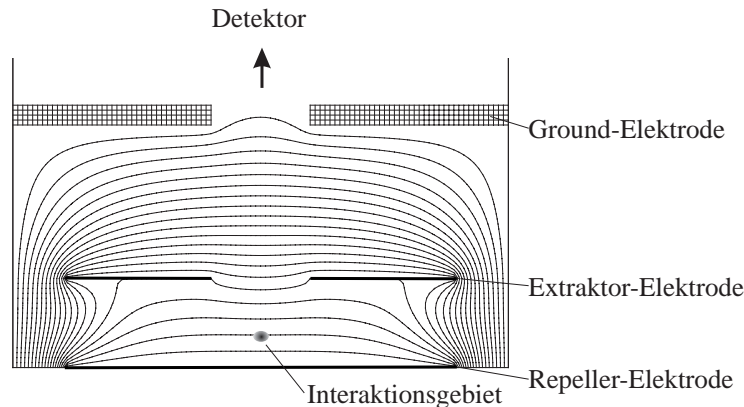
Detektor aufintegrierte zweidimensionale Signal der Intensität der dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilung<sup>2</sup> (Photoelectron Angular Distribution - PAD). Bei Wahl der Laserpolarisation parallel zum Detektor, was zu einer zylindrischen Symmetrieachse der Photoelektronen-Winkelverteilung führt, besteht die Möglichkeit mittels einer Abel-Inversion (z.B. [14, 15]), die dreidimensionale Intensität der Photoelektronen zurückzuberechnen (siehe Kapitel 1.3.2). In diesen invertierten dreidimensionalen Winkelverteilungen ist in der radialen Richtung die Flugzeit enthalten, da schnellere Elektronen eine größere Sphäre bilden als langsamere Elektronen. Andererseits wird die Winkelverteilung der Photoelektronen bei jeweils konstanten Radien konserviert, was eine Analyse erst möglich macht. Da sowohl die Projektion der Photoelektronen, als auch die Messung der Bilder des Detektors zeitlich unabhängig sind, ist diese Art von Spektrometer unabhängig von der verwendeten Laserquelle. Von kontinuierlichen (cw-) Lasern über ns-Nd:YAG-Laser mit Wiederholraten von 20 - 1000 Hz und KHz-fs-Verstärkersystemen bis hin zu quasi-cw Pikosekunden und Femtosekunden-Oszillatoren können sämtliche Strahlungsquellen verwendet werden, sofern sie genug Intensität haben, um Photoelektronen aus Atomen oder Molekülen auszulösen.

Eine entscheidende Weiterentwicklung dieser Art von Photoelektronen-Spektrometer ist das sogenannte "Velocity-Map-Imaging" (VMI) [13]. Eines der Probleme bis zur Entwicklung des VMI war die örtliche Auflösung der Photoelektronen auf dem Detektor, die direkt gekoppelt war mit der Größe des Interaktionsgebiets. Je größer dies ist, desto schlechter ist die Energieauflösung des Spektrometers. Eppink und Parker veröffentlichten in [13] hierzu eine Methode, die unter Verwendung von einer zusätzlichen Elektrode in der Lage war, ein leicht inhomogenes elektrisches Feld zu erzeugen. Dieses inhomogene Feld hat die Eigenschaft, dass die unterschiedlichen Geschwindigkeitsvektoren der Photoelektronen konserviert und gleichzeitig deren räumliche Ausdehnung auf den Detektor fokussiert werden. Einige Simulationen hierzu können in [11] nachgelesen werden.

Mit der VMI-Methode erreicht das abbildende Spektrometer nun eine Energieauflösung, die der Auflösung eines "magnetic-bottle"-Spektrometers nahekommt. Hierbei verlagern sich einige Probleme. Zum Einen sind die Elektronen nicht mehr im Schutz eines Magnetfeldes, was sie sehr anfällig für äußere Einflüsse wie magnetische und elektrischen Felder machen. Andererseits sind sie zeitlich weitaus kürzer unterwegs (Beschleunigung mit mehreren kV), als in einem "magnetic-bottle"-Spektrometer, was die Einwirkung der homogenen Felder auf die Elektronen einschränkt. Mittels geringer magnetischer Abschirmungen durch sogenanntes  $\mu$ -Metall können äußere Effekte minimiert und durch entsprechende homogene Kompensationsmagnetfelder nahezu vollständig beseitigt werden. Inhomogene Magnetfelder durch magnetische Materialien im Bereich des Spectro-

---

<sup>2</sup>Diese Operation wird als Abel-Transformation bezeichnet [12]

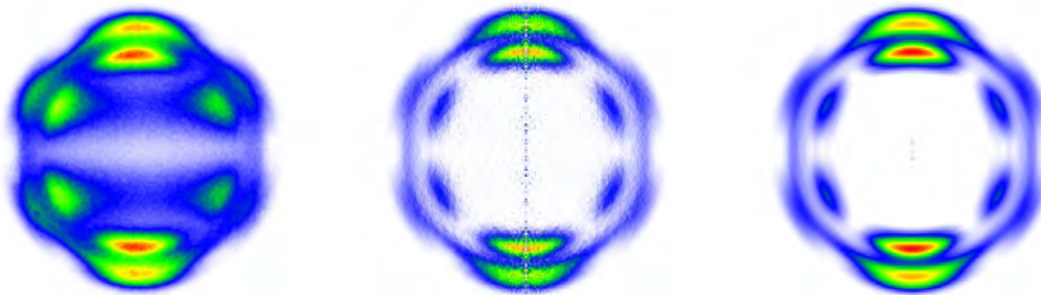


**Abbildung 1.6:** Schema der elektrostatischen Linse bestehend aus Repeller-Extraktor- und Ground-Elektrode, sowie deren Äquipotentiallinien bei Verwendung einer hohen Potentialdifferenz zwischen Extraktor und Ground-Elektrode und einer erheblich niedrigeren Potentialdifferenz zwischen Repeller- und Extraktor-Elektrode. Die dabei entstehende elektrostatische Linse führt zu einer Konservierung der Geschwindigkeitskomponenten und der Fokussierung der unterschiedlichen Startpunkte der Elektronen auf den Detektor.

meters (optische Magnetfüsse, Eisen und andere Materialien) müssen möglichst entfernt werden, da sie ebenso wie elektrische Ladungen auf Isolationsmaterialien im Vakuum zu Verzerrungen der Photoelektronen-Verteilungen führen können. Diese Verzerrungen können nur in seltenen Fällen aus den Messungen ausgefiltert werden, weshalb diese möglichst vermieden werden müssen. Dies ist in einigen Fällen sehr schwierig, da besonders bei der Freisetzung von in dieser Arbeit verwendeten Alkalimetall-Atomen aus speziellen Alkalimetall-Dispensern teilweise sehr große elektrische Ströme auftreten (3A–5A). Diese großen Ströme erzeugen dementsprechend auch sehr starke Magnetfelder, deren Magnetfeldlinien konzentrisch um die Kabelverbindungen entstehen. Um hier eine Abschirmung zu erreichen wurde ein Halter entwickelt, der verschiedene Anforderungen verbindet, die für die Verwendung von Alkalimetall-Dispensern in dem abbildenden Spektrometer notwendig sind (siehe Anhang E).

### 1.3.2 Der pBasex-Algorithmus

In diesem Abschnitt wird die Rekonstruktion der gemessenen Photoelektronenverteilungen beschrieben, die bei der Anregung und Ionisation von Atomen mit Laserpulsen entstehen, deren Polarisationsvektor parallel zur Ebene des Detektors liegt. Verschiedene Algorithmen können für diese Abel-Inversion verwendet werden. In dieser Arbeit wird dafür der pBasex-Algorithmus [14] (polar basis set expansion) verwendet, ein Vergleich anderer Algorithmen für diese Aufgabe findet sich in [16]. Im Vergleich zum Basex Algorithmus der in [16, 17] beschrieben wird, setzt der pBasex-Algorithmus nicht auf dem kartesischen Koordinatensystem an, sondern auf polaren Koordinaten. Dieser Ansatz ist intuitiver, da er der Symmetrie der Interaktion des Lichts mit Atomen und Molekülen entspricht. Aufgrund dieses Ansatzes wird das Rauschen, welches in den gemessenen zweidimensionalen Photoelektronenverteilungen auftritt, im Zentrum der Rekonstruktion gesammelt, wo es die weitere Auswertung nicht stört [14]. Beim Basex-Algorithmus hingegen wird das Rauschen zur zentralen Linie hin akkumuliert und beeinträchtigt weitere Analysen teilweise erheblich (siehe Abbildung 1.7).



**Abbildung 1.7:** Links: Messung einer doppelten  $f$ -Welle in Folge der Autler-Townes Aufspaltung (siehe Kapitel 5.2) durch das abbildende Photoelektronenspektrometer aus der Anregung/Ionisation von Kalium (siehe Kapitel 6). Da man die beiden  $f$ -Wellen nur schwach erkennen kann, wird die Rekonstruktion durchgeführt. Mitte: Mit dem Basex-Algorithmus rekonstruierte Elektronenwinkelverteilung zeigt starkes Rauschen auf der Mittellinie. Dieses Signal muss extrahiert werden, damit eine weitere Analyse möglich wird. Rechts: Mit dem pBasex-Algorithmus rekonstruierte Photoelektronen-Winkelverteilungen zeigen lediglich leichtes Rauschen im Zentrum der Rekonstruktion. Die Gesamtqualität der Rekonstruktion ist beim pBasex-Algorithmus erheblich besser.

Die grundsätzliche Idee des pBasex-Algorithmus wird im Folgenden beschrieben und dann mit zwei Beispielen illustriert.



Es wird ein lineares Gleichungssystem aufgestellt, in dem jedes Pixel des Bildes in Polardarstellung aus einer Summe der Wellenpakete der verwendeten dreidimensionalen Basisfunktionen besteht. Dafür wird ein Satz von Basisfunktionen in ebenen Polarkoordinaten verwendet, die radial aus einer Gaußverteilung ( $R_k, \sigma$  : Position und Breite der Gaussfunktion) bestehen und tangential eine Legendre-Winkelverteilung besitzen [14].

$$f_{kl}(R, \Theta) = \underbrace{e^{-\frac{(R-R_k)^2}{\sigma}}}_{\text{Gauss-Funktion}} \underbrace{P_l(\cos \Theta)}_{\text{Legendre-Polynom}}, \quad (1.21)$$

Die Rekonstruktion bzw. der Schnitt durch die dreidimensionale Photoelektronenverteilung kann als Summe über alle  $l$  und  $k$  beschrieben werden.

$$F(R, \Theta) = \sum_{k=0}^{k_{max}} \sum_{l=0}^{l_{max}} c_{kl} f_{kl}(R, \Theta), \quad (1.22)$$

$c_{kl}$  bezeichnet den reellen Koeffizientenvektor, der die Amplituden der einzelnen Basisfunktionen in der Rekonstruktion später bestimmt. Mathematisch ist dieser Schnitt durch die Photoelektronenverteilung über das Abel-Integral mit der gemessenen zweidimensionalen Abbildung der dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilung verbunden.

$$P(R', \Theta') = 2 \int_{|x|}^{\infty} \frac{r F(R, \Theta)}{\sqrt{r^2 - x^2}} dr \quad (1.23)$$

$$x = R' \sin \Theta'$$

$$r = R \sin \Theta$$

$$dr = \cos \Theta dR d\Theta,$$

Die Basisfunktionen als Abbildung auf dem Detektor lauten

$$g_{kl}(R', \Theta') = 2 \int_{|x|}^{\infty} \frac{r f_{kl}(R, \Theta)}{\sqrt{r^2 - x^2}} dr, \quad (1.24)$$

Die Summe über alle diese Abbildungen ergibt dann die am Detektor gemessene Photoelektronen-Winkelverteilung.

$$P(R', \Theta') = \sum_{k=0}^{k_{max}} \sum_{l=0}^{l_{max}} c_{kl} g_{kl}(R, \Theta), \quad (1.25)$$

Für die Computer-Implementierung des Algorithmus ist es sinnvoll, hier eine indizierte Schreibweise  $(i,j)$  für die Pixel zu verwenden.

$$P_{ij} = \sum_{k=0}^{k_{max}} \sum_{l=0}^{l_{max}} c_{kl} g_{kl;ij} \quad (1.26)$$

Man kann dies alternativ auch in einer Matrixschreibweise darstellen, wobei die Detektor-Verteilung  $P_{ij}$  als eindimensionaler Vektor  $\mathbf{P}$  und auch die Koeffizienten  $c_{kl}$  als eindimensionaler Vektor  $\mathbf{C}$  dargestellt werden. Diese Darstellung ist ungewöhnlich, da das Bild erst Zeile für Zeile aneinandergehängt wird, um einen Vektor zu ergeben. Insgesamt hat der Vektor  $(P_{ij}) = \mathbf{P}$   $(i \times j)$  Elemente<sup>3</sup>. Für die spätere Analyse ist dies jedoch notwendig, da jedem Pixel des Bildes eine Summe der Abel-Integrale der Basisfunktionen zugeordnet wird. Die Matrix der Abel-Integrale  $\mathbf{G}$  besteht in den Zeilen aus den Abhängigkeiten für die einzelnen Pixel  $g_{kl;ij}$  (für ein festes  $i$  und  $j$ ) und in den Spalten aus  $g_{kl;ij}$  (für ein festes  $k$  und  $l$ ) und enthält somit in jeder Spalte das Abel-Integral einer Basisfunktion. Somit ist dann folgende vereinfachende Schreibweise möglich.

$$\mathbf{P} = \mathbf{G} \mathbf{C} \quad (1.27)$$

Man sieht in dieser Schreibweise oben das erwähnte lineare Gleichungssystem, das in der Anwendung einer Matrix auf einen Koeffizientenvektor dargestellt wird und das dann dem gemessenen Bild entspricht. Somit wäre eine Vorwärtsberechnung der entsprechenden Bilder bereits möglich. Um nun eine Rekonstruktion vorzunehmen, muss die erzeugte Matrix  $\mathbf{G}$  invertiert werden. Dies kann durch entsprechende schnelle Algorithmen durchgeführt werden. Bei dem pBasex-Algorithmus wird der sogenannte SVD-Algorithmus (Singular Value Decomposition [18]) verwendet, der bei Überbestimmung des linearen Gleichungssystem eine Näherung der Lösung vornimmt, indem  $|\mathbf{G} \mathbf{C} - \mathbf{P}|^2$  minimiert wird. Dies ist in dieser Anwendung eigentlich immer der Fall, da wir stets mehr Pixel  $(i \times j)$  als Koeffizienten  $(k \times l)$  haben. Man erhält durch den SVD-Algorithmus somit die Inverse von  $\mathbf{G}$  für die gilt

$$\mathbf{G}^{-1} \mathbf{P} = \mathbf{G}^{-1} \mathbf{G} \mathbf{C} \text{ bzw.} \quad (1.28)$$

$$\mathbf{G}^{-1} \mathbf{P} = \mathbf{C} \quad (1.29)$$

Die Matrix  $\mathbf{G}^{-1}$  kann dauerhaft gespeichert werden und muss nicht für jede Rekonstruktion neu berechnet werden. Sie ist in der Lage für jedes Bild einen Satz von Koeffizienten zu berechnen, die die beste Näherung der Basisfunktionen an das gemessene Bild darstellen.

Die invertierte Matrix  $\mathbf{G}^{-1}$  stellt nun die Basis für alle weiteren Rekonstruktionen

---

<sup>3</sup>Für ein 360x240 Pixel großes Bild also 86400 Elemente

zylindersymmetrischer dreidimensionaler Photoelektronen-Winkelverteilungen dar. Die Durchführung ist recht einfach, die gemessene Photoelektronen-Winkelverteilung wird zunächst in die Polardarstellung gebracht und anschließend Reihe für Reihe zu einem eindimensionalen Vektor zusammengebaut. Auf diesen Vektor wird die Matrix  $\mathbf{G}^{-1}$  angewendet. Man erhält einen Vektor  $c_{kl}$  der sämtliche zur Rekonstruktion notwendigen Informationen enthält. Dieser Vektor muss weiter verarbeitet werden, um eine rekonstruierte Photoelektronen-Verteilung zu erhalten. Dafür wird folgende Gleichung für jedes Pixel berechnet:

$$F(R, \Theta) = \sum_0^{k_{max}} \sum_0^{l_{max}} c_{kl} f_{kl}(R, \Theta) \quad (1.30)$$

mit

$$f_{kl}(R, \Theta) = e^{-\frac{(R-R_k)^2}{\sigma}} P_l(\cos \Theta) \quad (1.31)$$

Das so erhaltene Bild in Polardarstellung ist eine Möglichkeit der Rekonstruktion. Um Bilder in kartesischer Darstellung zu generieren oder über alle Winkel integrierte Spektren zu erhalten, wird die analytische Formel mit den jeweiligen Koordinaten verwendet, was hochaufgelöste Bilder, bzw. Spektren möglich macht, ohne das numerische Artefakte einer Transformation auftreten.

## Anwendung

In [14] wird der pBasex-Algorithmus als universeller Rekonstruktionsalgorithmus für Abbildungen von jeder Art von geladenen Partikeln dargestellt. In dieser Arbeit wird der Algorithmus zur Rekonstruktion von Photoelektronen-Winkelverteilungen aus der Multi-Photonen-Anregung von Atomen benutzt. Daher sind folgende Modifikationen notwendig.

In erster Linie ist die Wahl der richtigen Parameter für  $k_{max}$  und  $l_{max}$  wichtig.  $l_{max}$  ist abhängig von der Ordnung der Anregung, also der Anzahl der verwendeten Photonen und wird so gewählt, dass  $l_{max} \geq 2 \cdot n$  ( $n$ =Anzahl der Photonen in der Anregung), weil die entstehenden Winkelverteilungen bei höheren Ordnungen zunehmend mehr Knotenpunkte haben und durch Legendre-Polynome niedriger Ordnung nicht beschrieben werden können (siehe auch Anhang B - Seite 163). Hierbei stellen die geraden Ordnungen der Legendre-Polynome die Basisfunktionen der symmetrischen Winkelverteilungen der Photoelektronen dar, die ungeraden die der asymmetrischen Winkelverteilungen. Da in dieser Arbeit nur symmetrische Winkelverteilungen gemessen wurden, sind für die Rekonstruktion lediglich die geraden Terme notwendig.

$k_{max}$  beschreibt die Anzahl der Gaußfunktionen in radialer Richtung, die notwendig sind, um die Winkelverteilungen gut zu reproduzieren. Als sinnvolle Werte hat sich eine Breite der Gaußfunktion  $\sigma = \sqrt{2}$  ergeben und als  $k_{max}$  wird die Hälfte der Pixel in radialer Richtung gewählt. Bei 240 Pixel Radius ist das somit  $k_{max} = 120$ , wobei  $R_k = 2 \cdot k_{max}$  gewählt wird. Mit diesen Begrenzungen ist es möglich, die Matrix  $\mathbf{G}^{-1}$  durch Berechnung des Abel-Integrals zu erzeugen. Allerdings ist die Geschwindigkeit bei der Berechnung nicht akzeptabel gewesen. Daher wurde eine Modifikation des Algorithmus durchgeführt, um ihn für diese Anwendung zu optimieren.

Da ausschließlich symmetrische Photoelektronen-Winkelverteilungen beobachtet wurden, wurde das Bild in vier Quadranten aufgeteilt. Bei einer Analyse der Winkelverteilungen könnte jeder Quadrant separat analysiert werden. Da für eine Verarbeitung der gewonnenen Rekonstruktionen zu einem späteren Zeitpunkt zwischen diesen vier Teil-Rekonstruktionen interpoliert werden müsste, werden die vier Quadranten zur Analyse gemäß der Geometrie aufaddiert<sup>4</sup>. Dadurch verringert sich das Rauschen und erhöht sich die Qualität der Rekonstruktion. Bei verschiedenen Testrekonstruktionen zeigten sich innerhalb der vier Einzelrekonstruktionen und einer Rekonstruktion eines aufsummierten Bildes nur minimale Abweichungen, soweit der Mittelpunkt der Verteilung gut zentriert ist. Dies wird durch die im Anhang C beschriebenen Algorithmen sichergestellt.

Eine weitere Modifikation, die Vorteile bringen kann, ist die Wahl einer anderen Art von Basisfunktionen im Austausch mit den Legendre-Polynomen. Aufgrund der Natur des Problems der Elektronenwellenpakete bieten sich hier die Winkelverteilungen von echten Elektronen-Wellenpaketen an. Ein Ansatz, der diese Strategie verfolgt, wurde getestet und es hat sich gezeigt, dass die so erhaltenen Rekonstruktionen qualitativ vergleichbar sind mit den durch Verwendung von Legendre-Polynomen erzeugten Winkelverteilungen. Der Vorteil dieses Ansatzes liegt aber in der Tatsache, dass man unmittelbar die Intensität der einzelnen Wellen errechnen und diese dann leichter den Anregungskanälen zuordnen kann. Der Nachteil ist aber, dass in diesem Ansatz keine Phaseneffekte integriert sind, da nur reellwertige Funktionen verwendet werden und somit auch Interferenzen zweier Elektronenwellenpakete nicht erkannt werden, die direkten Einfluß auf deren Intensität haben. Somit ist dieser Ansatz für Photoelektronenspektroskopie eventuell sehr interessant, wurde aber in der vorliegenden Arbeit nicht weiter beleuchtet.

Implementiert wurde der Algorithmus entgegen der Version in [14] für diese Arbeit komplett in *LabVIEW 8.0.1*. Grund der Implementierung eines solch komplexen Algorithmus in einer graphisch orientierten Programmiersprache war zum einen die Verwendung von *LabVIEW* für die komplette Mess- und Geräteansteuerung

---

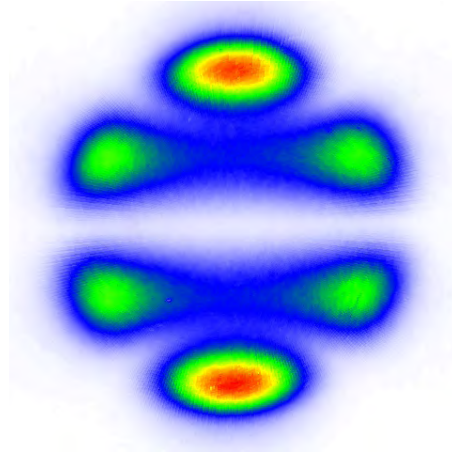
<sup>4</sup>entlang der Spiegelachsen zusammengeklappt und dementsprechend aufaddiert

und zum anderen die gute Modularisierung der verwendeten mathematischen Operationen. So war die Invertierung der Matrix  $\mathbf{G}$  mittels des SVD-Algorithmus komplett vorhanden und brauchte nicht manuell implementiert zu werden.

Im Folgenden wird der verwendete Algorithmus anhand zweier Beispiele verständlich gemacht.

## 1. Beispiel

In diesem Abschnitt soll anhand zweier Beispiele der Ablauf einer Auswertung dargestellt werden. Das erste Beispiel ist die Messung einer Photoelektronen-Winkelverteilung aus der resonanz-unterstützten drei Photonen Ionisation von Kalium (siehe Kapitel 6). Die dabei entstehenden Photoelektronen zeigen eine nahezu perfekte  $f$ -Symmetrie (siehe Anhang B). Die Messung bei einer Repeller-Spannung von 1650 V und einer Extraktor Spannung von 1250 V ist in Abbildung 1.8 gezeigt.



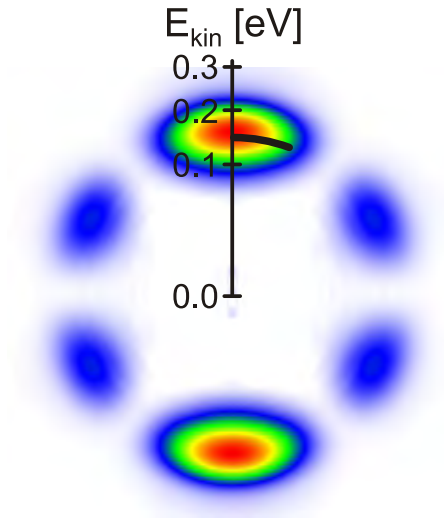
**Abbildung 1.8:** Messung der Photoelektronen-Winkelverteilung bei der resonanz-unterstützten drei-Photonen Ionisation von Kalium-Atomen mit ultrakurzen Laserpulsen (Laser-Parameter: siehe Abbildung 6.1)

Die Auswertung der gemessenen Daten wird, wie in Anhang C.2 beschrieben, durchgeführt. Das Bild wird zentriert, quadratisch zugeschnitten und von Störsignalen des Detektors befreit. Anschließend werden die Messdaten in die Polardarstellung überführt, da der pBasex-Algorithmus, wie oben beschrieben, in einem Zylinderkoordinatensystem ansetzt. Das Bild in Polardarstellung wird nun Zeile für Zeile zu einem Vektor zusammengesetzt, um  $\mathbf{P}$  zu erhalten. Man wendet dann die gespeicherte Matrix  $\mathbf{G}^{-1}$  an, gemäß

$$\mathbf{G}^{-1}\mathbf{P} = \mathbf{C} \quad (1.32)$$

und erhält einen Koeffizientenvektor  $\mathbf{C}$  der alle notwendigen Informationen enthält, um die Photoelektronen-Winkelverteilung zu rekonstruieren. Dies wird mit der Gleichung (1.22) für ein beliebig großes Bild durchgeführt, da die Koeffizienten mit den analytischen Basisfunktionen auf einem beliebigen Gitter berechnet werden können. Bei dieser Messung wurde ein  $480 \times 480$  Pixel großes Bild berechnet, was

für diese Analysen ausreicht. Die Auflösung ist durch den Algorithmus gegeben und muss durch mehr Basisfunktionen erhöht werden, um feinere Details erkennen zu können. Die Auflösung des Algorithmus wurde auf die Auflösung des Detektors (Spotgröße eines Elektrons:  $\approx 100 \mu\text{m}$  - 4 cm Detektordurchmesser - etwa 400 Pixel Auflösung im Durchmesser) abgestimmt, um die maximale Performance zu erreichen. Die rekonstruierte Photoelektronen-Winkelverteilung ist in Abbildung 1.9 gezeigt.



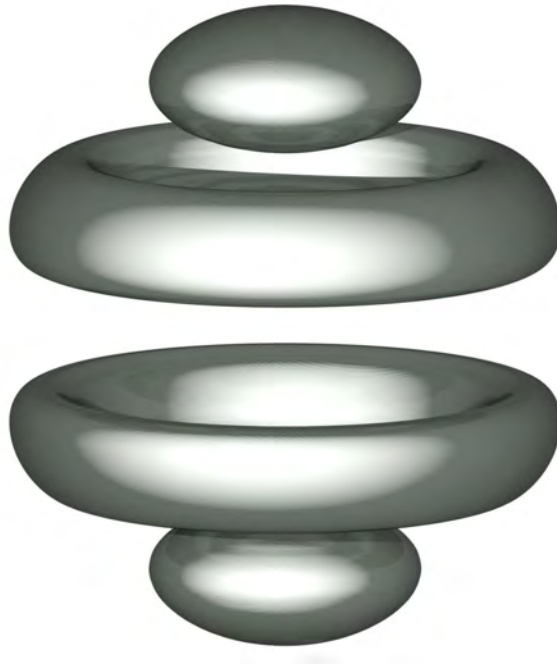
**Abbildung 1.9:** Schnitt durch die dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung der Messung in Abbildung 1.8 rekonstruiert mit dem pBasex-Algorithmus. Deutlich ist die  $f$ -Symmetrie mit den sechs Knotenpunkten zu erkennen. Zusätzlich wurde eine Energieskala eingezeichnet, die sich aus der Kalibrierung des Photoelektronenspektrometers (Kapitel 2.3) ergibt.

In dieser Rekonstruktion entsprechen die unterschiedlichen Radien den verschiedenen Photoelektronenenergien. Daher ist es möglich aus den Pixeln mittels der Kalibrierung auf die Energien zu schließen. Dies wurde in Abbildung 1.9 dargestellt, indem, ausgehend von der Mitte, eine Energieskala eingezeichnet ist, die den Radius mit einer kinetischen Energie verknüpft. Diese Skala unterliegt der Relation

$$E_{kin} = \alpha \cdot R^2,$$

in der die Variable  $\alpha$  von der Geometrie und den verwendeten Spannungen abhängig ist (siehe auch Kapitel 2.3). Man sieht deutlich, dass die Photoelektronen mit Energien zwischen 0,1 eV und 0,2 eV emittiert werden. Dieser Schnitt durch die dreidimensionale Photoelektronenverteilung enthält bereits alle notwendigen Informationen, die man aus den Messdaten erhalten kann. Um sich einen Eindruck

von der dreidimensionalen Photoelektronenverteilung zu verschaffen, kann diese Verteilung um die vertikale Achse rotiert werden, und man erhält die volle dreidimensionale Information. Dies wurde in Abbildung 1.10 beispielhaft durchgeführt.

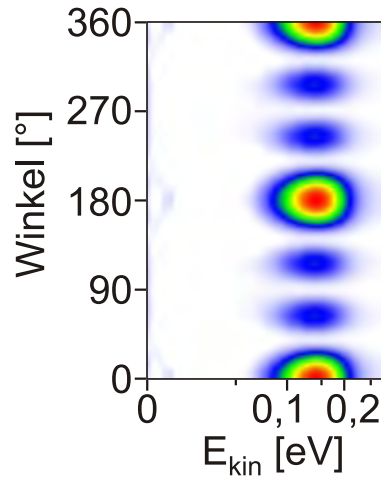


**Abbildung 1.10:** Dreidimensionale Darstellung einer Iso-Oberfläche der gemessenen Photoelektronen-Winkelverteilung (visualisiert mit PovRay). Die Symmetrie einer  $f$ -Welle ist eindeutig zu identifizieren.

Für einfache Winkelverteilungen ist dies sehr anschaulich, kann aber bei komplizierteren Winkelverteilungen mit unterschiedlichen Energien schnell unübersichtlich werden, wie man beim zweiten Beispiel sehen wird.

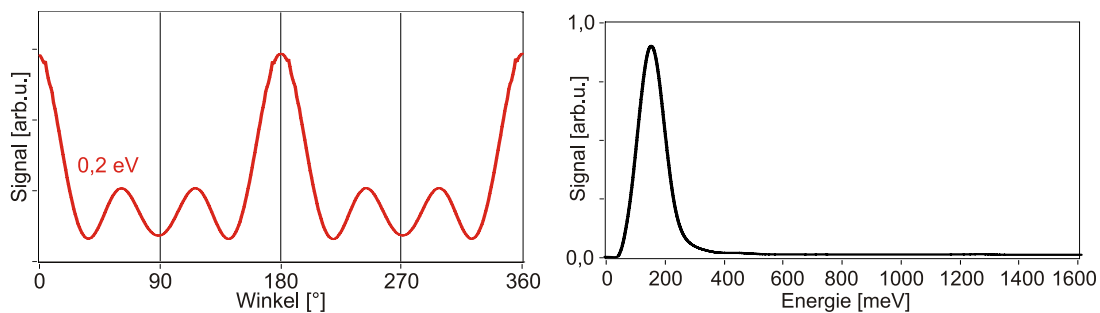
Zur Analyse der Photoelektronen-Winkelverteilungen wird im allgemeinen die Energie bzw. die Winkelachse betrachtet. Hierfür bietet es sich an, das rekonstruierte Bild in die Polardarstellung zu überführen. Dies ist bei der Verwendung des pBasex-Algorithmus sehr einfach, da man mit dem Koeffizientenvektor  $\mathbf{C}$  die Verteilung in der Polardarstellung direkt berechnen kann. Eine Interpolation der rekonstruierten Daten, welche in der Regel fehlerbehaftet ist, ist somit unnötig. Die Polardarstellung für die in Abbildung 1.9 dargestellte Rekonstruktion ist in Abbildung 1.11 dargestellt.





**Abbildung 1.11:** Polardarstellung der Rekonstruktion der Photoelektronen-Winkelverteilung. Horizontal: Kinetische Energie der Photoelektronen (bestimmt durch die Kalibrierung). Vertikal: Winkel der Photoelektronen zur Laserpolarisation.

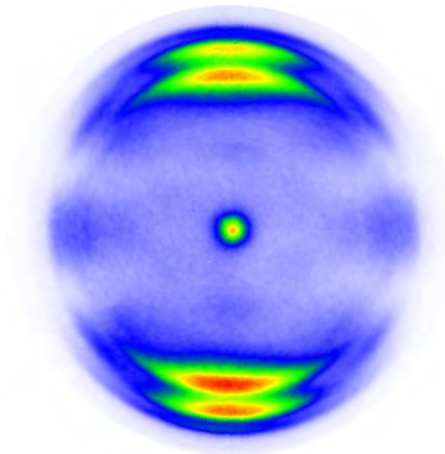
In dieser Art von Darstellung wird deutlich, bei welchen Energien Photoelektronen erzeugt werden und welche Winkelverteilung sie jeweils haben. Um weitere Aussagen über die Photoelektronen treffen zu können, wird in diesem Schaubild nun die Winkelverteilung bei einer Energie betrachtet und dargestellt. Gleichzeitig kann auch über alle Winkel integriert werden, um das rein energieföhlöste Photoelektronenspektrum zu erhalten.



**Abbildung 1.12:** Links: Signal der Photoelektronen in Abhängigkeit des Winkels zur Laserpolarisation. Eine Struktur mit 6 Knotenpunkten ist zu erkennen, die auf eine  $f$ -Welle hindeutet. Rechts: Das über alle Winkel integrierte Photoelektronensignal in Abhängigkeit der kinetischen Energie der Photoelektronen. Es wird Signal im Bereich von 100 meV bis etwa 250 meV ermittelt.

In Abbildung 1.12 sind die beiden meist verwendeten Informationen der Messung in Graphen dargestellt. Zum einen wird bei etwa 200 meV ein Schnitt in die Polardarstellung gelegt, der die Winkelverteilung der Photoelektronen mit dieser Energie darstellt. In diesem Beispiel entspricht die Winkelverteilung einer  $f$ -Welle mit den charakteristischen sechs Knotenpunkten in der Winkelverteilung. Auf der anderen Seite wird der Polar-Darstellung über alle Winkel aufaddiert und man erhält die energieaufgelösten Photoelektronenspektren, die über verschiedene Anregungskanäle innerhalb des atomaren Systems Aufschluss geben können, wie im nächsten Beispiel auch gezeigt wird. Als Erweiterung der Analyse können nun die Energiespektren in Abhängigkeit von weiteren Parameter dargestellt werden, wie zum Beispiel in Abhängigkeit des Chirpparameters  $\varphi_2(\omega_0)$  (vgl. Kapitel 3.2).

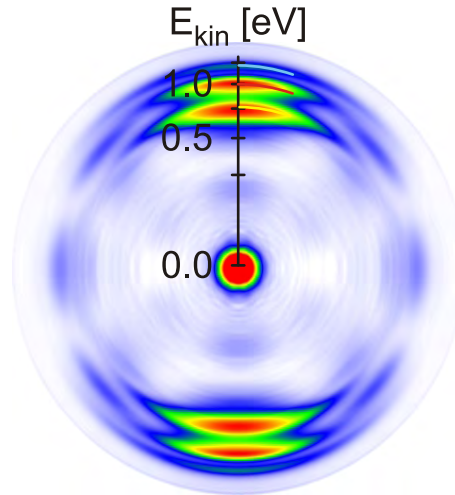
### 2. Beispiel



**Abbildung 1.13:** Messung der Photoelektronen-Winkelverteilung bei der resonanzunterstützten Anregung und Ionisation von Natrium-Atomen mit gechirpten ultrakurzen Laserpulsen. Der eingestellte Chirpparameter  $\varphi_2 = +300 \text{ fs}^2$  führt zu einer Struktur aus drei Ringen mit unterschiedlichen Winkelverteilungen, die sich optimal als Beispiel für den Rekonstruktionsalgorithmus eignen.

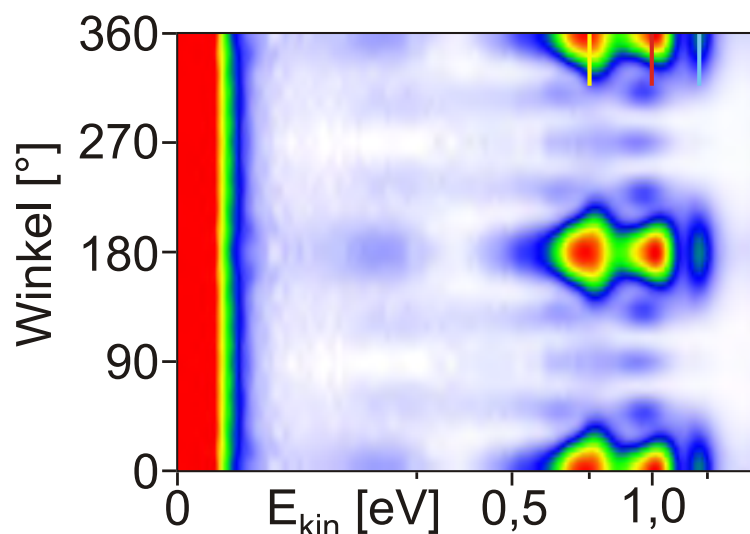
Nach der Analyse einer relativ einfachen Winkelverteilung im letzten Abschnitt wird nun eine Kombination verschiedener Elektronen-Wellenpakete aus der resonanten Anregung und Ionisation von Natrium-Atomen analysiert, wie sie im Kapitel 3.2 beschrieben wird. Als Beispiel wird die Messung einer Photoelektronen-Winkelverteilung aus der Anregung von Natrium-Atomen mit gechirpten Laserpulsen (Chirpparameter  $\varphi_2 = +300 \text{ fs}^2$ ) verwendet. Die Messung ist in Abbildung

1.13 gezeigt. In Abbildung 1.14 ist die Rekonstruktion der Messung von Abbildung 1.13 dargestellt.



**Abbildung 1.14:** Schnitt durch die dreidimensionale Winkelverteilung der Messung in Abbildung 1.13 rekonstruiert mit dem pBasex-Algorithmus. Drei unterschiedliche Ringe mit verschiedenen Winkelverteilungen sind zu erkennen. Wie in Abschnitt 1.3.2 wurde eine Energieskala eingezeichnet, die sich aus der Kalibrierung ergibt. Das starke Maximum im zentralen Bereich wird durch das Rauschen der Messung (siehe Kapitel 1.3.2) und durch Ionisation von Restgas erzeugt (vergleiche Kapitel 6.3).

Man erkennt verschiedene energetische Kanäle, die unterschiedliche Winkelverteilungen haben. Bei der Anregung und Ionisation von Natrium-Atomen sind bis ins Kontinuum vier Photonen beteiligt, die entweder über die Zwei-Photonen Resonanz  $4s \leftarrow \leftarrow 3s$  mit zwei weiteren Photonen zu einer Welle mit  $s$ - bzw.  $d$ -Symmetrie oder über eine  $(3+1)$  resonanz-unterstützte Multi-Photonen Ionisation (Resonance Enhanced Multi-Photon Ionisation - REMPI) zu einer Welle mit  $d$ - bzw.  $g$ -Symmetrie führen (siehe Abbildung 3.1). Die Anteile der  $g$ -Symmetrie kann man bei etwa 1,0 eV sehr gut erkennen. Eine dreidimensionale Darstellung führt hier nicht zu einer besseren Übersicht, da die unterschiedlichen energetischen Kanäle in dem dreidimensionalen Objekt ineinanderliegen und es schwer ist, ihre Struktur zu erkennen. Da von einer Zylindersymmetrie ausgegangen wird, ist somit die bessere Visualisierung die direkte Darstellung der Schnittebene in Falschfarben. In der Polardarstellung (siehe Abbildung 1.15) wird die energetische Struktur dafür umso deutlicher.

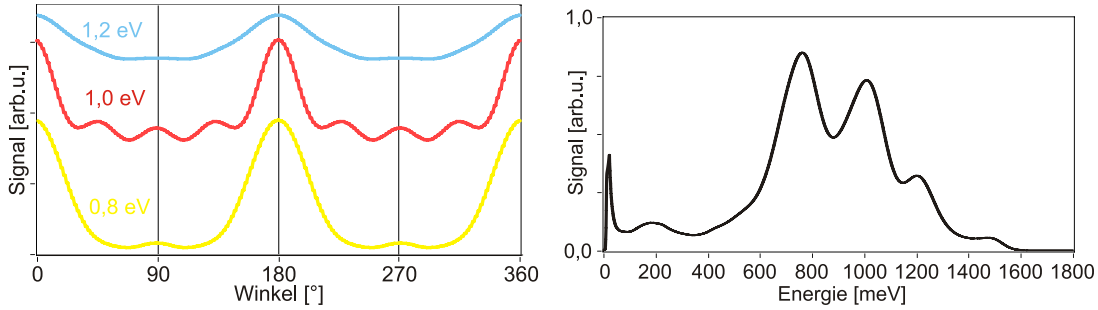


**Abbildung 1.15:** Polardarstellung der Rekonstruktion der Photoelektronen-Winkelverteilungen. Horizontal: Kinetische Energie der Photoelektronen. Vertikal: Winkel der Photoelektronen zur Laserpolarisation. Die drei primären Energiekanäle bei 0,75 eV, 1,0 eV und 1,2 eV sind gut voneinander zu trennen. Gleichzeitig kann man bei 0,6 eV und etwa 0,9 eV Elektronenwellenpakete mit  $g$ -Symmetrie (8 Knotenebenen) erkennen. Einzig der Kanal bei 1,2 eV zeigt hauptsächlich eine  $d$ -Symmetrie. Der nahe der Schwelle bei 0,2 eV liegende Kanal mit einer  $f$ -Symmetrie wird später separat diskutiert.

In der Polardarstellung werden sowohl die energetischen Kanäle sichtbar, als auch die verschiedenen Winkelverteilungen. Wellenpakete mit hauptsächlich  $g$ -Symmetrie liegen energetisch etwas niedriger als die vergleichbaren  $d$ -Wellen. Dies macht es hier möglich die unterschiedlichen Winkelverteilungen bei verschiedenen Energien zu erkennen. Zusätzlich wird auch hier die Winkelverteilung bei ausgewählten Energien als Graph dargestellt, ebenso wie das über alle Winkel integrierte Signal, welches in Kapitel 3.2 zur Visualisierung der kohärenten Stark-Feld Anregung verschiedener Natrium-Zustände verwendet wird. Die Graphen sind in Abbildung 1.16 dargestellt.

Als Abschluß der Beispiele sieht man in den Graphen wiederum sehr deutlich die Winkelverteilung, die einen Hinweis auf die verschiedenen Anregungskanäle geben, wie auch die energetischen Kanäle im energieaufgelösten Spektrum, die zur Analyse weiterer Parameter dienen können. Besonders dieses zweite Beispiel zeigt die Möglichkeiten auf, die der pBasex-Algorithmus bietet. Durch die Abel-Inversion, die mit diesem Algorithmus das Rauschen zur Mitte hin akkumuliert, ist es möglich, selbst komplexe Winkelverteilungen zu rekonstruieren und durch analytische Formeln zu beschreiben, die im weiteren durch einen Koeffizientenvektor und die

Formel der Basisfunktionen beschrieben werden können, die in jedes beliebige Format und in die verschiedenen Koordinatensysteme transferiert werden kann.



**Abbildung 1.16:** Links: Signal der Photoelektronen in Abhängigkeit des Winkels zur Laserpolarisation. Bei 0,8 eV und 1,2 eV ist eine Struktur mit 4 Knotenpunkten zu erkennen, die auf eine *d*-Welle hindeutet. Die ebenfalls vorhandene *s*-Welle (siehe Abbildung 3.1) sorgt hier für eine Veränderung der Amplituden der Winkelverteilung bei 90° und 270° im Verhältnis zu 0°, 180° und 360°. Bei 1,0 eV ist dagegen deutlich eine *g*-Symmetrie dargestellt, bei der die ebenfalls mögliche *d*-Welle in der Erhöhung der Knotenpunkte bei 36° und 144° in Relation zu den Knotenpunkten bei 72° und 108° zu erkennen ist. Rechts: Das über alle Winkel integrierte Photoelektronensignal in Abhängigkeit der kinetischen Energie der Photoelektronen. Es sind drei energetische Kanäle erkennbar, deren Signalstärke im Rahmen der Experimente in Kapitel 3.2 in Abhängigkeit vom Chirpparameter  $\varphi_2(\omega_0)$  untersucht wurden.

## 1.4 Numerische Simulation von Photoelektronenspektren

Die Simulation der Photoelektronenspektren, sowie die Simulation der Populationen in einem  $N$ -Niveau-Atom, die in diesem Kapitel gezeigt werden, sind durch numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung mit der Kurzzeitpropagator-Methode berechnet worden. Eine Herleitung findet sich in [19, 20] und [21].

Die zeitabhängige Schrödingergleichung für ein durch ein Lichtfeld gestörtes  $N$ -Niveau Atom ist gegeben durch

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} |\psi(t)\rangle = \hat{\mathcal{H}}(t) |\psi(t)\rangle \quad (1.33)$$

wobei  $\hat{\mathcal{H}}(t) = \hat{\mathcal{H}}_0 + \hat{\mathcal{V}}(t)$  den Hamilton-Operator des Gesamtsystems aus  $N$ -Niveau Atom  $\hat{\mathcal{H}}_0$  und Laserpuls  $\hat{\mathcal{V}}(t)$  darstellt. Im Wechselwirkungsbild wird daraus in der Rotating-Wave-Approximation (RWA)

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \\ \vdots \\ c_N \end{pmatrix} = -\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{12}^+ e^{-i\delta_{21}t} & \dots & \Omega_{1N}^+ e^{-i\delta_{N1}t} \\ \Omega_{12}^- e^{+i\delta_{21}t} & 0 & & \\ \vdots & & \ddots & \\ \Omega_{1N}^- e^{+i\delta_{N1}t} & & & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_1 \\ c_2 \\ \vdots \\ c_N \end{pmatrix} \quad (1.34)$$

wobei

$$\mathcal{W}(t) = -\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega_{12}^+ e^{-i\delta_{21}t} & \dots & \Omega_{1N}^+ e^{-i\delta_{N1}t} \\ \Omega_{12}^- e^{+i\delta_{21}t} & 0 & & \\ \vdots & & \ddots & \\ \Omega_{1N}^- e^{+i\delta_{N1}t} & & & 0 \end{pmatrix} \quad (1.35)$$

$$\text{mit } \hbar\Omega_{mn}^\pm = \mu_{mn}\mathcal{E}^\pm(t) \text{ und } \delta_{mn} = \omega_{mn} - \omega_0$$

den Hamilton-Operator in Matrixdarstellung zeigt mit den Dipolmomenten  $\mu$  und den elektrischen Feldern  $\mathcal{E}^\pm(t)$  in der RWA-Näherung. Diese Schrödingergleichung im Wechselwirkungsbild mit den Koeffizienten  $c_n(t)$  wird mit der Kurzzeitpropagator-Methode numerisch gelöst, die davon ausgeht, dass der Hamilton-Operator des gestörten Systems während eines kurzen Zeitintervalls der Länge  $\Delta t$  nahezu konstant bleibt. Dann kann die Schrödingergleichung (1.34) in dem Zeitintervall  $\Delta t$  integriert werden. Der Amplituden-Vektor  $\mathbf{c}$  zum Zeitpunkt  $t + \Delta t$  ist gegeben durch

$$\mathbf{c}(t + \Delta t) = e^{-\frac{i}{\hbar} \mathcal{W}(t) \Delta t} \mathbf{c}(t), \quad (1.36)$$

#### 1.4. NUMERISCHE SIMULATION VON PHOTOELEKTRONENSPEKTREN

---

Durch Definition der Anfangsamplituden kann iterativ der Verlauf des Amplitudenvektors für jeden Zeitpunkt  $t$  bestimmt werden und die Genauigkeit der Methode über die Größe von  $\Delta t$  variiert werden.

Aus den Amplitudenvektoren werden die Photoelektronenspektren berechnet, indem man ein flaches Kontinuum annimmt und perturbativ die Photoelektronenspektren berechnet mittels

$$\mathcal{P}(\omega_e) \propto \left| \sum_{j=1}^N \mathcal{F}[c_j(t) E^2(t)](-\omega_{IP} + \omega_j - \omega_e) \right|^2, \quad (1.37)$$

Hier bezeichnet  $\hbar\omega_{IP}$  die Ionisationsenergie und  $\hbar\omega_j$  die Energie des gebundenen Zustands. Um die Simulationen zu vereinfachen wurde diese Methode in modularen LabVIEW-VI's programmiert. Diese VI's sind kompatibel mit den in der Arbeitsgruppe vorhandenen "Virtual Femto Lab"-VI's [22], sodaß von der Pulsgenerierung, der Phasen- und später auch Polarisationsformung bis zur Anwendung an atomaren Systemen alles mit diesen VI's simuliert werden kann, indem modular die einzelnen Teile zusammengefügt werden. Die Beschreibung dieser VI's und Methoden sind in [22] und [23] zu finden.





# Kapitel 2

## Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird der experimentelle Aufbau dargestellt. Begonnen wird mit der Beschreibung der verwendeten Lasersysteme, anschließend wird der Aufbau des Phasenmodulators besprochen und der Aufbau des abbildenden Spektrometers beschrieben. Ein Abschnitt über die Kalibrierung des Abbildenden Spektrometers und die Bestimmung der Restphase am Ort des Experiments schließen das Kapitel.

### 2.1 Lasersysteme

Zur Zeit dieser Arbeit werden folgende Lasersysteme eingesetzt:

- Nanosekunden (ns) Nd:YAG Lasersystem - Spectra Physics Indi-30
- Femtosekunden (fs) Titan:Saphir-Oszillator (Ti:Sa) - Femtolasers
- Femtosekunden (fs) Titan:Saphir-Verstärkersystem (Ti:Sa) - Femtolasers

Die einzelnen Lasersysteme werden im folgenden kurz erläutert.

### 2.1.1 Nd:YAG-Laser



**Abbildung 2.1:** Nd:YAG-Lasersystem der Firma *Spectra-Physics*

Das Nd:YAG-ns-Lasersystem Indi-30 der Firma *Spectra Physics* [24] mit einer Repetitionsrate von 20 Hz hat bei 1064 nm eine Ausgangsleistung von maximal 6 Watt bzw. eine mittlere Pulsenergie von 300 mJ. Die Pulsdauer liegt im Bereich von 6 bis 7 ns. Das Lasersystem verfügt über eine Frequenzkonversionseinheit, mit der es möglich ist, Laserpulse bei 532 nm (135 mJ/Puls), 355 nm (40 mJ/Puls) und 266 nm (30 mJ/Puls) zu erzeugen. Die beschriebenen Leistungen und Energien sind die Maximalwerte des Lasersystems.

Das Lasersystem kann im Rahmen einer Energiekalibrierung des PEIS zur Anregung von Xenon-Atomen bei 355 nm verwendet werden. Dies entspricht der resonanten Multiphotonen-Ionisation mittels dreier Photonen zum resonanten Zwischeniveau  $7s$  und Ionisation mit einem weiteren Photon [11].

### 2.1.2 Ti:Saphir Femtosekunden-Oszillator

Mit dem Seed-Laser des hauptsächlich verwendeten Verstärkersystems (siehe Kapitel 2.1.3) wurden Experimente im abbildenden Spektrometer durchgeführt (siehe Kapitel 6.3.1). Der Ti:Saphir-Oszillator von der Firma **Femtolasers** *Femtsource Scientific SPRO* [25] wird mit einem frequenzverdoppelten Nd:YVO<sub>4</sub>-cw-Laser bei 532 nm (Coherent Verdi V-5) gepumpt und hat eine Zentralwellenlänge bei etwa 800 nm, eine minimale Pulsdauer von 11 fs bei einer Pulsenergie von mehr als 4 nJ und einer Repetitionsrate von 75 MHz.

Die Herausforderung bei dieser breitbandigen Laserstrahlung ist, sie unter Vermeidung von Dispersion durch Optiken zum Experiment zu bekommen, da das breite Spektrum zu einer stärkeren Pulsverbreiterung führt als ein schmaleres Spektrum (siehe [4]). Zusätzlich hat man bei dem Oszillator nicht direkt die Möglichkeit, mittels eines Prismenkompressors eine Vorkompensation der Phase vorzunehmen, da die durch die Prismen eingeführte Phase dritter Ordnung für Experimente störend wäre. Wenn dennoch Optiken im Strahlengang verwendet werden, die

Dispersion einführen<sup>1</sup>, hat man die Möglichkeit über verschiedene Methoden die eingeführte Phase vorzukompensieren. Neben einem Prismenkompressor (siehe [4]) besteht auch die Möglichkeit mittels sogenannter “Chirped-Mirrors” die Phase vorzukompensieren. Verschiedene Spektralanteile laufen in diesen Chirped Mirrors unterschiedliche Wege, was bei entsprechender Aneinanderreihung von Schichten dazu führt, dass die blauen Anteile der Laserstrahlung weniger weit laufen, als die roten Anteile und somit der Effekt normaler Dispersion kompensiert werden kann. Ein Nebeneffekt dieser Chirped Mirrors sind sogenannte “Chirp-Oszillationen”, die durch den Schicht-Aufbau der Chirped Mirrors entstehen. Um Effekte durch “Chirp-Oszillationen” zu vermeiden, ist es wichtig, die zwei (bzw. eine geradzahlige Anzahl) Chirped-Mirrors auf das Lasersystem und die spektrale Bandbreite abzustimmen. Beide Chirped Mirrors sind derart aufeinander abgestimmt, dass “Chirp-Oszillationen” von einem Spiegel durch den anderen jeweils ausgeglichen werden; daher sollte die Anzahl der Reflexionen auf beiden Spiegeln gleich sein. Die in diesen Experimenten verwendeten Chirped-Mirrors sind exakt auf den Oszillator abgestimmt und erlauben eine Kompensation von etwa  $75 \text{ fs}^2$  pro Reflexion. Um eine akzeptable Kompensation zu erhalten, sind Mehrfach-Reflexionen notwendig. Je nach Experiment wurde ein optisches Breadboard verwendet, um zwischen vier und 20 Reflexionen auf die Spiegel mit 25 mm Durchmesser zu bekommen. Hier lassen sich verschiedene Ansätze verfolgen, um möglichst viele Reflexionen und damit viel Kompensation zu erhalten. Dies verursacht aber auch geringe Verluste auf den Spiegeln (bis zu 2% pro Reflexion). Zusammenfassend kann man sagen, dass ein Aufbau für breitbandige Laserstrahlung sehr kompakt gehalten werden muss und nur über die notwendigen optischen Komponenten verfügen darf.

Zur Bestimmung der Pulsdauer wurde ein GRENOUILLE (GRating Eliminated No-nonsense Observation of Ultrafast Incident Laser Light E-fields) [26] eingesetzt. Die Auflösung des Grenouille ist hierbei gerade noch ausreichend, um die Pulsdauer des Oszillators vermessen zu können.

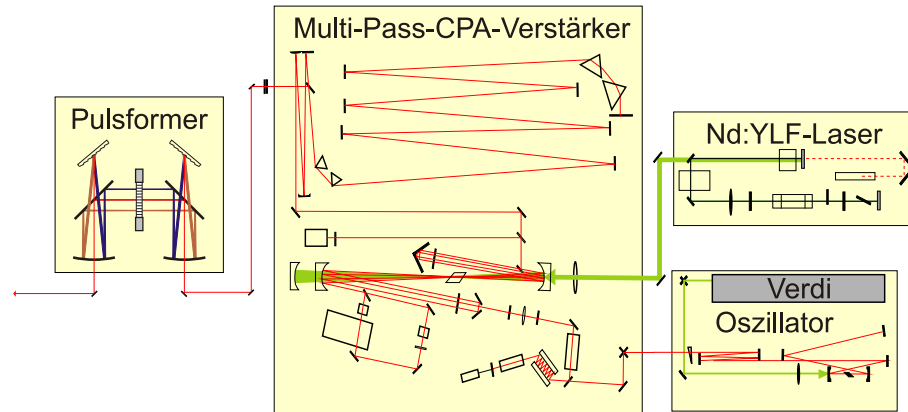
### 2.1.3 Ti:Saphir Femtosekunden-Verstärkersystem

In diesem Abschnitt wird das Femtosekunden-Lasersystem (fs-Lasersystem) *Femtolasers Femtopower Pro* [27] der Firma **Femtolasers** vorgestellt, das bei nahezu allen Messungen verwendet wurde. In Abbildung 2.2 sind das Lasersystem und der Strahlengang schematisch dargestellt.

---

<sup>1</sup>was letztlich alle Optiken tun - auch Spiegel führen mit ihren Schutzschichten minimale Dispersion ein

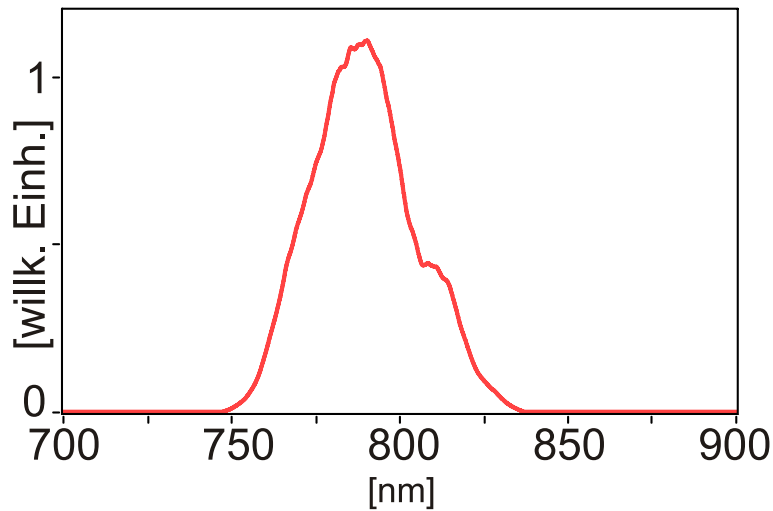
In dem Lasersystem werden die vom Oszillator kommenden Laserpulse selektiert



**Abbildung 2.2:** Das fs-Lasersystem besteht aus einem Pumplaser **BMI YLF 621I** bzw. **Thales Jade2**, einem Ti:Saphir Oszillator **Femtolasers Femtosource Scientific Pro** der von einem Pumplaser **Coherent Verdi V-5** gepumpt wird (siehe Abschnitt 2.1.2), einem Multi-Pass Verstärker **Femtolasers Femtopower Pro**, einem Phasenmodulator (siehe Abschnitt 2.1.4) und einem Polarisationsformer (siehe Abschnitt 5.4.1), die beide in der Arbeitsgruppe entwickelt wurden und in den verschiedenen Experimenten zum Einsatz kommen.

und anschließend nach dem Prinzip eines Multi-Pass Verstärkers mit “Chirped Pulse Amplification” (siehe [5]) verstärkt. Hierzu wird die Pulslänge stark vergrößert, anschließend wird der Laserpuls verstärkt und schließlich wird der Puls wieder komprimiert. Der Verstärker wurde bei den in Kapitel 3.2 beschriebenen Experimenten mit einem Pumplaser **BMI YLF 621I** gepumpt, der für die in Kapitel 6 beschriebenen Experimente durch einen diodengepumpten **Thales Jade2** ersetzt wurde. Zusätzlich bekam das Lasersystem zu diesem Zeitpunkt eine aktive Positionsstabilisierung, was zu einer erheblich höheren Stabilität des Gesamtsystems führte. Es werden Femtosekundenlaserpulse bei einer Zentralwellenlänge von etwa 800 nm und einer Wiederholrate von 1 kHz mit einer Pulsdauer von etwa 26 fs bei einer Ausgangsleistung von 800 mW bzw. einer Pulsenergie von 800  $\mu\text{J}$  erzeugt. Die Pulsdauer und die Phase des Lasersystems werden ebenso wie bei dem Oszillator mit dem Grenouille vermessen.

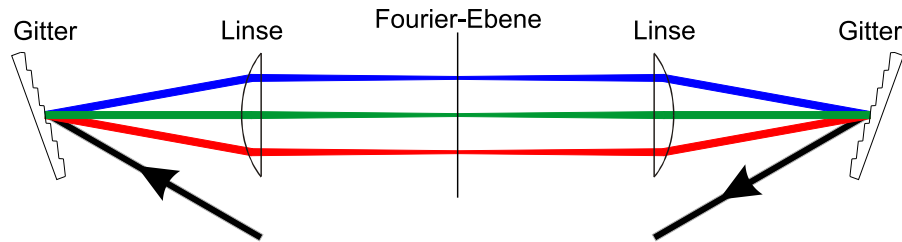
Als Beispiel wird in Abbildung 2.3 ein Spektrum des verstärkten Laserpulses gezeigt, wie es während der Messungen aufgenommen wurde. Mit einem Phasenmodulator (siehe Abschnitt 2.1.4) und einem Polarisationsformer (siehe Abschnitt 5.4.1) können sehr komplexe linear polarisierte wie auch zeitlich in ihrer Polarisation variierende Laserpulsformen generiert werden, die in der Atom- und Moleküldynamik von hohem Interesse sind.



**Abbildung 2.3:** Spektrum des verwendeten Verstärkersystems. Die Fussbreite geht von 750 nm bis etwa 840 nm, während die Volle Breite auf halber Höhe (Full Width at Half Maximum - FWHM) von 768 nm bis etwa 804 nm einem Laserpuls mit einer Pulslänge von 26 fs entspricht, sofern die spektrale Phase konstant ist.

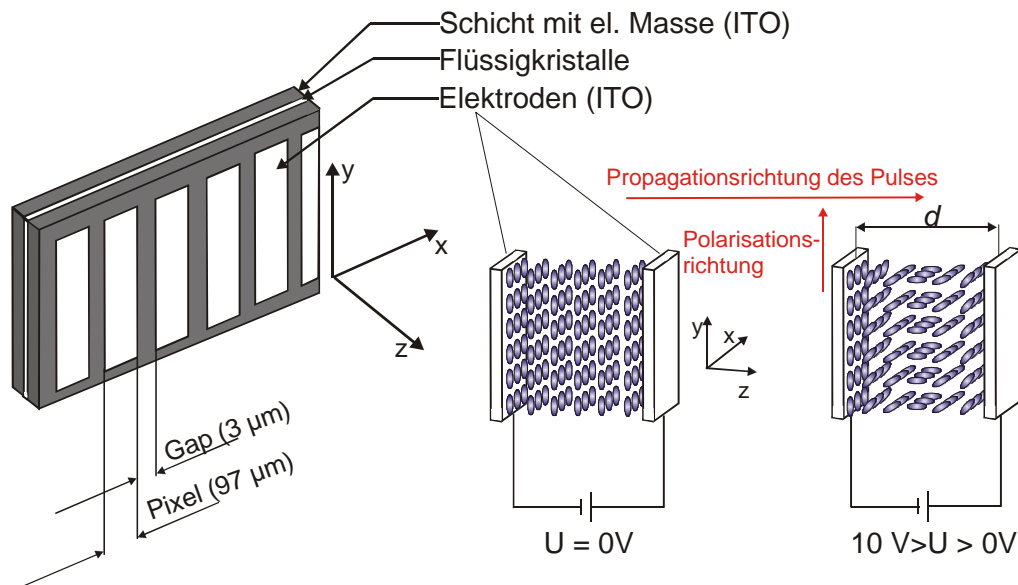
### 2.1.4 Phasenmodulator

Für die von dem fs-Lasersystem generierten breitbandigen Laserpulse steht ein Phasenmodulator (siehe Abbildung 2.6) zur Verfügung [28]. Grundidee hinter diesem Gerät ist die Modulation der spektralen Phase des elektrischen Feldes für die verschiedenen Spektralanteile. Da ein ultrakurzer Laserpuls durch die kohärente Überlagerung sehr vieler cw-Wellen erst zu einem fs-Laserpuls wird, kann man mit der Modulation der Phase der cw-Wellen großen Einfluß auf die Form der Laserpulse nehmen, die aus dem Phasenmodulator herauskommen. Die theoretische Beschreibung mittels einer Modulationsfunktion ist in Kapitel 1.2 gegeben. In der Praxis ist ein Phasenmodulator folgendermaßen aufgebaut (siehe Abbildung 2.4):



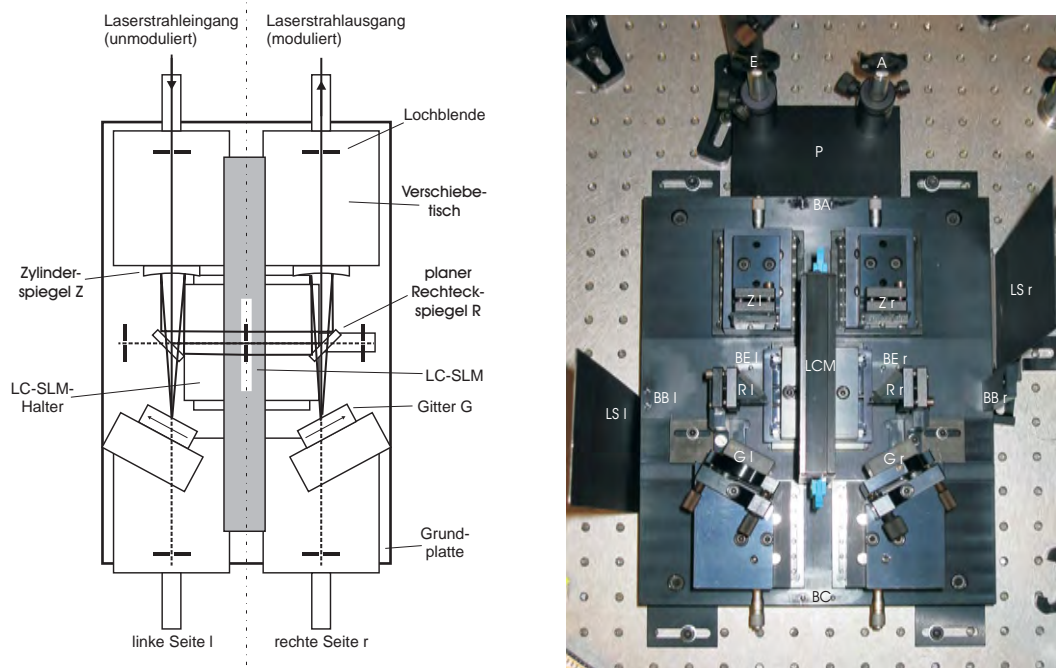
**Abbildung 2.4:** Schemazeichnung eines Null-Dispersionskompressors (entn. aus [6]). Der fs-Laserpuls wird auf das linke Gitter geschickt und in seine Spektralanteile aufgespalten. Die aufgespaltenen Spektralanteile werden durch eine Zylinderlinse kollimiert während die einzelnen Spektralanteile durch die Zylinderlinse in die Fourier-Ebene fokussiert werden. Danach wird derselbe Aufbau in umgekehrter Richtung durchlaufen, was zu einer Rekonstruktion des fs-Laserpuls führt. Der Aufbau entspricht somit einer technischen Umsetzung der Fouriertransformation in Kombination mit der inversen Fouriertransformation. In der Fourierebene hat man nun direkten Zugriff auf die einzelnen Spektralkomponenten.

Der ankommende Laserstrahl wird mit einem Gitter spektral aufgespalten. Im Abstand ihrer Brennweite wird eine Zylinderlinse positioniert, die den spektral aufgespaltenen Laserstrahl kollimiert. Betrachtet man nun einen kleinen Spektralbereich (im Idealfall eine einzelne cw-Welle), dann ist dieser natürlich in der Größe des Laserstrahls vom Gitter gebeugt und auf der Zylinderlinse aufgetroffen. Jeder dieser Spektralbereiche des Laserpulses wird nun hinter der Zylinderlinse im Abstand der Brennweite in eine Ebene fokussiert. Die einzelnen fokussierten Spektralanteile der Laserpulse liegen örtlich separiert nebeneinander. Nach einer Entfernung von wiederum der Brennweite der Zylinderlinse ist der einzelne spektrale Anteil wieder exakt so groß, wie am Ort der Zylinderlinse. An diesem Ort wird wiederum eine Zylinderlinse der gleichen Brennweite platziert und fokussiert alle Spektralanteile wieder auf einen Punkt, an dem ein zweites Gitter der gleichen Parameter steht, wie das erste Gitter. In diesem Gitter setzt sich der Laserstrahl aus den einzelnen Spektralanteilen wieder zusammen und unterscheidet sich bei richtiger Justage nicht von dem Eingangsstrahl. Diese Art des Aufbaus nennt man einen Null-Dispersions-Kompressor (engl. zero-dispersion compressor - ZDC), da er keine Dispersion einführt. Bei Verwendung von Linsen wirkt sich natürlich die Dispersion der verwendeten Zylinderlinsen aus, was zum Beispiel durch Verwendung von Spiegeln umgangen werden kann. Die Wirkung des oben genannten Aufbaus ist aus mathematischer Sicht lediglich eine Fouriertransformation und eine inverse Fouriertransformation eines elektrischen Feldes.



**Abbildung 2.5:** Schemazeichnung des Flüssigkristall-Displays (entn. aus [29]). Links: Das Flüssigkristall-Display besteht aus mehreren Schichten, eine Schicht mit der elektrischen Masse aus ITO (Indium-Zinn-Oxid, transparent) und eine Schicht mit den einzelnen Elektroden umschließen die Flüssigkristallschicht. Die Elektroden haben eine Höhe von 2 mm, eine Breite von jeweils  $97\ \mu\text{m}$  und sind durch  $3\ \mu\text{m}$  breite Stege unterteilt. Rechts: Ist keine Spannung angelegt, richten sich die Flüssigkristalle entlang der auf den Elektroden aufgetragenen Ausrichtungsschicht aus. Legt man eine Spannung an den Elektroden an, so richten sich die Flüssigkristalle in Abhängigkeit von der Spannung entlang der Verbindungslinie zwischen den Elektroden aus.

Um diesen Aufbau als Phasenmodulator zu verwenden muss an dem Ort direkt zwischen den Zylinderlinsen, wo alle Spektralanteile scharf nebeneinander liegen (die sogenannte Fourierebene) die Phase der einzelnen Spektralanteile relativ zueinander manipuliert werden. Dies wird in dem in der Arbeitsgruppe verwendeten Phasenmodulator durch einen Flüssigkristall-Streifenmodulator der Firma **CRI** bewerkstelligt. Die 128 Pixel des Streifenmodulators mit jeweils 2 mm Höhe und einer Breite von  $97\ \mu\text{m}$  sind durch  $3\ \mu\text{m}$  breite Stege unterteilt. In jedem der Pixel kann unabhängig von den anderen eine Spannung angelegt werden, die die Ausrichtung der Flüssigkristalle beeinflusst und somit zu einem veränderten Brechungsindex des doppelbrechenden Flüssigkristalls und zu einer unterschiedlichen optischen Weglänge führt (siehe Abbildung 2.5).



**Abbildung 2.6:** Links: Schemazeichnung des Pulsformers - Rechts: Aufsicht des Aufbaus (entn. aus [29]). Der gefaltete Aufbau macht es möglich, den Pulsformer sehr kompakt zu halten und mit der verwindungssteifen Grundplatte auch eine stabile Konstruktion zu gewährleisten. Links oben sieht man den Eingang für den Laserstrahl, der auf das Gitter unten trifft, dort in entgegengesetzter Richtung aufgespalten wird, dabei sich aber aufgrund des verkippten Gitters leicht in die Blattebene bewegt. Der aufgespaltene Strahl trifft dann auf den Zylinderspiegel und wird wiederum in die Blattebene kollimiert. Er trifft dann auf den Faltungsspiegel und wird nach rechts in die Fourierebene geleitet, in der das Flüssigkristall-Display sitzt. Nach Austritt aus dem Flüssigkristall-Display durchläuft der Strahl den gleichen Aufbau auf der rechten Seite nochmals rückwärts. Im Bild rechts kann man einen Eindruck bekommen, wie kompakt der Aufbau ist (etwa 30 cm x 20 cm).

Legt man an den Pixeln jeweils relativ zueinander unterschiedliche Spannungen an, so kann die Phase der einzelnen Spektralanteile relativ zueinander verändert werden. Hierbei wird nur ein Bereich von 0 bis  $2\pi$  Phasenverschiebung verwendet, da größere Phasenverschiebungen immer auf den Bereich 0 bis  $2\pi$  abgebildet werden können. Hierfür wird für das Display eine Spannung-zu-Phasen Kalibrierung durchgeführt. Die eingestellten Phasenmasken sind allerdings immer noch diskrete Phasenmasken, was zu Nebeneffekten führen kann. Es werden beispielsweise Pulskopien im Abstand von  $2\pi/\Delta\omega$  erzeugt, wobei durch  $\Delta\omega$  die spektrale Breite

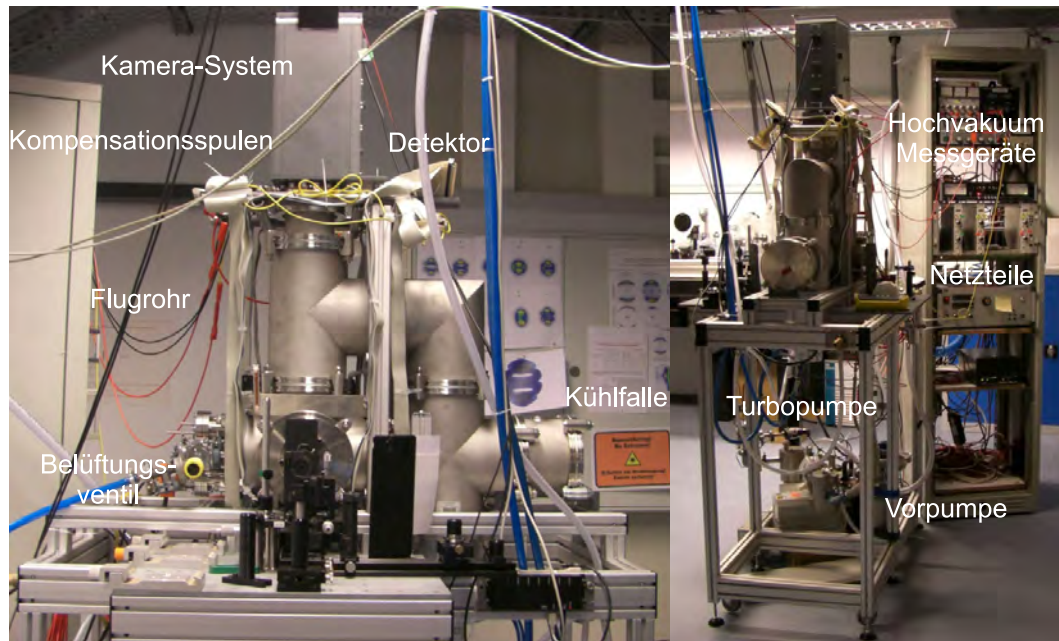


eines Pixels beschrieben wird [29]. Dies entspricht bei dem Phasenmodulator etwa 2,2 ps. Andererseits hat man bei Phasenmasken mit sehr großen Phasenunterschieden durch das Abbilden auf den Bereich 0 bis  $2\pi$  sehr viele starke Sprünge in den angelegten Spannungen, was zu Streuung an den zugehörigen Brechungsindex-Variationen führen kann. Dadurch wird ein Teil der Laserstrahlung aus dem optischen Pfad gestreut und der Laserpuls beeinflusst. Überschreitet man eine gewisse Grenze bei der Phasenmodulation, so dass mehrere Phasensprünge nahe beieinander liegen, kann nicht mehr unterschieden werden, in welche Richtung die Phase fortgeführt wird. Die erzeugten Pulsformen sind dann nicht mehr eindeutig definiert. Mehr Informationen zu den Grenzen der Phasenmodulation sind [6] zu entnehmen.

Für die Experimente in diesem Kapitel wurden Phasenmasken mit geringem Phasenhub und somit wenigen Sprüngen verwendet. Als Besonderheit wurde in der Ansteuerung des Phasenmodulators ein Programm verwendet, das dafür sorgt, dass in der Nähe der Anregungsfrequenz des atomaren Systems kein Spannungssprung auftritt, da dies zu unerwünschten Effekten führen könnte.

## 2.2 Die Vakuumanlage

Die Vakuumanlage besteht aus Normteilen des Standards ISO-K160. In Abbildung 2.7 sind die einzelnen wichtigen Bestandteile zu erkennen.



**Abbildung 2.7:** Foto von der Vakuumanlage mit abbildendem Photoelektronenspektrometer - Beschreibung der einzelnen Teile im Text

Links unten ist das Belüftungsventil (Balzer EVN 010 H1, gelb) zu erkennen, das zum Belüften der Vakuumanlage verwendet wird. Weiter rechts im Bild ist die Kühlfalle zu sehen, die von oben mit flüssigem Stickstoff befüllt wird. Vor der Kühlfalle nach unten ist die Turbopumpe angebracht, die vom Typ *Edwards* EXT200 ist und einen Volumenstrom von 200 l/s hat. Diese wurde später gegen eine Turbovac 361 von *Oerlikon Leybold* ersetzt, die eine Pumpleistung von 400 l/s hat. Als Vorpumpe wird eine Drehschieberpumpe vom Typ *Pfeiffer* 010 Duo oder vom Typ *Edwards* BS 2208 verwendet.

Die Flugstrecke der Elektronen wird großzügig von zwei Helmholtz-Spulen für beide Raumrichtungen umfasst, um das Erdmagnetfeld und andere homogene Felder zu kompensieren (siehe auch [30]). Da die Spulen sehr groß dimensioniert sind, ist es möglich, schon mit kleinen Strömen die Elektronen zu zentrieren.

Innerhalb der Spulen sind das Flugrohr und der Detektor erkennbar. Der Detektor (Burle APD3040FM) ist ein Doppel-MCP in Chevron-Konfiguration mit Phos-

phorschirm, der auf einer Faseroptik sedimentiert ist. Die Faseroptik ist in einen Vakuumflansch eingekittet und kann von außen betrachtet werden. Die MCP's bestehen aus einem sehr dünnen Glassubstrat, das Kanäle in einem Abstand von  $12\ \mu\text{m}$  mit einem Durchmesser von  $10\ \mu\text{m}$  hat. In diesen Kanälen werden auftreffende Elektronen vervielfacht. Diese Kanäle sind nicht exakt senkrecht zur Oberfläche, sondern unter einem Winkel von einigen Grad verkippt, so dass einfliegende Elektronen mit einer höheren Wahrscheinlichkeit auf die Kanalwand auftreffen. Ein einzelner MCP hat eine Verstärkung von  $10^3$  bis  $10^4$ . Zwei MCP's in Chevron-Konfiguration sind so ausgerichtet, dass die Kanäle bei dem einen MCP in die eine Richtung und bei dem direkt dahinter liegenden MCP in die andere Richtung ausgerichtet sind. Damit wird eine optimale Verstärkung erreicht, die bei einer Chevron-MCP Kombination typischerweise bei etwa  $10^7$  liegt.



**Abbildung 2.8:** Foto des Multi-Channel-Plate Detektors mit Faseroptik in lichtdichtem Gehäuse mit Tür. Das verwendete Kamerasystem *Lumenera Lu135* ist über USB an den Messrechner angeschlossen.

Jeder MCP benötigt eine Potentialdifferenz von 900 V bis 1200 V zwischen Vor- und Rückseite, damit hohe Verstärkungen möglich werden. Damit die aus dem vorderen MCP austretenden Elektronen nicht zu stark gestreut werden, sollte der Abstand zwischen den MCP's möglichst klein sein. In einigen Arbeiten zu abbildenden Photoelektronenspektrometern (z.B. [31]) wird empfohlen, zwischen der Rückseite des ersten MCP's und der Frontseite des zweiten eine kleine Poten-

tialdifferenz von einigen hundert Volt anzulegen, um die Streuung von Elektronen zu verringern. Dies ist bei dem Komplettdetektor von Burle nicht vorgesehen. Die austretenden Elektronen werden in einem starken elektrischen Feld auf den Phosphorschirm beschleunigt und erzeugen dort einen Lichtblitz. Ein auftreffendes Elektron auf dem vorderen MCP führt zu einem Lichtblitz von etwa  $100\text{ }\mu\text{m}$  Durchmesser auf dem Phosphorschirm. Auf einem Durchmesser von 40 mm des Detektors können etwa 400 Lichtpunkte voneinander unterschieden werden. Somit wären 800 Pixel notwendig, um die einzelnen Punkte noch voneinander unterscheiden zu können. Daher ist es sinnvoll, hohe Auflösungen im Kamerasystem zu verwenden. Für die Messungen in dieser Arbeit wurde eine *Lumenera* Lu135 verwendet, die  $1392 \times 1040$  Pixel mit 10 bit Auflösung zur Verfügung stellt und mittels USB-Anschluß direkt in die Messsoftware eingebunden wurde. Um Messungen auch bei normalen Lichtverhältnissen zu ermöglichen, wurde ein lichtdichtes PVC-Gehäuse gebaut, das über eine integrierte Luftkühlung verfügt, um auch lange Messungen über viele Stunden zu ermöglichen.

Der Chevron-MCP und die Elektroden werden von unterschiedlichen Netzteilen mit Spannung versorgt. An der Rückseite des Doppel-MCP werden Spannungen bis zu +2400 V benötigt. Dafür wird ein Hochspannungsnetzteil der Firma ISEG verwendet (ISEG NHQ 203M), das eine Spannung von maximal 3000 V liefern kann. Da der Doppel-MCP eine sehr stabile Spannung benötigt, sind die Netzteile von ISEG die beste Wahl, da ihre Restwelligkeit sehr gut ist ( $2\text{ mV}_{P-P}$ ). Der Phosphorschirm wird von einem zweiten ISEG-Netzteil (ISEG NHQ 205M) versorgt, das bis zu 5000 V liefern kann. Zwischen der Rückseite des Doppel-MCP und des Phosphorschirms liegt ein konstantes Potential von +3000 V an, um die austretenden Elektronen auf den Phosphorschirm zu beschleunigen. Daher liegt zwischen Phosphorschirm und Masse ein Potential von maximal +5400 V. Da wir bereits bei +1800 V auf der Rückseite des Doppel-MCP etwa 10 Lichtblitze pro Sekunde am Detektor sehen<sup>2</sup>, reicht das ISEG-Netzteil für unsere Messungen aus. Ein weiteres ISEG-Netzteil (ISEG NHQ 208M) mit 8 kV Maximalspannung auf zwei Kanälen wird für die Elektroden verwendet. Mit diesen Spannungen lassen sich Photoelektronen mit bis zu 6 eV abbilden, da schnellere Photoelektronen größere Radien bilden, als auf den Detektor abgebildet werden können.

Die Hochspannungskontaktierung der Elektroden ist auf der Abbildung 2.7 nicht sichtbar unter der Vakuumanlage realisiert. Rechts in Abbildung 2.7 ist das 19 Zoll-Rack zu erkennen, in dem die Hochspannungsnetzteile, die Vakuummessgeräte und das Turbopumpen-Kontrollgerät eingebaut sind.

Ein Kombimesegerät der Firma Leybold dient zur Messung des Vorvakuums mit einem Vorvakuummesskopf im Bereich von  $10^3$  mbar bis  $10^{-3}$  mbar und des Hochvakuums mit einer Bayard-Alpert-Röhre im Bereich von  $10^{-2}$  mbar bis

---

<sup>2</sup>nur von Gasteilchen erzeugte Lichtblitze am MCP, ohne Laser

$10^{-8}$  mbar. Ein weiteres Vakuummessgerät mit Hochvakuummesskopf der Firma Edwards wird parallel zur Messung des Hochvakuums im Bereich von  $10^{-1}$  mbar bis  $10^{-7}$  mbar verwendet.

Da der Detektor am besten unter einem ölfreien Vakuum gelagert wird, läuft die Anlage durchgehend und wird nur gelegentlich geöffnet, um Teile auszutauschen oder Umbauten vorzunehmen. Der Druck bei Dauerbetrieb liegt in der Regel bei  $2 \cdot 10^{-7}$  mbar. Da die Anlage nicht ausgeheizt wird und eine große Oberfläche hat, ist ein solcher Wert sehr gut für die verwendete Pumpe (Oerlikon Leybold). Nach einer kurzen Öffnung von wenigen Minuten kann die Anlage innerhalb von weniger als 60 Minuten wieder auf diesen Enddruck evakuiert werden.

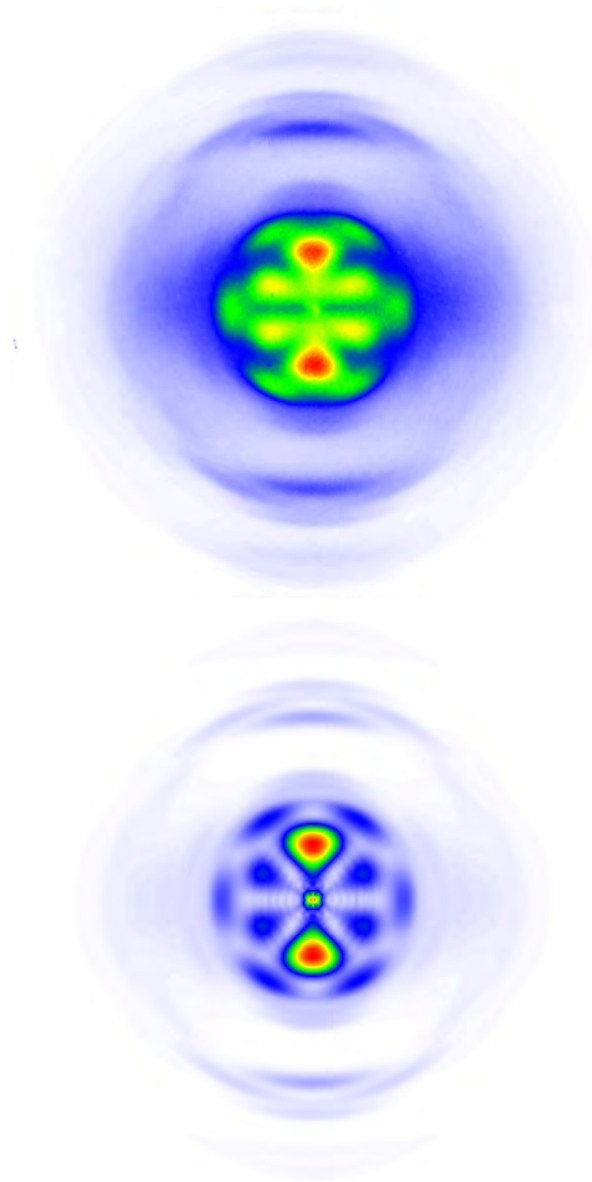
Für die MCP's ist eine Flow-Box entwickelt worden, damit diese an der Außenluft keinen Schaden nehmen können. Die MCP's sind sehr empfindlich, da die Kanäle stark hygroskopisch sind und bei ausreichender Luftfeuchtigkeit die MCP's unbrauchbar werden. Wenn belüftet wird und mehrere Stunden kein erneutes Abpumpen möglich ist, kann der Detektor mit dem darunterliegenden Vakuumteil zusammen auf die Flow-Box gestellt werden, die kontinuierlich Gas über die Innenseite des Detektors fließen läßt.

Neben dem 19-Zoll-Rack für die Netzteile, ist in einem weiteren Rack, das nicht abgebildet ist, ein Messrechner eingebaut, der die von der Kamera kommenden Bilder aufsummieren, anzeigen und abspeichern kann.

Die Leistungen der Lasersysteme werden bei dem ns-Lasersystem durch den Leistungsregler der Blitzlampe reguliert, bei dem fs-Lasersystem wird ein Gradientenabschwächer der Firma Edmund verwendet, der verschiedene Abschwächungsgrade bei unterschiedlichen Positionen hat (je nach Modell 1, 2 oder 4 Größenordnungen maximale Abschwächung).

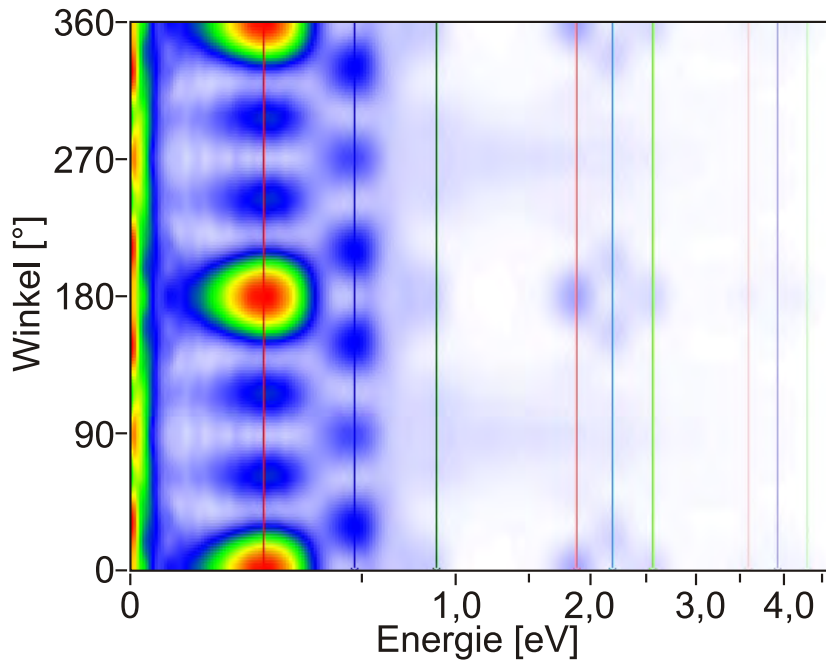
## 2.3 Kalibrierung

In diesem Abschnitt soll eine Methode gezeigt werden, die geeignet ist, um das abbildende Spektrometer zu kalibrieren. In [11] wurde die (3+1)-REMPI von Xenon-Atomen mit der dritten Harmonischen (355 nm) des ns-Lasersystems verwendet. Hier soll nun als Alternative die Kalibrierung mittels der Above-Threshold Ionization (ATI) [32] von Kalium-Atomen mit dem fs-Lasersystem gezeigt werden.



**Abbildung 2.9:** Oben: Photoelektronenverteilung von der Anregung und Ionisation von Kalium-Atomen mit ultrakurzen Laserpulsen bei einer Intensität von  $1,2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . In der Mitte ist deutlich die  $f$ -Symmetrie der Photoelektronen zu erkennen, die bei etwas weiter außen liegenden Photoelektronen durch eine  $d$ -artige Symmetrie weitergeführt wird und dann in der zweiten AT-Komponente endet. Diese Abfolge wird dann weiter außen bei  $E = \hbar\omega$  mehr kinetischer Energie und zusätzlichen Drehimpuls (weil u.a. gilt  $l_{ATI1} = l_{Thres} + 1$ ) nochmals gezeigt und schließlich am Rand des Bildes ein drittes Mal erkannt ( $l_{ATI2} = l_{Thres} + 2$ ). Unten: Abel-invertiertes Bild der Messung (Oben). Deutlich sind die einzelnen Winkelverteilungen zu erkennen, die im folgenden verwendet werden, um die ATI-Elektronen zu identifizieren.

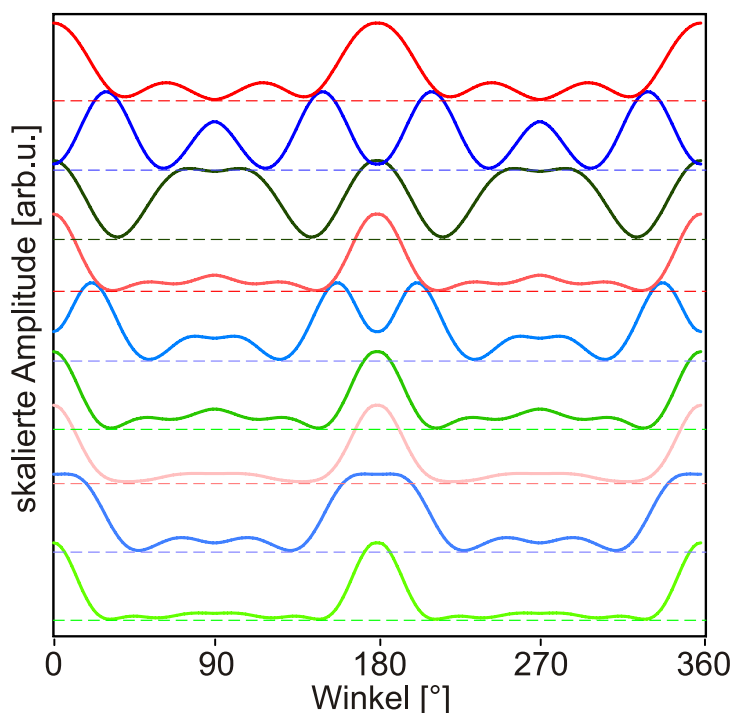
Zwei entscheidende Vorteile spielen hier eine Rolle: für die Kalibrierung mit Xenon wird das Edelgas in die Anlage eingelassen und der ns-Laser über eine Linse in das Spektrometer eingekoppelt. Diese Fokussierbedingung entspricht nur genähert der des fs-Lasers, der für die Experimente verwendet wird. Bei der Kalibrierung mit Kalium-Atomen wird hingegen der fs-Laser, der auch für die Experimente verwendet wird, zur Anregung und Ionisation verwendet. Ebenso sind die Kalium-Atome auch Teil des Experiments und ohnehin in dem abbildenden Spektrometer verfügbar. Eine vergleichbare Kalibrierung kann auch für die in diesem Experiment beschriebenen Natrium-Experimente verwendet werden, da die ATI's bei Ionisation mit ultrakurzen Laserpulsen oft eine Rolle spielen.



**Abbildung 2.10:** Polardarstellung der Abel-invertierten Photoelektronenverteilung aus Abbildung 2.9. Drei verschieden-farbige Linien bezeichnen die Radien der Threshold-Elektronen: Rot für den niederenergetischen AT, Blau für die Winkelverteilung mit einem Minimum bei  $0^\circ$  und  $180^\circ$  und Grün für den höher-energetischen AT. Mit den jeweils heller werdenden Farben werden die ATI-Strukturen bei dem 1. und 2. ATI markiert und deren Positionen gesichert. Die ganz rechts nur schwach erkennbaren 2. ATI's werden bei einer angepassten Skalierung eingestellt. Unten ist eine gemäß der Kalibrierung erzeugte Energieskala dargestellt.

Zur Kalibrierung wird der bandbreitenlimitierte Laserpuls in das Interaktions-

gebiet gebracht, regt Kalium-Atome an und ionisiert diese. Es entsteht das in Kapitel 6 untersuchte Autler-Townes (AT) Doublett. Bei den hier verwendeten hohen Intensitäten von etwa  $1,2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  taucht zwischen den beiden AT-Komponenten noch eine weitere Struktur auf, die im Kapitel 6 diskutiert wird. Diese kann hier auch verwendet werden, um die Kalibrierung durchzuführen. Die Idee hinter der Kalibrierung ist, dass die Elektronen, die bei der Ionisation von Kalium entstehen, während ihrer Ionisation noch ein weiteres Photon aus dem Laserpuls aufnehmen können, und dadurch eine höhere kinetische Energie bekommen, die sich von den Threshold-Elektronen um  $E = \hbar\omega$  der Zentralfrequenz unterscheidet. Dadurch hat man eine definierte Energiegröße im Elektronenspektrum, die verwendet werden kann, um das Elektronenspektrum zu kalibrieren.



**Abbildung 2.11:** Winkelverteilungen an den in Abbildung 2.10 farbig markierten Stellen. Jede Winkelverteilung wurde auf ihr Maximum skaliert, damit man die verschiedenen Winkelverteilungen vergleichen kann. Die Farben entsprechen den in Abbildung 2.10 - Von oben nach unten sind die Winkelverteilungen dargestellt, die in Abbildung 2.10 von links nach rechts dargestellt sind. Die Erhöhung der Knotenanzahl bei weiter unten dargestellten Winkelverteilungen entspricht der Anregung der ATI's durch mehr Photonen.



Diese Kalibrierung kann dann jedoch nur für eine Repellerspannung verwendet werden, da sich bei anderen Spannungen die Radien der Photoelektronen verändern. In den meisten Experimenten versucht man die aktive Fläche des MCP-Detektors gut auszuleuchten, um eine hohe Auflösung zu bekommen. Dabei ist es in der Regel nicht sinnvoll, immer die ATI-Peaks mit abzubilden. Daher wird die Kalibrierung für verschiedene Spannungen an der Repeller-Elektrode ausgeführt und mittels einer analytischen Formel (siehe Herleitung [11]) beschrieben, um auch bei Repeller-Spannungen messen zu können, bei denen keine ATI's zu erkennen sind. Um diese Gesamtkalibrierung durchführen zu können, ist es notwendig, bei verschiedenen Spannungen an der Repeller-Elektrode (und den entsprechenden Spannungen an der Extraktor-Elektrode) die von vergleichbaren Laserparametern erzeugten Threshold-Elektronen und die ATI-Elektronen zu messen. Mit den in Abschnitt 1.3.2 beschriebenen Algorithmus wird die Photoelektronenverteilung entfaltet (Abbildung 2.9) und in Polarkoordinaten dargestellt. Dies ist in Abbildung 2.10 gezeigt und zusätzlich sind in Abbildung 2.11 die verschiedenen Winkelverteilungen dargestellt. Aus der Polardarstellung können nun die Positionen der Threshold-Elektronen, wie auch die der ATI's bestimmt werden. Zur Kalibrierung wird folgende Relation verwendet:

$$E_{kin} = \alpha R^2 \quad \text{bzw.} \quad \alpha = \frac{E_{kin}}{R^2} \quad (2.1)$$

für absolute Energien  $E_{kin}$ . Da hier jedoch Energiedifferenzen betrachtet werden, gilt:

$$\Delta E_{kin} = E_{kin_1} - E_{kin_2} = \alpha (R_1^2 - R_2^2) \quad (2.2)$$

$$\Delta E_{kin} = \alpha (R_1^2 - R_2^2) \quad (2.3)$$

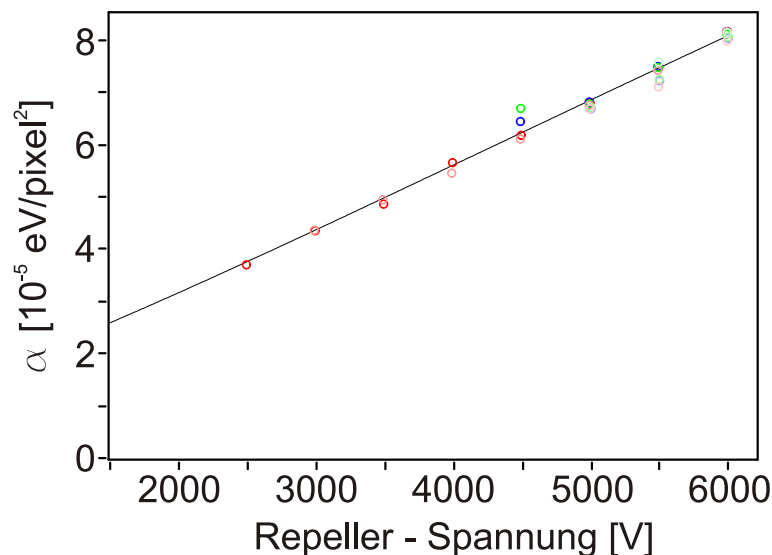
Was schließlich zu

$$\alpha = \frac{\Delta E_{kin}}{R_1^2 - R_2^2} \quad (2.4)$$

führt. Das  $\Delta E_{kin}$  war bei den Kalibrierungsmessungen 1,57 eV entsprechend der Energie der Zentralwellenlänge bei 790 nm. Für die verschiedenen gemessenen Repellerspannungen können nun die  $\alpha$ 's bestimmt werden, sofern die jeweiligen korrespondierenden ATI's noch auf dem Detektor abgebildet sind. Diese  $\alpha(U)$ -Abhängigkeit ist in Abbildung 2.12 aufgetragen. Das Modell, das für die Ausgleichsfunktion in Abbildung 2.12 verwendet wird, entspricht dem in [11] beschriebenen Modell. Folgende Parameter wurden bestimmt:

$$\alpha(U) = (5,29 \pm 0,44) \cdot 10^{-4} \frac{\text{eV}}{\text{Pixel}^2} \cdot \left( \frac{(2050 \pm 140)\text{V} + U_{Rep}}{(14600 \pm 1200)\text{V} + U_{Rep}} \right)^2 \quad (2.5)$$

Wie in Abbildung 2.12 zu sehen ist, ist das verwendete Modell in der Lage, den Proportionalitätsfaktor  $\alpha$  in Gleichung (2.1) für einen weiten Bereich zur Verfügung zu stellen.



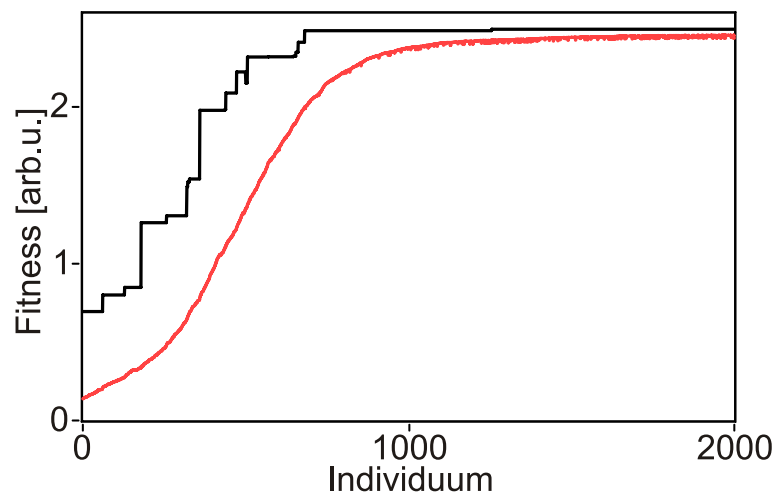
**Abbildung 2.12:** Abhängigkeit des Proportionalitätsfaktors  $\alpha(U)$  zwischen der kinetischen Energie und dem Quadrat des Radius von der eingestellten Repeller-Spannung. Die Farben der bestimmten  $\alpha$ 's ist der Abbildung 2.10 zu entnehmen. Die Ausgleichsfunktion (2.5) zeigt für die verwendeten ATI's eine gute analytische Näherung.

Die Unsicherheiten durch die Kalibrierung sind in Formel 2.5 dargestellt, wobei die Ungenauigkeiten beim Auffinden der Maximas nicht enthalten sind. Da die einzelnen Kalibrierpunkte sehr gut auf der Ausgleichsgeraden liegen, kann man davon ausgehen, dass die Ausgleichsgerade für den gezeigten Bereich gut anzuwenden ist. Hierbei sei aber auch erwähnt, dass diese Art der Kalibrierung nur für Repeller-Spannungen in den Bereichen gut funktioniert, wo sie durchgeführt wurde. Bei sehr geringen Repellerspannungen unter 1500 V gilt lediglich die Extrapolation dieser Kalibrierung. In diesen Bereichen sollte eine Kalibrierung mit Xenon zusätzlich durchgeführt werden. Für die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente wurden beide Methoden durchgeführt und flossen in die Kalibrierung ein. Die Energieauflösung wurde ebenfalls mit der Anregung von Xenon-Atomen durch einen ns-Laser bestimmt und liegt bei 52 meV bei 544 meV und 89 meV bei 1,84 eV.

## 2.4 Restphasenkompensation

Bei den Messungen, die in Kapitel 3.2 gezeigt werden, ist es notwendig, die Gruppengeschwindigkeitsdispersion, die durch im Strahl befindliche Optiken verursacht wird, vorzukompensieren (siehe [23]). Damit wird erreicht, dass der Laserpuls im Interaktionsgebiet bandbreitenlimitiert ist und die durchgeführten Experimente den am Phasenmodulator angelegten Phasenmasken zugeordnet werden können. Diese Vorkompensation kann durch unterschiedliche Methoden durchgeführt werden. Für die hier gezeigten Experimente wurde die nichtresonante Ionisation von Wasser-Molekülen im Restgas des Vakuums detektiert, die stark nichtlinear von der Intensität der Laserpulse abhängt. Bei konstanter Pulsenergie ist eine Erhöhung der Intensität nur über kürzere Laserpulse möglich. Der kürzestmögliche Puls hat eine konstante spektrale Phase und ist dann bandbreitenlimitiert. Für die Messung werden die an den Elektroden angelegten Spannungen statt auf negative Spannungen für die Messung von Elektronen auf positive Spannungen zur Messung von Ionen auf dem Detektor eingestellt. Über die Flugzeit kann man, wie in einem klassischen Flugzeitmassenspektrometer, auf den Quotienten  $m/z$  der Ionen schließen, da schwerere Ionen bei der gleichen Ladung längere Zeit benötigen, um den Detektor zu erreichen. Mit einer Messung mit den Isotopen von Xenon kann eine Kalibrierung der Flugzeiten durchgeführt werden (vergleiche [10]). Sind die Dispenser deaktiviert, so hat man nur Signal von den ionisierten Wasser-Molekülen bei einem  $m/z$  von 18 u. Dieses Signal kann nun in einem “Closed-Loop”-Experiment maximiert bzw. optimiert werden. Zur Optimierung wird ein evolutionärer selbstlernender Algorithmus verwendet, wie er in [33] beschrieben wird. Mit diesem Algorithmus werden die Koeffizienten einer Taylorentwicklung einer spektralen Phasenfunktion, wie sie in Kapitel 1.2 beschrieben wird, zur Generierung von Phasenfunktionen verwendet. Mit einer zufälligen Startpopulation von 32 Individuen wird begonnen, wobei jedes Individuum aus der Zentralfrequenz und einer Anzahl von Taylorkoeffizienten (hier bis zur 4. Ordnung) besteht, die als Gene bezeichnet werden. Höhere Ordnungen werden hier mitbenutzt, um eventuelle Dispersion von speziellen Optiken im Strahlengang kompensieren zu können. Für jedes einzelne Individuum und somit jede generierte Phasenmaske wird nun das Signal der ionisierten Wasser-Moleküle gemessen. Die Individuen werden dann gemäß ihrer Fitness, also dem gemessenen Signal, sortiert und stellen die Startpopulation dar. Von dieser Startpopulation ausgehend werden nun neue Individuen durch auf Evolution basierenden Verfahren erzeugt und gemessen. Hier besteht die Möglichkeit der Mutation, der Kreuzung oder anderer Verfahren (siehe [33]). Das neu gemessene Individuum wird gemäß seiner Fitness in die Population einsortiert. Das dann schlechteste Individuum fällt aus der Population heraus, damit wieder 32 Individuen die Population darstellen. Mit dieser Technik wird die Gesamtpo-

pulation mit jeder weiteren Messung optimiert und konvergiert zu einer optimalen Population, deren bestes Individuum das höchste Signal erzeugt. Dieses Signal stellt dann den Laserpuls mit der höchsten Intensität dar. Somit optimiert man die Pulsform indirekt über einen nichtlinearen Effekt. Ähnliche Optimierungen können in anderen Experimenten mit der “Second-Harmonic-Generation” (SHG) in nichtlinearen Kristallen durchgeführt werden [34,35]. Detektiert wird hier die Leistung der von phasenmodulierten 800 nm Laserpuls erzeugten 400 nm Laserstrahlung mit einem Leistungsmessgerät. Vorteil der Ionisation der Wasser-Moleküle ist die Restphasenkompensation direkt am Ort des Experiments. Der Verlauf einer evolutionären Optimierung ist in Abbildung 2.13 anhand einer simulierten Restphasenkompensation dargestellt. Eine Optimierung um einen Faktor vier zwischen dem besten Individuum der Startpopulation und dem besten Individuum der Endpopulation wird hier erreicht. Für die Evolution sind mit dem verwendeten evolutionären Algorithmus 2000 Individuen generiert worden, deren Fitness schon ab etwa 800 Individuen gegen den Endwert konvergierte. Da jede Evolution etwas anders verläuft, wurden in der Regel etwa 1000 Individuen generiert, um das beste Individuum zu erhalten und somit die beste Restphasenkompensation zu erreichen.



**Abbildung 2.13:** Simulation einer evolutionären Optimierung auf ein nichtlineares Signal zur Restphasenkompensation. Dargestellt ist der Verlauf der Evolution durch die für die einzelnen Individuen ermittelten Fitnesswerte. Die schwarze Kurve beschreibt die Fitness des jeweils besten Individuums, während in rot die mittlere Fitness der Gesamtpopulation dargestellt ist. Die rote Kurve konvergiert gegen die schwarze Kurve, die wiederum gegen einen Maximalwert konvergiert. Dieser Maximalwert entspricht dann der besten Kompensationsphase, da das stärkste nichtlineare Signal erzeugt und somit der kürzestmögliche Puls erreicht wurde.

Bei den in Kapitel 3.2 gezeigten Experimenten wurden drei Evolutionen durchgeführt, die zu leicht unterschiedlichen Phasenmasken führten. Während die dritte und vierte Ordnung vernachlässigbar klein waren, variierte die quadratische Phase  $\varphi_2$  um etwa  $\pm 150 \text{ fs}^2$ . Daher wird für die gezeigten Messungen ein Fehler für die Zuordnung der Messungen zu den  $\varphi_2$ -Werten von  $\pm 150 \text{ fs}^2$  abgeschätzt. Mehr Evolutionsmessungen sind aus praktischer Sicht nicht möglich gewesen, dennoch zeigen die regelmäßig durchgeführten Messungen, dass diese Art der Restphasenkompensation sehr zuverlässig funktioniert.



## Kapitel 3

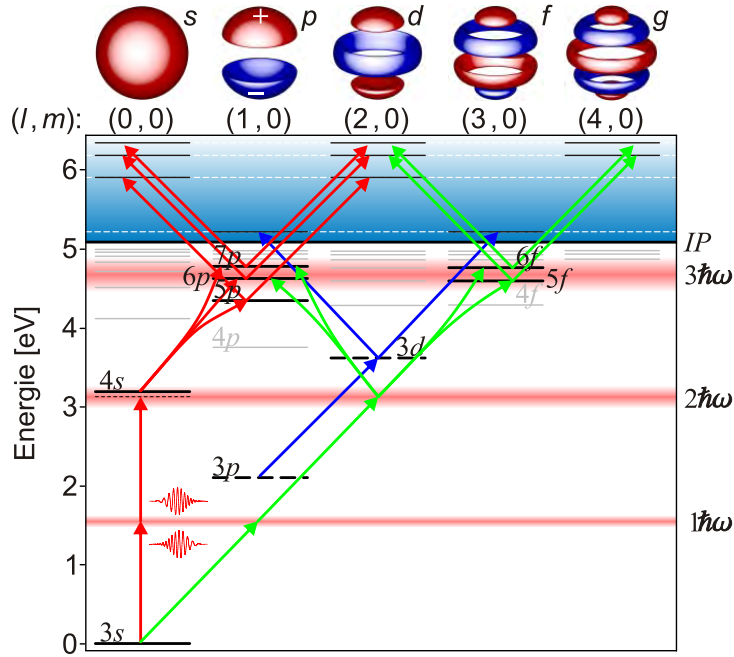
# Kohärente Starkfeld-Anregung von Natrium-Atomen

Die selektive Anregung ausgemachter Zustände durch geformte ultrakurze Laserpulse ist eines der Hauptziele der kohärenten Quantenkontrolle (siehe u.a. [36–45]). Sogenannte “Closed-Loop” - Optimierungsstrategien (siehe [39, 46–50]) sind extrem erfolgreich in der Kontrolle unterschiedlichster Quantensysteme, jedoch erlauben die Ergebnisse selten Einblicke in die physikalischen Prozesse bzw. Mechanismen, auf denen die erreichte Kontrolle basiert. Untersuchung von Modellsystemen andererseits mit einfach-geformten Laserpulsen stellen den Kernpunkt zum Verständnis elementarer Mechanismen der Quantenkontrolle dar, was die Basis zur Weiterentwicklung von Kontrollszenarien und -techniken darstellt. Dies trifft im Besonderen auf die Starkfeld-Quantenkontrolle zu (siehe [51–55]), die sich durch eine nicht-perturbative Interaktion des Quantensystems mit den intensiven ultrakurzen Laserpulsen auszeichnet. Die physikalischen Mechanismen der Starkfeld-Kontrolle beinhalten neben der Interferenz von verschiedenen Anregungspfaden auch adiabatische und nicht-adiabatische Zeitentwicklungen des Systems (siehe [56–59]), begleitet von der zeitlichen Manipulation der zugrundeliegenden Energielandschaft durch den dynamischen Stark-Effekt (Dynamic Stark Shift - DSS) in der Größenordnung von einigen hundert meV. Dadurch ist es möglich alternative Anregungspfade zu nutzen und auch andere Zustände zu erreichen, die im schwachen Feld nicht erreicht werden können. Aktuelle Arbeiten auf dem Gebiet der Starkfeld-Kontrolle an Modellsystemen zur Untersuchung der elementaren physikalischen Mechanismen zeigen, dass das Konzept der selektiven Bevölkering bekleideter Zustände (Selective Population Of Dressed States - SPODS) eine natürliche Beschreibung der Kontrolle der Dynamik mit ultrakurzen Laserpulsen darstellt. Als

Beispiel wurde gezeigt, dass durch SPODS ultraschnelles Schalten zwischen verschiedenen Endzuständen möglich ist und diese SPODS-Schalt Szenarien realisiert werden durch Phasen-Sprünge innerhalb des Pulses, kontinuierliche Veränderungen der Phase (z.B. Chirp) und Kombinationen aus beiden Varianten (siehe [51, 60–62]). In der Quantenkontrolle sind *gechirpte* Laserpulse ein oft verwendetes Werkzeug, da sie als Modell-Laserpulse dienen, deren Einhüllende kontrolliert werden kann und sich innerhalb des Pulses die instantane Frequenz verändert, also die unterschiedlichen Spektralkomponenten zu unterschiedlichen Zeiten im Puls kommen. Daher spielen sie die Hauptrolle in vielen Quantenkontroll Szenarien und sind ein immer wieder verwendetes Werkzeug, um neue Anregungs-Strategien in der Quantenkontrolle zu testen. Beispiele für die Quantenkontrolle mit *gechirpten* Laserpulsen zur Anregung und Ionisation von Mehr-Niveau-Systemen in den Alkalimetall-Atomen finden sich zum Beispiel in [54, 63–69].

In diesem Kapitel werden die Experimente zur *kohärenten* Starkfeld-Anregung von Natrium-Atomen mit Hilfe spektral geformter fs-Laserpulse beschrieben, die im Rahmen dieser Doktorarbeit durchgeführt wurden und in [1] publiziert sind. Das Natrium-Atom (Termschema siehe Abbildung 3.1) ist von hohem Interesse, da es wie alle Alkalimetall-Atome über ein Außenelektron verfügt und damit ein dem Wasserstoff ähnliches System darstellt. Atomares Natrium hat zwei Vorteile gegenüber dem atomaren Wasserstoff - zum einen ist atomares Natrium einfacher zu präparieren. Hierfür werden in dieser Arbeit Alkalimetall-Dispenser verwendet, die über eine elektrisch betriebene Redox-Reaktion Alkalimetall-Atome in der Gasphase zur Verfügung stellen (siehe auch Anhang E). Zum anderen haben Natrium-Atome den Vorteil, dass mittels zweier Photonen des verwendeten Lasersystems (etwa 800 nm Zentralwellenlänge) der Übergang  $4s \leftarrow 3s$  angeregt werden kann. Im weiteren kann eine Anregung zu den drei  $p$ -Zuständen  $5p$ ,  $6p$  und  $7p$  mit anschließender Ionisation stattfinden. Dieser primäre Anregungskanal ( $2+1+1$  - REMPI – Rot in Abbildung 3.1) ist der dominierende Pfad, der bei der Anregung verwendet wird. Allerdings sind weitere Anregungskanäle zu berücksichtigen. Alternativ ist eine Drei-Photonen Anregung zu den  $f$ -Zuständen  $5f$  und  $6f$  möglich ( $3+1$  - REMPI – Grün in Abbildung 3.1) und eine Ionisation aus dem nichtresonanten transient-besetzten *virtuellen*  $3p$ -Zustand mittels zweier Photonen über den  $3d$ -Zustand (*virtual* $+1+1$  - REMPI – Blau in Abbildung 3.1) möglich.





**Abbildung 3.1:** Vereinfachtes Niveauschema von Natrium-Atomen mit den wichtigsten Zuständen – der hier verwendete Übergang  $4s \leftarrow 3s$  und der resonante Ionisationsschritt sind zusätzlich eingezeichnet. Diese Anregung führt zu einer  $d$ -Welle, wie sie im oberen Bereich dreidimensional visualisiert ist. Ein alternativer Anregungsschritt ist die Anregung der  $f$ -Zustände mittels dreier Photonen und anschließender Ionisation, die auch zu  $g$ -Wellen führt. Die transiente Besetzung des  $3p$ -Zustands kann mit zwei Photonen resonanzunterstützt ionisiert werden, was zu einer  $f$ -Welle führt. Über dem Anregungsschema sind die jeweiligen auslaufenden Elektronenwellenpakete dargestellt. Die unterschiedlichen Farben illustrieren das Vorzeichen der verschiedenen Bereiche.

Alle diese unterschiedlichen Anregungspfade werden sowohl durch die Phase der verwendeten modulierten ultrakurzen Laserpulse als auch von den Niveau-Verschiebungen beeinflusst, die durch den dynamischen Stark-Effekt hervorgerufen werden. In diesem Kapitel soll gezeigt werden, wie mittels eines einzelnen Kontrollparameters (dem Chirpparameter  $\varphi_2$ ) die Anregung in die unterschiedlichen Zustände gesteuert werden kann. Da die nach der Ionisation auslaufenden Elektronenwellenpakete der Zustände bei unterschiedlichen Überschuss-Energien liegen und die Anregungskanäle in verschiedenen Drehimpuls-Quantenzahlen  $l$  münden, ist die Detektion von der kinetischen Energie der Photoelektronen einerseits als auch deren Winkelverteilung von Vorteil, um die Herkunft der gemessenen Photoelektronen bzw. die Natur der zugrundeliegenden Anregungskanäle aufzudecken. Ein abbildendes Photoelektronen-Spektrometer ist hier das optimale Werkzeug zur

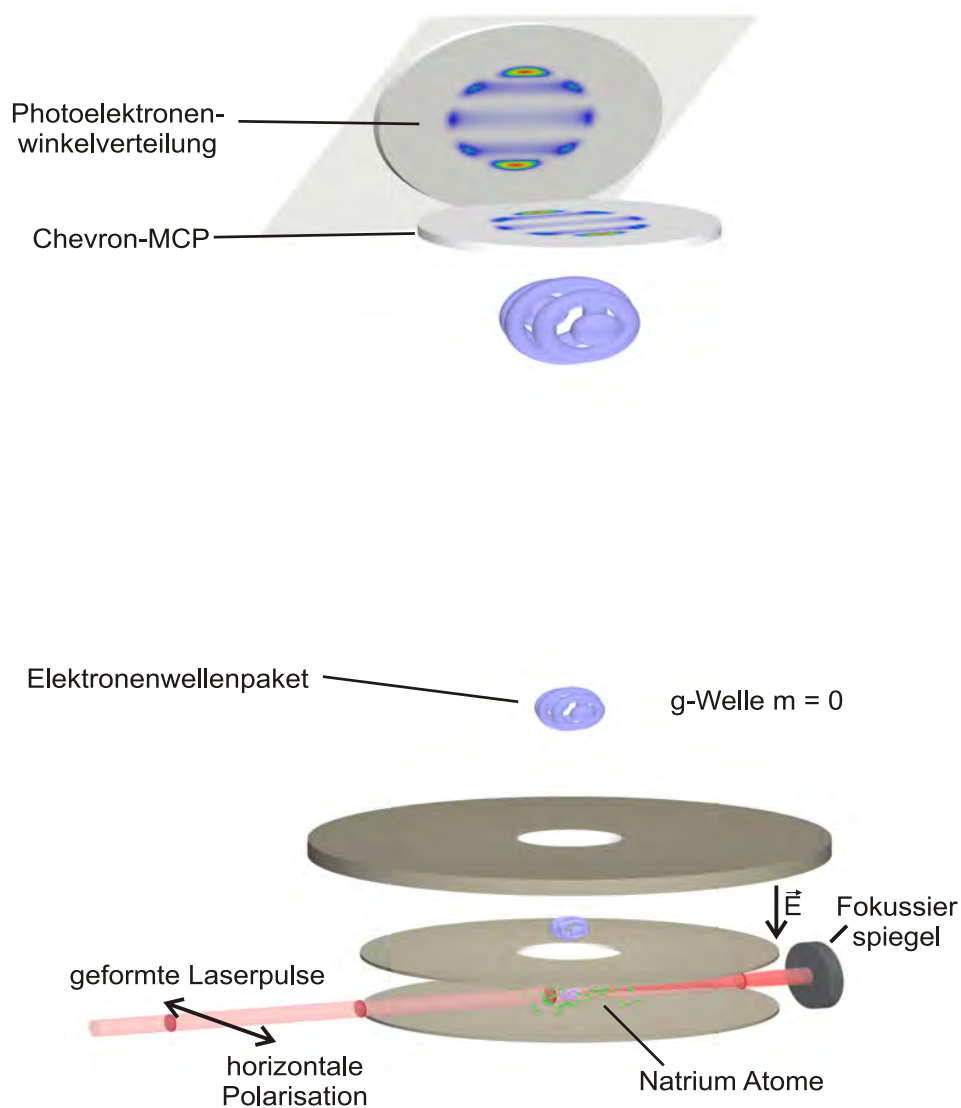
Analyse der Multiphotonen-Anregung und Ionisation von Natrium-Atomen. Im ersten Abschnitt wird die Durchführung der Messungen mit dem Abbildenden Photoelektronenspektrometer beschrieben. In dem folgenden Abschnitt werden die Messungen, die Rekonstruktion der dreidimensionalen Winkelverteilungen und die daraus gewonnenen Ergebnisse dargestellt. Mit Hilfe zweier unterschiedlicher Modelle werden die Ergebnisse diskutiert: Theoretisch wird ein im wesentlichen qualitatives Fünf-Niveau Modell für den dominanten Anregungskanal verwendet, um die physikalischen Mechanismen zu erklären. Ein Mehr-Niveau-System, welches auch die zuvor nicht berücksichtigten  $f$ -Zustände umfasst wird verwendet, um auch die Details der Photoelektronenspektren zu simulieren. Eine Zusammenfassung schließt das Kapitel ab.

### 3.1 Durchführung der Messung

Für die Messungen an Natrium (Setup siehe Abbildung 3.2) wurden Elektroden-Spannungen von 1500 V an der Extraktor-Elektrode und 1925 V an der Repeller-Elektrode verwendet. Diese Spannungen ermöglichen die Messung von Photoelektronen bis zu einer kinetischen Energie von circa 1,8 eV. Die Natrium-Dispenser (*SAES Getters*) werden mit einem elektrischen Strom von 4,5 A betrieben. Zum Fokussieren des Lasers wurde ein sphärischer Gold-beschichteter Spiegel mit einer Brennweite von  $f = 50$  mm (*Edmund Scientific*) verwendet. Die Laserpulse hatten Pulsenergien von  $12 \mu\text{J}$  bei einem Strahldurchmesser von circa 6 mm. Dies führte zu Spitzenintensitäten von  $10^{12} - 10^{13} \text{ W/cm}^2$  (Näherungsformel aus [29]). Die fs-Laserpulse wurden in dem Phasenmodulator (siehe Kapitel 2.1.4) mit einer quadratischen Phasenfunktion (Taylorpolynom zweiter Ordnung) moduliert:

$$\varphi(\omega) = \frac{\varphi_2}{2} (\omega - \omega_0)^2 \quad (3.1)$$

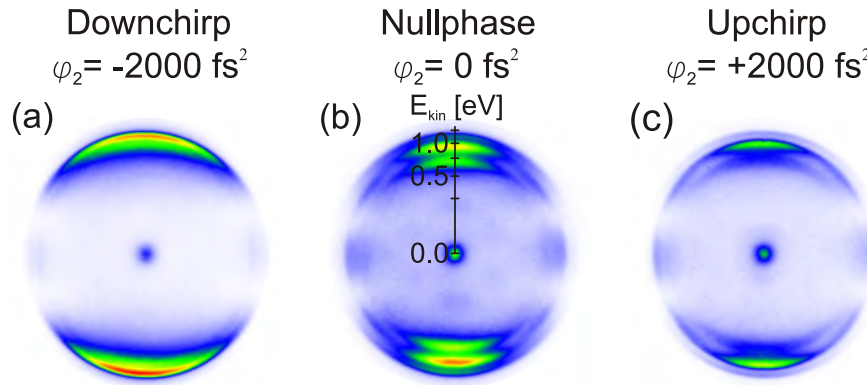
Das in dieser Formel auftauchende  $\omega_0$  war für die hier gezeigten Messungen und Simulationen  $2,38 \text{ fs}^{-1}$  (entspricht etwa 791,5 nm).



**Abbildung 3.2:** Schematischer Aufbau des Experiments - geformte Femtosekundenlaserpulse werden mit horizontaler Polarisation in die Vakuumanlage eingekoppelt und nach Durchlaufen des Interaktionsgebiets auf der gegenüberliegenden Seite mittels eines Fokussierspiegels in das Interaktionsgebiet zurück fokussiert. Die freigesetzten Photoelektronen werden durch ein inhomogenes elektrisches Feld in Richtung des Detektors beschleunigt (siehe auch Kapitel 1.3.1).

## 3.2 Experiment und Ergebnisse

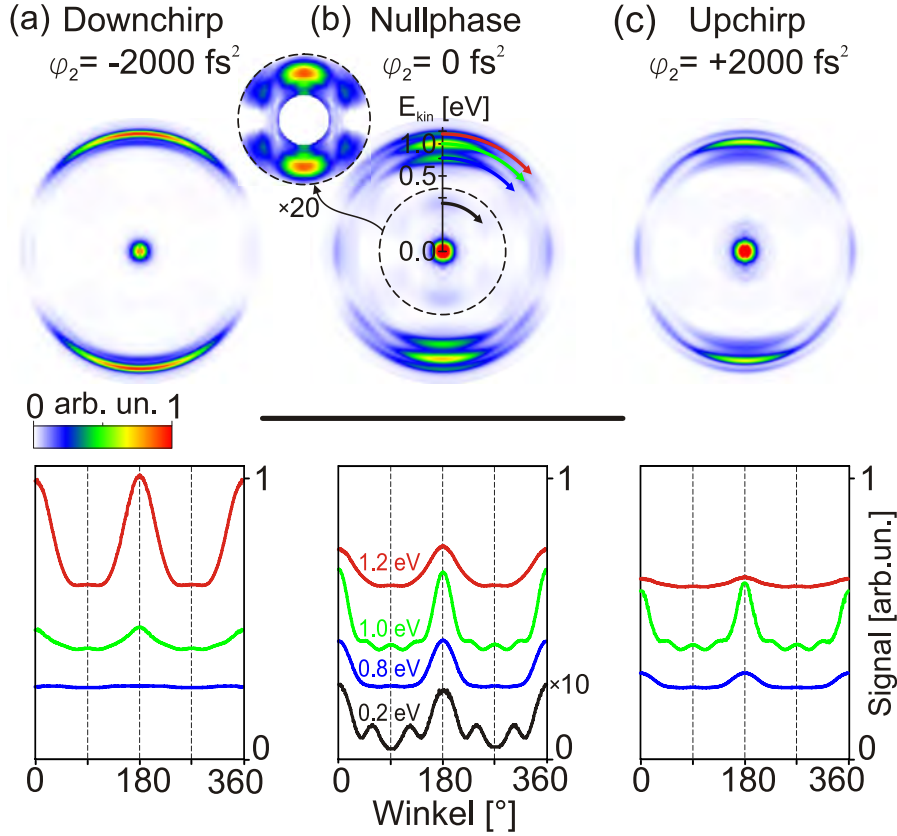
In diesem Abschnitt werden nun die durchgeführten Experimente an Natrium-Atomen mit gechirpten ultrakurzen Laserpulsen beschrieben.



**Abbildung 3.3:** Messergebnisse dreier winkelaufgelöster Photoelektronenspektren bei unterschiedlichen  $\varphi_2$ -Parametern (Pulsenergie  $12 \mu\text{J}$  entspricht  $10^{13} \text{ W/cm}^2$  - jedes Bild gleich skaliert). Links: Photoelektronen bei einem Downchirp von  $\varphi_2 = -2000 \text{ fs}^2$ . Mitte: Photoelektronen eines bandbreitenlimitierten Laserpuls (auch Nullphase genannt). Rechts: Photoelektronen bei einem Upchirp von  $\varphi_2 = +2000 \text{ fs}^2$  - deutliche Unterschiede bei den radialen und angularen Verteilungen der Photoelektronen von Upchirp und Downchirp sind erkennbar.

Bei den gemessenen winkelaufgelösten Photoelektronenspektren (siehe Abbildung 3.3) wird deutlich, dass bei dem bandbreitenlimitierten fs-Laserpulse (mitte) eine Struktur von drei Ringen entsteht, die zum Teil sehr komplexe Winkelverteilungen aufweisen. Mit einer Kalibrierung des abbildenden Spektrometers (siehe Kapitel 2.3) ist es möglich, den Radien der einzelnen Strukturen nach einem weiteren Schritt kinetische Energien zuzuordnen. Das Photoelektronenspektrum, das durch fs-Laserpulse mit Downchirp erzeugt wurde, zeigt viel Signal von Photoelektronen bei kinetischen Energien von etwa 1,2 eV, während das Photoelektronenspektrum, das durch fs-Laserpulse mit Upchirp erzeugt wurde, hauptsächlich Photoelektronen bei etwa 1,0 eV aufweist.

Um im weiteren eine bessere Aussage über die erzeugten Photoelektronen machen zu können, werden die zweidimensionalen Abbildungen der dreidimensionalen Photoelektronenverteilung mit dem in Kapitel 1.3.2 vorgestellten Algorithmus Abel-invertiert und die erhaltenen Daten weiter verarbeitet.



**Abbildung 3.4:** Mit dem pBasex-Algorithmus (siehe Kapitel 1.3.2) Abel-invertierte Photoelektronenspektren der in Abbildung 3.3 gezeigten Messungen und deren Winkelverteilungen bei 1,2 eV (Rot), 1,0 eV (Grün) und 0,8 eV (Blau) (vergleiche auch Anhang B - Seite 163). Bei Downchirp (a) sind hauptsächlich Photoelektronen bei 1,2 eV zu erkennen, die von der Winkelverteilung einer *d*-Welle (Rot) entsprechen. Bei Upchirp (c) sind Photoelektronen bei 0,8 eV mit einer *d*-Symmetrie (Blau) und bei 1,0 eV mit einer *g*-Symmetrie (Grün) zu erkennen. Bei Nullphase (b) sind Photoelektronen bei 0,8 eV und 1,2 eV mit einer *d*-Symmetrie (Blau, Rot) und bei 1,0 eV mit einer *g*-Symmetrie (Grün) sichtbar. In der oberen Reihe mitte ist der innere Bereich der Abel-invertierten Messung nochmals um einen Faktor 20 vergrößert dargestellt, in dem Signale mit einer *f*-Symmetrie bei 0,2 eV zu sehen sind. In der unteren Abbildung ist diese Winkelverteilung (schwarz) im Vergleich mit den anderen Signalen um einen Faktor 10 vergrößert worden.

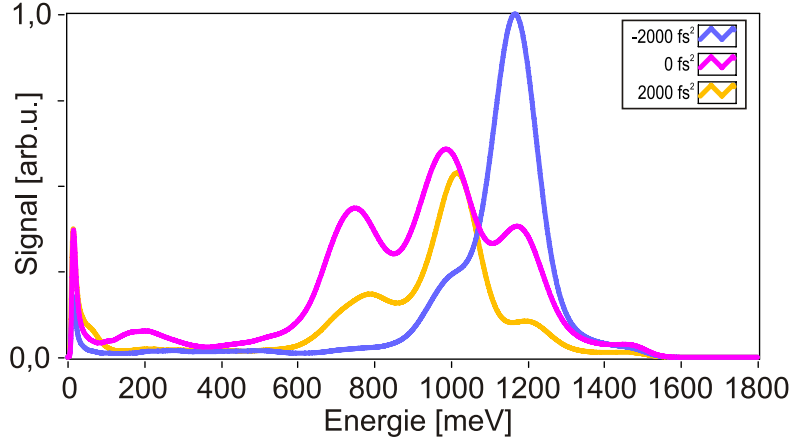
In Abbildung 3.4 kann man gut die unterschiedlichen Winkelverteilungen in den Photoelektronenspektren erkennen. Bei einem fs-Laserpuls mit Downchirp werden

hauptsächlich Photoelektronen in einem energetischen Kanal bei 1,2 eV erzeugt, die eine  $d$ -Symmetrie haben. Dies weist auf eine hauptsächliche Anregung des  $7p$ -Zustands hin. Die dabei ebenso möglichen Wellenpakete mit  $s$ -Symmetrie sind in diesen Messungen daran zu erkennen, dass die Maxima bei  $90^\circ$  bzw.  $270^\circ$  deutlich schwächer ausgeprägt sind, als bei einer reinen  $d$ -Welle (vergleiche Anhang B). Das Wellenpaket, dessen Betragsquadrat hier gemessen wird, hat, abhängig von der Winkelverteilung bei einigen Winkeln ein negatives Vorzeichen, wie es bei der  $d$ -Welle bei  $90^\circ$  bzw.  $270^\circ$  der Fall ist. Eine Welle mit  $s$ -Symmetrie ist dagegen ausschließlich positiv und verringert das Signal der  $d$ -Welle bei  $90^\circ$  bzw.  $270^\circ$  und verstärkt die Maxima bei  $0^\circ$  bzw.  $180^\circ$ . Daher sind die schwachen Maxima bei  $90^\circ$  bzw.  $270^\circ$  ein Zeichen dafür, dass eine Kombination von Wellen mit  $s$ - und  $d$ -Symmetrie generiert wurden.

Bei dem fs-Laserpuls mit Upchirp dagegen werden Photoelektronen bei 0,76 eV (im folgenden mit 0,8 eV bezeichnet) mit einer  $d$ -Symmetrie und bei 1,0 eV mit einer  $g$ -Symmetrie erzeugt. Die Elektronenwelle mit  $g$ -Symmetrie wird durch Anregung des  $5f$ -Zustands und deren Ionisation erzeugt, während die  $d$ -Welle bei 0,8 eV hauptsächlich durch Ionisation von dem  $5p$ -Zustand herrührt. Auch hier ist die Verringerung des Signals bei  $90^\circ$  bzw.  $270^\circ$  ein Zeichen dafür, dass zusätzlich eine Welle mit  $s$ -Symmetrie erzeugt wurde. Die Wellen bei 1,0 eV, die eine  $g$ -Symmetrie zeigen, ist die gleichzeitig auch mögliche Welle mit  $d$ -Symmetrie dadurch zu erkennen, dass die Minima bei  $36^\circ$  und  $144^\circ$  bzw.  $216^\circ$  und  $324^\circ$  im Vergleich zu den restlichen Minima leicht höher im Signal sind. Daneben ist auch die Verringerung des Signals bei  $90^\circ$  bzw.  $270^\circ$ , ebenso wie bei der Ionisation der  $p$ -Zustände, ein Hinweis auf die Beteiligung von  $d$ -Wellen in der Ionisation des  $5f$ -Zustands. Neben der Kombination einer Welle mit  $g$ -Symmetrie und  $d$ -Symmetrie von der Ionisation des  $5f$ -Zustands können zusätzlich noch Beiträge von der Ionisation des  $6p$ -Zustand im Signal vorhanden sein, die von den anderen Signalen nicht unterschieden werden können.

Im Fall der bandbreitenlimitierten Laserpulse werden Photoelektronen bei Energien von 0,8 eV, 1,0 eV und 1,2 eV erzeugt, wobei lediglich der energetische Kanal bei 1,0 eV deutliche Anzeichen einer  $g$ -Symmetrie zeigt. Dies weist ebenso wie bei Upchirp auf die Ionisation des  $5f$ -Zustands hin. Ionisation der  $p$ -Zustände  $5p$  und  $7p$  sind hier bei den jeweiligen Energien die bevorzugte Ionisation, während die Ionisation des  $6p$ -Zustands geringer ausfällt. Dies wird auch in den Simulationen in Kapitel 3.3.2 deutlich.

Zusätzlich ist bei niedrigen Photoelektronenenergien (etwa 0,2 eV) ein Signal mit einer deutlichen  $f$ -Symmetrie erkennbar, das auch in der Abel-invertierten Messung hervorgehoben wurde.



**Abbildung 3.5:** Energieaufgelöste Photoelektronenspektren der drei in Abbildung 3.4 gezeigten Messungen - die drei entscheidenden Kanäle bei etwa 0,8 eV, 1,0 eV und 1,2 eV sind zu erkennen. Hier wird wiederum deutlich, dass das orangefarbene und das blaue Photoelektronenspektrum energetisch unterschiedliche Kanäle adressiert und das violette Spektrum eine Überlagerung verschiedener Kanäle darstellt.

Diese Photoelektronen scheinen von einer Resonanz-unterstützten Ionisation der transienten Bevölkerung des  $3p$ -Zustands herzurühren, die über das resonante Zwischen-niveau  $3d$  ins Kontinuum bei niedrigen Photoelektronenenergien erfolgt. Die so erzeugten Photoelektronen haben eine deutliche  $f$ -Symmetrie mit Anteilen einer  $p$ -Welle und sind somit diesem Anregungskanal direkt zuzuordnen. Hier müssen allerdings noch mögliche alternative Ursachen untersucht werden, die der Grund für Photoelektronen bei diesen Energien sein können. Zum einen wäre eine Verunreinigung der Halterung durch vorher verwendete Kalium-Dispenser möglich, wobei die Anregung von Kalium Photoelektronen bei etwa dieser Energie erzeugen. Bei der Messung der Flugzeit-Massenspektren, die alternativ in der Anlage durchgeführt werden, war jedoch kein Signal bei Kalium ( $m/z \approx 39$  u) zu erkennen. Weitere Unsicherheiten dieser Photoelektronen bei etwa 0,2 eV wäre spontane Emission vom angeregten  $4s$ -Zustand in den  $3p$ . Da die Ausrichtung der  $f$ -Welle entlang der Laserpolarisation ist, kann spontane Emission nicht als Erklärung dienen. Eine weitere Erklärung wäre, dass bereits thermisch angeregte Atome im Strahl vorhanden sind, die dann lediglich resonant ionisiert werden. Dispenser werden bei hohen Temperaturen betrieben, da sie durch Glühen aktiviert werden, jedoch ist die Temperatur für eine signifikante Anregung des  $3p$ -Zustands hierbei nicht erreicht. Das Glühen der Dispenser erzeugt andererseits auch Photonen bei Wellenlängen, die resonant zum Übergang  $3p \leftarrow 3s$  sind. Eine solche Anregung kann jedoch auch durch die Orientierung der  $f$ -Welle ausgeschlossen werden. Somit ist eine weitere

Analyse dieser Signale notwendig, konnte aber in der vorliegenden Arbeit nicht durchgeführt werden. Es bietet sich hierfür an, ein Anregung-Abfrage Szenario zu verwenden, da dann direkt die durch die Anregung mit dem Laser erzeugten Photoelektronen von anders erzeugten Photoelektronen unterschieden werden können. Um die einzelnen Beiträge bei den verschiedenen kinetischen Energien miteinander vergleichen zu können, werden nun die Photoelektronen über alle Winkel aufsummiert. Man erhält so das energieaufgelöste Photoelektronen-Spektrum. Für die drei gezeigten Messungen wurde das in Abbildung 3.5 durchgeführt.

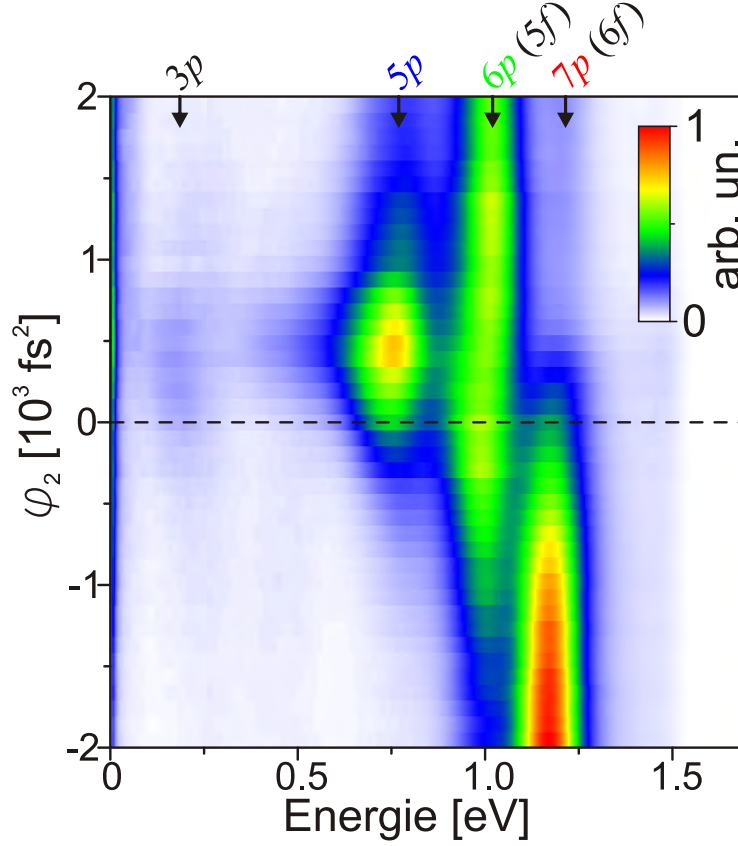
Diese Photoelektronenspektren zeigen bereits die vorhandene Asymmetrie, die hier vorliegt. Obwohl beide Laserpulse (Upchirp und Downchirp) gleiche Spitzenintensitäten haben, liegen unterschiedliche Pfade in der Anregung vor. Um sicherzustellen, dass die eingestellten Phasen auch direkt anlagen, wurde an jedem Messtag eine Restphasen-Kompensation durchgeführt (siehe Kapitel 2.4).

Um die Messergebnisse weiter zu unterstützen, wurde nachfolgend die Chirp-Abhängigkeit der Anregung und Ionisation systematisch vermessen. Dazu wurden für  $\varphi_2$  Werte in den Grenzen  $[-2000 \text{ fs}^2, 2000 \text{ fs}^2]$  im Abstand von  $100 \text{ fs}^2$  verwendet, um Photoelektronen-Spektren aufzunehmen.

Die gemessenen Photoelektronenspektren wurden, ebenso wie zuvor gezeigt, Abel-invertiert und über alle Winkel aufsummiert. Man erhält eine Reihe von Spektren, die nebeneinander gelegt als Landschaft die Chirp-Abhängigkeit der einzelnen Anregungspfade zeigen. Eine solche Landschaft ist in Abbildung 3.6 als Falschfarben-Plot dargestellt. Es dominieren drei energetische Kanäle, zwischen denen mittels des Chirp-Parameters  $\varphi_2$  geschaltet werden kann.

Bei  $\varphi_2 = -2000 \text{ fs}^2$  (Downchirp) wird dies deutlich, da hauptsächlich der energetische Kanal bei 1,2 eV ( $7p$ ) adressiert wird, wie man auch in Abbildung 3.4 schon gesehen hat. Von diesem Kanal werden bei sich verringerndem Chirp zunehmend Photoelektronen zum mittleren Kanal bei 1,0 eV ( $5f$  und  $6p$ ) verlagert. Bereits bei kleinen negativen  $\varphi_2$ -Werten werden auch Photoelektronen bei niedrigen Energien (0,2 eV und 0,8 eV) gemessen. Das Maximum der Photoelektronen vom  $5p$ -Zustand (0,8 eV) tritt erst bei geringem positivem Chirp  $\varphi_2 \approx +400 \text{ fs}^2$  auf. Bei etwa den gleichen Werten ist auch das Signal des transient besetzten  $3p$ -Zustands (0,2 eV) maximal. Der Kanal bei 1,2 eV ( $7p$  bzw.  $6f$ ) wird ab diesen Werten für  $\varphi_2$  nicht mehr angesteuert. Ab etwa  $\varphi_2 = +1000 \text{ fs}^2$  verringert sich das Signal im Kanal bei 0,8 eV ( $5p$ ) und der Kanal bei 1,0 eV ( $6p$  bzw.  $5f$ ) dominiert das Spektrum.





**Abbildung 3.6:** Falschfarben-Plot der 41 präparierten Einzelmessungen - horizontal: kinetische Energie der Elektronen in eV - vertikal: Chirp-Parameter  $\varphi_2$  variiert von  $-2000 \text{ fs}^2$  bis  $+2000 \text{ fs}^2$ . Der obere und untere Rand, sowie die Mittellinie markieren die drei zuvor gezeigten Photoelektronenspektren. Deutlich kann man die drei energetischen Kanäle bei etwa 0,8 eV, 1,0 eV und 1,2 eV erkennen, in denen Photoelektronen erzeugt werden, sowie die Asymmetrie zwischen Spektren am oberen und am unteren Bildrand. Hierbei entsprechen die Photoelektronen bei 0,8 eV energetisch der Ionisation des  $5p$ -Zustands, der Kanal bei 1,0 eV dem  $6p$ - bzw.  $5f$ -Zustands und der Kanal bei 1,2 eV dem  $7p$ - bzw.  $6f$ -Zustands. Im Bereich von etwa 0,2 eV erkennt man eine Struktur, die von der Winkelverteilung der Ionisation vom transient-besetzten  $3p$ -Zustand über den  $3d$ -Zustand zuzuordnen ist.

### 3.3 Diskussion

Um die in den Messungen auftretenden Starkfeld-Effekte zu verstehen, wurde in Kooperation mit der Arbeitsgruppe von Professor Vitanov<sup>1</sup> die Anregung von Natrium-Atomen in einem adiabatischen Bild analysiert. In einem weiteren Ansatz wurde das Natrium-Atom als 20-Niveau-System modelliert, um bei der Reproduktion der Messergebnisse den resonanten Zwischenniveaus nahe der Ionisationsschwelle Rechnung zu tragen.

#### 3.3.1 Fünf-Niveau Modell

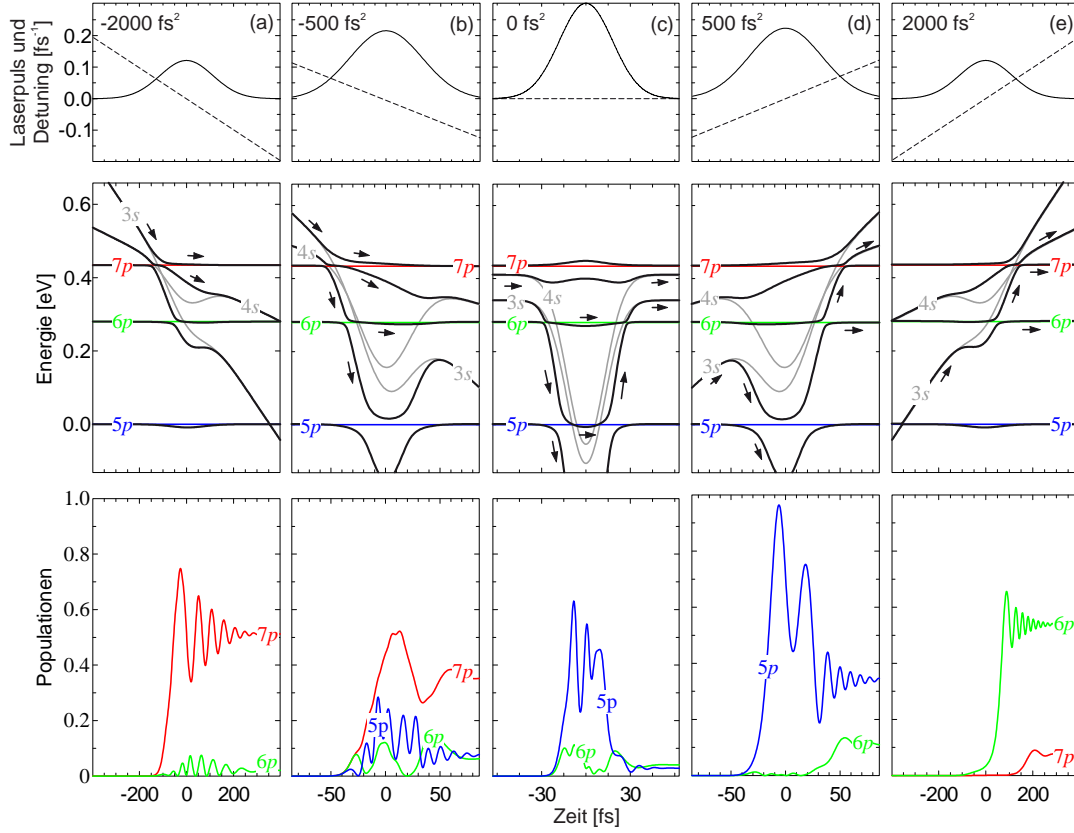
Die Anregung von Natrium-Atomen wird in diesem Abschnitt theoretisch mit Hilfe der fünf am stärksten involvierten Niveaus qualitativ beschrieben ( $3s$ ,  $4s$ ,  $5p$ ,  $6p$ ,  $7p$  - roter Anregungspfad in Abbildung 3.1). Der nichtresonante Zustand  $3p$  wird in diesem Modell adiabatisch eliminiert (siehe [57]).

Die hier auftretenden dynamischen Stark-Effekte und die durch die gechirpten Laserpulse auftretenden Niveau-Kreuzungen (engl. - "level-crossings") werden ausführlich diskutiert (siehe [1]). Ebenso werden die bei der Anregung auftretenden "bow-tie"-Kreuzungen des  $3s$  und  $4s$ -Zustands mit den drei  $p$ -Zuständen  $5p$ ,  $6p$  und  $7p$  präsentiert, die die Grundlage für die Erklärung der Dynamik darstellen. Eine Anregung der  $f$ -Zustände wird in diesem Modell vernachlässigt. Zur Beschreibung der Dynamik werden die Eigenenergien und die Populationen für fünf signifikante Chirp-Bereiche dargestellt: starker Downchirp ( $\varphi_2 = -2000 \text{ fs}^2$ ), mittlerer Downchirp ( $\varphi_2 = -500 \text{ fs}^2$ ), bandbreitenlimitiert ( $\varphi_2 = 0 \text{ fs}^2$ ), mittlerer Upchirp ( $\varphi_2 = +500 \text{ fs}^2$ ) sowie starker Upchirp ( $\varphi_2 = +2000 \text{ fs}^2$ ).

In Abbildung 3.7 sind die zeitabhängigen Eigenenergien der fünf betrachteten Zustände gezeigt, die einen Hinweis darauf geben, wie der Populationsverlauf innerhalb des Systems abläuft. Zusätzlich sind die Populationen der unterschiedlichen Zustände in der unteren Reihe dargestellt und die Einhüllende der Laserpulse in der oberen Reihe mit dem zeitabhängigen Detuning. Die Simulationen sind bei einer Spitzenintensität von  $3,7 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$  (entspricht einer Rabi-Frequenz von  $\Omega_0 = 0,3 \text{ fs}^{-1}$ ) und einer Pulsdauer von 30 fs des bandbreitenlimitierten Laserpulses gemacht worden.

---

<sup>1</sup>Theoretical Physics Division - Department of Physics, Sofia University, Bulgaria



**Abbildung 3.7:** Einhüllende der Laserpulse mit zeitabhängiger Momentanfrequenz (oben), Eigenenergien des Systems in Abhängigkeit des Laserpulsverlaufs (mitte) und Populationen der Zustände (unten) für fünf ausgewählte Werte des Chirp-Parameters  $\varphi_2$ . Die farbigen und grauen Linien in den Diagrammen der Eigenenergien stellen die bare-state-Energien dar, die in Relation zu den Zuständen  $3s$  und  $4s$  dargestellt sind und den effektiven Chirp enthalten, also sowohl die durch den AC-Stark-Effekt hervorgerufene Verschiebung der Zustände, als auch den Chirp durch die angelegte Phasenmaske. Die schwarzen Linien beschreiben die bekleideten Zustände mit den Pfeilen, die den Fluss der Population darstellen. Erklärungen siehe Text bzw. [1].

### Starker Downchirp

Im Bereich des starken Downchirps ( $\varphi_2 = -2000 \text{ fs}^2$  - linke Spalte) sind zu Beginn des Laserpulses die Übergänge  $7p \leftarrow 4s$  und  $4s \leftarrow 3s$  nahezu gleichzeitig in Resonanz mit dem Laserfeld. Dadurch wird eine sogenannte "bow-tie"-Kreuzung erzeugt, die zu einer effizienten Population des  $7p$ -Zustands und des  $4s$ -Zustands

führt, dagegen wird der  $3s$ -Zustand signifikant entvölkert. Im weiteren Verlauf des Laserpulses wird die Population lediglich zwischen den Zuständen  $7p$  und  $4s$  durch Rabi-Oszillationen mit sich verringernder Amplitude ausgetauscht [70]. Da der  $7p$ -Zustand stark populiert bleibt, ist der Beitrag der Photoelektronen vom  $7p$ -Zustand sehr stark. Die im  $3s$ -Zustand nach der Population der Zustände  $4s$  und  $7p$  verbliebene Population, die sehr gering ist, kann im Verlauf des Laserpulses bei einer weiteren Kreuzung in den  $6p$ -Zustand angeregt werden. Die erst spät im Laserpuls stattfindende Kreuzung zwischen  $3s$  und  $5p$ , sowie die Kreuzung zwischen  $4s$  und  $6p$  sind nur von geringer Bedeutung, da sie erst am Ende des Laserpulses stattfindet und daher nicht genügend Puls-Intensität zur effizienten Produktion von Photoelektronen verbleibt.

### Leichter Downchirp

Bei Laserpulsen mit geringem negativem Chirp ( $\varphi_2 = -500 \text{ fs}^2$  - zweite Spalte von links) erscheint eine frühe Kreuzung zwischen  $3s$ ,  $4s$  und  $7p$ , die zu einer Bevölkering des  $4s$  und  $7p$ -Zustands führt. Die Population im  $7p$ -Zustand trägt im weiteren Verlauf des Laserpulses fortlaufend zur Erzeugung der Photoelektronen bei, während die Population im  $4s$ -Zustand zu einem späteren Zeitpunkt teilweise verwendet wird, um den  $6p$ -Zustand zu besetzen. Die verbleibende Population im  $4s$ -Zustand populiert transient den  $5p$ -Zustand, der gegen Ende des Laserpulses wiederum den Grundzustand  $3s$  populiert. Die Photoelektronen vom  $6p$  und  $7p$ -Zustand dominieren bei diesem Chirpparameter die Photoelektronen.

### Bandbreitenlimitierte Laserpulse

Bei bandbreitenlimitierten Laserpulsen ( $\varphi_2 = 0 \text{ fs}^2$  - mittlere Spalte) ist die zeitliche Entwicklung der Population der unterschiedlichen Zustände durch den dynamischen Stark-Effekt dominiert. Dieser ist symmetrisch für beide Laserpuls-Flanken. Durch die ersten beiden Kreuzungen von  $3s$  mit  $5p$  und  $3s$  mit  $6p$  werden diese Zustände hauptsächlich populiert und tragen während des Laserpulses zu den Photoelektronenspektren bei. Am Ende des Laserpulses findet weiterer Populationstransfer statt, der für die Photoelektronenspektren keinen weiteren Effekt hat. Der Zustand  $7p$  bleibt während der gesamten Dynamik nicht-resonant, wird nicht bevölkert und trägt somit auch nicht zu den Photoelektronenspektren bei.

### Leichter Upchirp

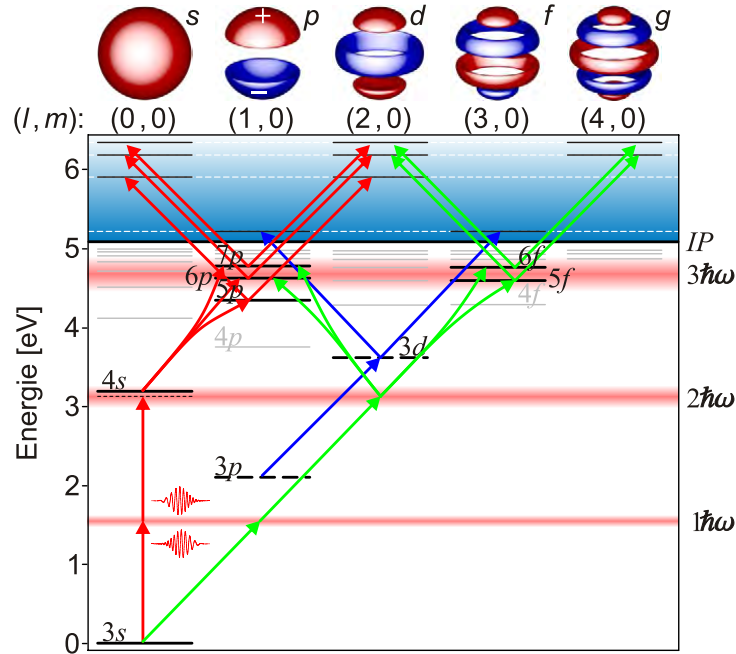
Bei geringem positivem Chirp ( $\varphi_2 = +500 \text{ fs}^2$  - vierte Spalte von links) nähern sich die Zustände  $3s$  und  $5p$  während des Maximums der Laserintensität stark an, was zu Rabi-Oszillationen zwischen diesen beiden Zuständen führt. Die daraus erzeugten Photoelektronen dominieren die Ionisation neben der Bevölkerung des Zustands  $6p$  vom Zustand  $3s$  zu späteren Zeiten im Laserpuls, der ebenso zu den Photoelektronenspektren beiträgt. In diesem Fall ist die Population des Zustands  $5p$  maximal bei der Anregung des Systems, da sich ein Gleichgewicht zwischen dynamischen Stark-Effekt und Chirp im Laserpuls ausbildet. Der Zustand  $7p$  wird wiederum nicht bzw. sehr spät im Laserpuls bevölkert und trägt daher nicht zu den Photoelektronenspektren bei.

### Starker Upchirp

Im Bereich starken Upchirps ( $\varphi_2 = +2000 \text{ fs}^2$  - rechte Spalte) wird der Zustand  $6p$  nahe des Maximums der Laserintensität bevölkert und trägt hauptsächlich zum Photoelektronenspektrum bei. Daneben wird auch der  $4s$ -Zustand bevölkert, so dass in der spät im Laserpuls stattfindenden "bow-tie"-Kreuzung keine signifikante Population im  $3s$ -Zustand verblieben ist, um den  $7p$ -Zustand zu bevölkern und auch kaum Laserintensität, um Photoelektronen zu erzeugen. Daher dominiert hier deutlich die Erzeugung von Photoelektronen vom  $6p$ -Zustand. Der  $5p$ -Zustand bleibt während der gesamten Dynamik außerhalb der Resonanz und wird somit nicht populierte.

Insgesamt kann dieses Modell sehr gut die Dynamik im Natrium-Atom erklären, bei dem man einerseits den Chirp des Laserpulses benutzt, um verschiedene Übergänge anzuregen, andererseits spielt aber auch der dynamische Stark-Effekt eine entscheidende Rolle, um den  $5p$ -Zustand überhaupt bevölkern zu können. Um die Details der Photoelektronenspektren bei den unterschiedlichen Chirpparametern zu rekonstruieren wird im folgenden Abschnitt mit der numerischen Lösung der Schrödingergleichung (siehe Kapitel 1.4) versucht, die Photoelektronenspektren für die gemessenen Chirpparameter zu simulieren.

### 3.3.2 Mehr-Niveau System

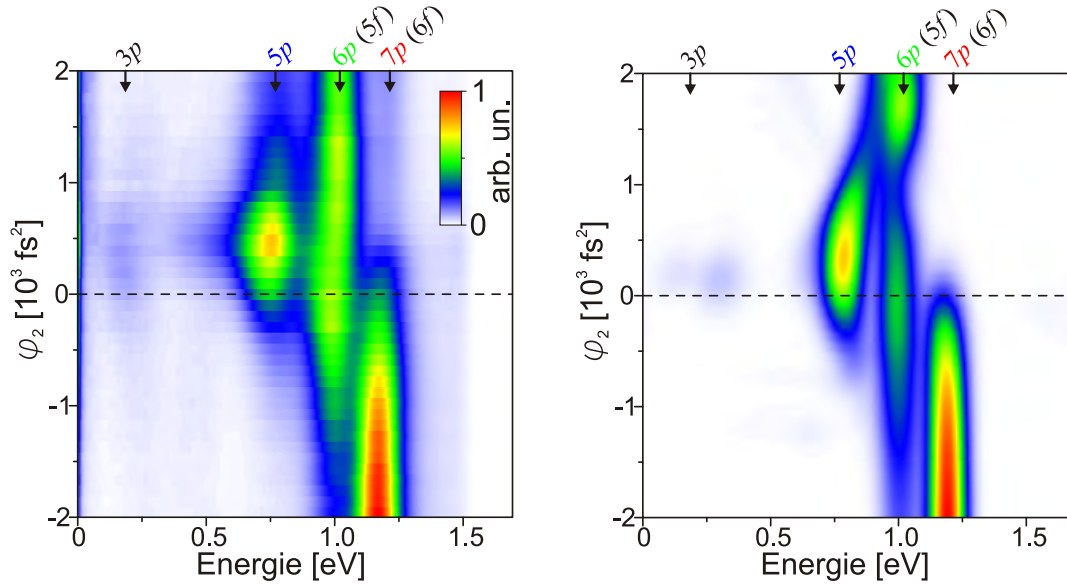


**Abbildung 3.8:** Mehr-Niveau-System des Natrium-Atoms zur Simulation der Messergebnisse. Schwarze Zustände sind im Mehr-Niveau System enthalten, graue Zustände tragen nicht zur Dynamik in den Simulationen bei und wurden daher nicht berücksichtigt. Die spektrale Breite der Mehrphotonen-Anregung ist durch rote Balken in entsprechender Dicke illustriert. Zusätzlich wurden die entscheidenden Pfade der Population eingezeichnet sowie die im Kontinuum liegenden Projektionen der elektronischen Zustände nahe der Schwelle und deren Winkelverteilung. Die unterschiedlichen Farben der Winkelverteilungen illustrieren das Vorzeichen der verschiedenen Bereiche.

Das im vorherigen Kapitel zur Erklärung herangezogene Fünf-Niveau-Schema kann die verschiedenen Mechanismen, die in der Anregung von Natrium-Atomen im starken Feld eine Rolle spielen, sehr gut erläutern. Für die detaillierten Photoelektronenspektren werden im Folgenden auf Basis der in Kapitel 1.4 vorgestellten numerischen Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung erzeugte Photoelektronenspektren simuliert. Als System wurde das Natrium-Atom mit den in Abbildung 3.8 schwarz-markierten Zuständen verwendet, die die für das verwendete Lasersystem wichtigen Zustände beschreiben. Hierbei wurde besonders auf den Einfluss der  $f$ -Zustände Wert gelegt, der in den zuvor beschriebenen Methoden nicht beachtet wurde. Da sich in den Messungen mit dem Abbildenden

Spektrometer Hinweise auf eine Bevölkung der  $f$ -Zustände zeigte, wird der Einfluß der  $f$ -Zustände besonders untersucht. Die verwendeten Übergangsmomente und die Daten der Zustände wurden von der NIST-Datenbank übernommen [71]. Eine Tabelle mit den Übergangsmomenten und den Energien der Zustände ist in Anhang D dargestellt.

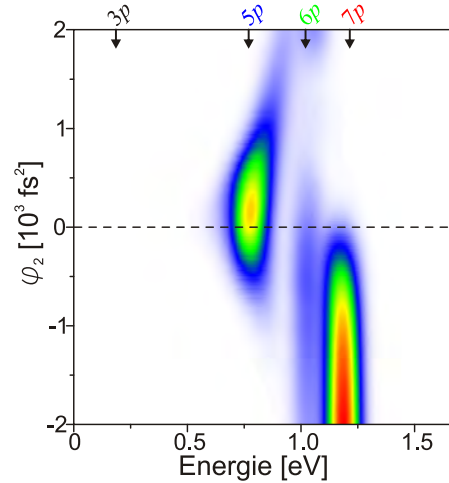
Für die hier verwendete Kurzzeit-Propagator-Methode wurden gauss-förmige Laserpulse mit einer FWHM von 48 fs bei einer Zentralwellenlänge von 794 nm verwendet. Das Ergebnis ist in Abbildung 3.9 zu sehen.



**Abbildung 3.9:** Vergleich zwischen Messung und Theorie - links: nochmals Abbildung 3.6 - rechts: Simulation der Photoelektronenspektren mittels eines 20-Niveau-Systems. Die entscheidenden Details werden durch die Simulation reproduziert.

Man sieht die sehr gute Übereinstimmung der Simulation mit den gemessenen Photoelektronenspektren. Die unterschiedlichen Kanäle sind gut voneinander zu unterscheiden. Die Photoelektronenspektren bei Downchirp erscheinen im Vergleich zu den gemessenen Spektren vergleichsweise schmal zu sein, was abhängig von der Auflösung des abbildenden Spektrometers ist. Für diese Simulationen wurde eine Auflösung von 50 meV angenommen, was der Auflösung des Abbildenden Spektrometers entspricht. Das Maximum der Photoelektronen vom  $5p$ -Zustand erscheint etwas näher bei dem bandbreitenlimitierten Laserpuls ( $\varphi_2 \approx 300 \text{ fs}^2$ ). Dies erklärt sich durch die Restphasenkompensation (siehe Kapitel 2.4), die einen Fehler von weniger als  $\pm 150 \text{ fs}^2$  für  $\varphi_2$  liefert.

Um den Einfluss der  $f$ -Zustände in der Anregung im weiteren zu beleuchten, wird das System nochmals simuliert, mit dem Unterschied, dass nun keine  $f$ -Zustände beteiligt sind. Die so simulierten Photoelektronenspektren sind in Abbildung 3.10 dargestellt. Hier wird deutlich, dass Unterschiede primär im energetischen Kanal bei 1,0 eV auftreten, der in der Simulation ohne die  $f$ -Zustände nur eine sehr geringe Anzahl von Photoelektronen zeigt. Dies geht direkt einher mit der Beobachtung in den Messungen (siehe Abbildung 3.4), bei denen auch der energetische Kanal bei 1,0 eV hauptsächlich eine  $g$ -Symmetrie zeigte, die auf eine Anregung der  $f$ -Zustände hindeutet. Dies ist im ersten Moment ungewöhnlich, da man erwartet, dass der gesamte Populationstransfer über die Zwei-Photonen Anregung des  $4s$ -Zustand vonstatten geht. In der Mehr-Niveau Simulation wird jedoch deutlich, dass auch die Drei-Photonen Anregung der  $f$ -Zustände wichtig ist. Relativiert wird diese Aussage dadurch, dass in der verwendeten Simulation bei der Ionisation keine Amplituden mitgenommen wurden.



**Abbildung 3.10:** Simulation des gleichen Systems wie in Abbildung 3.9, jedoch unter Vernachlässigung der Anregung der  $f$ -Zustände. Deutlich ist zu erkennen, dass sich die Photoelektronen hauptsächlich im mittleren energetischen Kanal bei 1,0 eV unterscheiden.

### 3.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde gezeigt, dass die Zwei-Photonen-Resonanz im Natrium ein interessantes System für verschiedene Starkfeld-Mechanismen der Anregung durch einfach phasenmodulierte ultrakurze 800 nm Laserpulse darstellt. Mittels eines einzelnen Parameters - hier der Chirpparameter  $\varphi_2$  - kann man effizienten Populati-



onstransfer zwischen den Übergängen  $6p \leftarrow \leftarrow \leftarrow 3s$ ,  $7p \leftarrow \leftarrow \leftarrow 3s$  und  $5p \leftarrow \leftarrow \leftarrow 3s$  hin und herschalten. Der dabei genutzte Mechanismus beruht auf einem Wechselspiel von Chirp auf der einen Seite und dem dynamischen Stark-Effekt auf der anderen Seite. Als wichtig erwies sich hier das leichte Detuning der Laserzentralfrequenz von dem Zwei-Photonen Übergang und die verwendete Laserintensität, die die auftretenden Starkfeld-Effekte erst möglich macht. Der Ablauf einer Messung der Photoelektronen-Winkelverteilungen mit anschließender Inversion wurde dargestellt, ebenso wie die Berechnung der reinen Photoelektronenenergiespektren und der Analyse der winkelaufgelösten Daten. Die erzeugte Landschaft von Photoelektronenspektren verschiedener Chirpparameter wurde verwendet, um die auftretenden Effekte von experimenteller Seite zu visualisieren. Verschiedene Modelle wurden herangezogen, um die Spektren zu erklären. Ein einfaches Fünf-Niveau Modell bildete eine Basis für ein analytische Modell, das in Zusammenarbeit mit der Arbeitsgruppe von Professor Nikolay N. Vitanov entwickelt und publiziert wurde [1]. Als Abschluss wurde ein 20-Niveau-Modell verwendet, um auch die Details der Landschaft zu rekonstruieren. Hierbei wurde der Aspekt der  $f$ -Zustände und deren Rolle in der Anregung untersucht. Auch hier gelang eine Übereinstimmung der Messungen und der Theorie, die die Verwendung speziell eines abbildenden Spektrometers in den Vordergrund rückt, da nur mit dem abbildenden Spektrometer die sich zeigenden Elektronenwellenpakete mit  $g$ -Symmetrie zu erkennen waren. Mit einem Time-of-Flight Elektronenspektrometer wären diese Strukturen nicht erkennbar gewesen. Daher stellt dieses Detail eine zusätzliche Information dar, die durch die Verwendung eines abbildenden Spektrometer gewonnen wurde. Ein weiterer für zukünftige Untersuchungen interessanter Aspekt, ist die Messung von Photoelektronen, die aus der resonanz-unterstützten Ionisation eines virtuellen Zustands, dessen Rolle hier der nicht-resonante Zustand  $3p$  übernahm, stammen. Der  $3p$ -Zustand ist während der Interaktion des Atoms mit dem Laserpuls transient besetzt und kann durch die hohe Intensität auch direkt ionisiert werden. Dies führt zu einer  $f$ -Symmetrie der Photoelektronen bei einer Energie von etwa 0,2 eV. In den Messungen konnten Photoelektronen bei dieser Energie mit einer  $f$ -Symmetrie auch nachgewiesen werden. Diese Anregung eines virtuellen Zustands mit anschließender Ionisation ist in der Forschungsgemeinschaft noch umstritten und sollte mit weiteren Messungen untersucht werden. Hierbei gilt es auszuschließen, dass Fremd-Atome wie zum Beispiel Kalium in kleinsten Mengen anwesend waren und dass der  $3p$ -Zustand in irgendeiner anderen Art und Weise besetzt wurde. Ein Ansatz ist hier die Verwendung zirkular polarisierten Lichtes, bei dem der Zwei-Photonen Übergang  $4s \leftarrow \leftarrow 3s$  aufgrund der Auswahlregeln unterdrückt wird und neben der Drei-Photonen Anregung der  $f$ -Zustände sollte nur noch die Anregung des transienten Zustands eine Rolle spielen.



# Kapitel 4

## Erweiterung der Grundlagen

In diesem Kapitel werden die weiterführenden Grundlagen dargestellt, die als Ausgangsbasis dienen, um die in Kapitel 5 und 6 gezeigten Methoden und Experimente zu verstehen. In einem ersten Abschnitt wird die Formung der Polarisation ultrakurzer Laserpulse beschrieben, die entweder durch Verwendung von Wellenplatten für alle Spektralanteile gleich durchgeführt werden oder durch Verwendung eines spektralen Polarisationsformers für die verschiedenen Spektralanteile unterschiedlich erfolgen kann. Für die durch die Wellenplatten modifizierten Laserpulse werden entsprechende Vorexperimente am Kalium-Atom gezeigt. Anschließend wird in einem Abschnitt beschrieben, wie man dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilungen von der Anregung und Ionisation von Kalium numerisch berechnen kann.

### 4.1 Formung der Polarisation

In diesem Abschnitt wird die Formung der Polarisation von ultrakurzen Laserpulsen beschrieben, wie sie für die verschiedenen Experimente von Bedeutung ist. Zum einen wird die Anwendung von  $\lambda/2$ - und  $\lambda/4$ -Wellenplatten auf beliebige elektrische Felder und den jeweils gemessenen Photoelektronenverteilungen dargelegt. Die  $\lambda/2$ -Wellenplatte dreht hierbei das elektrische Feld und damit die dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung, während die  $\lambda/4$ -Wellenplatte die Elliptizität des elektrischen Feldes verändert. In einem weiteren Kapitel wird die spektrale Polarisationsformung als Erweiterung der spektralen Phasenmodulation diskutiert und Beispiele beschrieben.

### 4.1.1 Wellenplatten

#### Lambda/2-Wellenplatte

Der in Kapitel 5.3 beschriebene Tomografie-Algorithmus basiert auf der Idee, dass das Photoelektronenwellenpaket innerhalb des Abbildenden Spektrometers um die Laser-Propagationsrichtung (hier  $z$ -Achse) gedreht werden kann. Hier wird nun gezeigt, dass eine  $\lambda/2$ -Platte nicht nur linear polarisiertes Licht um die Propagationsrichtung drehen kann, sondern auch frei modulierte elektrische Felder  $\mathcal{E}_x(t)$  und  $\mathcal{E}_y(t)$ , die den zeitabhängigen Jones-Vektor

$$\begin{pmatrix} \mathcal{E}_x(t) \\ \mathcal{E}_y(t) \end{pmatrix} \quad (4.1)$$

besitzen. Hierfür wendet man eine Rotationsmatrix  $\mathcal{R}(\theta)$  (vgl. Gl. 4.3) auf die elektrischen Felder an, wobei der Winkel  $\theta$ , der verwendet wird, dem Winkel der schnellen Kristallachse zur  $x$ -Achse entspricht. Dann wird die Jones-Matrix für die  $\lambda/2$ -Platte (siehe [6]) angewendet und schließlich das elektrische Feld wieder in das Spektrometer-Koordinatensystem zurück gedreht

$$\mathcal{R}(\theta/2) \cdot \mathcal{J}_{\lambda/2} \cdot \mathcal{R}^{-1}(\theta/2) \cdot \begin{pmatrix} \mathcal{E}_x(t) \\ \mathcal{E}_y(t) \end{pmatrix} = \mathcal{R}(\theta) \cdot \begin{pmatrix} \mathcal{E}_x(t) \\ -\mathcal{E}_y(t) \end{pmatrix}, \quad (4.2)$$

Hierbei ist

$$\mathcal{R}(\theta) = \begin{pmatrix} \cos(\theta) & -\sin(\theta) \\ \sin(\theta) & \cos(\theta) \end{pmatrix} \quad (4.3)$$

die Rotationsmatrix für das elektrische Feld und

$$\mathcal{J}_{\lambda/2} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & -1 \end{pmatrix} \quad (4.4)$$

ist die Jones-Matrix für die  $\lambda/2$ -Platte. Wie man leicht erkennt, sind die modulierten Felder  $\mathcal{E}_x(t)$  und  $\mathcal{E}_y(t)$  bis auf ein negatives Vorzeichen bei  $\mathcal{E}_y(t)$  komplett konserviert und um den Winkel  $\theta$  um die  $z$ -Achse gedreht worden, da für den Winkel der schnellen Achse der  $\lambda/2$ -Platte zur Laserpolarisation  $\theta/2$  gewählt wurde. Das Vorzeichen sorgt lediglich für ein Spiegeln des elektrischen Feldes an der  $x$ - $z$ -Ebene, was in den Messungen beachtet werden muss. Durch Verwendung einer weiteren  $\lambda/2$ -Platte kann dieser Effekt kompensiert werden. Somit bietet sich diese Methode generell an, um polarisationsgeformte Laserpulse im Raum zu drehen.

### Lambda/4-Wellenplatte

Zusätzlich ist es von Interesse, elliptisch polarisierte Laserpulse zu generieren, die zum Beispiel durch eine  $\lambda/4$ -Platte erzeugt werden können. Die Berechnung der elektrischen Felder gelingt analog wie bei der  $\lambda/2$ -Platte.

$$\mathcal{R}(\alpha/2) \cdot \mathcal{J}_{\lambda/4} \cdot \mathcal{R}^{-1}(\alpha/2) \cdot \begin{pmatrix} \mathcal{E}_x(t) \\ \mathcal{E}_y(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} (1-i)\mathcal{E}_y(t) \cos(\alpha) \sin(\alpha) + \mathcal{E}_x(t)(\cos^2(\alpha) + i \cdot \sin^2(\alpha)) \\ (1-i)\mathcal{E}_x(t) \cos(\alpha) \sin(\alpha) + \mathcal{E}_y(t)(i \cdot \cos^2(\alpha) + \sin^2(\alpha)) \end{pmatrix} \quad (4.5)$$

mit der Jones-Matrix  $\mathcal{J}_{\lambda/4}$  für eine  $\lambda/4$ -Platte

$$\mathcal{J}_{\lambda/4} = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ 0 & i \end{pmatrix} \quad (4.6)$$

Der entstehende Ausdruck zeigt hier deutlich, dass der Polarisationszustand des entstehenden Laserpulses von den einzelnen elektrischen Feldern und dem Winkel in komplexer Art abhängt. Praktisch bedeutet dies, dass man eine Elliptizität einstellen kann, deren Hauptachsen auf den beiden Kristallachse liegen und deren Amplituden man durch Rotation der Wellenplatte manipuliert.

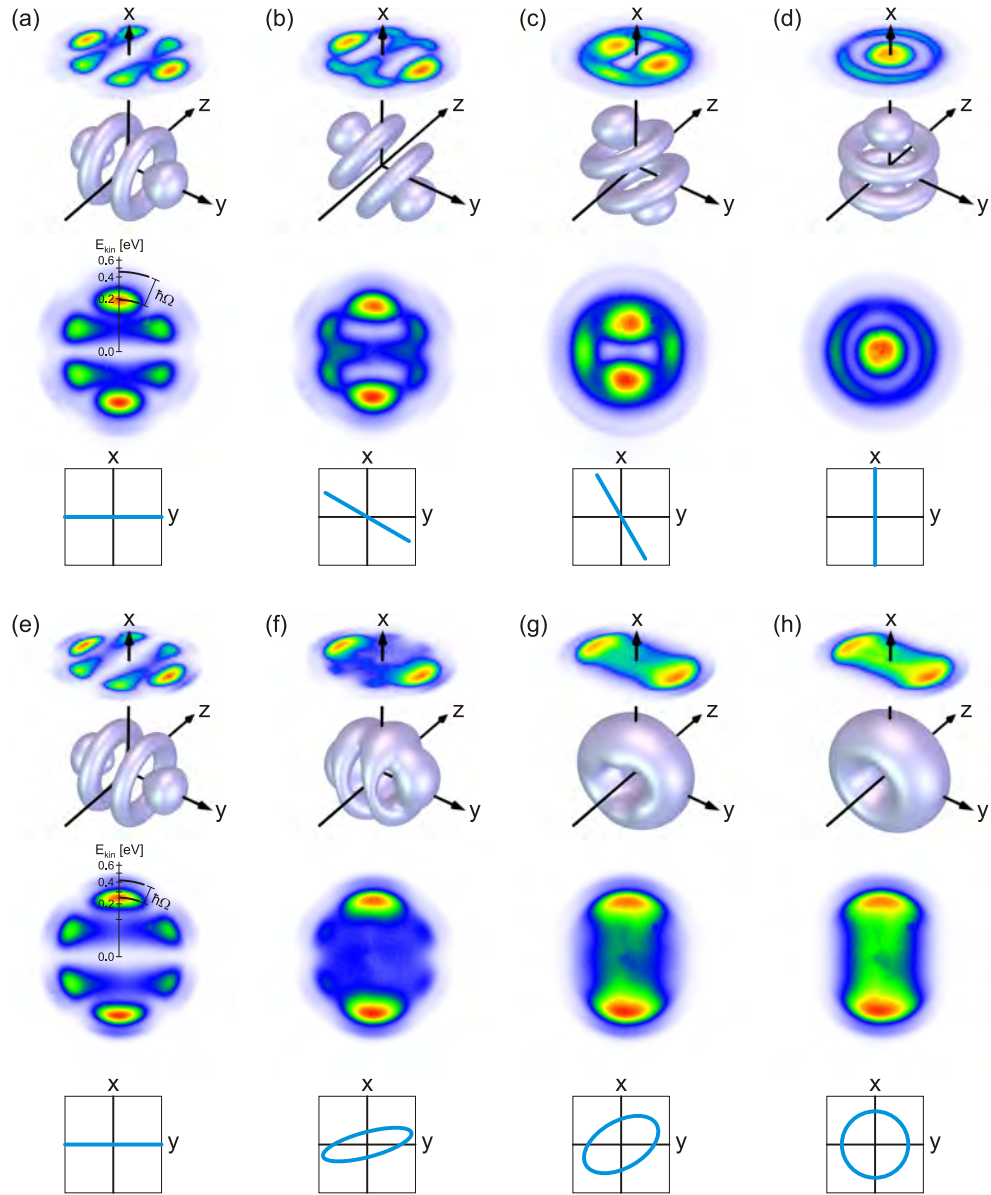
### Vorexperimente

Die Photoelektronen-Winkelverteilungen der verschiedenen Wellenplatten sind in Abbildung 4.1 dargestellt. In der oberen Reihe der Abbildung 4.1 kann man sehr gut erkennen, wie die dreidimensionale Photoelektronenverteilung im Abbildenden Spektrometer gedreht und nach oben die Projektion aufgenommen wird. Die untere Reihe zeigt die Veränderung der Anregung und Ionisation des Kalium-Atoms von einer  $\Delta m = 0$  Anregung zu einer  $\Delta m = \pm 3$  Anregung (Drei-Photonen-Anregung - vergleiche Abbildung 4.4), die im Beispiel bei (h) zu einer freien Elektronenwelle mit  $|f, 3\rangle$ -Symmetrie führt, die man als Torus bezeichnen kann.

Bis auf die Elektronenwellenpakete in (a), (e) und (h)<sup>1</sup> können die verbleibenden Wellenpakete nicht mit dem pBasex-Algorithmus rekonstruiert werden, weil keine Zylindersymmetrie vorhanden ist. Daher ist auch für die Photoelektronen-Winkelverteilungen aus der Anregung mit gedrehter Polarisation oder elliptisch polarisiertem Licht eine andere Methode zur Rekonstruktion notwendig.

---

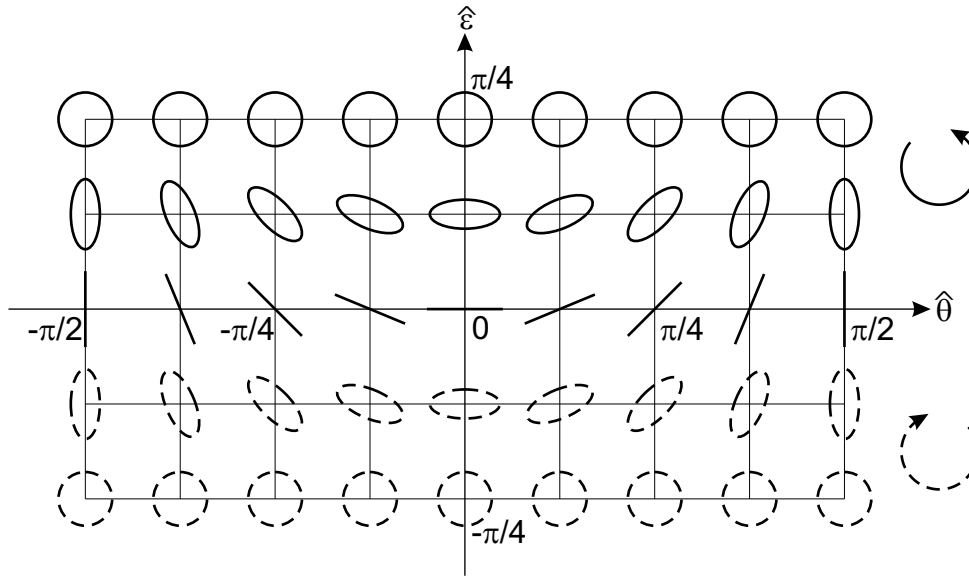
<sup>1</sup>allerdings in  $z$ -Richtung



**Abbildung 4.1:** Messung der Photoelektronen-Winkelverteilungen bei unterschiedlichen Polarisierungen der verwendeten Laserpulse. Eine Energiekalibrierung ist in (a) gezeigt. Parameter-Plots des elektrischen Feldes in der  $x$ - $y$ -Ebene zeigen die Polarisierung der Laserpulse. Die Iso-Oberflächen der simulierten dreidimensionalen Winkelverteilungen stellen eine Verbindung her zwischen dem Polarisationszustand der Laserpulse und den gemessenen Winkelverteilungen. Obere Reihe: Rotation der Laserpolarisation mittels einer  $\lambda/2$ -Platte unter den Winkeln (a)  $0^\circ$ , (b)  $15^\circ$ , (c)  $30^\circ$  und (d)  $45^\circ$ . Untere Reihe: Änderung der Elliptizität mittels einer  $\lambda/4$ -Platte unter einem Winkel von (e)  $0^\circ$  zur  $y$ -Achse für linear polarisiert, elliptisch polarisiert in (f) bei  $15^\circ$  und (g) bei  $30^\circ$  und (h) zirkular polarisierten Laserpulsen bei  $45^\circ$ .

### 4.1.2 Spektrale Polarisationsformung

In diesem Abschnitt wird die Polarisationsformung mit Hilfe eines spektralen Polarisationsformers beschrieben. Bei der Polarisationsformung wird nun nicht nur die spektrale Phase jedes einzelnen Spektralanteils manipuliert, sondern auch dessen Elliptizität. Die technische Umsetzung ist im Kapitel 5.4.1 gezeigt. In diesem Kapitel werden einzelne Beispiele für die Polarisationsformung diskutiert und mögliche Parameterisierungen vorgestellt. Die Polarisationsformung selbst funktioniert durch Phasenmodulation der Spektralanteile in zwei unterschiedlichen Raumrichtungen, die jeweils um  $\pm 45^\circ$  zur Eingangspolarisation gedreht sind. Durch diese Art der Phasenmodulation wird jeder Spektralanteil des Laserpulses gleichmäßig in beide Raumrichtungen aufgespalten und unabhängig voneinander phasenmoduliert. Beim Zusammenführen schließlich führt die Differenzphase zwischen den beiden Raumrichtungen zu einer Veränderung der Elliptizität.



**Abbildung 4.2:** Die Poincaré-Oberfläche für den Polarisationszustand des Laserpulses (vergleiche [6, 72]). Werden alle Differenzphasen der Spektralkomponenten auf den gleichen Wert gesetzt, können auf der Poincaré-Oberfläche lediglich die mittlere Spalte und die beiden äußersten Spalten an Polarisationszuständen adressiert werden. Dies bedeutet, dass der Polarisationsvektor nicht frei gedreht werden kann. Wird die Differenzphase von verschiedenen Spektralkomponenten unterschiedlich gewählt und zusätzlich noch Phasenmodulation verwendet, so liegen die zu verschiedenen Zeiten innerhalb des Laserpulses vorhandenen Polarisationen auf einer Kurve auf der Poincaré-Oberfläche.

Theoretisch beschreibt man einen Polarisationsformer mit einer variablen Wellenplatte für jede Spektralkomponente, die unter einem festen Winkel von  $45^\circ$  im Strahl steht und deren Retardation der einen Richtung in bezug auf die  $90^\circ$  dazu gedrehten Richtung mittels einer angelegten Spannung variiert werden kann. Nicht verwechseln sollte man ein solches Verhalten mit einer Halbwellenplatte, deren Kristallachsen im Strahl gedreht werden und mit der man die Polarisation drehen kann, da hier lediglich die zur jeweiligen Kristallachse projizierten elektrischen Felder zueinander um  $\pi$  bzw.  $\lambda/2$  verschoben werden und aus der Rekombination der beiden E-Felder sich dann die neue Polarisation ergibt. Die erreichbaren Polarisationszustände sind auf der Poincaré-Oberfläche [6, 72] (siehe Abbildung 4.2) dargestellt.

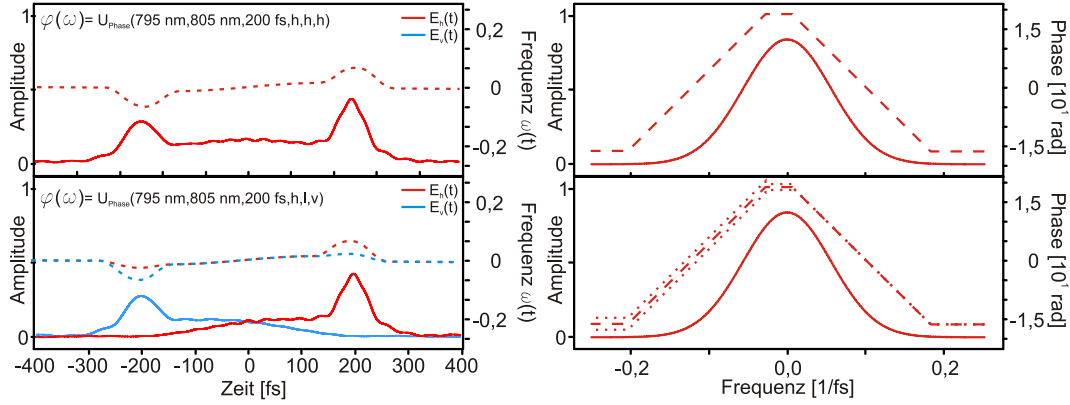
Wendet man polarisationsgeformte Laserpulse an, um kohärente Kontrolle an atomaren und molekularen Systemen zu demonstrieren, so werden diese Laserpulse bzw. deren Phasenfunktionen passend parametrisiert, um spezielle Mechanismen in der Anregung zu demonstrieren. Eine völlig freie Einstellung der Phasen der einzelnen Spektralkomponenten ermöglicht in diesen Experimenten kaum Rückschlüsse auf die Anregung, da aus den erzeugten Laserpulsen wenig Informationen über die Anregung zurückgewonnen werden können. Solche Ansätze werden meist in Kombination mit evolutionären Algorithmen angewendet, um zu zeigen, dass eine Maximierung eines Signals konzeptionell möglich ist. Will man jedoch etwas über die Anregung lernen, ist es meist von entscheidender Bedeutung, eine geeignete Parameterisierung zu verwenden. Für phasenmodulierte Laserpulse sind verschiedene Ansätze bekannt [8, 9, 73, 74]. Für polarisationsgeformte Laserpulse sind die gleichen Ansätze grundsätzlich auch gültig, allerdings sind beispielsweise zwei unterschiedliche Polynome als Phasenfunktionen auf den beiden Displays eines Polarisationsformers kein anschauliches Beispiel. Im Rahmen der Verwendung dieser Laserpulse wurde stets nach einer passenden Parameterisierung gesucht. Die interessantesten Ansätze werden im Folgenden vorgestellt.

Ein sehr anschaulicher Ansatz ist der weitergeführte Gedanke der sequentiellen linearen Phasen aus Kapitel 1.2.2, der als U-Phase bezeichnet wird. Es wird eine Pulssequenz mit drei Sub-Pulsen durch Verschiebung der einzelnen Spektralkomponenten mittels linearer Phasen zu verschiedenen Zeiten erzeugt. Innerhalb des Laserpulses hat man zeitlich nahezu separierte Spektralanteile, denen durch wählbare Differenzphasen entsprechende Elliptizitäten zugeordnet werden können. Die Pulssequenz besteht somit aus drei Pulsen, die unabhängig voneinander beliebige Polarisationszustände<sup>2</sup> haben können. Für die Anregung atomarer Systeme sind vier Polarisationszustände besonders interessant: horizontal linear polarisiert, vertikal linear polarisiert, links-zirkular polarisiert und rechts-zirkular polarisiert.

---

<sup>2</sup>im Rahmen der Poincaré-Beschreibung





**Abbildung 4.3:** Beispiele für die U-Phase. Links: Das elektrische Feld  $E(t)$ . Rechts: Einhüllende von  $\tilde{E}(\omega)$  (durchgezogene Linie) mit der spektralen Phase  $\varphi(\omega)$  (lang gestrichelt), sowie der beiden einzelnen Phasenfunktionen  $\varphi_A(\omega)$  und  $\varphi_B(\omega)$  der beiden Displays (kurz gestrichelt). Die Momentanfrequenz  $\omega(t)$  kann leicht durch Ableiten der Phase bestimmt werden und nimmt hier drei konstante Werte für die drei Sub-Pulse an. In Abhängigkeit der spektralen Position der beiden Sprungpunkte  $\lambda_1$  und  $\lambda_2$  verändern sich die relativen Amplituden der drei Sub-Pulse. In den oberen Graphen sieht man  $E(t)$  und  $\tilde{E}(\omega)$  von einer U-Phase mit  $\lambda_1 = 795 \text{ nm}$  ( $2,37\text{fs}^{-1}$ ),  $\lambda_2 = 805 \text{ nm}$  ( $2,34\text{fs}^{-1}$ ) und  $\varphi_1 = +200 \text{ fs}$  im Spektralbereich  $\lambda < \lambda_1$ , einem  $\varphi_1 = 0 \text{ fs}$  im Spektralbereich  $\lambda_1 < \lambda < \lambda_2$ , sowie einem  $\varphi_1 = -200 \text{ fs}$  für den Spektralbereich  $\lambda > \lambda_2$ . In den unteren Graphen ist die gleiche U-Phase für die Phasenmodulation dargestellt, aber mit einer anderen Elliptizität für die einzelnen Spektralbereiche. Für  $\lambda < \lambda_1$  ist die Differenzphase  $\Delta\varphi = 0$  (horizontal linear polarisiert), für  $\lambda_1 < \lambda < \lambda_2$  ist die Differenzphase  $\Delta\varphi = \frac{\pi}{2}$  (links-zirkular polarisiert) und für  $\lambda_2 < \lambda$  ist die Differenzphase  $\Delta\varphi = \pi$  (vertikal linear polarisiert).  $E(t)$  ist in der horizontalen Richtung rot und in der vertikalen Richtung blau dargestellt.

Kombiniert man diese vier Polarisationszustände mit den drei Spektralbereichen so kann man einfach polarisationsgeformte Laserpulse generieren, deren Wirkung auf ein atomares System leichter zu beschreiben ist, als mit völlig frei variierender Polarisation. In den Übergangsbereichen zwischen den Sub-Pulsen geht der Polarisationszustand und die Momentanfrequenz fließend ineinander über. Als Beispiel ist in Abbildung 4.3 ein polarisationsgeformter Laserpuls gezeigt, der durch eine U-Phase mit Veränderung der Polarisation erzeugt wurde. Beispiele für die mit solchen Laserpulsen erzeugten Photoelektronen-Winkelverteilungen sind in Abbildung 5.4 gezeigt.

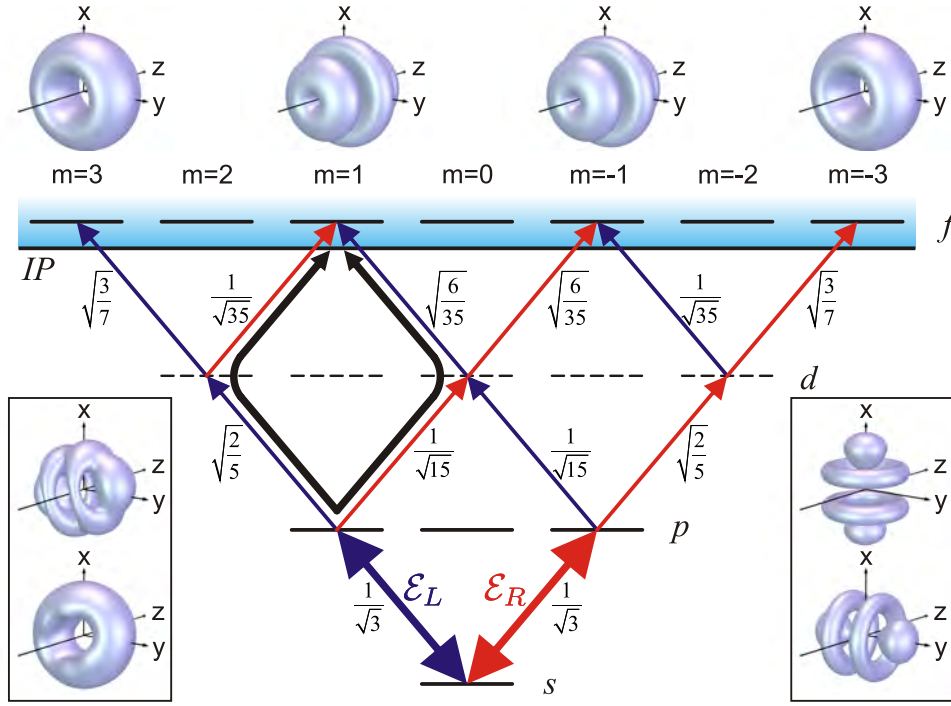
In den in Kapitel 6.5 beschriebenen Experimenten kommt eine Parameterisierung zur Anwendung, die eine Erweiterung der U-Phase darstellt. Es wird für eine evolutionäre Optimierung einer Photoelektronen-Winkelverteilung eine Phasenfunktion

verwendet, die ebenso wie die U-Phase in drei Bereiche aufgeteilt ist, deren Grenzfrequenzen durch die Evolution bestimmt werden. Die linearen Phasenparameter  $\varphi_{1a,b,c}$  sind ebenso für jeden Spektralbereich durch die Evolution bestimmbar, wie die quadratischen Phasenparameter  $\varphi_{2a,b,c}$  (vergleiche Abbildung 1.3). Dadurch können auch die Intensitäten der einzelnen Spektralbereiche durch Vergrößern oder Verkleinern des Chirps variiert werden. Zusätzlich ist der Polarisationszustand durch die Evolution variierbar, was insgesamt zu einem hohen Maß an Kontrolle über die Photoelektronenwellenpakete führt.

## 4.2 3D-Simulationen der Photoelektronenverteilungen

Um einen Eindruck davon zu bekommen, wie vielfältig die Anregung des Kalium-Atoms mit polarisationsgeformten ultrakurzen Laserpulsen ist, wird hier in einem kleinen Abschnitt die Simulation dreidimensionaler Elektronenwinkelverteilungen dargestellt. Simulationen mit dieser Methode werden in vereinfachter Weise für die in Kapitel 5.5 berechneten Elektronenwellenpakete benutzt, da eine universelle Anwendung auf die Anregung von Kalium-Atomen mit polarisationsgeformten Laserpulsen noch nicht uneingeschränkt möglich ist, da die dafür notwendigen Simulationen zum Ende dieser Arbeit noch in Arbeit waren. Dennoch wird das Konzept hinter der Simulation dargestellt, die auf der in [2] beschriebenen Methode beruht. Die hier verwendete Vereinfachung basiert auf der Idee, die Anregung des  $p \leftarrow s$ -Übergangs zu simulieren und eine vereinfachte Ionisation ausschließlich über die virtuellen  $d$ -Zustände zu Elektronenwellenpaketen mit  $f$ -Symmetrie zu betrachten. In einer vollständigen Simulation müssten hingegen alle verbleibenden Kanäle zu Elektronenwellen mit  $p$ -Symmetrie zusätzlich betrachtet werden. Die durchgeführten Messungen (vgl. Kapitel 5.5) deuten darauf hin, dass der Ionisationskanal über die virtuellen  $d$ -Zustände der bevorzugte Kanal ist und daher können mit dieser vereinfachten Simulation bereits viele der gezeigten Effekte beschrieben werden. Das mit linear polarisiertem Licht einfach zu beschreibende atomare System, welches genähert als Zwei-Niveau System gesehen werden kann, vergrößert sich nun drastisch. Die Anregung von  $p \leftarrow s$  ist nun aufgrund der Auswahlregeln nicht mehr mit  $\Delta m = 0$  für linear polarisiertes Licht, sondern für links-zirkular polarisiertes Licht mit  $\Delta m = +1$  und für rechts-zirkular polarisiertes Licht mit  $\Delta m = -1$  zu beschreiben. Ebenso wird die Ionisation, die vorher eine Zwei-Photonen Ionisation über primär einen Weg darstellte, zu einer Ionisation, die acht mögliche Ionisationspfade gehen kann. Die verschiedenen Pfade, die dadurch möglich werden, sind in Abbildung 4.4 für die Anregung  $p \leftarrow s$  und Ionisation über virtuelle  $d$ -Zustände

dargestellt. Um diese Art der Simulation durchführen zu können, ist es notwendig die beiden elektrischen Felder  $\mathcal{E}_x(t)$  und  $\mathcal{E}_y(t)$  wie in der Atomphysik üblich [75], in zwei zirkuläre elektrische Felder zu zerlegen, da diese dann den unterschiedlichen Anregungskanälen zugeordnet werden können und die Berechnung einfacher wird.

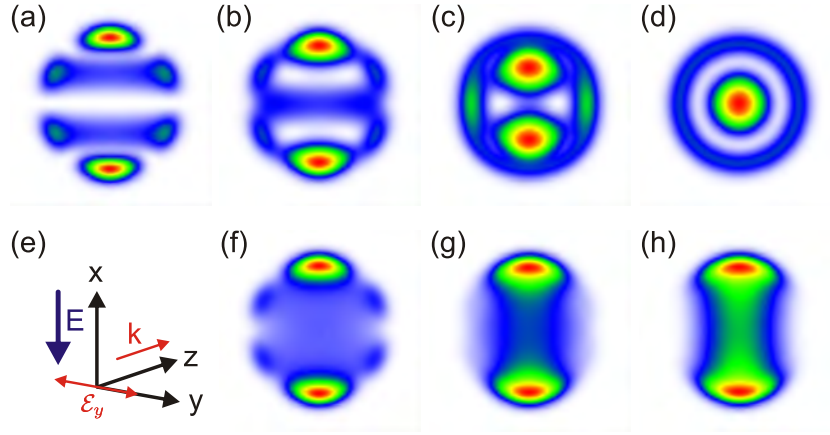


**Abbildung 4.4:** Vereinfachtes Anregungsschema für die 1+2 REMPI von Kalium-Atomen mit Laserlicht variabler Polarisierung, dargestellt durch eine Kombination von linkszirkular  $\mathcal{E}_L(t)$  und rechtszirkular  $\mathcal{E}_R(t)$  polarisierter Laserstrahlung, die entlang der  $z$ -Achse propagiert. Dicke Doppelpfeile beschreiben die nicht-perturbative Anregung des  $p \leftrightarrow s$ -Übergangs. Die perturbative Ionisation mittels zweier Photonen  $f \leftarrow p$  über acht verschiedene Wege unter Verwendung virtueller  $d$ -Zustände (gestrichelt) führt zu freien Elektronenwellenpaketen oberhalb der Ionisationsschwelle ( $IP$ ) mit  $|f, m = \pm 3\rangle$  oder  $|f, m = \pm 1\rangle$ -Symmetrie. Die Ionisation über virtuelle  $s$ - und  $d$ -Zustände zu freien Elektronenwellenpaketen mit  $|p, m = \pm 1\rangle$ -Symmetrie wird hier vorerst vernachlässigt. Durch kohärente Überlagerung der Endzustände kann die Winkelverteilung mit  $|f, m = 0\rangle$ -Symmetrie erzeugt werden, wobei die Orientierung der Winkelverteilung durch die relative Phase zwischen  $\mathcal{E}_L(t)$  und  $\mathcal{E}_R(t)$  gegeben ist (siehe rechter Rahmen). Elliptisch polarisiertes Licht erzeugt dagegen durch Veränderung der relativen Amplituden Überlagerungen, wie sie im linken Rahmen dargestellt sind. Die an den einzelnen Übergängen dargestellten Zahlen entsprechen den relativen Übergangsmomenten  $\alpha_{l,m;l',m'}$ .

Somit wird das elektrische Feld nun beschrieben durch

$$\mathcal{E}(t) = \begin{pmatrix} \mathcal{E}_L(t) \\ \mathcal{E}_R(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathcal{E}_x(t) - i\mathcal{E}_y(t) \\ \mathcal{E}_x(t) + i\mathcal{E}_y(t) \end{pmatrix} \quad (4.7)$$

Diese beiden elektrischen Felder können nun für die Anregung der  $p$ -Zustände verwendet werden, da  $\mathcal{E}_L(t)$  lediglich  $\Delta m = +1$  anregen kann, während  $\mathcal{E}_R(t)$  lediglich  $\Delta m = -1$  anregen kann (siehe auch Abbildung 4.4).



**Abbildung 4.5:** Simulation der Photoelektronen-Winkelverteilung der 1+2 REMPI von Kalium-Atomen mit Laserpulsen einer Pulsfläche von  $\Theta = 2\pi$ . Obere Reihe (a-d):  $\mathcal{E}_L = -\mathcal{E}_R$  mit relativen Phasen von (a) 0, (b)  $\pi/3$ , (c)  $2\pi/3$  und (d)  $\pi$ . Dies entspricht einer Drehung der linearen Laserpolarisation von  $0^\circ$ ,  $30^\circ$ ,  $60^\circ$  und  $90^\circ$ . (e) ist eine Darstellung des verwendeten Koordinatensystems, wobei  $\mathbf{E}$  die Richtung des Extraktionsfeldes und damit der Abel-Transformation darstellt.  $\vec{k}$  beschreibt die Propagationsrichtung des Lichts und  $\mathcal{E}_y$  beschreibt Licht, das parallel zur  $y$ -Achse polarisiert ist. Untere Reihe (f-h): Durch  $\lambda/4$ -Platte erzeugte elliptisch polarisierte Laserstrahlung bei der sich sowohl Amplitude wie auch Phase der beiden zirkularen Komponenten  $\mathcal{E}_L$  und  $\mathcal{E}_R$  verändern. Die verzögernde Kristallachse steht unter einem Winkel von (f)  $15^\circ$ , (g)  $30^\circ$  und (h)  $45^\circ$  relativ zur  $y$ -Achse.

Die nach der Anregung simulierte Ionisation über die acht möglichen Kanäle wird über die Clebsch-Gordon Koeffizienten berechnet, die in Abbildung 4.4 in die Übergangsmomente einfließen. Dadurch wird es möglich die unterschiedlichen Anregungskanäle mit den verschiedenen Gewichten zu berücksichtigen.

Durch zwei gleich starke elektrische Felder für die beiden Komponenten  $\mathcal{E}_L(t)$  und  $\mathcal{E}_R(t)$  im atomaren Koordinatensystem, was linearer Polarisation in dem Laser-Koordinatensystem entspricht, wird das Elektronenwellenpaket mit  $|f, m = 0\rangle$ -Symmetrie durch Superposition der einzelnen Wellenpakete im Koordinatensystem

der zirkularen Felder erzeugt. Wird nun die Phase der beiden zirkularen Felder variiert, so ändert sich die Orientierung der  $|f, m = 0\rangle$ -Welle. Verändert man hingegen die Amplituden, so werden komplizierte dreidimensionale Wellenpakete erzeugt, die keine Zylindersymmetrie haben müssen.

In Abbildung 4.5 ist mit der in Abbildung 4.4 beschriebenen Methode die Messung der  $f$ -Welle simuliert worden, so wie sie im Abbildenden Spektrometer zu sehen wäre.

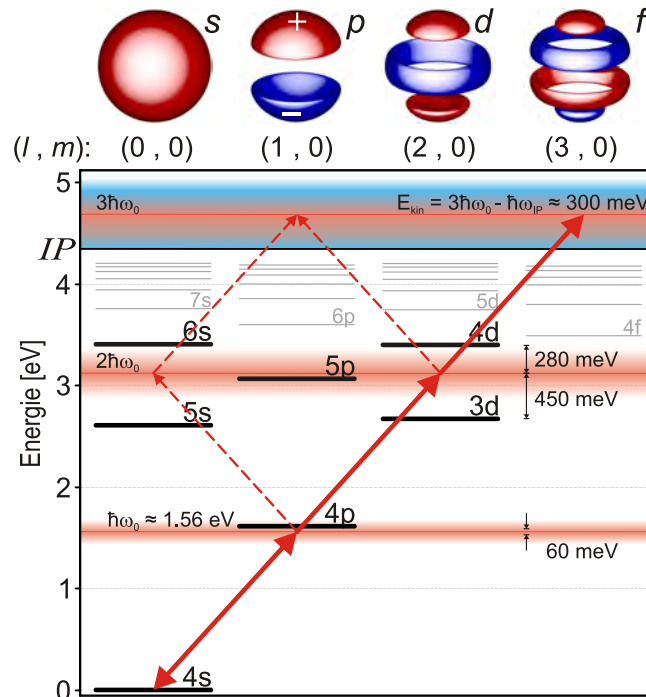


# Kapitel 5

## Tomographie dreidimensionaler Elektronen-Wellenpakete

In diesem Kapitel wird die Tomographie dreidimensionaler Elektronen-Wellenpakete beschrieben. In einem ersten Abschnitt wird zunächst motiviert, warum das Kalium-Atom als Modellsystem verwendet wird und welche Arbeiten an diesem System bereits durchgeführt wurden. Weiterhin werden erste Vorexperimente mit geformten Femtosekunden-Laserpulsen im Abbildenden Spektrometer gezeigt, die deutlich machen, warum die Tomographie dreidimensionaler Elektronen-Wellenpakete hier nötig ist. Danach wird die Autler-Townes Aufspaltung am Kalium-Atom beschrieben, die als dominanter Starkfeld-Effekt in den Messungen zu erkennen ist. Auch hierzu werden Simulationen und Vorexperimente gezeigt. In einem weiteren Abschnitt wird die Rekonstruktion der gemessenen Photoelektronen-Winkelverteilungen mittels eines Tomographie-Algorithmus erläutert. Der darauf folgende Abschnitt beschreibt den experimentellen Aufbau, sowie den verwendeten Polarisationsformer. Abschließend werden die verschiedenen Methoden der Rekonstruktion der dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilungen gegenüber gestellt.

## 5.1 Motivation

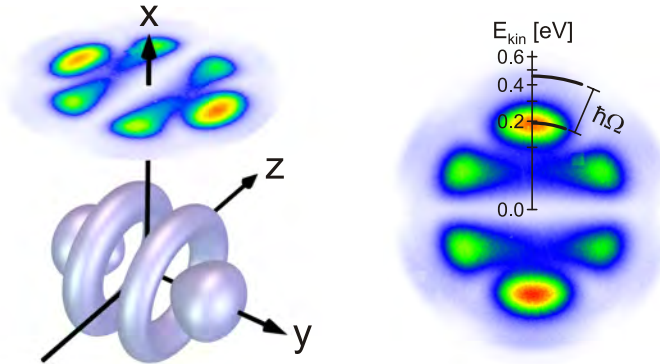


**Abbildung 5.1:** Anregungsschema des Kalium-Atoms erstellt unter Verwendung der NIST-Datenbanken [71]. Der Übergang  $4p \leftarrow 4s$  (768 nm) liegt in der Bandbreite (60 meV) des verwendeten Lasersystems (siehe Kapitel 2.1.3). Im Bild eingezeichnete Balken stellen das Laserspektrum dar. Ionisation des  $4p$ -Zustands erfolgt mit zwei Photonen ohne resonante Zwischenniveaus, entlang der durchgezogenen Pfeile. Die somit erzeugten Photoelektronen haben, abhängig vom verwendeten Spektrum, eine kinetische Energie von etwa 300 meV und  $f$ -Symmetrie. Ein alternativer Ionisationspfad, der zur  $p$ -Symmetrie führt ist mit gestrichelten Pfeilen eingezeichnet. Über dem Anregungsschema sind die jeweiligen auslaufenden Elektronenwellenpakete dargestellt. Die unterschiedlichen Farben der Wellenpakete illustrieren das Vorzeichen der verschiedenen Bereiche.

In Kapitel 3 wurde an Natrium-Atomen gezeigt, dass mittels eines einfachen Kontrollparameters, dem Chirpparameter  $\varphi_2$ , Kontrolle über einzelne Anregungspfade innerhalb des Atoms derart ausgeübt werden kann, dass die Photoelektronen zwischen verschiedenen Energie-Kanälen hin- und hergeschaltet werden können. Ein weiterer physikalischer Mechanismus für die kohärente Kontrolle wird am Kalium-Atom demonstriert. Ebenso wie das Natrium-Atom ist auch das Kalium-Atom ein Einelektronen-System, das als einfaches Modellsystem für molekulare



Systeme dienen und mit den in Kapitel 1.4 dargestellten Methoden theoretisch beschrieben werden kann. Ein entscheidender Unterschied im Vergleich zu Natrium ist jedoch die Ein-Photonen-Resonanz der Anregung  $4p \leftarrow 4s$  mit den in dieser Arbeit verwendeten ultrakurzen 800 nm Laserpulsen. Man kann die Dynamik im neutralen Kalium näherungsweise als ein Zwei-Niveau-System beschreiben, an dem unterschiedliche physikalische Mechanismen der *resonanten* Anregung mit ultrakurzen Laserpulsen untersucht werden können. Regt man ein System mit intensiven ultrakurzen Laserpulsen an, so wirkt hier der resonante dynamische Stark-Effekt, der zu einer Aufspaltung und Verschiebung der Energieniveaus führt. In einem Laserfokus sind an verschiedenen Orten unterschiedliche Intensitäten zu finden, die bei der Messung der Photoelektronen nicht voneinander getrennt werden können. Daher werden Starkfeld-Effekte zumeist herausgemittelt. Beim Kalium ist dies jedoch anders, da ausgehend vom angeregten  $4p$ -Zustand zwei Photonen (bei 800 nm) nötig sind, um ein Elektron auszulösen. Wie in Abbildung 5.1 zu erkennen ist, ist kein resonantes Zwischenniveau vorhanden, um zur Ionisation beizutragen. Daher werden nur Atome im intensivsten Bereich des Laserfokus angeregt und gleichzeitig ionisiert. Dies macht die Analyse vieler Starkfeld-Effekte erst möglich (vergleiche [61]).



**Abbildung 5.2:** Links: Simulation der dreidimensionalen Photoelektronenverteilung der Anregung und Ionisation von Kalium-Atomen mit bandbreitenlimitierten ultrakurzen Laserpulsen und die zugehörige perspektivisch angepasste Messung. Rechts: Messung mit zugehöriger Energieskala (siehe Kapitel 2.3) und dem AT-Doublett (siehe Kapitel 5.2). Deutlich ist die  $f$ -Symmetrie der Elektronenwinkelverteilung zu erkennen, die auf eine Anregung und Ionisation vom Grundzustand des Kalium  $4s$  mit drei Photonen hindeutet (gemäß  $s \rightarrow p \rightarrow d \rightarrow f$ ).

Die Photoelektronen, die hierbei erzeugt werden, liegen im Bereich einiger hundert meV, und sind somit für das Abbildende Photoelektronen-Spektrometer gut zu

detektieren. Gleichzeitig bietet das Kalium-Atom auch die Möglichkeit, die ATI-Elektronen zu messen, die beispielsweise für die Kalibrierung verwendet werden können (siehe Kapitel 2.3).

Ein Abbildendes Spektrometer erlaubt die Messung der Winkelverteilung der Photoelektronen, die gemäß der Auswahlregeln erzeugt wurden. Im angeregten Kalium-Atom ist die direkte Ionisation mit zwei Photonen gleichen Drehimpulses zu einem freien Elektronenwellenpaket mit  $f$ -Symmetrie der dominante Ionisationspfad. Eine Ionisation über virtuelle  $s$ - oder  $d$ -Zustände (wegen  $\Delta l = \pm 1$ ) zu einer Welle mit  $p$ -Symmetrie ist nur schwach in den Messungen zu erkennen.

Das Kalium-Atom ist somit ein gutes Modellsystem für die Untersuchung von Starkfeldeffekten im Abbildenden Spektrometer. In Abbildung 5.2 ist die Messung in Kombination mit einer Simulation des dreidimensionalen Elektronenwellenpaketes gezeigt. Im rechten Teil des Bildes wird neben der Messung der Welle mit  $f$ -Symmetrie bei 0,2 eV auch noch eine weitere Welle mit  $f$ -Symmetrie bei 0,5 eV beobachtet, die die höherenergetische Komponente des AT-Dubletts darstellt (siehe Kapitel 5.2 oder [76]). Da das Spektrum bei der gezeigten Messung im Vergleich zum Übergang rot verschoben ist (vergleiche Abbildung 2.3), ist die äußere AT-Komponente schwächer im Vergleich zur inneren AT-Komponente (siehe auch Kapitel 5.2).

#### 5.1.1 Kontrolle der Photoelektronenspektren

In vorangegangenen Arbeiten wurde das Verhalten der AT-Komponenten intensiv untersucht. Als Erklärung dient das “dressed-state”-Bild in dem gezeigt wird, dass im Starkfeld die ungestörten Atom-Zustände ihre Bedeutung verlieren, wohingegen die bekleideten Zustände (dressed-states) die natürliche Beschreibung darstellen, da sie die Eigenzustände des wechselwirkenden Systems sind. Die Eigenenergien spalten auf, da die Entartung durch das elektrische Feld aufgehoben wird. Als Nachweis dienen nun die Photoelektronen, da sie *während* der Wechselwirkung erzeugt werden und somit die Besetzung und die Energien der bekleideten Zustände widerspiegeln. Der Effekt der AT-Aufspaltung in den Messungen wird in Kapitel 5.2 dargestellt.

Im folgenden wird auf den Stand der Forschung eingegangen. In vorangegangenen Arbeiten wurden energieaufgelöste Photoelektronenspektren von einem “magnetic-bottle-spectrometer” untersucht, die von phasenmodulierten ultrakurzen Laserpulsen an einem Kalium-Atomstrahl erzeugt wurden. Diese phasenmodulierten Laserpulse erlaubten ein Schalten zwischen den AT-Komponenten. In [51] wurde gezeigt, wie zwei Elektronenwellenpakete, die von zwei kohärenten Laserpulsen erzeugt wurden, miteinander interferieren und dabei im Energiespektrum Inter-

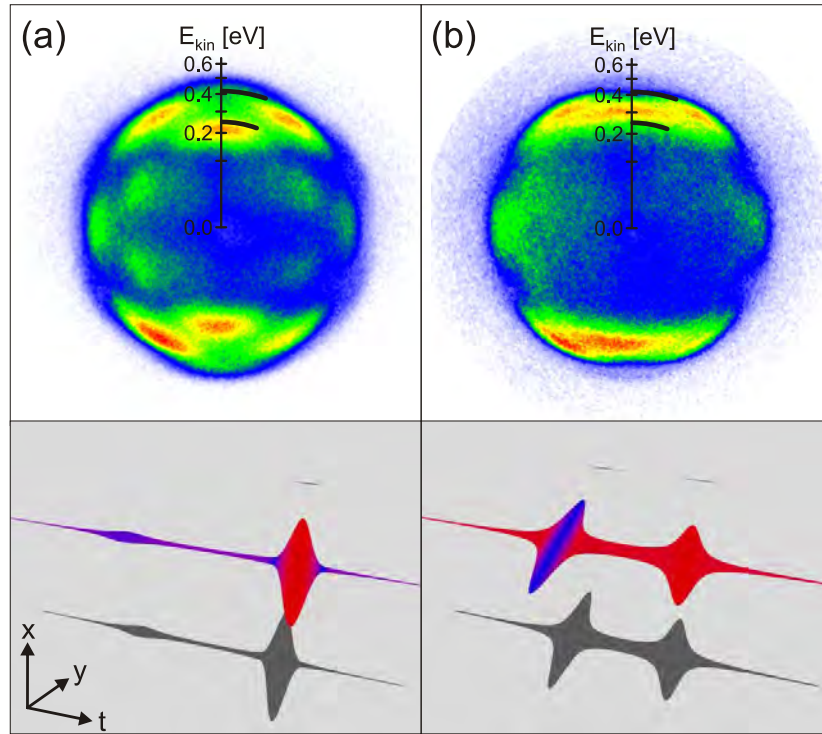
ferenzen sichtbar werden. Weitergehend wird in [77–79] gezeigt, dass mit den Parametern einer sinusförmigen Phasenmaske Kontrolle über die relativen Intensitäten der AT-Komponenten ausgeübt werden kann und die Mechanismen, die für die Kontrolle der AT-Komponenten verantwortlich sind, die sogenannte “Selective Population Of Dressed States” (SPODS), werden erläutert. Diese Mechanismen der Starkfeld-Quantenkontrolle durch phasenmodulierte ultrakurze Laserpulse finden auch in [80, 81] Anwendung, wobei einfache Amplitudenformung und die Kombination mit theoretischen Simulationen im Vordergrund stehen. In [73] schließlich wird die Kombination der zuvor beschriebenen sinusförmigen Phasenmasken und des Einführens eines linearen Chirps zur selektiven Anregung der AT-Aufspaltung diskutiert und im Rahmen der Starkfeld-Quantenkontrolllandschaften untersucht. Hier kommen auch evolutionäre Optimierungs-Prozeduren zur Anwendung, wie sie bereits in Kapitel 2.4 beschrieben wurden. In [74] schließlich werden variable Phasensprünge eingesetzt, um die beiden AT-Komponenten und deren relative Intensität zu kontrollieren. Insgesamt wird in diesen Arbeiten gezeigt, dass man ein hohes Maß an Kontrolle über das auslaufende Elektronenwellenpaket ausüben kann. Die Selektivität der beiden AT-Komponenten durch entsprechende Phasenmasken im Starkfeld in Kombination mit der Einstellbarkeit der AT-Aufspaltung durch Veränderung der Intensität der Laserpulse führt somit zur Kontrolle des atomaren Systems.

### **Abbildende Photoelektronenspektroskopie mit linear polarisierten geformten fs-Laserpulsen an Kalium**

In diesem Abschnitt wird die Anregung und Ionisation von Kalium-Atomen mit linear polarisierten geformten fs-Laserpulsen diskutiert. Neben der in Abbildung 5.2 gezeigten Messung mit bandbreitenlimitierten Laserpulsen wurden verschiedene Phasenmasken in Vorexperimenten untersucht, die teilweise deutlichen Einfluss auf die energetische Verteilung und auch auf die Winkelverteilung der Photoelektronen haben.

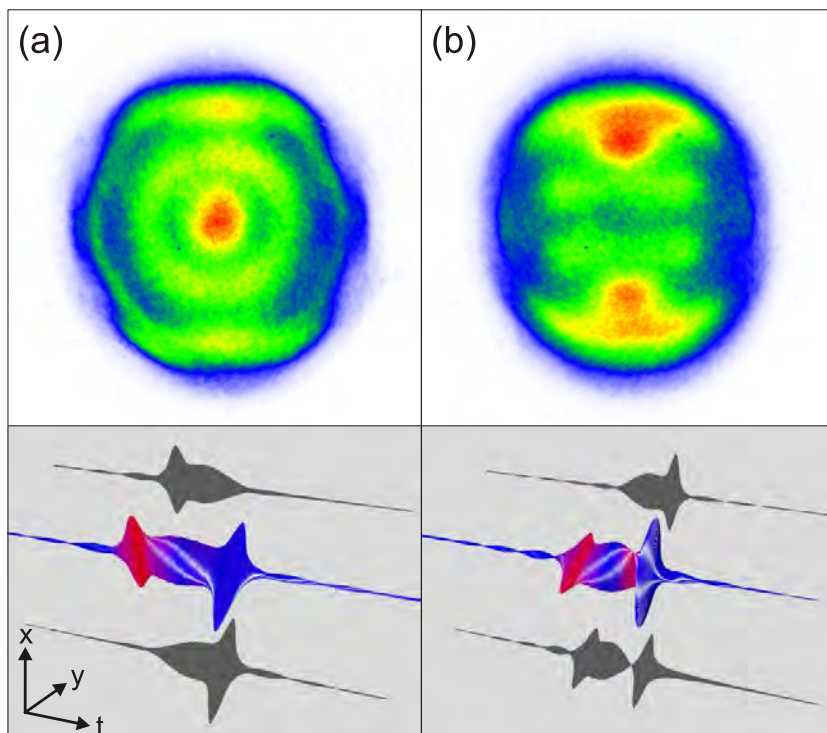
In Abbildung 5.3 ist die Anregung und Ionisation von Kalium-Atomen mit ultrakurzen Laserpulsen gezeigt, die durch eine V-förmige spektrale Phasenmaske moduliert wurden (vergleiche auch [2]). Der jeweils entstehende farbige Doppelpuls (siehe Kapitel 1.2.2) regt im Kalium-Atom unterschiedliche Superpositionen der AT-Komponenten an, die dann ionisiert werden und dabei Photoelektronen erzeugen, deren Winkelverteilung sich deutlich von der  $f$ -Symmetrie unterscheiden. Dieses Beispiel zeigt, dass bei der Anregung von Kalium-Atomen mit linear polarisierten geformten fs-Laserpulsen andere Anregungs- und Ionisationskanäle

adressiert werden können, als bei der Anregung mit bandbreitenlimitierten Laserpulsen. Dies ist besonders von Interesse für die kohärente Kontrolle in dem Abbildenden Spektrometer, da die Winkelverteilung, ebenso wie bei Natrium-Atomen auch, zusätzliche Informationen zum Verständnis des angeregten Systems beisteuert.



**Abbildung 5.3:** Oben: gemessene Photoelektronenverteilung der Anregung und Ionisation von Kalium mit phasenmodulierten ultrakurzen Laserpulsen. Unten: Dreidimensionale Darstellung der Laserpulse im Laborsystem (Zeitachse gleich negativer  $z$ -Achse - Spektrum siehe Abbildung 2.3 - Pulsenergie 280 nJ - Fokussierung mit 20 cm Linse). (a) Die spektrale Phasenfunktion  $\varphi_V(\omega) = -200 \text{ fs} \cdot |\omega - 2,44 \text{ fs}^{-1}|$  erzeugt einen schwachen blau-verschobenen Vorpuls dem ein intensiver rot-verschobener Nachpuls folgt. Beide Pulse haben einen zeitlichen Abstand von 400 fs. (b) Die Phasenfunktion  $\varphi_V(\omega) = -200 \text{ fs} \cdot |\omega - 2,36 \text{ fs}^{-1}|$  erzeugt einen rot-verschobenen Vorpuls gefolgt von einem blau-verschobenen Nachpuls mit etwa gleicher Intensität. Die in Abbildung 5.2 gezeigte  $f$ -Symmetrie ist in (a) nur noch schwach zu erkennen und in (b) komplett in den Hintergrund getreten. Die erkennbaren Winkelverteilungen haben keine einfache Symmetrie wie die in Anhang B gezeigten Beispiele.

### Abbildende Photoelektronenspektroskopie mit polarisationsgeformten fs-Laserpulsen an Kalium



**Abbildung 5.4:** Oben: Gemessene Photoelektronenverteilung der Anregung und Ionisation von Kalium mit polarisationsgeformten ultrakurzen Laserpulsen. Unten: Dreidimensionale Darstellung der Laserpulse im Laborsystem. Die spektrale Phasenfunktion, die verwendet wird, erzeugt einen Dreifach-Puls, wobei die Polarisation der Sub-Pulse, die einen Abstand von 200 fs haben, eingestellt werden kann (siehe Kapitel 4.1.2 - Spektrum siehe Abbildung 2.3 - Pulsenergie  $8,0 \mu\text{J}$  - Fokussierung mit 20 cm Linse). (a) Ein rot-verschobener Vorpuls ist entlang der  $x$ -Achse polarisiert, der zentrale Teil des Spektrums ist links-elliptisch polarisiert und der blau-verschobene Nachpuls ist entlang der  $y$ -Achse polarisiert. (b) Der rot-verschobene Vorpuls ist entlang der  $y$ -Achse polarisiert, der zentrale Teil des Spektrums ist links-elliptisch polarisiert und der blau-verschobene Nachpuls ist rechts-elliptisch polarisiert. Beide Messungen zeigen nur noch wenig Ähnlichkeit mit der  $f$ -Symmetrie.

Das Ziel der in dieser Arbeit gezeigten Experimente ist aber auch, Methoden zur Anwendung zu bringen, die in der Folge auch auf molekulare Systeme angewandt werden können, da viele der beschriebenen Mechanismen in Molekülen ebenso interessant sind.

Beispielsweise zeigt [82] sehr deutlich, dass bei Molekülen die Übergangsmomente zwischen den einzelnen Zuständen nicht parallel zueinander stehen. Somit ist ein linear polarisierter Laserpuls nicht notwendigerweise der beste Anregungspuls für ein molekulares System. Daher wurde ein Polarisationsformer (vergleiche Kapitel 4.1.2) verwendet, um zu zeigen, dass mit dem zusätzlichen vektoriellen Freiheitsgrad des Laserlichts das Molekül deutlich besser angeregt werden kann, als mit rein linear polarisiertem Laserlicht. Eine evolutionäre Optimierung machte dies deutlich, da schon die Verwendung der polarisationsgeformten Laserpulse gegenüber den rein phasenmodulierten linear polarisierten Laserpulsen einen deutlichen Vorteil brachte.

Somit ist die Verwendung polarisationsgeformter ultrakurzer Laserpulse in dem Abbildenden Spektrometer von großem Interesse und das Kalium-Atom bot sich hier wiederum als Testsystem an, um das Maß an Kontrolle über die dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung zu visualisieren, das man erreichen kann. Durch Verwendung der polarisationsgeformten Laserpulse kann man die  $\Delta m$ -Auswahlregeln am Kalium-Atom verwenden, um die Anregung und Ionisation zu kontrollieren. Verschiedenste Parametrisierungen wurden getestet, um gleichzeitig Phasenmodulation der Laserpulse zu nutzen und innerhalb der Laserpulse unterschiedliche Polarisationszustände zu generieren. Dabei wurde auch die sogenannte U-Phase (siehe Kapitel 4.1.2) getestet, die ebenso wie die V-Phase unterschiedliche spektrale Bereiche unterschiedlich in der Zeit verschiebt, indem abschnittsweise lineare Phasenfunktionen an den Phasenmodulator angelegt werden. Bei der U-Phase entsteht näherungsweise nun nicht wie bei der V-Phase ein Doppelpuls, sondern ein Dreifachpuls, da drei Spektralbereiche mit unterschiedlichen linearen Phasenfunktionen moduliert werden. Der Vorteil dieser Parametrisierung ist jedoch, dass nun jedem Spektralbereich und damit jedem Subpuls durch den Polarisationsformer ein anderer Polarisationszustand zugeordnet werden kann. Dies wurde in Abbildung 5.4 durchgeführt und die entstehenden Photoelektronen-Winkelverteilungen gemessen.

#### **Rekonstruktion der Photoelektronenwinkelverteilung von der Anregung mit polarisationsgeformten fs-Laserpulsen**

Man sieht, dass die von den Laserpulsen erzeugten Photoelektronen-Winkelverteilungen eine sehr komplizierte Struktur aufweisen, die aufgrund der sich verändernden Polarisation innerhalb des Laserpulses auch keine Zylindersymmetrie mehr aufweisen muss. Dies führt jedoch zu einem Problem für die Rekonstruktion, da der pBasex-Algorithmus, der die Basis für die Rekonstruktion der Photoelektronen-Winkelverteilungen darstellt, für die Abel-Inversion eine

Zylindersymmetrie parallel zum Detektor benötigt. Dies ist bei polarisationsgeformten Laserpulsen in der Regel jedoch nicht mehr der Fall. Somit ist die Rekonstruktion der Photoelektronenverteilungen mit dem pBasex-Algorithmus nicht mehr möglich, und eine alternative Methode wird benötigt.

Diese Alternative basiert auf der Idee, die dreidimensionale Verteilung im Raum zu drehen und sie von allen Seiten zu messen. Ähnlich einem dreidimensionalen Objekt, das wir erst durch die Betrachtung mit unseren beiden Augen als dreidimensionales Objekt wahrnehmen, soll so die Information der dreidimensionalen Elektronenverteilung erhalten werden, indem wir sie von allen Seiten messen. Anwendung findet diese Vorgehensweise schon seit vielen Jahrzehnten in der Computer-Tomographie (siehe [83]), wo die Absorption von Röntgenstrahlung in einem Schnitt durch den Körper durch viele Projektionen rund um den Körper analysiert wird. Durch Verwendung von entsprechenden Algorithmen (siehe Kapitel 5.3) kann dann die Absorption in unterschiedlichem Gewebe visualisiert werden.

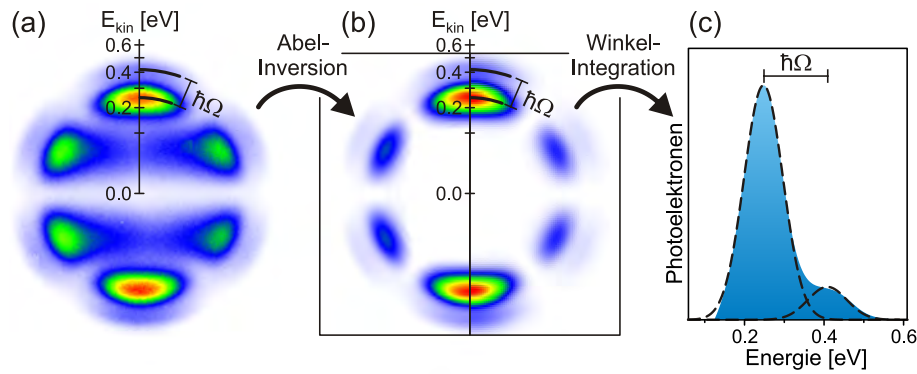
In dieser Arbeit wird nun diese Methodik auf die dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung angewendet und somit die volle dreidimensionale Information der erzeugten Photoelektronenverteilung zur Verfügung gestellt.

## 5.2 Autler-Townes Doublett

Das AT-Doublett, das hier bei der Anregung von Kalium im Starkfeld auftritt, wurde erstmals von S.H. Autler und C.H. Townes 1955 theoretisch beschrieben [76]. Der resonante Laserpuls koppelt Grundzustand und angeregten Zustand ( $4s$  und  $4p$ ). Im Falle der Resonanz sind dann Grundzustand und angeregter Zustand entartet, was bedeutet, dass im “dressed states”-Bild beide die gleiche Energie haben. Ist das Feld des Laserpulses stark genug, so treten Rabi-Oszillationen auf und die Eigenenergien der “dressed states” spalten auf. Somit ist die Entartung in diesem Fall aufgehoben. Die Größe der Energieaufspaltung beträgt

$$\Delta\varepsilon(t) = \hbar\Omega(t), \quad (5.1)$$

wobei  $\Omega(t)$  die Rabi-Frequenz darstellt. In der Messung zeigt sich die AT-Aufspaltung wie in Abbildung 5.5 dargestellt.



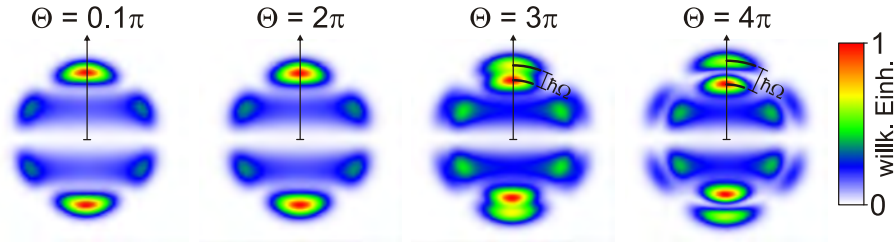
**Abbildung 5.5:** (a) Messung der Photoelektronen-Winkelverteilung der Anregung und Ionisation von Kalium mit linear polarisierten bandbreitenlimitierten ultrakurzen Laserpulsen. Mittels der Kalibrierung (Kapitel 2.3) ist es möglich, den einzelnen Radien Energien zuzuordnen. Zusätzlich ist die AT-Aufspaltung dargestellt ( $\hbar\Omega$ ). (b) In der linken Bildhälfte ist die Abel-Inversion der gemessenen Winkelverteilung unter Verwendung des pBasex-Algorithmus dargestellt (siehe Kapitel 1.3.2), während in der rechten Bildhälfte eine Simulation des Photoelektronenwellenpaketes dargestellt ist. Da in diesen Beispielen die Zentralfrequenz des verwendeten Lasersystems leicht gegen den Übergang  $4p \leftarrow 4s$  in Richtung längerer Wellenlängen verstimmt ist, ist die niederenergetische AT-Komponente dominant. Die gestrichelten Linien in (c) zeigen die Gaussskurven, welche die beiden AT-Komponenten bei 250 meV und 410 meV darstellen.

In Abbildung 5.5 zeigt sich, dass die niederenergetische AT-Komponente (im folgenden als langsame Photoelektronen bezeichnet, da sie kleinere Radien bilden)



deutlich dominant gegenüber der höher-energetischen AT-Komponente (schnelle Photoelektronen) ist. Dies wird durch die leichte Verstimmung des Lasersystems von dem  $4p \leftarrow 4s$ -Übergang erklärt. Der Übergang, der bei 766,7 nm bzw. bei 770,1 nm resonant ist (Feinstruktur-Resonanzen), liegt noch innerhalb der Laserbandbreite (vergleiche Spektrum in Kapitel 2.1.3), ist allerdings im blauen Bereich des Laserspektrums. Somit wird die niederenergetische AT-Komponente stärker populierte als die andere und folglich sind auch die langsamen Photoelektronen stärker am Signal beteiligt als die schnellen. Um die beiden AT-Komponenten symmetrisch zu machen, kann man Phasenfunktionen anlegen, welche die Asymmetrie kompensieren, beispielsweise den linearen Chirp [73], oder man verändert das Spektrum, so dass es nahezu zentriert um beide Übergänge verteilt ist. In den folgenden Experimenten wird auch die Möglichkeit verwendet, nur eine der beiden AT-Komponenten anzusprechen, indem das Spektrum der Laserpulse nur noch am Rand der Übergänge ist, was zu einer sehr selektiven Anregung einer AT-Komponente führt.

Für die Simulation der AT-Aufspaltung wurde das Kalium-Atom als vereinfachtes Zwei-Niveau-System simuliert (siehe [2]) und das Laserspektrum resonant auf den angeregten Zustand angepasst. Die Simulationen sind in Abbildung 5.6 gezeigt.



**Abbildung 5.6:** Simulation der AT-Aufspaltung für linear polarisierte Laserpulse mit unterschiedlich großen Pulsflächen  $\Theta$ . Bei  $\Theta = 0, 1\pi$  ist keine Aufspaltung zu erkennen, da man sich noch im Schwachfeld befindet. Bei  $\Theta = 2\pi$  ist bereits eine leichte Verbreiterung zu erkennen, die mit zunehmender Pulsfläche zur AT-Aufspaltung führt.

Hierbei ist die Pulsfläche  $\Theta$  definiert als

$$\Theta = \int_{-\infty}^{\infty} |\Omega(t)| dt$$

Deutlich ist hier das Aufspalten der bekleideten Zustände zu erkennen, was im schwachen Feld ohne Rabi-Oszillationen ( $\Theta = 0, 1\pi$ ) nicht passiert und erst ab  $\Theta = 3\pi$  gut zu erkennen ist. Je größer die Intensität der verwendeten Laserpulse ist, desto mehr Rabi-Oszillationen finden im System statt und desto größer wird die Aufspaltung.

## 5.3 Tomographie-Algorithmus

In diesem Abschnitt wird nun der Algorithmus dargestellt, der zur tomographischen Rekonstruktion einer beliebigen dreidimensionalen Elektronenverteilung benutzt wird. Der pBasex-Algorithmus (siehe Kapitel 1.3.2) ist in der Lage Photoelektronen-Winkelverteilungen zu rekonstruieren, die aus der Anregung und Ionisation von Atomen mit Laserpulsen entstehen, deren Polarisationsvektor in einer Ebene parallel zum Detektors liegt. Ist diese Bedingung nicht erfüllt, so ist die Abbildung einer dreidimensionalen Intensitätsverteilung auf eine zweidimensionale Fläche keine Abel-Transformation und somit auch nicht mit einer Abel-Inversion rekonstruierbar.

Kombiniert man die polarisationsgeformten Laserpulse aus Kapitel 4.1.2 mit der Anregung und Ionisation von Atomen in einem abbildenden Photoelektronenspektrometer, so wird klar, dass die hiermit erzeugten komplexen dreidimensionalen Winkelverteilungen nicht mit der Abel-Inversion rekonstruiert werden können, da nicht notwendigerweise Zylindersymmetrie vorliegen muss. Daher wird ein universeller Rekonstruktionsalgorithmus benötigt, der aus zweidimensionalen Abbildungen, im folgenden als Projektionen bezeichnet, die dreidimensionale Information rekonstruiert.

In diesem Abschnitt soll nun erläutert werden, wie aus mehreren Projektionen, die in verschiedenen Richtungen aufgenommen wurden, eine dreidimensionale Elektronenverteilung zurück berechnet werden kann. Diese Methodik einer tomographischen Entfaltung wird heutzutage in nahezu jedem modernen Computer-Tomographen verwendet, mit dem Unterschied, dass der Computer-Tomograph die unterschiedliche Absorption von Röntgenquanten in Gewebe bestimmt und daraus die unterschiedlichen Arten von Gewebe im Körper visualisiert. Die Anwendung dieser Methode zur tomographischen Entfaltung dreidimensionaler Wellenpakete ist hingegen eine entscheidende Weiterentwicklung der Möglichkeiten eines abbildenden Spektrometers. Die medizinische Verwendung dieser Methodik ist in [83] anhand der Rekonstruktion zweidimensionaler Schnitte durch eindimensionale Linien-Projektionen beschrieben.

### 5.3.1 Rekonstruktion von 2D-Schnitten

Der Kern des Algorithmus zur Rekonstruktion der zweidimensionalen Dichteverteilung  $\rho_\theta(x, y)$  aus den Linien-Projektionen  $p_\theta(y)$ , die vorwärts durch Integration

der Dichteverteilung bestimmt werden

$$p_\theta(y) = \int \rho_\theta(x, y) dx, \quad (5.2)$$

basiert auf dem Fourier-Slice-Theorem. Dieses besagt, dass die Fourier-Transformierte

$$\mathcal{FT}_y[p_\theta(y)] = \hat{p}_\theta(k_y) \quad (5.3)$$

einer Linien-Projektion  $p_\theta(y)$  gleich einem Schnitt durch die zweidimensionale Fourier-Transformierte der Dichteverteilung (dem sogenannten “Slice”)

$$\hat{\rho}_\theta(k_x, k_y) = \iint \rho_\theta(x, y) e^{-i(k_x x + k_y y)} dx dy \quad (5.4)$$

bei  $k_x = 0$  ist

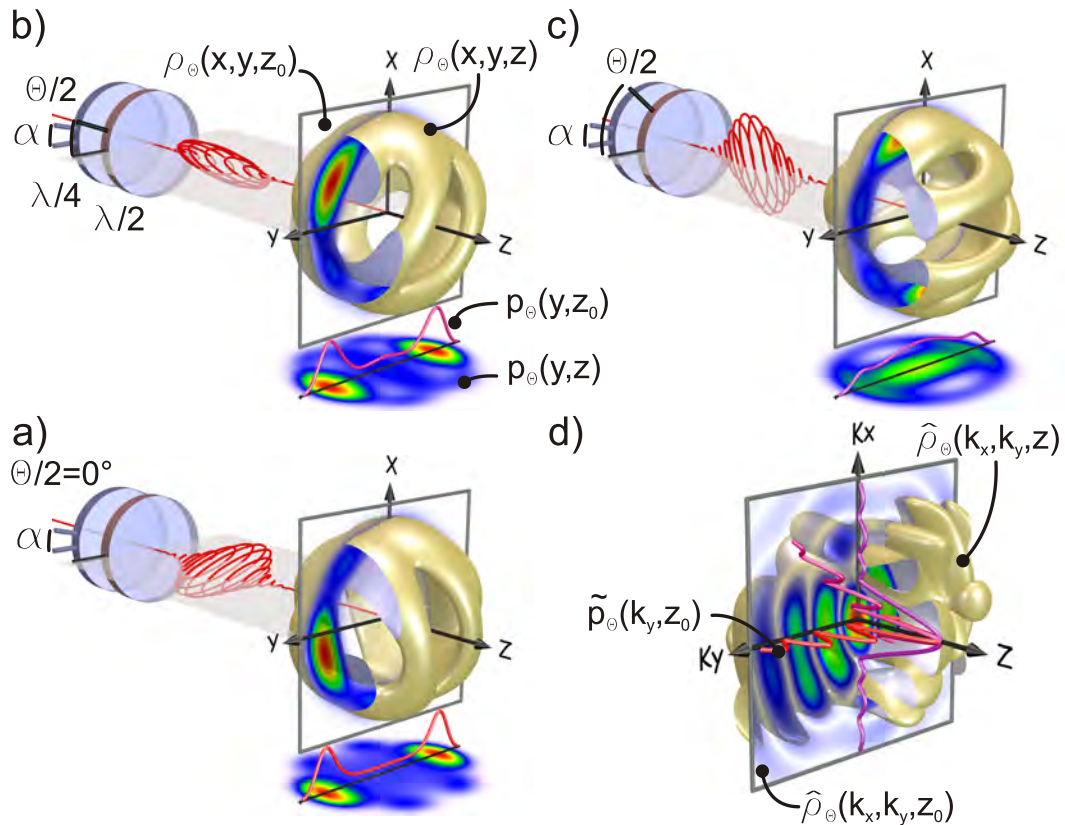
$$\hat{\rho}_\theta(0, k_y) = \iint \rho_\theta(x, y) e^{-ik_y y} dx dy = \hat{p}_\theta(k_y), \quad (5.5)$$

Dies wird im folgenden für eine große Anzahl unterschiedlicher Winkel  $\theta$  durchgeführt. Durch Transformieren all dieser Linien-Projektionen kann auf die zweidimensionale Fourier-Transformierte geschlossen werden und somit durch die Inverse 2D-Fourier-Transformation die Dichteverteilung rekonstruiert werden.

### 5.3.2 Rekonstruktion von 3D-Intensitätsverteilungen

In dieser Arbeit werden zweidimensionale Projektionen verwendet, um die dreidimensionale Information zu rekonstruieren (siehe auch [3]). Hierfür werden die zweidimensionalen Projektionen  $p_\theta(y, z)$  zuerst in Linien  $p_\theta(y, z_0)$  zerlegt, die senkrecht zur Rotationsachse des Objektes sind. Diese Achse ist gegeben durch die Drehachse der Laserpolarisation (hier:  $z$ -Achse - siehe Abbildung 5.7). Diese Linien-Projektionen  $p_\theta(y, z_0)$  unter verschiedenen Winkeln  $\theta$  bilden zusammen die Ausgangsbasis um über das Fourier-Slice Theorem (siehe Abschnitt 5.3.1) die zweidimensionale Dichteverteilung  $\rho_\theta(x, y, z_0)$  zu rekonstruieren. Führt man dies für alle Linien-Projektionen  $p_\theta(y, z_0)$  der Projektionen  $p_\theta(y, z)$  aus, ergibt sich eine Sammlung von Slices  $\rho_\theta(x, y, z_0)$ , die aneinandergereiht die dreidimensionale Dichteverteilung der Elektronen  $\rho_\theta(x, y, z)$  beschreibt. Diese kann visualisiert werden, indem man an verschiedenen Stellen Schnitte durch die Verteilung legt oder die dreidimensionale Verteilung ab einem Schwellwert als dreidimensionale Iso-Oberfläche in einem 3D-Render-Programm darstellt (z.B. PovRay [84]). Die

für die unterschiedlichen Iso-Oberflächen verwendeten Schwellwerte wurden jeweils so angepasst, das man die verschiedenen Details möglichst gut erkennen kann.



**Abbildung 5.7:** Geometrie der tomographischen Rekonstruktion dreidimensionaler Elektronenverteilungen. Mittels zweier Wellenplatten ( $\lambda/4$  und  $\lambda/2$ ) wird elliptisch polarisiertes Laserlicht erzeugt, das um einen Winkel  $\theta$  um die  $z$ -Achse gedreht werden kann, indem die  $\lambda/2$ -Wellenplatte um einen Winkel  $\theta/2$  rotiert wird. Die simulierte dreidimensionale Elektronenverteilung  $\rho_\theta(x, y, z)$  aus der Anregung und Ionisation von Kalium-Atomen mit elliptisch polarisiertem Laserlicht wird dem entsprechend mitotiert. Zusätzlich sind ein Schnitt durch  $\rho_\theta(x, y, z)$ , die durch Abel-Transformation gewonnene Projektion  $p_\theta(y, z)$  und der Schnitt durch die Projektion  $p_\theta(y, z_0)$  dargestellt. In (a) ist der Winkel  $\alpha = 15^\circ$  und  $\theta = 0^\circ$ , in (b)  $\theta = 45^\circ$  und in (c)  $\theta = 90^\circ$ . (d) zeigt die 2D-Fourier-Transformierte verschiedener  $z$ -Positionen  $\hat{\rho}_\theta(k_x, k_y, z)$  sowie die 2D-Fourier-Transformierte  $\hat{\rho}_\theta(k_x, k_y, z_0)$ , die aus den einzelnen 1D-Fourier-Transformierten  $\tilde{p}_\theta(k_y, z_0)$  (rötlich - vgl. (a), (b) und (c)) rekonstruiert wurde. Führt man diese Rekonstruktion mit vielen Projektionen aus, so kann auf die 2D-Fourier-Transformierte geschlossen werden.

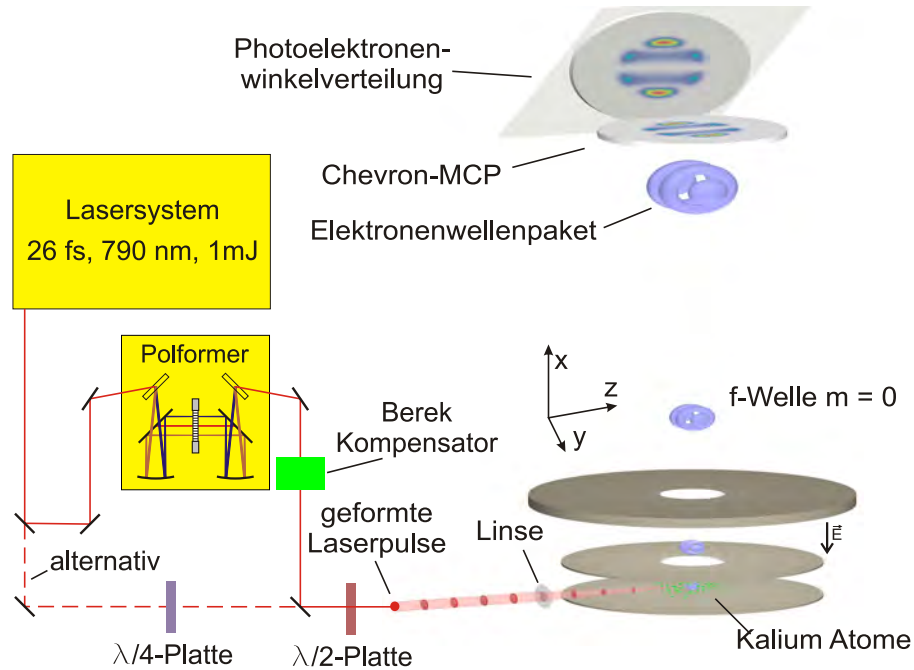
In Abbildung 5.7 ist zur Veranschaulichung die Rekonstruktion einer simulierten, nicht zylindersymmetrischen Photoelektronenverteilung dargestellt, die aus der Anregung und Ionisation von Kalium-Atomen mit elliptisch polarisiertem Licht entstanden ist. Die horizontale Polarisation des Laserlichts wird durch die  $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel  $\alpha = 15^\circ$  zu elliptisch polarisiertem Laserlicht (siehe auch Kapitel 4.1.1). Durch die anschließende  $\lambda/2$ -Wellenplatte kann das elliptisch polarisierte Laserlicht beliebig rotiert werden. Der entstehende elliptisch polarisierte Laserpuls ist in Abbildung 5.7 dargestellt, ebenso wie die simulierte dreidimensionale Photoelektronenverteilung  $\rho_\theta(x, y, z)$ , der Schnitt  $\rho_\theta(x, y, z_0)$ , die Projektion  $p_\theta(y, z)$  und der Schnitt durch die Projektion  $p_\theta(y, z_0)$ . Um die Elektronenverteilung um einen Winkel  $\theta$  zu rotieren, muss die  $\lambda/2$ -Wellenplatte um einen Winkel  $\theta/2$  rotiert werden. In Abbildung 5.7(b) ist die Elektronenverteilung unter einem anderen Winkel ( $\theta = 45^\circ$ ) der  $\lambda/2$ -Wellenplatte gezeigt. Die Projektion  $p_\theta(y, z)$  und der Schnitt durch die Projektion  $p_\theta(y, z_0)$  haben sich dementsprechend verändert. In Abbildung 5.7(c) ist ein weiterer Winkel ( $\theta = 90^\circ$ ) der  $\lambda/2$ -Wellenplatte gezeigt. Die verschiedenen Schnitte ( $p_\theta(y, z_0)$ , rötlich) durch die Projektionen  $p_\theta(y, z)$  werden Fourier-transformiert und bilden die zweidimensionalen Fourier-Transformierte  $\hat{\rho}_\theta(k_x, k_y, z_0)$ . Durch Interpolation und anschließende Inverse 2D-Fourier-Transformation kann  $\rho_\theta(x, y, z)$  rekonstruiert werden.

Konzeptionell beschreibt dies den Algorithmus zur Rekonstruktion dreidimensionaler Photoelektronenverteilungen vollständig, jedoch sind die Interpolation und die Inverse 2D-Fourier-Transformation sehr zeitaufwendige Operationen, die den Rekonstruktionsprozess stark verlangsamen. Daher wird in Anhang A eine Methode beschrieben, mit der die Interpolation im Frequenzbereich umgangen werden kann und die Inverse 2D-Fourier-Transformation durch Inverse 1D-Fourier-Transformationen ersetzt wird. Für alle im folgenden gezeigten tomografischen Rekonstruktionen wurden diese Optimierungen verwendet.

In Kapitel 5.5 wird zusätzlich für ein besseres Verständnis ein Vergleich von pBasex-Algorithmus, Tomographie-Algorithmus und numerischen Simulationen gezeigt.

## 5.4 Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wird der experimentelle Aufbau beschrieben und der verwendete Polarisationsformer (Polformer) dargestellt. Der experimentelle Aufbau für alle in Kapitel 6 gezeigten Experimente ist in Abbildung 5.8 gezeigt.



**Abbildung 5.8:** Experimenteller Aufbau der in den folgenden Experimenten zur tomographischen Messung dreidimensionaler Photoelektronenwellenpaketen verwendet wird. Ultrakurze Laserpulse, die vom Lasersystem zur Verfügung gestellt werden, können in dem Polformer mit spektralen Phasenfunktionen moduliert werden (siehe Kapitel 5.4.1). Nach dem Polformer wird die auftretende Phasenverschiebung zwischen vertikaler und horizontaler Polarisation durch einen Berek-Kompensator ausgeglichen. Alternativ zum Polformer können die linear polarisierten Laserpulse des Verstärkers mittels einer  $\lambda/4$ -Platte elliptisch polarisiert werden. Beide Arten der Polarisationsveränderung (siehe Kapitel 4.1) erzeugen Laserpulse, deren Polarisation im folgenden durch eine  $\lambda/2$ -Platte um die Ausbreitungsrichtung gedreht werden können. Dadurch wird die dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung in verschiedenen Orientierungen auf den Detektor projiziert, wo sie aufgenommen werden können.

Die ultrakurzen Laserpulse des Lasersystems (siehe Kapitel 2) werden in dem Polformer gemäß der spektralen Phasenfunktionen moduliert und durchlaufen an-

schließend einen Berek-Kompensator [85], der die Phasenverschiebung zwischen vertikaler und horizontaler Polarisierung ausgleicht (siehe Kapitel 5.4.2). Alternativ wird eine  $\lambda/4$ -Platte (*B.Halle achromatisch*) verwendet, um die linear polarisierten Laserpulse des Lasersystems elliptisch zu polarisieren (siehe Kapitel 4.1.1). Sowohl die im Polformer polarisationsgeformten Laserpulse, als auch die elliptisch polarisierten Verstärkerpulse werden durch eine  $\lambda/2$ -Platte (*B.Halle achromatisch*) geschickt und dann mit einer Linse (Quarzglas,  $f = 20$  cm) in die Anlage und das Wechselwirkungsgebiet fokussiert. Durch Rotation der  $\lambda/2$ -Platte kann der polarisationsgeformte oder der elliptisch polarisierte Laserpuls um seine Ausbreitungsrichtung (hier die  $z$ -Richtung) gedreht werden. Dadurch verändert sich auch die Orientierung des Wellenpaketes in dem Abbildenden Spektrometer, so dass nun das Wellenpaket unter einem anderen Winkel auf den Detektor projiziert wird. Somit können mit diesem experimentellen Aufbau Projektionen des Wellenpaketes in verschiedenen Richtungen mit dem Detektor aufgenommen und später durch den in Kapitel 5.3 beschriebenen Algorithmus rekonstruiert werden.

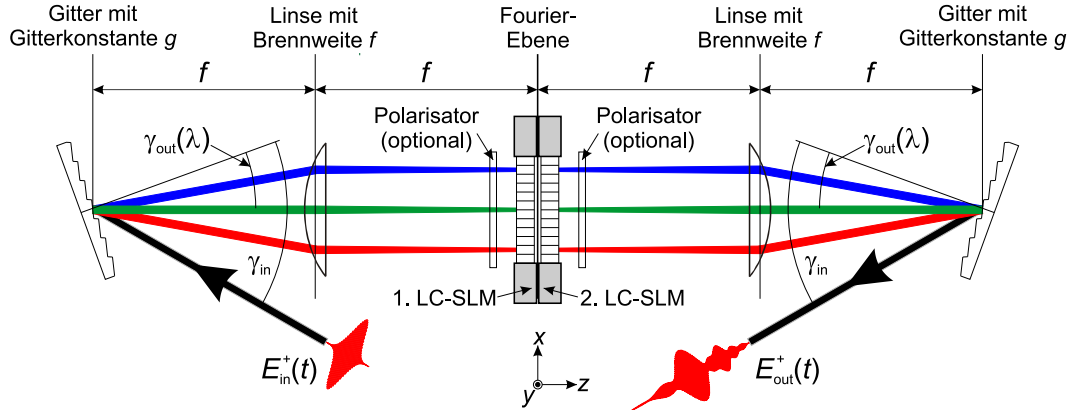
Die im Interaktionsgebiet vorhandenen Pulsenergien der polarisationsgeformten Laserpulse liegen bei  $0,1 \mu\text{J}$  bis  $10 \mu\text{J}$ . Damit sind je nach Strahlgröße Spitzenintensitäten von bis zu  $3,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  möglich (1 cm Strahldurchmesser, 35 fs Pulslänge, 20 cm Linse). Bei Verwendung des Lasersystems direkt, d.h. ohne Polarisationsformer, sind ca. 10mal höhere Energien und damit auch 10mal höhere Intensitäten möglich. Die in den Experimenten gemessenen Spektren sind, soweit nicht anders beschrieben, mit dem in Kapitel 2.2 beschriebenen Spektrum des Lasersystems vergleichbar.

Im folgenden Abschnitt wird der Aufbau des Polarisationsformers beschrieben.

### 5.4.1 Polarisationsformer

Der Polarisationsformer (siehe [2,6,72]) ist die Weiterentwicklung des Phasenmodulators [28]. Hier werden in einem vergleichbaren Aufbau zwei Streifenmodulatoren (*Jenoptik SLM640D*) mit ihren optischen Achsen unter einem Winkel von  $\pm 45^\circ$  zur Eingangspolarisation verwendet.

Liegt an beiden Modulatoren die gleiche Phasenfunktion an, so wird der Laserpuls nur phasenmoduliert. Ist die Phase zwischen beiden Displays für die Pixel unterschiedlich, so wird das elektrische Feld der einen Richtung gegen das elektrische Feld der anderen Richtung verschoben und führt zu einer Veränderung der Elliptizität der Spektralkomponente. Wenn nun die Phasenmodulation mit der Polarisationsformung kombiniert wird, lassen sich bezüglich zeitabhängiger Phase, Amplitude und Polarisation sehr komplexe Laserpulsformen erzeugen (siehe [2,82]).

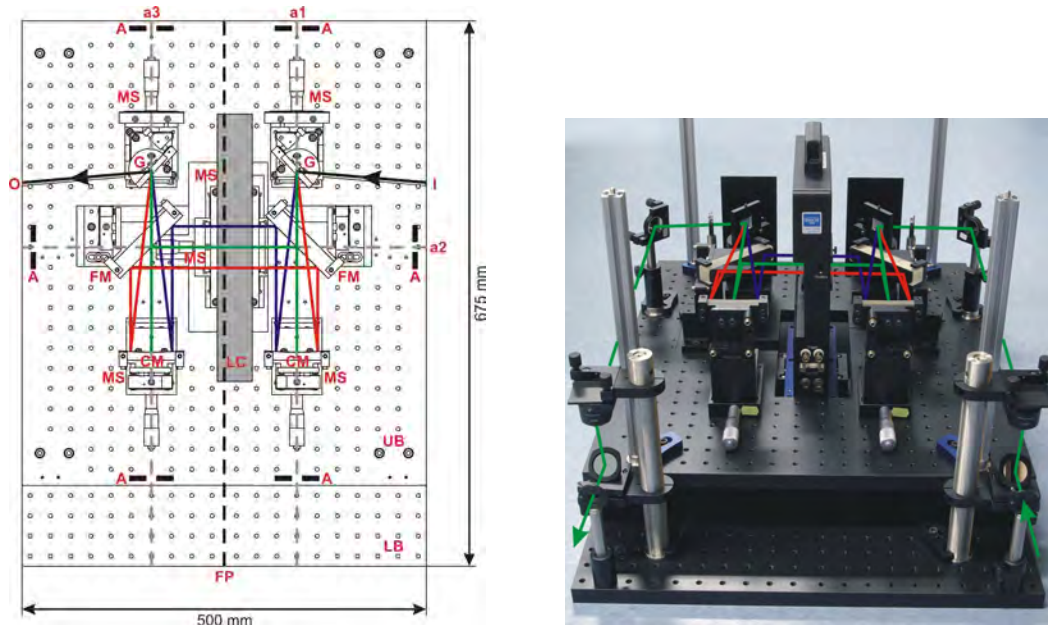


**Abbildung 5.9:** Schemazeichnung eines Null-Dispersionskompressors mit einem Doppel-Liquid Crystal-SpatialLightModulator (entn. aus [6]). Auch hier wird der fs-Laserpuls auf das linke Gitter geschickt und in seine Spektralanteile aufgespalten. Die Richtung der aufgespaltenen Spektralanteile wird durch eine Zylinderlinse kollimiert während die einzelnen Spektralanteile durch die Zylinderlinse in die Fourier-Ebene fokussiert werden. In der Fourier-Ebene hat man Zugriff auf die einzelnen scharf separierten Spektralkomponenten, die mittels zweier Streifenmodulatoren phasenmoduliert werden können. Die optischen Achsen der Modulatoren stehen unter einem Winkel von  $\pm 45^\circ$  zur Laserpolarisation. Dadurch ist es möglich, neben der Phase der einzelnen spektralen Komponenten auch deren Elliptizität einzustellen. Während der Polarisator auf der linken Seite vor dem Doppel LC-SLM lediglich die Aufgabe hat, die auf den Modulator treffende lineare Polarisation der Laserstrahlung zu reinigen, ist der zweite Polarisator auf der rechten Seite nötig, wenn statt Polarisationsformung Amplitudenformung verwendet werden soll. Die einzelnen Spektralkomponenten können dann so moduliert werden, das sie im Polarisator teilweise absorbiert werden. Somit lässt sich die Stärke jeder einzelnen Spektralkomponente entsprechend einstellen.

Alternativ lässt sich statt der Polarisationsformung auch eine Amplitudenformung durchführen, indem nach dem zweiten Modulator ein Polarisator eingesetzt wird. Wenn jetzt die Elliptizität verändert wird, ändert sich nach dem Polarisator die Transmission für die jeweilige Spektralkomponente. Man erhält dann linear polarisierte Laserpulse, deren zeitliche Form aufgrund der Amplitudenmodulation noch flexibler eingestellt werden kann, als nur mit Phasenmodulation. Es ist zu beachten, dass sich bei Amplitudenmodulation auch stets die Pulsenergie der modulierten Pulse ändert.

Der Aufbau des in dieser Arbeit verwendeten Polarisationsformers ist in [6] beschrieben.





**Abbildung 5.10:** Links: Schemazeichnung des Polformers - Rechts: Foto des Aufbaus (entn. aus [6]). Der gefaltete Aufbau macht es möglich auch den Polarisationsformer sehr kompakt zu halten. Da der verwendete Doppel-LC-SLM der Firma *Jenoptik* jedoch 640 Pixel mit einer Breite von  $97\ \mu\text{m}$  und jeweils eine Stegbreite von  $3\ \mu\text{m}$  hat, ist der Aufbau insgesamt größer als der Phasenmodulator, da das Spektrum auf eine Länge von 6,4 cm Breite aufgespalten werden muss. Der Gesamtaufbau ist auf zwei Ebenen verteilt, die jeweils aus einer verwindungssteifen Grundplatte bestehen. Rechts oben sieht man den Eingang für den Laserstrahl, der auf das Gitter(G) oben rechts trifft, von dort in vertikaler Richtung gebeugt und wie im Bild zu sehen in horizontaler Richtung aufgespalten wird. Der Zylinderspiegel(CM) kollimiert die Strahlen und über den Faltungsspiegel(FM) werden die Strahlen in die Fourierebene geführt. Danach wird derselbe Aufbau nochmals auf der linken Seite rückwärts durchlaufen (vergleiche [2]). Im Bild rechts ist der Strahlengang nochmals eingezeichnet.

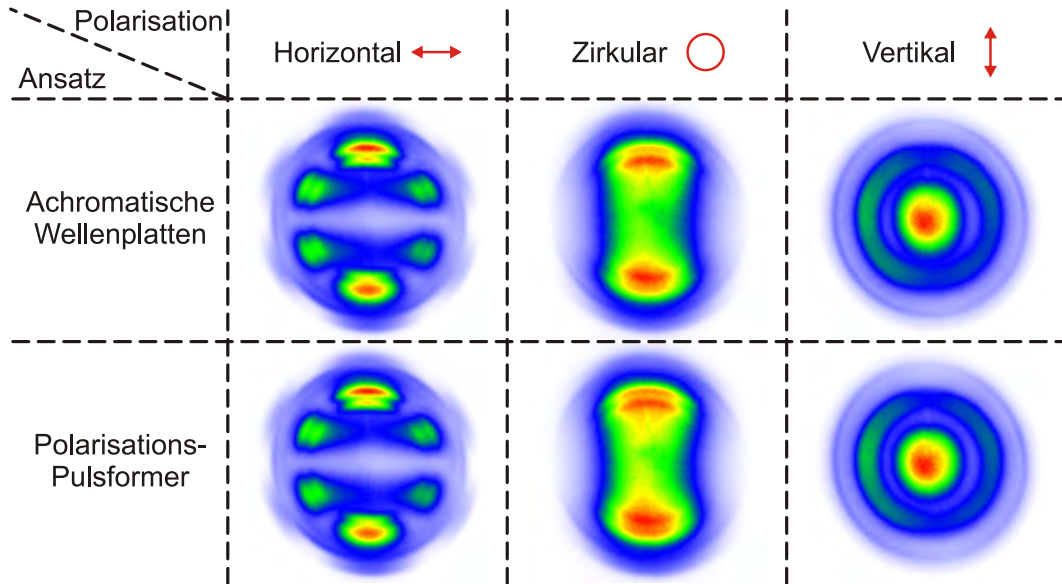
Die hier verwendeten Gitter sind sogenannte “Volume-Phase Holographic-Gratings” (VPHG) der Firma *Wasatch Photonics*, die für beide Polarisationsrichtungen eine ähnliche Effizienzkurve zeigen. Dies ist notwendig, um bei Polarisationsformung die beiden Polarisierungen nicht unbeabsichtigt in ihrer Amplitude zu manipulieren, während sie das Gitter durchlaufen. Um beispielsweise zirkular-polarisiertes Licht zu erzeugen ist dies sehr wichtig, kann aber auch mit sogenannten “Brewster-Stacks” [72, 82] kompensiert werden, indem die stärkere Polarisationsrichtung nach den Gittern entsprechend abgeschwächt wird. Die mit diesem Aufbau erreichbaren Elliptizitäten sind in [6, 72] ausführlich be-

schrieben. Liegt beispielsweise eine Phasendifferenz von  $\pi$  zwischen den beiden Pixeln einer Spektralkomponente, so wird das elektrische Feld der einen Richtung um eine halbe Wellenlänge gegen die andere verschoben, was zu einer Drehung der Polarisation um  $90^\circ$  führt. Eine Phasendifferenz von  $\pi/2$  zwischen den beiden Richtungen dagegen führt zu einer Verschiebung des elektrischen Feldes um eine viertel Wellenlänge und somit zu links- bzw. rechts-zirkular polarisiertem Licht (siehe Abschnitt 4.1.2). Die Einschränkungen bei der Einstellung der Polarisationen können mit modifizierten Aufbauten soweit erweitert werden, dass alle Punkte der Poincaré-Oberfläche (siehe Kapitel 4.1.2) auch für den gesamten Laserpuls erreichbar werden. Hierfür sei auf [86–89] verwiesen, in denen Phasen-, Polarisations- und Amplitudenformung der Laserpulse unabhängig voneinander durchgeführt wird, um volle Kontrolle über die Laserpulse zu erlangen. Für die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente mit polarisationsgeformten Laserpulsen ist primär die Veränderbarkeit der Elliptizität entscheidend, wie in Kapitel 4.2 beschrieben wurde.

### 5.4.2 Phasenverschiebungen

Die größte Herausforderung an den Polformer ist die Einstellung zirkularer Polarisation von allen Spektralbereichen und somit über den gesamten Laserpuls. Für eine perfekte Zirkularität ist es notwendig, dass die Gitter für beide Polarisationsrichtungen über alle Wellenlängen die gleiche Effizienz haben. Zusätzlich dürfen die polarisationsgeformten Laserpulse nach ihrer Erzeugung über keine optischen Komponenten gelenkt werden, die für horizontale Polarisation und vertikale Polarisation unterschiedliche Effizienzen haben oder zwischen den beiden Polarisationen Phasen einführen. In den ersten Experimenten mit polarisationsgeformten Laserpulsen in der Arbeitsgruppe [82] wurde der verwendete Polarisationsformer nahe an das Experiment gebracht, um einen möglichst kurzen Weg der Laserpulse zur Vakuumkammer zu gewährleisten. Für die in dieser Arbeit durchgeführten Experimente war das nicht praktikabel und der Effekt der verschiedenen optischen Komponenten wurde genauer betrachtet. Als Analyse-Instrument diente zum einen ein rotierbarer Polarisator und zum anderen das Abbildende Spektrometer selbst. Mit dem rotierbaren Polarisator konnte untersucht werden, wieviel Leistung unter den verschiedenen Polarisationsrichtungen durch den Polarisator durchgelassen wurde. War die Leistung konstant über alle Winkel, so konnte man davon ausgehen, dass die Polarisation vor dem Polarisator zirkular war. Alternativ wurde das Leistungsmessgerät gegen ein Spektrometer ausgetauscht und die unter den verschiedenen Winkeln transmittierten Wellenlängen analysiert (siehe [2]). Hierbei könnte man auch Unterschiede der Elliptizität in unterschiedlichen Bereichen des Spektrums

messen, die aber hier nicht auftraten. Bei ersten Tests mit dem Leistungsmessgerät zeigte sich, dass die direkt aus dem Polarisationsformer kommenden Laserpulse, wenn sie zirkular polarisiert sein sollten (Phasendifferenz von  $\pi/2$ ), nicht zirkular polarisiert waren, sondern elliptisch mit einer leicht gedrehten Hauptachse. Dies wird durch eine Phasenverschiebung zwischen horizontaler und vertikaler Polarisation innerhalb des Aufbaus erklärt. Um diese Phasenverschiebung zu kompensieren wird eine variable Wellenplatte (Berek-Kompensator von *New Focus* [85]) eingesetzt, um eine zusätzliche Phasendifferenz zwischen der senkrechten Polarisation und der horizontalen Polarisation einzuführen. Damit ist es möglich zirkulare Polarisation einzustellen, wobei die Abweichungen von der Zirkularität sehr gering sind. Das Abbildende Spektrometer kann verwendet werden, um die Zirkularität zu überprüfen, da bei Anregung und Ionisation von Kalium-Atomen die auslaufende Elektronenwelle durch die Elliptizität stark beeinflusst wird (siehe Abbildung 5.11).



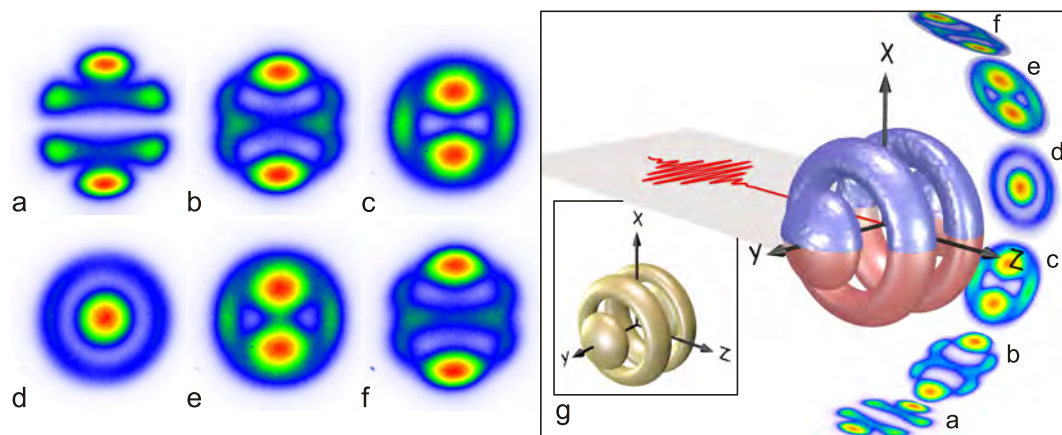
**Abbildung 5.11:** Vergleich der 1+2 REMPI von Kalium-Atomen mit achromatischen Wellenplatten (*B.Halle*) einerseits (obere Reihe) und dem Polarisationsformer (untere Reihe) andererseits (entn. aus [2]). Bei jedem Polarisationszustand wurde eine sehr gute Übereinstimmung erreicht.

## 5.5 Rekonstruktionsmethoden: Tomographie- und pBasex-Algorithmus

In diesem Abschnitt wird anhand zweier Beispiele gezeigt, dass die Rekonstruktion dreidimensionaler Photoelektronenverteilungen mittels des in Kapitel 5.3 beschriebenen Tomographie-Algorithmus möglich ist.

### 5.5.1 Testmessung $|f, m = 0\rangle$

Dafür wird im folgenden die Messung der 1+2 REMPI von Kalium-Atomen mit bandbreitenlimitierten linear polarisierten und elliptisch polarisierten Laserpulsen in dem experimentellen Aufbau (vergleiche Kapitel 5.4) gezeigt. Um eine möglichst definierte  $f$ -Elektronenwelle zu erhalten, wird das Spektrum des Lasersystems im blauen Bereich der beiden Kalium Resonanzen (siehe Kapitel 5.2) beschnitten.



**Abbildung 5.12:** (a)-(f) Messungen der zweidimensionalen Winkelverteilungen  $p_\theta(y, z)$  der 1+2 REMPI von Kalium-Atomen mit *linear* polarisierten Laserpulsen unter einem Winkel  $\theta = 0^\circ, 15^\circ, 30^\circ, 45^\circ, 60^\circ$  und  $75^\circ$  durch Rotation der  $\lambda/2$ -Platte um  $\theta/2$ . (g) zeigt die tomographische Rekonstruktion des zylindersymmetrischen Elektronenwellenpakets (obere blaue Iso-Oberfläche) zusammen mit dem durch den pBasex-Algorithmus rekonstruierten Elektronenwellenpaket (untere rote Iso-Oberfläche). Im zusätzlich eingefügten Rahmen sieht man die Simulation der Elektronenwinkelverteilung ( $|f, m = 0\rangle$ ) unter Verwendung der Methoden, die in Kapitel 4.2 dargestellt sind (vergleiche [3]).

Hierfür wird ein Blocker im Prismenkompressor eingebracht, der die Spektralkomponenten sehr weich abschneidet, da der Strahl im Prismenkompressor groß ist (etwa 2 cm). Das Spektrum hat nun keine nennenswerte Intensität bei Wellenlängen kleiner als 780 nm (vergleiche Abbildung 6.1b). Dies hat zur Folge, dass unter Starkfeld-Anregung des Kalium  $p \leftarrow s$ -Übergangs nur die niederenergetische AT-Komponente (weil rot-verschobenes Spektrum) zu beobachten ist.

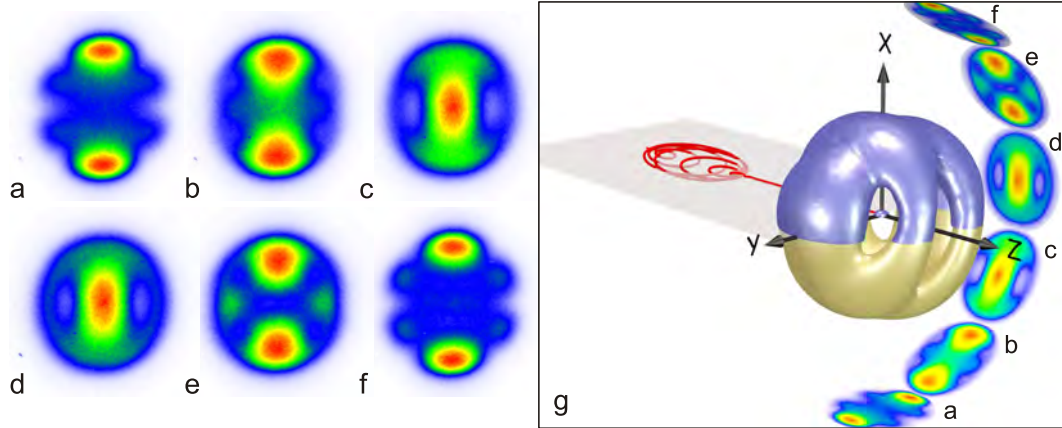
Als Resultat erhält man eine  $|f, m = 0\rangle$ -Welle, die sehr klar strukturiert ist, da nur die niederenergetische Komponente des AT-Doublets übrig bleibt. Diese Welle ist sehr gut geeignet, um die Performance des Tomographie-Algorithmus zu zeigen. In Abbildung 5.12 sind sechs gemessene Projektionen dieser Welle gezeigt, ebenso wie das elektrische Feld und die tomographische Rekonstruktion in blau. Die mit dem pBasex-Algorithmus rekonstruierte Winkelverteilung wurde um die Symmetrieachse rotiert und ebenso als dreidimensionales Objekt dargestellt (rot). Die in Kapitel 4.2 beschriebenen Methoden zur Simulation dreidimensionaler Elektronen-Verteilungen wurden verwendet, um das Wellenpaket zu simulieren (gold). Als energetische Verteilung in der Simulation wurde zur Näherung eine Gaussfunktion verwendet. Man sieht deutlich, dass eine sehr gute Übereinstimmung der verschiedenen Algorithmen erzielt wird. Daher kann davon ausgegangen werden, dass die tomographische Messmethode ebenso zuverlässig funktioniert, wie der pBasex-Algorithmus.

### 5.5.2 Testmessung für polarisations-geformte Laserpulse

Um die Performance des Algorithmus bei komplexeren Elektronenwellenpaketen zu testen, wurde die 1+2 REMPI von Kalium mit elliptisch polarisierten Laserpulsen ( $\lambda/4$ -Platte bei  $15^\circ$ ) gewählt, die als Prototyp für polarisations-geformte Laserpulse dienen. Das entstehende Wellenpaket hat keine Zylindersymmetrie und nur zu einer der Koordinatenachsen eine Spiegelsymmetrie. Somit ist hier eine der sehr komplexen Elektronenwinkelverteilungen vorhanden, die an Atomen generiert werden kann.

In Abbildung 5.13 sieht man wiederum die einzelnen Messungen der Projektionen und die rekonstruierte dreidimensionale Welle, die nun mit der Simulation direkt verglichen wird, da der pBasex-Algorithmus zur Rekonstruktion dieser Art von Winkelverteilungen aus Symmetriegründen nicht anwendbar ist. Die sehr gute Übereinstimmung von Experiment und Theorie zeigt wiederum das Potential des Tomographie-Algorithmus in der Rekonstruktion dreidimensionaler Elektronenwellenpakete ohne die sonst notwendigen Symmetrie-Annahmen. Insgesamt zeigen diese Testrekonstruktionen deutlich, wie gut die Performance dieses Verfahrens ist. Zum einen stellt sie die simulierte Elektronenwelle quantitativ richtig

dar, zum anderen ist sie auch für polarisationsgeformte Laserpulse anwendbar. Im folgenden wird diese Methode und der Algorithmus verwendet, um die 1+2 REM-PI von Kalium durch verschiedene, u.a. auch polarisationsgeformte, Laserpulse zu untersuchen.



**Abbildung 5.13:** (a)-(f) Messungen der zweidimensionalen Winkelverteilungen  $p_\theta(y, z)$  der 1+2 REMPI von Kalium-Atomen mit *elliptisch* polarisierten Laserpulsen ( $\lambda/4$ -Platte bei  $15^\circ$ ) unter den Winkeln  $\theta = 0^\circ$  bis  $75^\circ$ . (g) zeigt die tomographische Rekonstruktion des Elektronenwellenpakets (obere blaue Iso-Oberfläche) zusammen mit einer Simulation der Elektronenwinkelverteilung (gold). Die Symmetrieebenen der dreidimensionalen Elektronenwinkelverteilung sind nicht mehr senkrecht zu den Koordinatenachsen und es liegt darüber hinaus keine Zylindersymmetrie mehr vor.

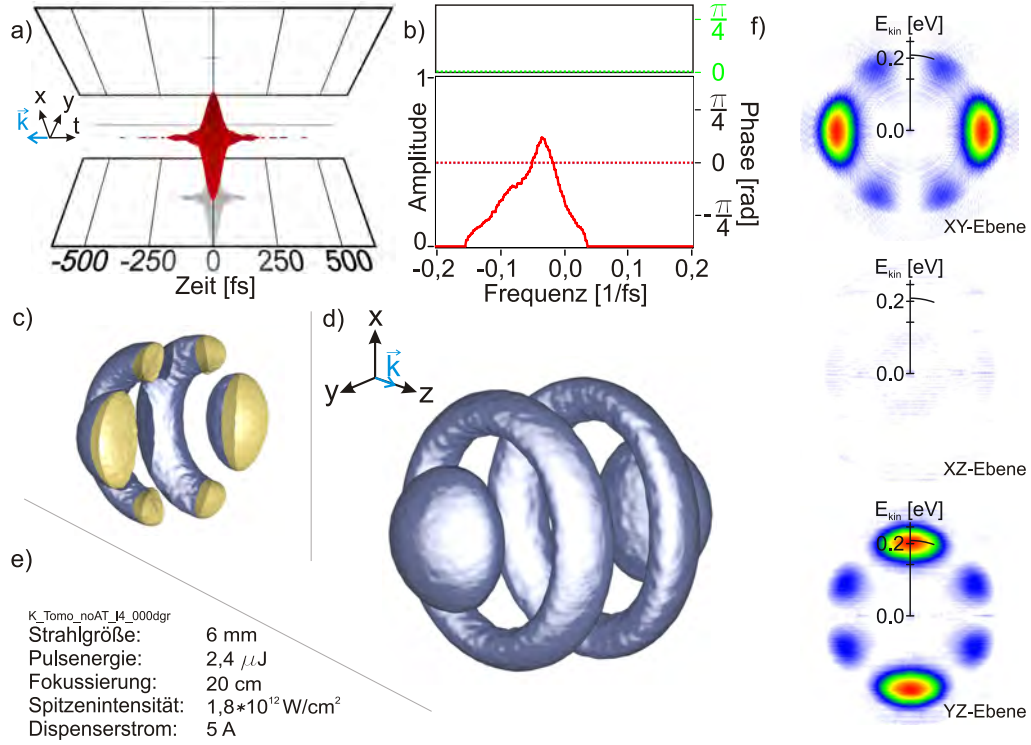
# Kapitel 6

## Kohärente Kontrolle dreidimensionaler Elektronen-Wellenpakete

In diesem Kapitel werden die Experimente an Kalium-Atomen gezeigt, bei denen jeweils mit unterschiedlichen Mitteln Kontrolle auf die dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung ausgeübt wird. Neben der Veränderung der Elliptizität mit Viertelwellenplatten, der Modifikation des Anregungsspektrums und der Verwendung unterschiedlicher Intensitäten, wird auch die spektrale Polarisationsformung verwendet, um Kontrolle auf die Photoelektronen-Winkelverteilung auszuüben. Als abschließendes Beispiel werden zwei evolutionäre Optimierungen dargestellt, deren Ziel es war, Projektionen der dreidimensionalen Wellenpakete eine maßgeschneiderte Form zu geben. Es folgt eine Zusammenfassung mit Ausblick für zukünftige Experimente. In den folgenden Abbildungen sind die angegebenen Intensitäten mit der Näherungsformel aus [29] nach oben abgeschätzt worden. Die Näherungsformel gilt für den idealen Fall einer gauss'schen Strahlform. Dies war in den Experimenten in der Regel nicht der Fall, daher sind die angegebenen Intensitäten zu hoch angesetzt.



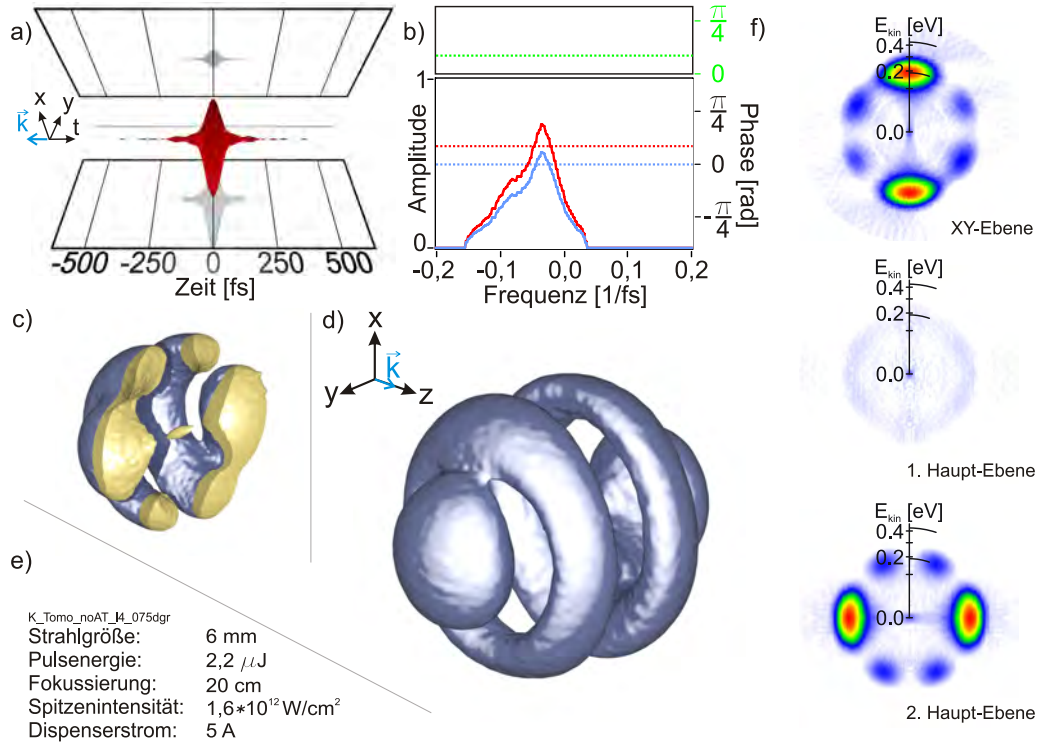
## 6.1 Kontrolle durch Elliptizität



**Abbildung 6.1:** Darstellung aller wichtiger Parameter einer tomographischen Rekonstruktion dreidimensionaler Photoelektronenverteilungen. (a) 3D-Darstellung der verwendeten Laserpulse mit dem  $k$ -Vektor im Koordinatensystem. Hier ein bandbreitenlimitierter linear polarisierter Laserpuls ( $\Delta m = 0$ ), der aufgrund des dreieckförmigen Spektrums nur genähert gaussförmig ist. (b) Spektrum der verwendeten Laserpulse und Phase (rot bzw. blau für die beiden Displayebenen (vergleiche Kapitel 5.4.1) in Abhängigkeit von  $\omega$ , zentriert um die Zentralfrequenz des verwendeten Lasersystems  $\omega_0 = 2,384$  1/fs = 791 nm. Darüber ist die Differenzphase beider Displays (grün) dargestellt, die für den Polarisationszustand entscheidend ist. Für die Messungen in diesem Kapitel wurden die blauen Anteile der Laserpulse im Prismenkompressor weggeschnitten. (c) und (d) Iso-Oberflächen der gemessenen und mit dem Tomographie-Algorithmus rekonstruierten 3D-Winkelverteilungen - in (d) vollständig in blau dargestellt mit Koordinatensystem, sowie in (c) entlang der Ebene  $z = 0$  aufgeschnitten und mit kontrastierender Innenseite gezeigt, um eine bessere Vorstellung der 3D-Struktur zu bekommen. (e) Experimentelle Parameter zur Einordnung der Messung. Die angegebene Intensität wurde mit der Näherungsformel aus [29] abgeschätzt. (f) Schnitte an der XY-, XZ- und YZ-Ebene mit Energieskala. Deutlich ist die bekannte  $|f, m = 0\rangle$ -Symmetrie zu erkennen.



In diesem Abschnitt wird gezeigt, in welchem Umfang man durch Änderung der Elliptizität der Laserpulse Kontrolle über die Winkelverteilung ausüben kann. Für diese Messungen wurde eine  $\lambda/4$ -Platte verwendet, wie sie im experimentellen Aufbau (siehe Kapitel 5.4) beschrieben ist. Die im folgenden gezeigten Abbildungen wurden zur besseren Vergleichbarkeit immer in dem in Abbildung 6.1 gezeigten Schema zusammengestellt.



**Abbildung 6.2:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit elliptisch polarisierten Laserpulsen ( $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel von  $7,5^\circ$  zur Laserpolarisation). Eine Umverteilung der Energie der beiden Spektren in (b) sorgt für eine Drehung der Hauptachse der Polarisation während die Phase, die in der Wellenplatte eingebracht wird, zu einer Veränderung der Elliptizität führt. Die dadurch erzeugten Photoelektronen zeigen bereits eine deutliche Asymmetrie bezüglich der  $y$ -Achse, die in Abbildung 6.1 die Achse der Zylindersymmetrie ist. (f) zeigt Schnitte mit Energieskala an der XY-Ebene, sowie den beiden Hauptebenen der elliptisch polarisierten Laserpulse, die hier um  $7,5^\circ$  um die  $z$ -Achse gedreht zur Spektrometersausrichtung liegen.

Somit können leicht zwischen den einzelnen Messungen Zusammenhänge darge-

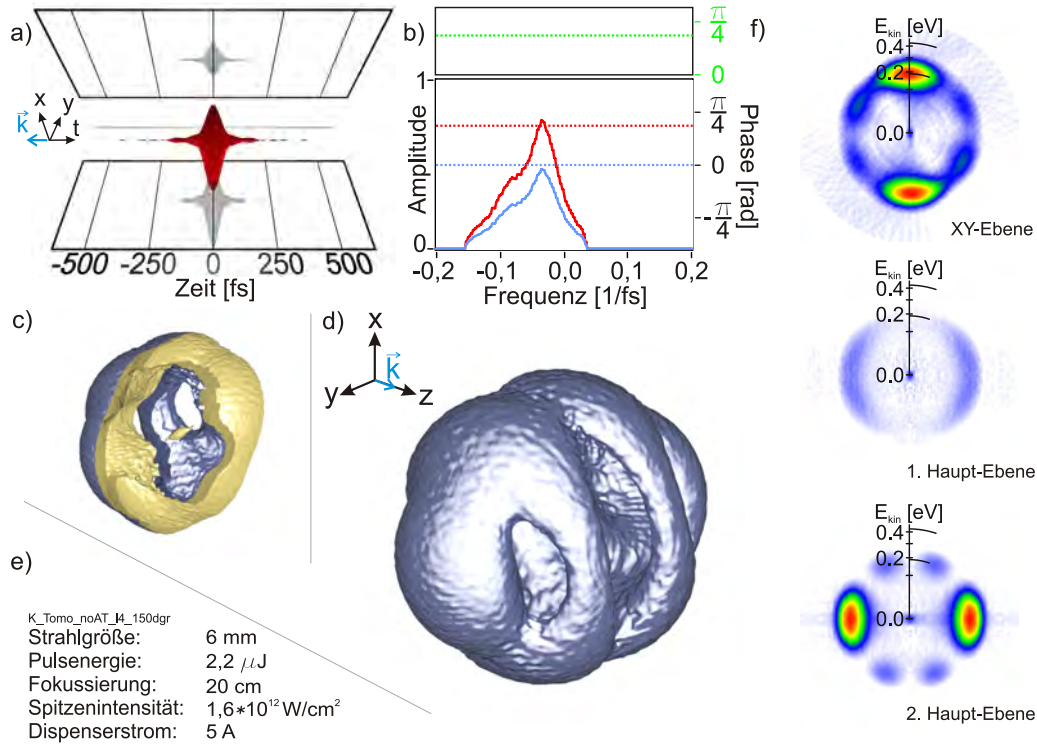
stellt werden. Die Schwellwerte für die jeweiligen Iso-Oberflächen wurden angepasst, um die beste Visualisierung sicherzustellen. Die Schnitte wurden jeweils auf das maximale Signal der gesamten dreidimensionalen Photoelektronen-Verteilung skaliert. So können zwischen den einzelnen Schnitten die unterschiedlichen Intensitäten verglichen werden.

In Kapitel 5.5 wurde anhand eines Beispiels ( $\lambda/4$ -Platte unter  $15^\circ$ ) bereits eine Simulation der dreidimensionalen Elektronenwelle gezeigt. Im folgenden werden die dreidimensionalen Photoelektronen Verteilungen gezeigt, die mit elliptisch polarisierten Laserpulsen erzeugt wurden, indem die  $\lambda/4$ -Platte auf Winkel von  $0^\circ$ ,  $7,5^\circ$ ,  $15^\circ$ ,  $22,5^\circ$  und  $45^\circ$  eingestellt wurde. Als erste Messung wird hier nochmals die Messung gezeigt, die bereits als Vergleichsobjekt in Abbildung 5.12 verwendet wurde, hier jedoch in der neuen Schema-Darstellung (siehe Abbildung 6.1). Das beschnittene Spektrum<sup>1</sup> mit hauptsächlich roten Anteilen populierte während der Anregung lediglich die niederenergetische AT-Komponente. Dies ist von Vorteil, um den Effekt der  $\lambda/4$ -Wellenplatte zeigen zu können. In den Schnitten (vergleiche Abbildung 6.1f) kann wiederum die bekannte  $|f, 0\rangle$ -Symmetrie erkannt werden.

In der folgenden Messung (siehe Abbildung 6.2) wird die  $\lambda/4$ -Wellenplatte um  $7,5^\circ$  um die  $z$ -Achse gedreht. Der resultierende Laserpuls ist leicht elliptisch polarisiert, wobei die Hauptachse der Ellipse entlang der schnellen Achse der Wellenplatte ausgerichtet ist (siehe Kapitel 4.1.1). Die Spektren, die in Abbildung 6.2b dargestellt sind, sind für die beiden Ebenen des Polarisationsformers (vergleiche Kapitel 5.4.1) nun nicht mehr gleich groß. Diese Umverteilung der Energie sorgt für die Drehung des elektrischen Feldes, wobei gleichzeitig auch eine Phase zwischen den beiden senkrecht zueinander stehenden Komponenten auftritt, die für die Elliptizität verantwortlich ist. Dies erzeugt eine Photoelektronen-Winkelverteilung, die noch sehr stark an eine  $|f, 0\rangle$ -Welle (vergleiche Abbildung 6.1) erinnert, allerdings bereits jetzt deutliche Anzeichen für eine Asymmetrie aufweist, wie sie vor allem im XY-Schnitt in Abbildung 6.2f zu erkennen ist.

---

<sup>1</sup>Das Beschneiden des Spektrums im Prismenkompressor sorgt für eine sehr weiche Kante im Spektrum im Gegensatz zum Beschneiden des Spektrums im Polarisationsformer



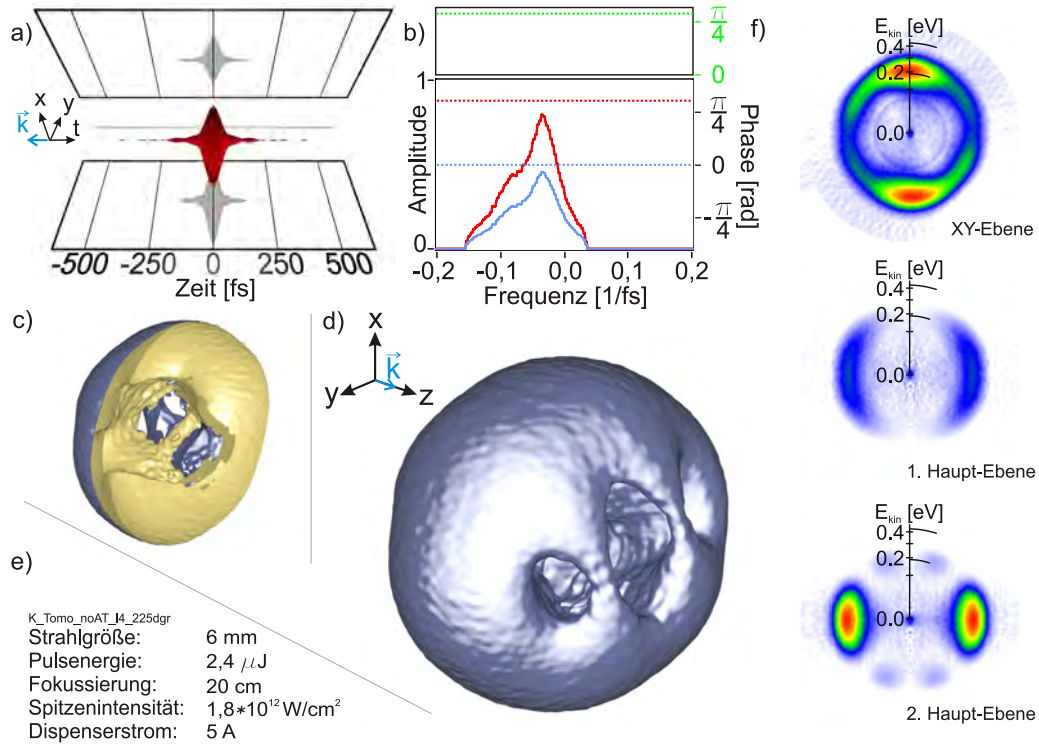
**Abbildung 6.3:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit elliptisch polarisierten Laserpulsen ( $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel von  $15^\circ$  zur Laserpolarisation). Auch hier sind die Hauptebenen um  $15^\circ$  um die z-Achse gedreht worden.

Bei Einstellung der  $\lambda/4$ -Wellenplatte auf  $15^\circ$  (siehe Abbildung 6.3) werden Photoelektronen gemessen, wie sie auch schon in Abbildung 5.13 gezeigt wurden. Die Asymmetrie bezüglich der  $y$ -Achse nimmt weiter zu, da sowohl die Hauptachse weiter gedreht wird und auch die Elliptizität stärker wird. Die Erkennungsmerkmale der typischen  $|f, 0\rangle$ -Welle<sup>2</sup> verschwinden zunehmend.

In Abbildung 6.4 sind schließlich nur noch dünne Ringe um die Hauptachse der Laserpolarisation zu erkennen. Die Symmetrie der Photoelektronen gleicht sich immer mehr den in der nächsten Messung (siehe Abbildung 6.5) gezeigten Form an ( $|f, m = \pm 3\rangle$ ).

<sup>2</sup>Ringe um die Richtung der Laserpolarisation und die Maxima in Richtung der Laserpolarisation

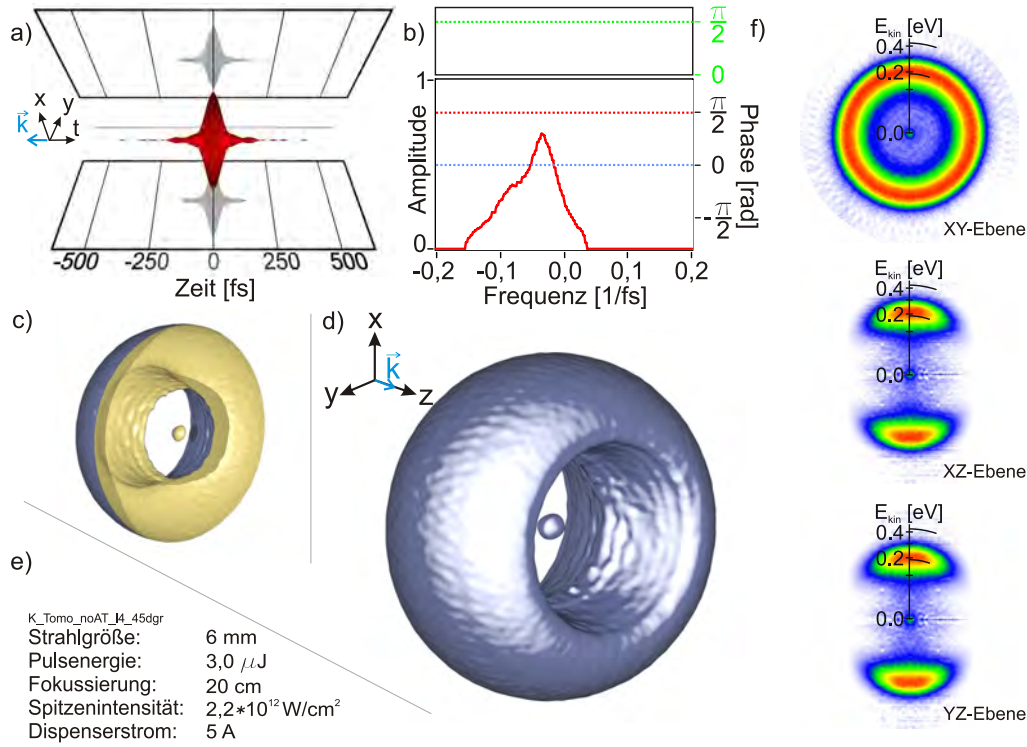
## KAPITEL 6. KOHÄRENTE KONTROLLE DREIDIMENSIONALER ELEKTRONEN-WELLENPAKETE



**Abbildung 6.4:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit elliptisch polarisierten Laserpuls (λ/4-Wellenplatte unter einem Winkel von 22,5° zur Laserpolarisation).

Die in Abbildung 6.5 gezeigte Messung mit zirkular polarisierten Laserpuls zeigt das gleiche Spektrum wie in Abbildung 6.1 in beiden diagonalen Ebenen, da hier keine Energieumverteilung zwischen den beiden Ebenen stattfindet, sondern die Wellenplatte ausschließlich eine Phase von  $\pi/2$  zwischen den beiden senkrecht zueinander stehenden elektrischen Feldern einführt (siehe Abbildung 6.5b). Der damit adressierte Endzustand ist der  $|f, \pm 3\rangle$ -Welle zuzuordnen (+ oder – abhängig davon ob links- oder rechtszirkular).

Insgesamt zeigen diese Messungen sehr deutlich, dass das Anregungsschema (siehe Abbildung 4.4) der 1+2 REMPI von Kalium sehr abhängig von der Elliptizität der Laserpulse ist. Durch Variation des Winkels der λ/4-Wellenplatte wird die Superposition der finalen  $\Delta m$ -Unterzustände beeinflusst, da mit der λ/4-Wellenplatte nicht nur die Phase zwischen den beiden zirkularen Komponenten  $\mathcal{E}_L$  und  $\mathcal{E}_R$  variiert wird, sondern auch die Amplituden der beiden Komponenten.



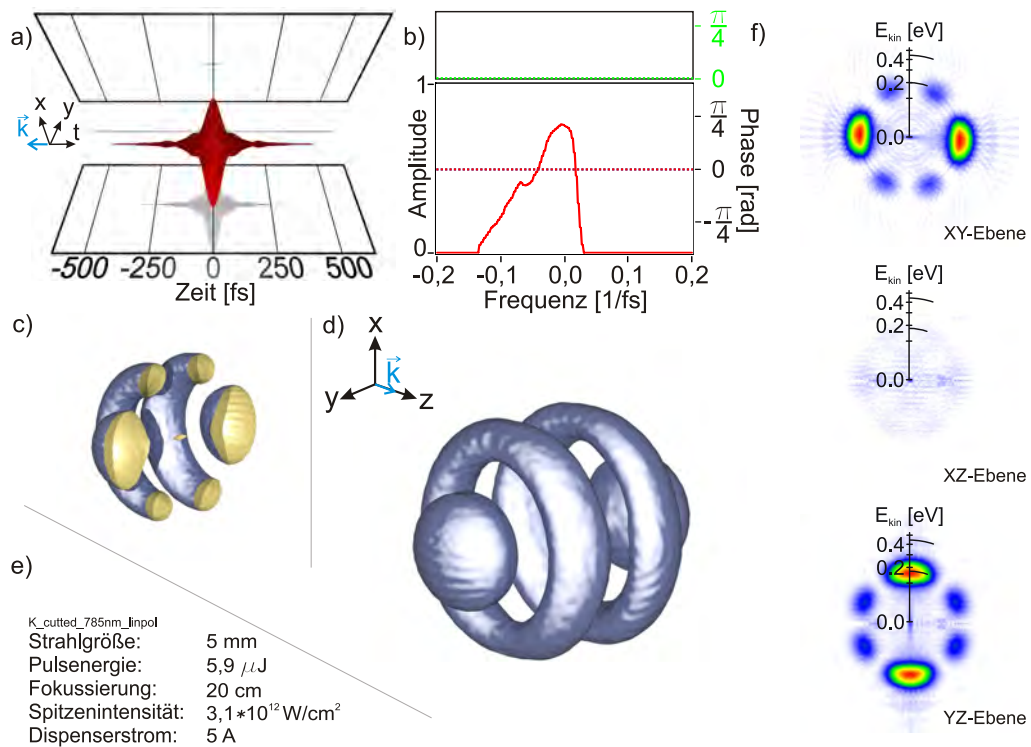
**Abbildung 6.5:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit zirkular polarisierten Laserpulsen ( $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel von  $45^\circ$  zur Laserpolarisation).

Auf der Poincaré-Oberfläche (siehe Abbildung 4.2) können mit einer  $\lambda/4$ -Wellenplatte lediglich die Diagonalen unter  $45^\circ$ , die durch die 0 gehen, erreicht werden. Dies ist bei Verwendung einer  $\lambda/4$ -Platte natürlich auch nur für alle Wellenlängen gleichzeitig möglich, was das Maß an Kontrolle wiederum einschränkt. Dennoch sind die mit elliptisch polarisierten Laserpulsen erzeugten Photoelektronen-Winkelverteilungen ein gutes Beispiel für das Maß der Kontrolle der dreidimensionalen Wellenfunktion der auslaufenden Photoelektronen-Wellenpakete.

Neben der Kontrolle der Photoelektronen-Winkelverteilung wurde insbesondere die Anregung des  $4p \leftarrow 4s$ -Übergangs in Kalium mit zirkular polarisierten Laserpuls im Rahmen von zirkularen Ringströmen in Atomen diskutiert [2].

## 6.2 Kontrolle durch das Anregungsspektrum

Im Kapitel 6.1 wurden mit Hilfe einer  $\lambda/4$ -Wellenplatte elliptisch polarisierte Laserpulse präpariert, um Kalium anzuregen und zu ionisieren.



**Abbildung 6.6:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit linear polarisierten Laserpulsen ( $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel von  $0^\circ$  zur Laserpolarisation).

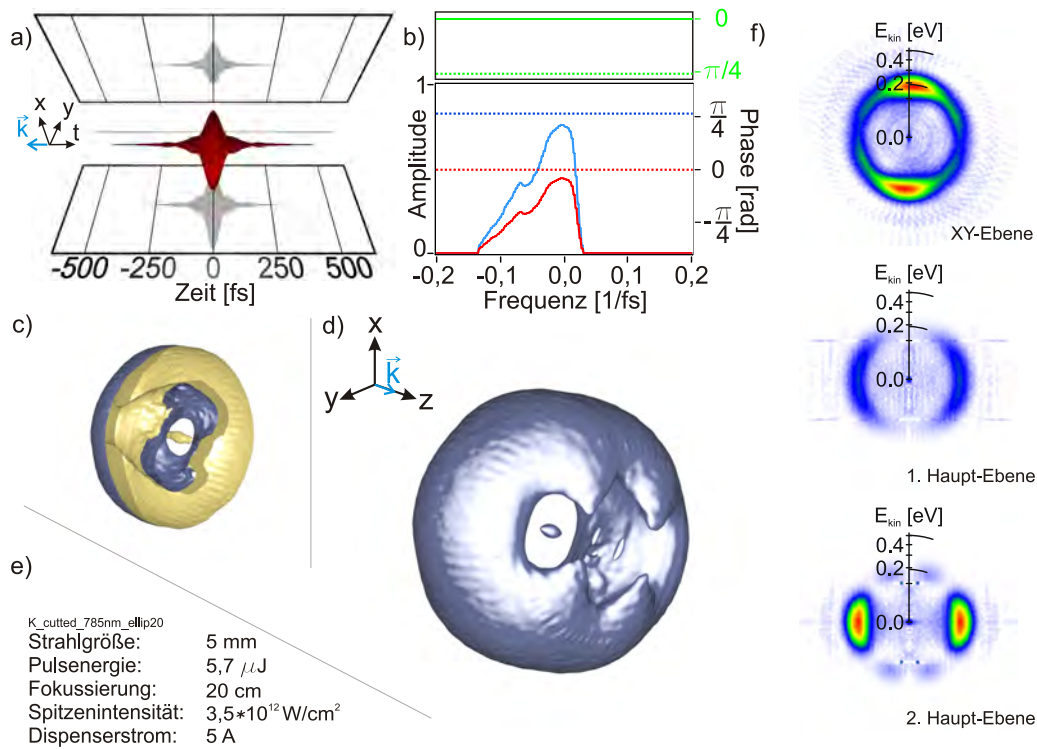
Bei den Messungen in diesem Kapitel soll der Unterschied zwischen Anregung und Ionisation mit beschnittenem Spektrum gegenüber vollständigem Spektrum gezeigt werden. Hier wurde das Spektrum nicht im Prismenkompressor sondern im Polarisationsformer eingeschränkt. Im Polarisationsformer gibt es verschiedene Stellen, an denen das Spektrum beschnitten werden kann. Am schärfsten separiert sind die einzelnen Spektralkomponenten direkt in der Fourierebene, jedoch wählt man meist eine andere Stelle, da Spektren, die sehr steil abfallen, zu Vor- und Nachpulsen führen können, wie etwa *sinc*-artige Strukturen<sup>3</sup> in der zeitlichen Pulsform. Um dies zu unterdrücken, wird das Spektrum am Ort der Zylinderspiegel

<sup>3</sup>*sinc*-artig, da Fourier-Transformierte von Rechteckfunktion die *sinc*-Funktion ist [90].



beschnitten (siehe Kapitel 5.4.1), was zu einem nicht zu steil abfallenden Spektrum führt<sup>4</sup>.

In der ersten Messung sieht man direkt den Effekt des schärferen Schnitts, da das Spektrum sehr schnell abfällt (siehe Abbildung 6.6b). Gleichzeitig kann man an der zeitlichen Struktur schon Nebenmaxima am Hauptpuls sehen, die auf das geschnittene Spektrum zurückzuführen sind. Bei dem in Abbildung 6.1 gezeigten sanft geschnittenen Spektrum sind diese Flügel dagegen nur sehr schwach ausgeprägt. Die in Abbildung 6.6 gezeigte Messung ist vergleichbar mit der in Abbildung 6.1 gezeigten Messung. Zusätzlich wurde auch die Photoelektronen-Winkelverteilung von elliptisch polarisierten Laserpulsen gleicher Intensität gemessen, um im folgenden einen Vergleich ziehen zu können.

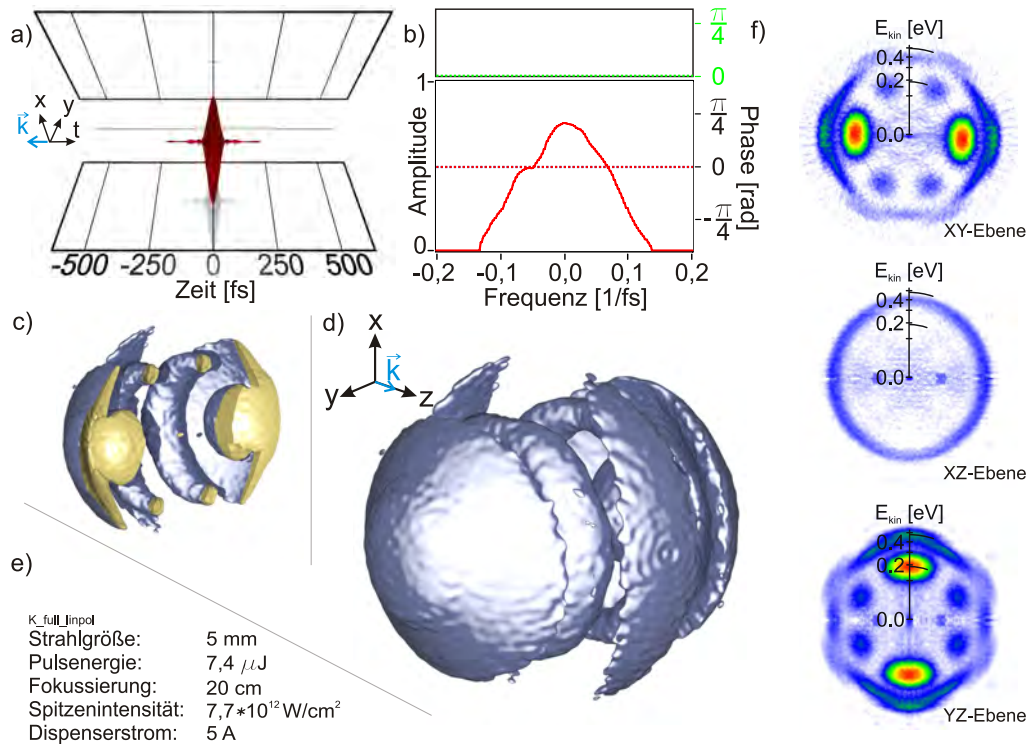


**Abbildung 6.7:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit elliptisch polarisierten Laserpulsen ( $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel von  $20^\circ$  zur Laserpolarisation).

<sup>4</sup>Wichtig bei der Beschneidung der Spektren ist immer der Durchmesser der einzelnen Spektralkomponenten an der Stelle des Schnitts. Große Durchmesser der Spektralkomponenten führen zu sanften Übergängen (Prismenkompressor) - Kleine Durchmesser der Spektralkomponenten zu harten Übergängen (Fourierebene)

## KAPITEL 6. KOHÄRENTE KONTROLLE DREIDIMENSIONALER ELEKTRONEN-WELLENPAKETE

Auch hier (siehe Abbildung 6.7) führen die verwendeten elliptisch polarisierten Laserpulse zu Photoelektronen mit einer Winkelverteilung, die aus einer Superposition von den verschiedenen  $\Delta m$ -Unterzuständen besteht. Man beachte die unterschiedliche Richtung, in die die Wellenplatte gedreht wurde bei der Messung in Abbildung 6.7 und Abbildung 6.4, die zu unterschiedlichen Ausrichtungen der Elektronenwellen führen. Verwendet man hingegen das gesamte Spektrum, dass das Lasersystem zur Verfügung stellt, so sieht die Photoelektronen-Winkelverteilung deutlich anders aus (siehe Abbildung 6.8 und 6.9).



**Abbildung 6.8:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit linear polarisierten Laserpulsen und dem gesamten Spektrum des Lasersystems ( $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel von  $0^\circ$  zur Laserpolarisation).

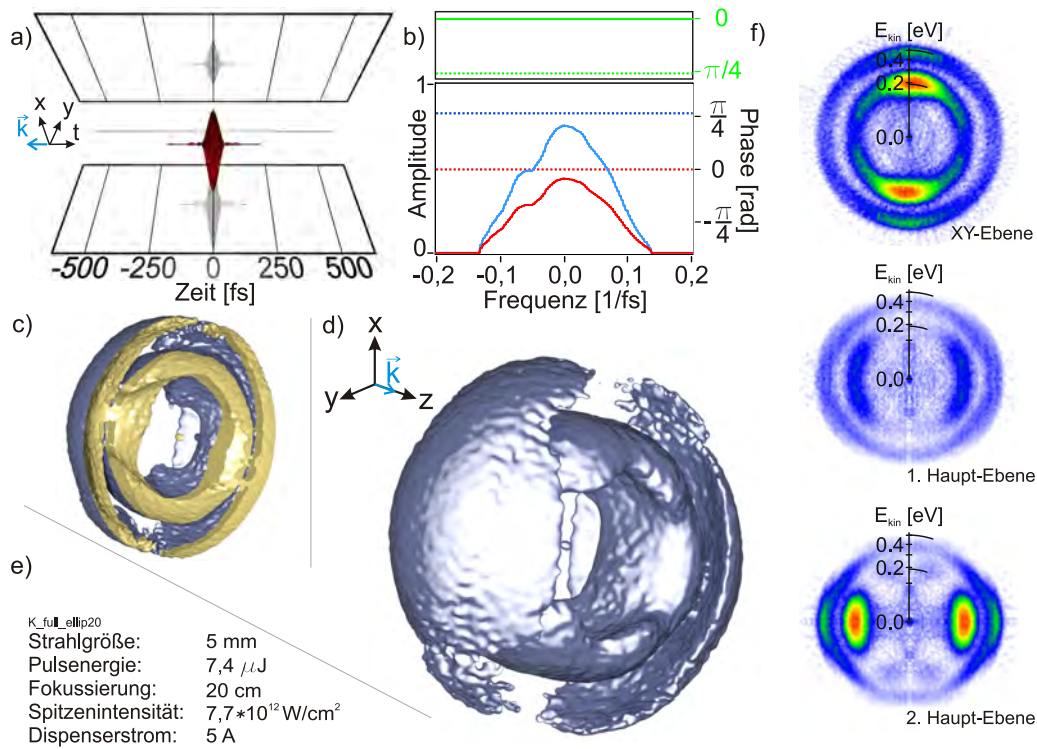
In Abbildung 6.8 ist zu erkennen, dass das gesamte Spektrum in erster Linie zu kürzeren Laserpulsen führt, die zudem fast gaussförmig sind. Daneben ist jedoch die Photoelektronen-Winkelverteilung deutlich strukturierter geworden. Betrachtet man den inneren Teil der dreidimensionalen Winkelverteilung, so kann man bei niedrigen kinetischen Energien, also kleinen Radien, noch deutlich die  $|f, 0\rangle$ -Symmetrie erkennen. Die Maxima entlang der  $y$ -Achse haben nun eine Art "Mütze"



bekommen, die zusammen mit konzentrisch um die  $y$ -Achse verlaufenden ringartigen Strukturen auftreten. Zusätzlich ist die hochenergetische AT-Komponente eher schwach ausgeprägt (siehe YZ-Schnitt in Abbildung 6.8f).

Der Ursprung dieser Art der Winkelverteilung ist zur Zeit noch ungeklärt, jedoch weisen verschiedene Überlegungen auf eine Beteiligung nichtresonanter Zustände hin, sowie die Beachtung der verschiedenen Anregungskanäle innerhalb des Kalium-Atoms im Starkfeld. Die in Kapitel 4.2 beschriebene Methode adressiert lediglich die Anregung von  $4p \leftarrow 4s$  sowie die Ionisation über virtuelle  $d$ -Zustände in Elektronen mit  $|f, 0\rangle$ -Symmetrie. Eine Ionisation über virtuelle  $s$ - und  $d$ -Zustände zu  $p$ -Wellen wird noch vernachlässigt, ebenso wie der Spin der Elektronen. In Kapitel 6.3 werden die in Abbildung 6.8 gezeigten Strukturen bei verschiedenen Intensitäten gezeigt.

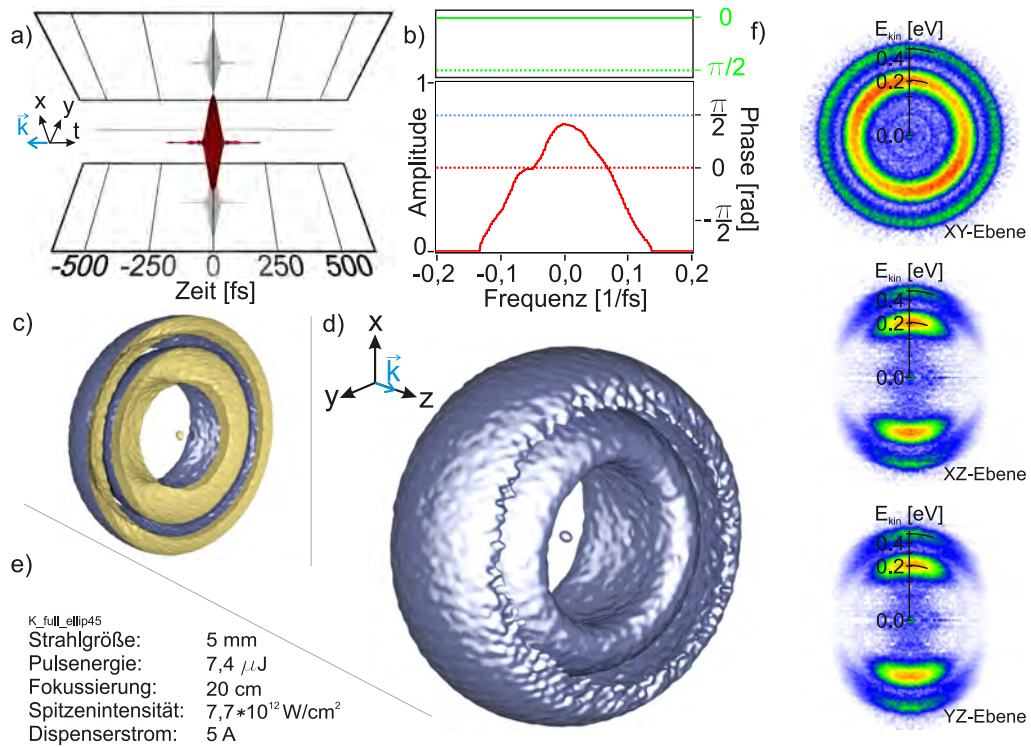
Verändert man nun hier auch die Elliptizität, so werden zunehmend die beiden AT-Komponenten angeregt, wie man anhand der Energien der einzelnen Strukturen in den Schnittbildern erkennen kann (siehe Abbildung 6.9f).



**Abbildung 6.9:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit elliptisch polarisierten Laserpulsen und dem gesamten Spektrum des Lasersystems ( $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel von  $20^\circ$  zur Laserpolarisation).

## KAPITEL 6. KOHÄRENTE KONTROLLE DREIDIMENSIONALER ELEKTRONEN-WELLENPAKETE

Im Inneren ist die sich verändernde  $f$ -Welle zu erkennen, während außen eine Superposition von den “Mützen”-artigen Strukturen, die langsam verschwinden und der sich ausbildenden hochenergetischen AT-Komponente erzeugt wird. Bei der abschließenden Messung (siehe Abbildung 6.10 -  $\lambda/4$  bei  $45^\circ$ ) ist nun in erster Linie die Anregung zu  $|f, \pm 3\rangle$ -Wellen zu erkennen, wobei in der energetischen Struktur die hochenergetische AT-Komponente ebenso wie die niederenergetische AT-Komponente als Tori unterschiedlicher Radien zu erkennen sind.

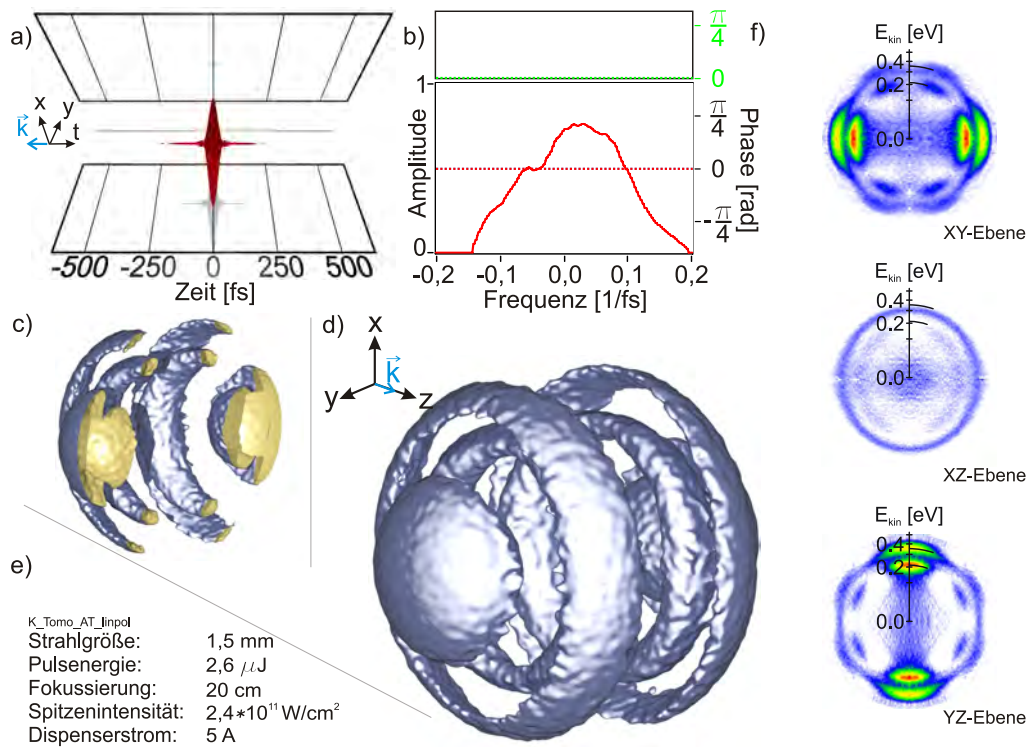


**Abbildung 6.10:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit zirkular polarisierten Laserpulsen und dem gesamten Spektrum des Lasersystems ( $\lambda/4$ -Wellenplatte unter einem Winkel von  $45^\circ$  zur Laserpolarisation).

Insgesamt konnte gezeigt werden, dass mit Hilfe einer einfachen Art der spektralen Amplitudenformung die unterschiedlichen Anregungen zu den verschiedenen Zuständen und den beiden AT-Komponenten unterdrückt wurden. Auf der anderen Seite bietet aber ein breites Spektrum, das um die Anregungsfrequenz des atomaren Systems zur Verfügung steht, deutlich mehr Kanäle in der Anregung verschiedener Zustände und somit auch Photoelektronen bei unterschiedlichen Energien. Durch

Manipulation des Spektrums kann also die Anregung effizient kontrolliert werden. Im nächsten Kapitel wird nun gezeigt, wie durch Variation der Energie nicht nur andere Zustände besetzt werden, sondern auch die AT-Komponenten verschoben werden können.

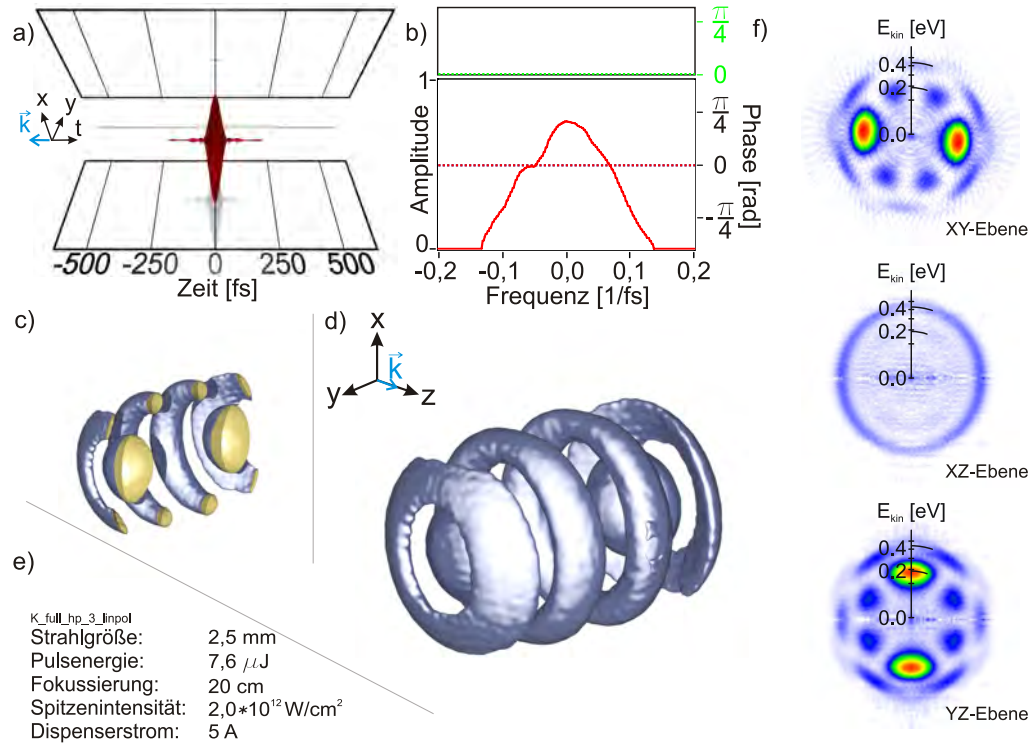
### 6.3 Kontrolle durch Intensität



**Abbildung 6.11:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit linear polarisierten Laserpulsen bei etwa  $2,4 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ .

In diesem Kapitel wird mit *linear* polarisierten Laserpulsen unterschiedlicher Energien und unterschiedlicher Fokussierung gezeigt, wie die gemessenen Photoelektronen-Winkelverteilungen von der Intensität abhängen. Da diese Effekte sehr phasensensitiv sind, wurde für alle gezeigten Experimente eine Restphasenkompensation durchgeführt, vergleichbar mit der in Kapitel 2.4 beschriebenen Methode.

## KAPITEL 6. KOHÄRENTE KONTROLLE DREIDIMENSIONALER ELEKTRONEN-WELLENPAKETE

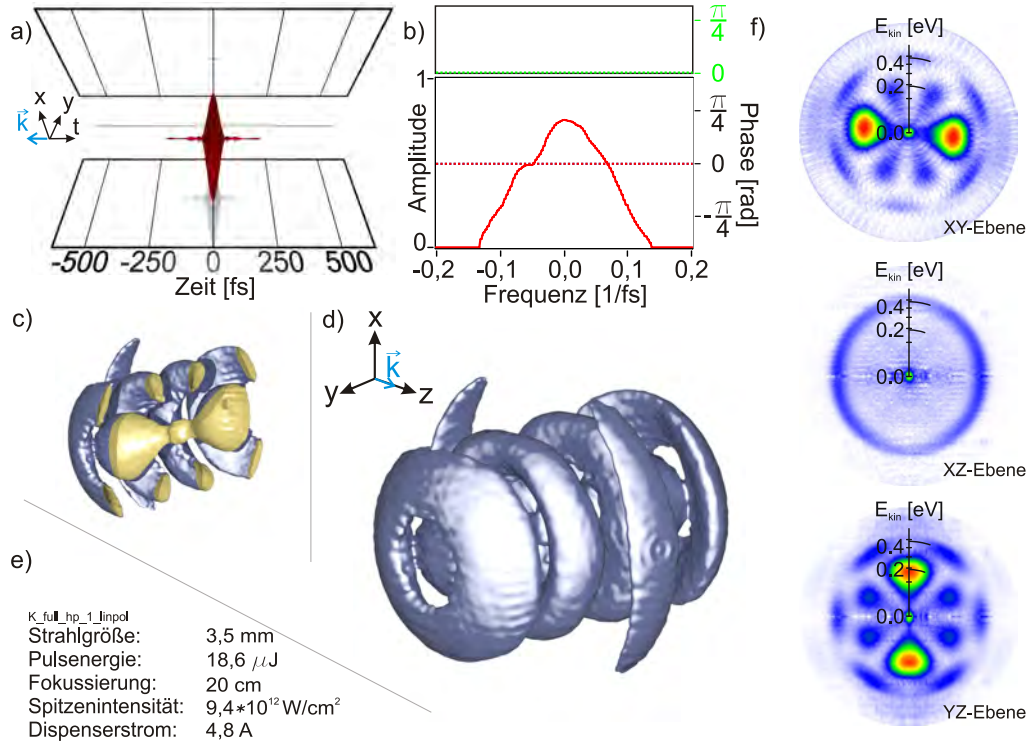


**Abbildung 6.12:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit linear polarisierten Laserpulsen bei etwa  $2,0 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ .

In Abbildung 6.11 wird zunächst eine verhältnismäßig kleine Intensität (etwa  $2,4 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ) verwendet, die jedoch bereits deutliche AT-Aufspaltung zeigt. Im Schnitt (siehe Abbildung 6.11f) sind diese sehr gut zu erkennen, da die beiden AT-Komponenten in Form zweier ineinanderliegender  $|f, 0\rangle$ -Wellen erscheinen. Erhöht man nun die Intensität um den Faktor zehn, so wandert die hochenergetische AT-Komponente weit nach außen zu höheren Energien und wird deutlich schwächer. In Abbildung 6.12d ist sie aufgrund des gewählten Schwellwertes für die Iso-Oberfläche nicht mehr zu erkennen. In Abbildung 6.12f kann man sie jedoch noch gut erkennen. Zusätzlich ist eine neue Struktur in Form eines Rings zu erkennen, der außen auf die Maxima entlang der  $y$ -Achse aufgesetzt zu sein scheint. Diese Struktur, die in ähnlicher Form bereits bei Veröffentlichungen [2] bzw. in der Einleitung zu Kapitel 6 gezeigt wurde, ist hier ausschließlich durch einen bandbreitenlimitierten Laserpuls generiert worden. An anderer Stelle wurde hierfür eine V-Phase (siehe Kapitel 1.2.2) angelegt. Neben dieser Struktur kann man erkennen, dass die niederenergetische AT-Komponente zu niedrigeren Radien zusammenschrumpft. Dies wird in der folgenden Messung nochmals umso deutlicher, da hier die niederenergetische AT-Komponente bereits den Nullpunkt



erreicht.

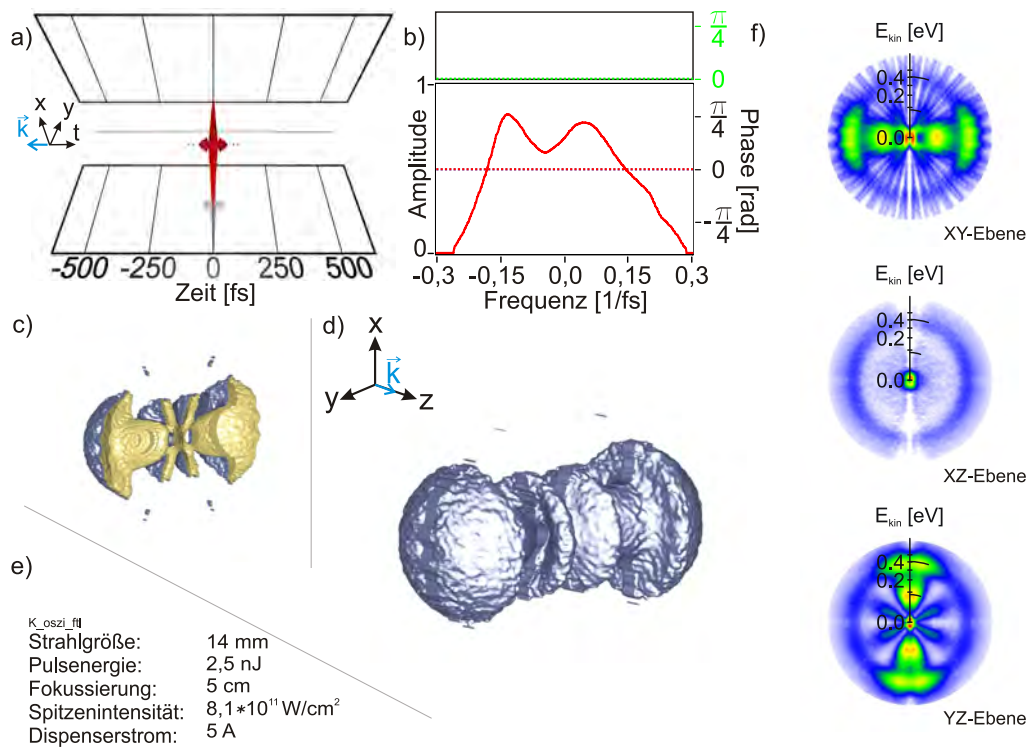


**Abbildung 6.13:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit linear polarisierten Laserpulsen bei etwa  $9,4 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ .

Hierbei sind jedoch verschiedene bei so hohen Intensitäten auftretende Effekte zu beachten. Zum einen ist hier bereits im Nullpunkt eine kleine Menge von Photoelektronen mit nahezu keiner kinetischen Energie zu erkennen. Diese Photoelektronen kommen in Messungen bei sehr hohen Intensitäten immer vor und wurden mit Hilfe der Methode zur “time-of-flight-Massenselektion” der Ionisation von Wassermolekülen zugeordnet, die trotz der Kühlfalle noch im Vakuum vorhanden sind (Druck von etwa  $1,5 \cdot 10^{-7} \text{ mbar}$ ). Zum anderen ist bei solch hohen Intensitäten und den damit verbundenen Feldstärken auch die Tunnelionisation nicht mehr zu vernachlässigen. Unterscheiden kann man diese Tunnel-Ionisations-Elektronen oder bei noch höheren Feldstärken “Above-barrier”-Elektronen durch ihre Emissionsrichtung, die immer entlang des E-Feld Vektors (hier also die y-Achse) liegt. Vergleichbare Erkenntnisse wurden bereits von Helm et al. in [15] beschrieben. Dies erklärt die tropfenförmige Ausbildung der Maxima zum Ursprung hin, während die Ringe der  $|f, 0\rangle$ -Welle nur etwas zur Mitte hin verbreitert sind, da sie nicht in Richtung des E-Felds liegen (siehe auch Abbildung 6.13f).

### 6.3.1 Messung mit Oszillator

Etwas abgesetzt von den zuvor beschriebenen Messungen soll hier auch eine komplett unterschiedliche Möglichkeit angesprochen werden, Experimente im Abbildenden Spektrometer zu machen. Neben dem im Kapitel 2.2 beschriebenen Verstärkersystem wurde auch der fs-Oszillator (siehe Kapitel 2.1.2) für Messungen verwendet. Wie in Kapitel 1.3 bereits erwähnt, ist die Repetitionsrate der verwendeten Laserstrahlung für das Abbildende Spektrometer nicht von Bedeutung.



**Abbildung 6.14:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit linear polarisierten Laserpulsen des fs-Oszillator-Systems bei etwa  $8,1 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ .

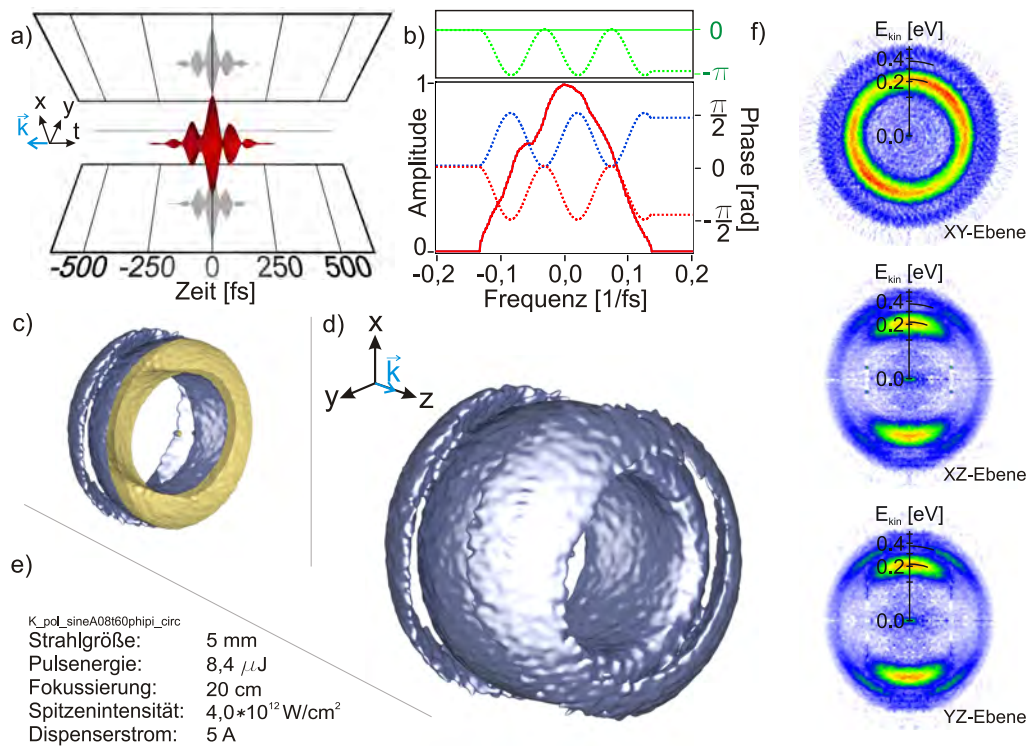
Lediglich die Intensität der Laserstrahlung ist wichtig, um Photoelektronen zu erzeugen. Mit den in der Arbeitsgruppe zur Verfügung stehenden “Chirped-Mirrors” wurde der Oszillator bestmöglich vorkompensiert und in die Anlage gebracht. Im Fokus hatte der Laserpuls die kürzeste Pulsdauer, was aber nicht wie bei den anderen Methoden überprüft werden konnte. Daher kann die genaue Pulsdauer nicht

angegeben werden. Um zu testen, ob man die maximale Kompression der Laserpulse hatte, wurden verschieden viele Reflektionen auf den “Chirped-Mirrors” getestet und die Anzahl an Reflektionen gewählt, bei der das Signal der Photoelektronen bei gleicher Leistung maximal war (hier: 12 Reflexionen). Die mit diesem Aufbau gemessene Photoelektronen-Winkelverteilung ist in Abbildung 6.14 gezeigt. Die sehr komplexe Struktur der Photoelektronen-Winkelverteilung rührt von dem erheblich breiteren Spektrum her, das die 11 fs Laserpulse möglich macht. Viele unterschiedliche Zustände können mit derart breiten Spektren angeregt werden. Ein Nachteil der Messung mit dem Oszillator jedoch war die sehr geringe Anzahl von Photoelektronen, die bei dieser Messung erzeugt wurden. Dadurch ist das Signal zu Rausch-Verhältnis der Rekonstruktion nicht besonders gut, was insbesondere in den Schnittbildern (vergleiche Abbildung 6.14f) deutlich wird, da hier Artefakte der tomografischen Rekonstruktion zu erkennen sind. Allerdings zeigt dieses sehr komplexe dreidimensionale Objekt, dass der Tomographie-Algorithmus auch für solch komplexe Objekte geeignet ist. Eine Verwendung des Oszillator-Systems zusammen mit Polarisationsformung ist aufgrund der geringen Pulsenergie, die an der Anlage zur Verfügung stand, noch nicht möglich gewesen. Die Verluste traten sowohl an den verschiedenen zum Experiment führenden Spiegeln auf, als auch an dem Polarisationsformer, der nicht auf das breite Spektrum des Oszillators abgestimmt ist. Mit einem Lasersystem, das höhere Pulsenergien bei etwa gleich breitem Spektrum zur Verfügung stellt und einem abgestimmten Polarisationsformer, wäre eine Verwendung dieser Laserpulse im Abbildenden Spektrometers durchaus vielversprechend.

Insgesamt konnte man sehen, dass die Intensität ein wichtiger Kontrollparameter bei der Anregung und der Ionisation der Kalium-Atome darstellt. Die unterschiedlichen Anregungskanäle und die breiten Spektren führen zu vielen unterschiedlichen Anregungsszenarien, die wiederum zu sehr komplex strukturierten Photoelektronen-Winkelverteilungen führen.

## 6.4 Kontrolle durch Polarisationsformung

In diesem Kapitel werden polarisationsgeformte Laserpulse verwendet, um Kalium-Atome kontrolliert anzuregen und zu ionisieren. Bei der Polarisationsformung, bei der auch Phasenformung eine Rolle spielt, kann mit entsprechenden Phasenfunktionen auch die Spitzenintensität kontrolliert werden. Somit ist auch dieser Parameter bei der Kontrolle der dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilungen sehr wichtig.



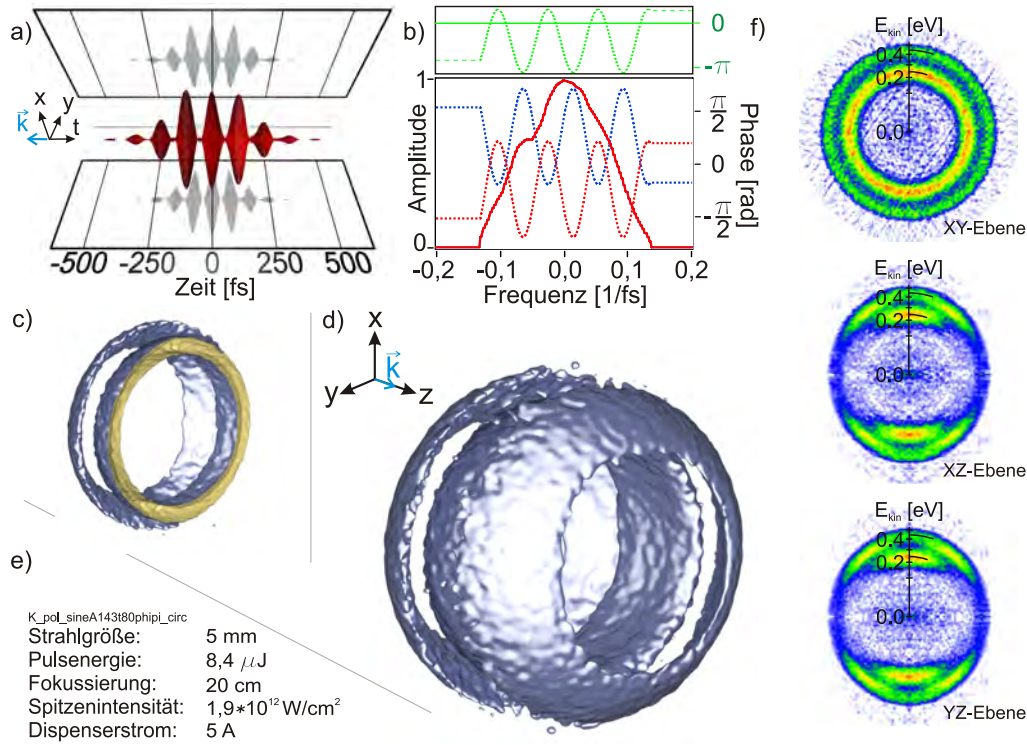
**Abbildung 6.15:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen.

Die ersten beiden Beispiele der in diesem Kapitel gezeigten fünf Beispiele verwenden eine Sinusfunktion auf jedem der beiden Displays, die jeweils einen Phasenunterschied von  $\pi$  haben, also Maximum auf Minimum und Minimum auf Maximum der Phasenfunktionen trifft und zusätzlich einen absoluten Phasenunterschied von  $\pi/2$  haben (siehe Abbildung 6.15a). Dies führt zu einer Pulssequenz (siehe Kapitel 1.2.2) bei der der Haupt-Pulse beispielsweise links-zirkular ist und die beiden



Vor- und Nach-Pulse rechtszirkular sind, also insgesamt sich die Elliptizität von Sub-Puls zu Sub-Puls ständig zwischen links- und rechtszirkular ändert. Diese Art der Pulssequenz führt in dem in Kapitel 4.2 beschriebenen Anregungsschema zu deutlichen Asymmetrien zwischen den  $\Delta m$ -Unterzuständen. Bei kleinen Vor- bzw. Nach-Pulsen (Amplitude Vor-Puls zu Haupt-Puls  $\approx 0,5$ ) wird die in Abbildung 6.15 gezeigte Photoelektronen-Winkelverteilung gemessen.

Man kann den Torus im Inneren erkennen, der seitlich von zwei weiteren Tori bei etwas größeren kinetischen Energien eingeschlossen wird (siehe auch Schnitte 6.15f). Diese Art der Elektronen-Interferenz tritt bei der Anregung mit verschiedenen zirkular polarisiertem Licht auf. Verantwortlich dafür sind die zeitlichen Phasen der einzelnen Sub-Pulse und deren Amplituden.

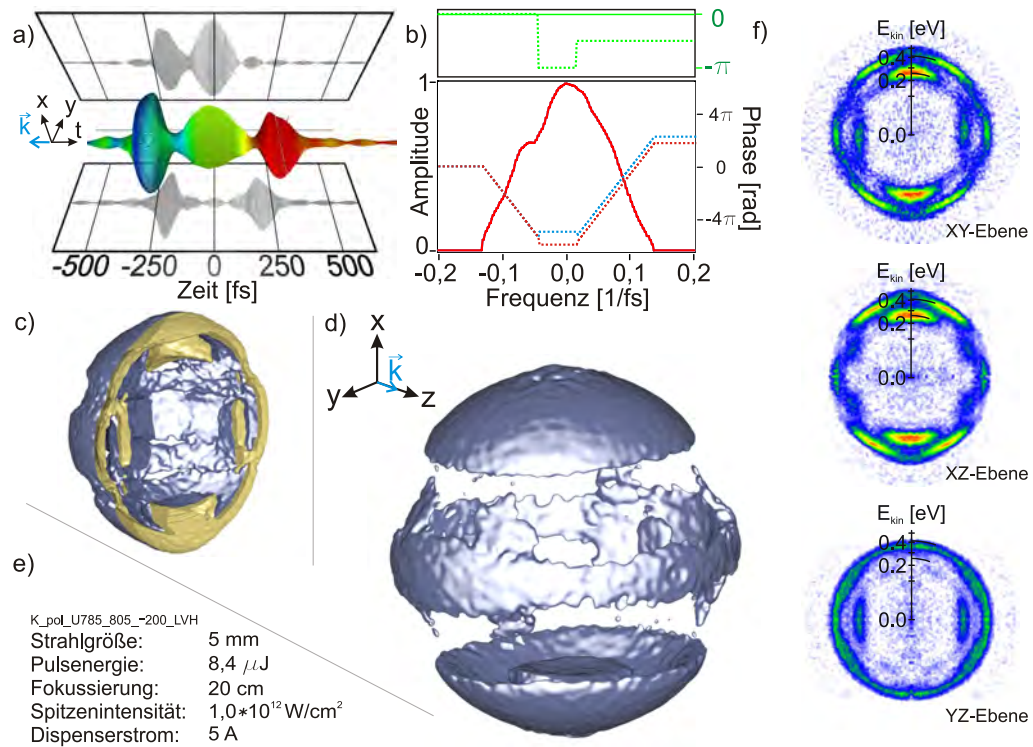


**Abbildung 6.16:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen.

Eine vergleichbare Photoelektronen-Winkelverteilung mit etwas anderen Proportionen ist in Abbildung 6.16 gezeigt. Die hier erzeugte Mehrfach-Pulssequenz mit drei etwa gleich starken Laserpulsen erzeugt einen etwas schmaleren inneren Torus, der aber ebenso wie die Messung in Abbildung 6.15 von zwei seitlich aufgesetzten Tori begleitet wird. Diese Struktur wird ebenso wie die in Abbildung 6.15 gezeigte

## KAPITEL 6. KOHÄRENTE KONTROLLE DREIDIMENSIONALER ELEKTRONEN-WELLENPAKETE

Struktur durch die räumliche Interferenz freier Elektronenwellenpakete erzeugt.



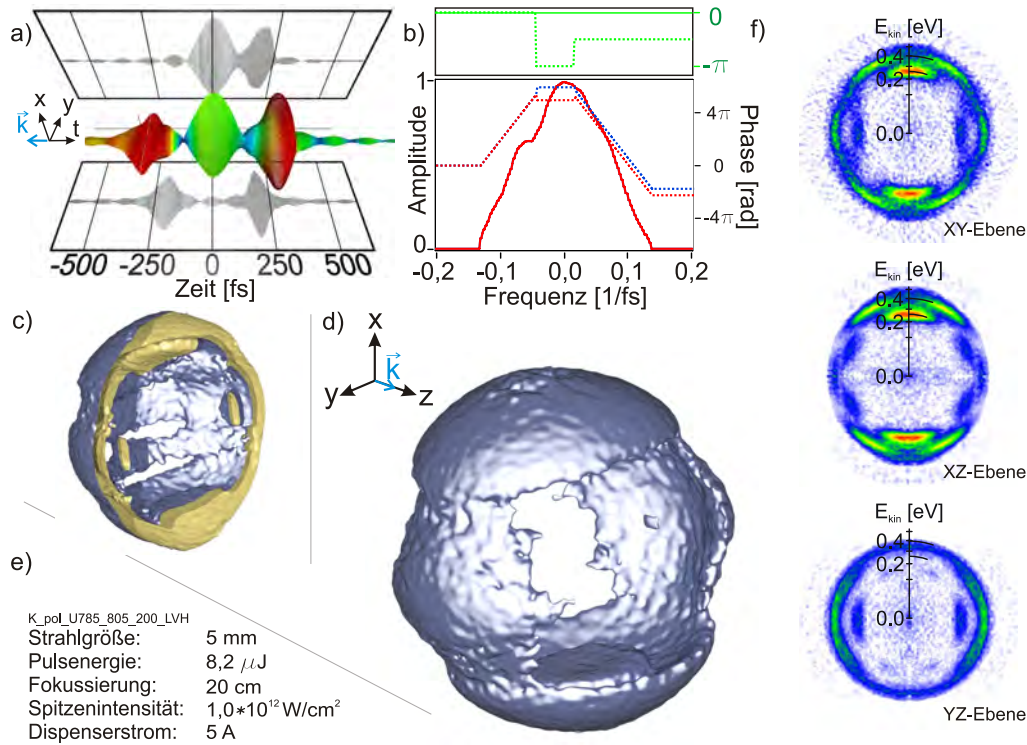
**Abbildung 6.17:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen.

Alternativ zu den Pulssequenzen durch Sinusfunktionen wurde im Kapitel 4.1.2 die Erzeugung von Pulssequenzen durch die U-Phase gezeigt. Die beiden folgenden Messungen zeigen zwei Beispiele dieser Pulse. In Abbildung 6.17 ist eine U-Phase mit einem Pulsabstand von jeweils 200 fs gezeigt, bei dem die blauen Spektralanteile des Pulses zuerst und die roten Spektralanteile des Pulses am Ende kommen. Zusätzlich ist der Vor-Puls links-zirkular, der Hauptpuls entlang der  $x$ -Achse linear und der Nach-Puls entlang der  $y$ -Achse linear polarisiert.

Die erzeugte Photoelektronen-Winkelverteilung ist sehr komplex strukturiert und besteht größtenteils aus den in Kapitel 6.2 gezeigten Strukturen mit dem Hauptsignal an den Polen mit vielen Substrukturen.

Um etwas über diese Strukturen zu lernen, wird alternativ noch die zeitlich-invertierte Version dieses polarisationsgeformten Laserpulses verwendet. Dieser ist in Abbildung 6.18 gezeigt. Die etwa gleichen Sub-Pulse, die jetzt in umgekehrter Reihenfolge mit dem atomaren System interagieren, erzeugen eine leicht unter-

schiedliche Photoelektronen-Winkelverteilung.

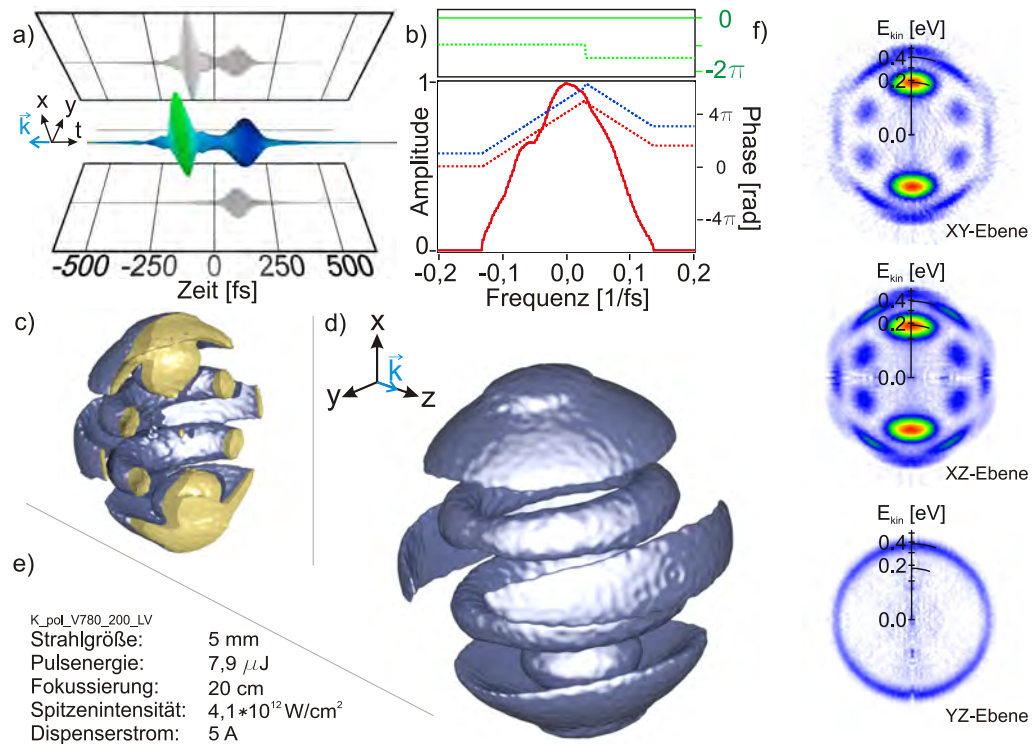


**Abbildung 6.18:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen.

Besonders im äußeren Bereich unterscheiden sich die beiden Photoelektronen-Winkelverteilungen. Während in Abbildung 6.17 die Struktur mit dem um die  $x$ -Achse verlaufenden Ring deutlich zu erkennen ist, ist in Abbildung 6.18 eine “Doppel-Mütze” entlang der  $y$ -Achse zu sehen.

In dem abschließenden Beispiel wird die in Kapitel 1.2.2 beschriebene V-Phase mit Polarisationsformung kombiniert. In Abbildung 6.19 ist die Messung mit polarisationsgeformten Laserpulsen gezeigt, die in zwei Sub-Pulse aufgespalten wurden und die jeweils eine unterschiedliche Polarisation erhalten haben.

## KAPITEL 6. KOHÄRENTE KONTROLLE DREIDIMENSIONALER ELEKTRONEN-WELLENPAKETE



**Abbildung 6.19:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen.

Hier wird ein starker Vor-Puls mit den roten Spektralkomponenten zur Anregung und Ionisation verwendet, während der folgende blaue Nach-Puls verhältnismäßig schwach ist. Daher ist der Haupteffekt durch den Vor-Puls gegeben und es kann deutlich die bereits in Kapitel 6.2 beschriebene Struktur mit starkem Signal an den Polen erkannt werden, mit dem Unterschied, dass auf der “Mütze” zusätzlich noch eine kleine Erhöhung zu erkennen ist, die in den anderen Messungen nicht gesehen wird.

In diesem Kapitel sind einige Beispiele von polarisationsgeformten Laserpulsen mit den von ihnen erzeugten Photoelektronen-Winkelverteilungen dargestellt worden, die zusammen gefasst darlegen, dass die Polarisationsformung neben den bereits diskutierten Methoden die größte Vielfalt aufweist. Weiterhin muss noch mehr Verständnisarbeit geleistet werden, um die erzeugten Photoelektronenverteilungen vollständig verstehen zu können.

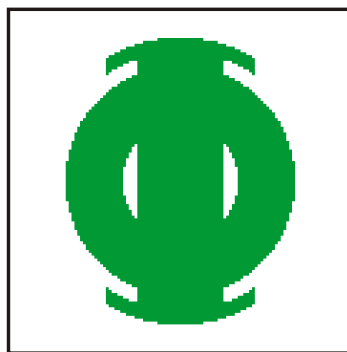
Um die unterschiedlichen Methoden zu kombinieren, wird in dem folgenden Kapitel mit evolutionärer Optimierung gezeigt, dass eine vordefinierte Projektion durch polarisationsgeformte Laserpulse erzeugt werden kann.

## 6.5 Evolutionäre Optimierung

In diesem Kapitel werden zwei Beispiele gezeigt, an denen deutlich wird, welches hohe Maß an Kontrolle über die dreidimensionale Photoelektronen-Verteilung die Verwendung von polarisationsgeformten Laserpulsen darstellt. Eine Kombination der polarisationsgeformten Laserpulse mit einer Optimierung, die auf einem selbstlernenden evolutionären Algorithmus (siehe Kapitel 2.4 und [33]) basiert, soll im folgenden zeigen, dass eine vorgegebene Ziel-Projektion, die beliebig geformt sein kann, als Optimierungsziel erreicht werden kann. Hierfür werden zwei Zielfunktionen definiert und von dem Algorithmus wird versucht, polarisationsgeformte Laserpulse zu finden, die bei der Anregung und Ionisation von Kalium Photoelektronen-Verteilungen erzeugen, deren Projektionen möglichst mit der Ziel-Projektion übereinstimmt. Im ersten Beispiel wird eine Maske in der Form des griechischen Buchstaben  $\Phi$  verwendet, auf die optimiert wird. Im zweiten Beispiel wird eine Intensitätsverteilung verwendet, die aus einer Kombination verschiedener alter Messungen besteht, die dann symmetrisiert und geglättet wurden, um eine Ziel-Projektion zu verwenden, die von den groben Abmessungen für die Optimierung überhaupt erreichbar wird.

### 6.5.1 Beispiel $\Phi$

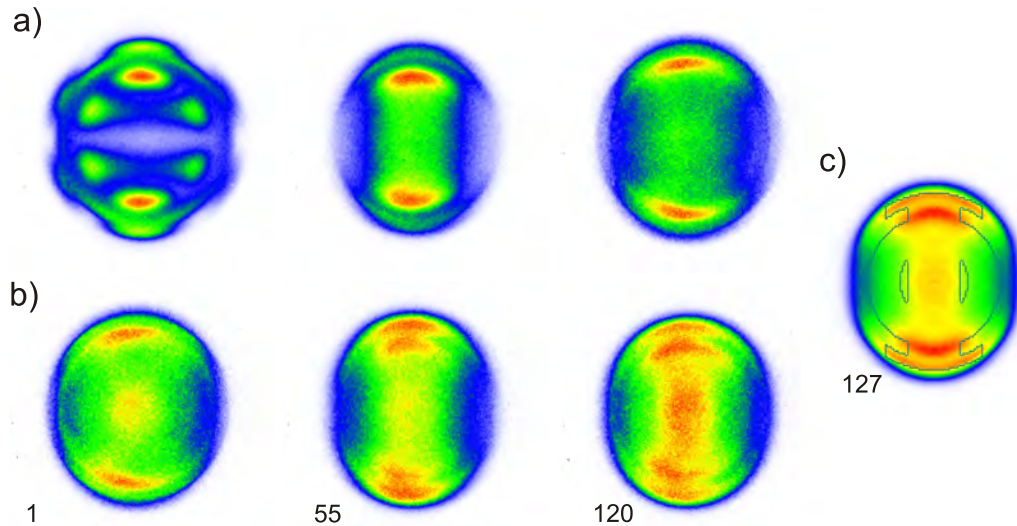
In diesem ersten Beispiel wird auf eine Ziel-Projektion hin optimiert, die wie der griechische Buchstabe  $\Phi$  aussieht. Die Ziel-Projektion ist in Abbildung 6.20 dargestellt.



**Abbildung 6.20:** Ziel-Projektion der Optimierung. Die unterschiedlichen Bereiche wie mittlerer Ring, Mittelbereich und oberer und unterer Bogen können mit unterschiedlicher Gewichtung in die Optimierung einfließen.



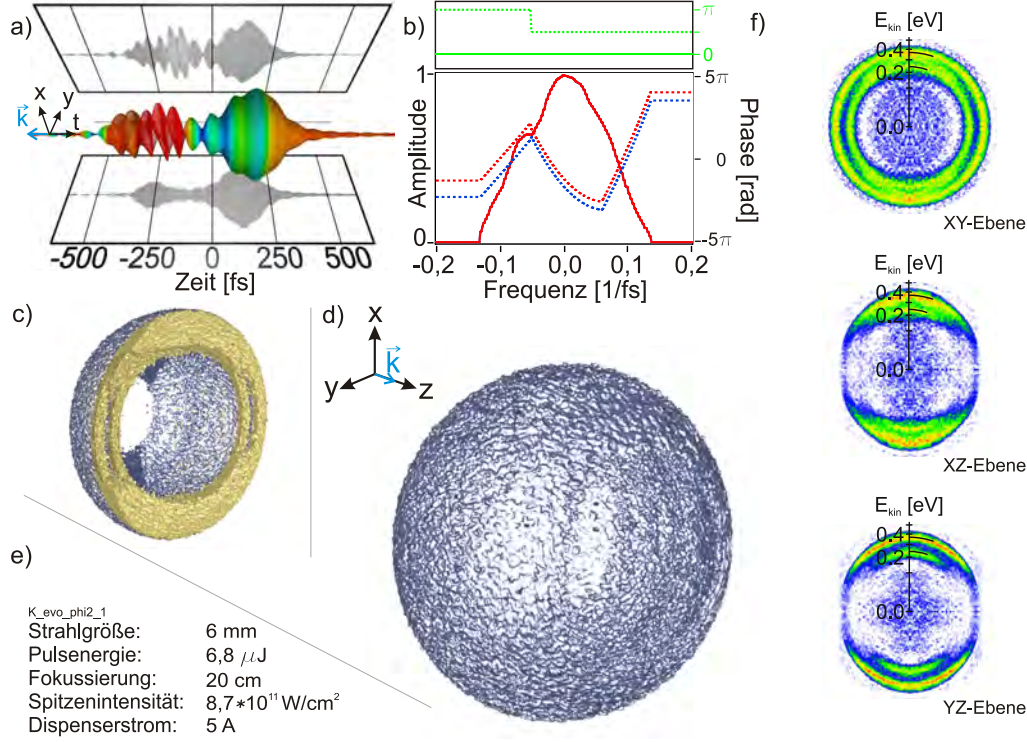
Diese Ziel-Projektion kann mit unterschiedlicher Gewichtung für die verschiedenen Bereiche optimiert werden. Anhand verschiedener Messungen werden diese Wichtungparameter eingestellt und schließlich die Optimierung gestartet. Da jede Messung eines Individuums mit geringer Auflösung immer noch etwa 30 Sekunden dauert, ist die Evolution nur für etwa 150 Individuen durchgeführt worden. Die in Abbildung 6.21 gezeigten Individuen sind dieser Evolution entnommen.



**Abbildung 6.21:** Durch polarisationsgeformte Laserpulse erzeugte Projektionen, deren Parameter aus der evolutionären Optimierung auf die in Abbildung 6.20 gezeigte Ziel-Projektion erhalten wurden. (a) zeigt drei Individuen der Startpopulation, die zufällig generiert wurden. In (b) ist die zunehmende Optimierung anhand von drei Individuen zu erkennen (siehe Nummer), die schließlich in der in (c) gezeigten Projektion mündet. Zusätzlich ist in (c) die Ziel-Projektion als Umriss eingezeichnet, die zeigt, dass das Ziel nicht perfekt, aber dennoch sehr gut erfüllt wurde.

Man erkennt an den verschiedenen Messungen schnell, dass sowohl das Signal-zu-Rausch Verhältnis, als auch die Symmetrie in dieser Messung nicht optimal war, da stets ein Kompromiss zwischen kurzer Messzeit und somit vielen Individuen oder hoch-qualitativen Bildern und sehr langen Messzeiten für die Evolutionen gefunden werden muss. Die leichte Asymmetrie in einigen Bildern wird durch eine nicht perfekte Justage des Fokus innerhalb der Elektroden verursacht. Das in der Optimierung gefundene beste Individuum, sowie das zweitbeste Individuum wurden anschließend bei gleichen experimentellen Parametern tomographisch vermessen, um zusätzlich die dreidimensionale Photoelektronenverteilung zu erhalten. In der üblichen Schema-Darstellung wurde auch diese tomographische Rekonstruktion

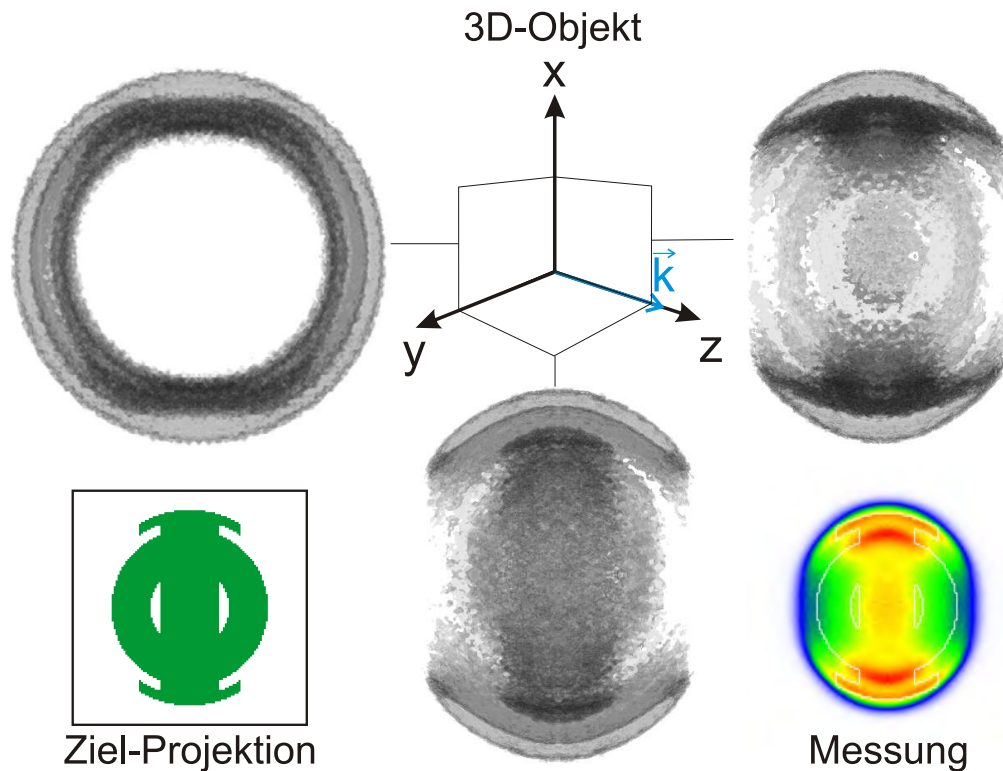
dargestellt (siehe Abbildung 6.22).



**Abbildung 6.22:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen, deren Parameter aus der evolutionären Optimierung auf die in Abbildung 6.20 gezeigte Ziel-Projektion erhalten wurde.

An dieser Abbildung wird deutlich, dass die Photoelektronen-Winkelverteilung primär aus einem Ring besteht, der eine komplexe Sub-Struktur hat. Auf der Außenseite ist dies nur schwierig zu erkennen und auch in dem Schnittbild (Abbildung 6.22c) kann man nicht besonders gut das  $\Phi$  erkennen. Erst in den Schnitten an den unterschiedlichen Ebenen (siehe Abbildung 6.22f) kann man sich einen Eindruck von den Signalen machen. Gut zu erkennen ist der polarisationsgeformte Laserpuls, der eine komplexe zeitliche Struktur, wie auch Polarisation hat, die aus vielen zirkularen Komponenten besteht, die hauptsächlich für die Ring-artige Struktur verantwortlich sind.

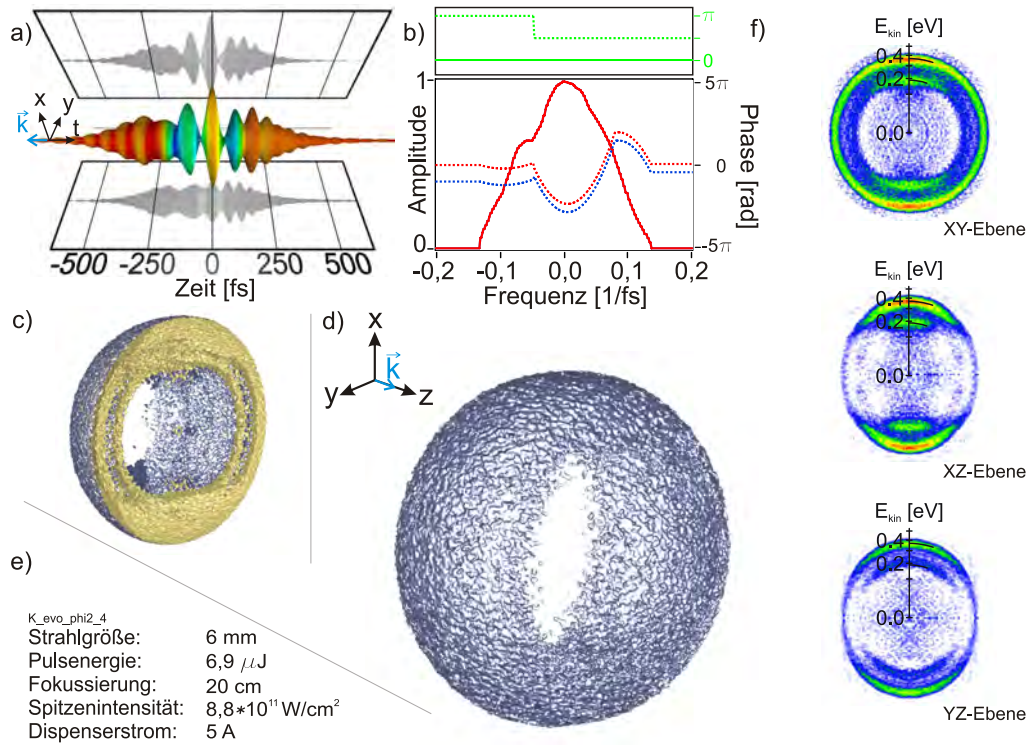
Da die Projektion in Abbildung 6.21 jedoch viele Details eines  $\Phi$ 's aufweist, muss diese Struktur in dem Ring durch Signalvariationen erzeugt werden. In einer alternativen Darstellung (siehe Abbildung 6.23) mit mehreren transparenten Iso-Oberflächen ineinander kann man dies leichter erkennen.



**Abbildung 6.23:** Alternative Darstellung der dreidimensionalen Information einer tomographischen Rekonstruktion. Es werden im oberen Teil die Ansichten aus den verschiedenen Richtungen gezeigt. Links oben die Ansicht in  $z$ -Richtung, die in der  $x - y$ -Ebene liegt, rechts oben die Ansicht in  $y$ -Richtung, die in der  $x - z$ -Ebene liegt usw. - Links unten ist nochmals die Ziel-Projektion verkleinert dargestellt, sowie die Messung mit der Ziel-Projektion als Umriss rechts unten. In dieser Darstellung werden die einzelnen Strukturen im Inneren des Rings werden sehr deutlich dargestellt. Die unten in der Mitte gezeigte Ansicht aus der  $x$ -Richtung, die auch der Messung der Projektionen im Abbildenden Spektrometer entspricht, zeigt die einzelnen Details eines  $\Phi$ 's am deutlichsten.

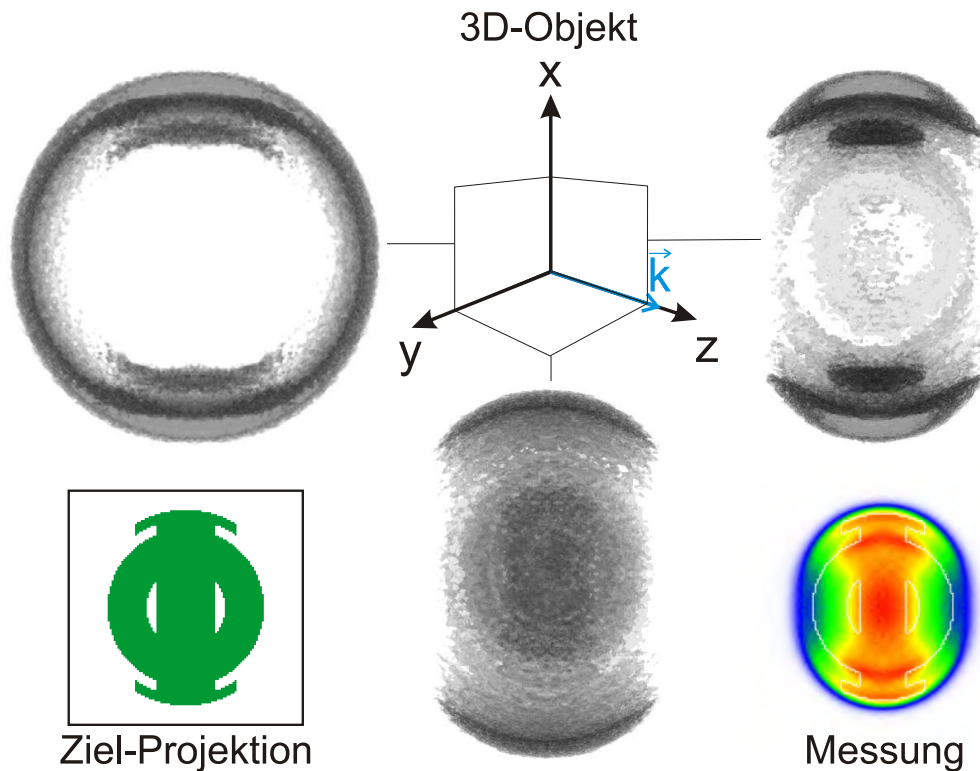
Neben diesem besten Individuum wurde auch das zweitbeste Individuum tomographisch vermessen. Die Schema-Darstellung ist in Abbildung 6.24 gezeigt.





**Abbildung 6.24:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen, deren Parameter aus der evolutionären Optimierung auf die in Abbildung 6.20 gezeigte Ziel-Projektion erhalten wurde.

Hier wird wieder deutlich, dass die dreidimensionale Information lediglich in der Sub-Struktur eines Ringes enthalten ist, im Gegensatz zu dem in Kapitel 6.5.2 gezeigten Beispiel, bei dem eine strukturierte dreidimensionale Verteilung entsteht. Der entscheidende Unterschied hier ist jedoch, dass die zeitliche Struktur sich deutlich von der in Abbildung 6.22 gezeigten Struktur unterscheidet. Aber auch hier besteht der Puls selbst aus einer größeren Anzahl an zirkularen Komponenten, die jedoch durch die Phasenmodulation eine andere Verteilung innerhalb des Laserpulses haben. Hier wird ebenso die alternative Darstellung (siehe Abbildung 6.25) gewählt, um einen besseren Eindruck zu bekommen.

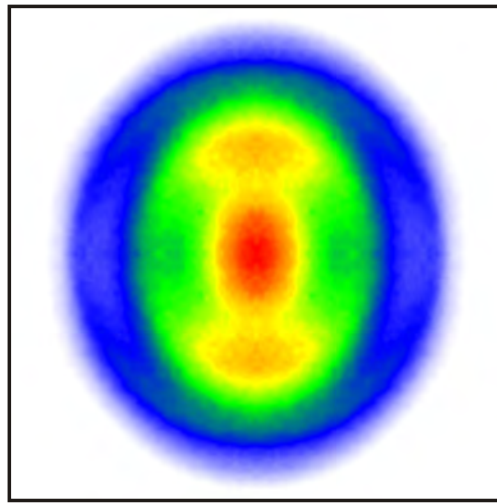


**Abbildung 6.25:** Alternative Darstellung der dreidimensionalen Information einer tomographischen Rekonstruktion. Die einzelnen Ansichten unterscheiden sich sehr von der in Abbildung 6.23 gezeigten tomographischen Rekonstruktion. Die Projektion (rechts unten) hingegen zeigt deutliche Details, die dem  $\Phi$  entsprechen.

Es wird klar, dass sich die dreidimensionale Struktur innerhalb des Rings von der in Abbildung 6.23 gezeigten Struktur unterscheidet, obwohl auch hier die Zielfunktion gut erreicht wurde. Diese beiden Individuen der evolutionären Optimierung zeigen sehr deutlich, dass mit unterschiedlichen Phasenfunktionen Interferenzen in den Photoelektronenverteilungen erzeugt werden können, die dann in der gemessenen Projektion zu ähnlichen Strukturen führen. Es sind unterschiedliche Wege möglich, um die Ziel-Projektion zu erreichen. Da eine exakte Übereinstimmung aufgrund der komplexen Struktur der Ziel-Projektion nicht erreicht werden konnte, wurde ein anderer Ansatz verfolgt, bei dem die grundlegende Struktur der durchgeführten Messungen als Basis dienten, um eine neue Ziel-Projektion zu generieren, die besser rekonstruiert werden kann, als das hier verwendete  $\Phi$ .

### 6.5.2 Beispiel I

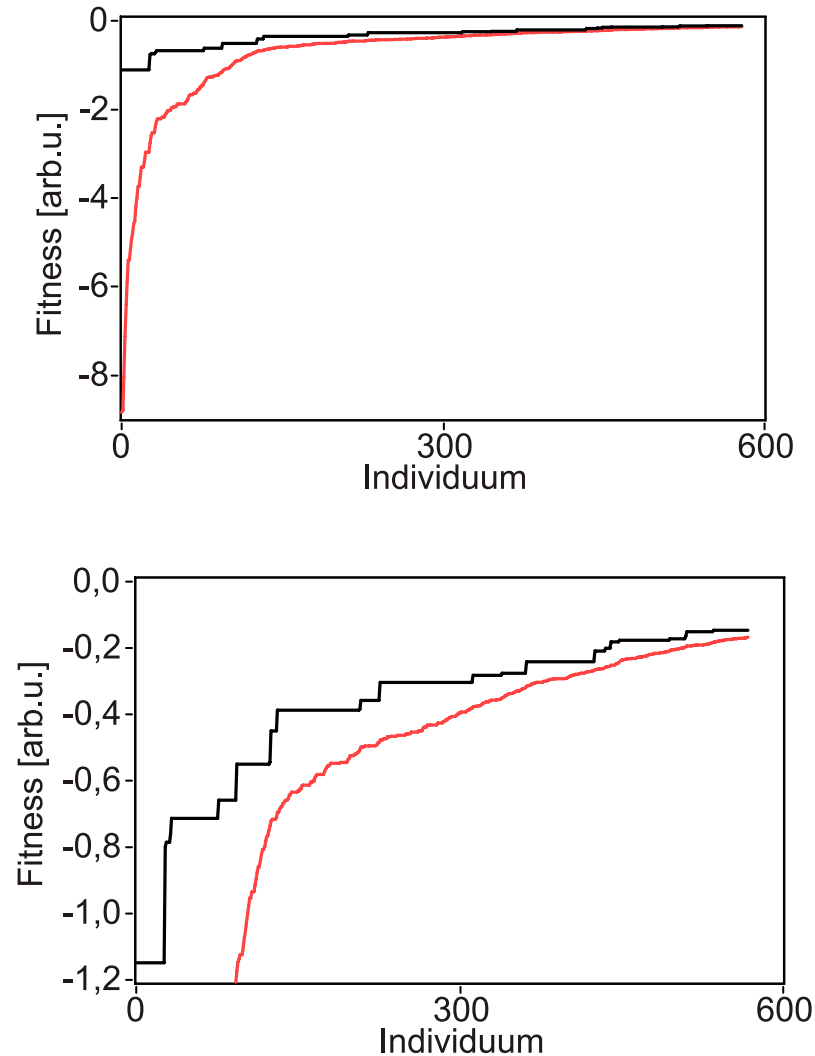
In diesem Abschnitt wird das zweite Beispiel einer evolutionären Optimierung mit polarisationsgeformten Laserpulsen beschrieben. Als Ziel-Projektion wird nun eine symmetrisierte und geglättete Verteilung verwendet, die in ihrer Grundform einem I ähnelt. Diese Ziel-Projektion ist in Abbildung 6.26 dargestellt.



**Abbildung 6.26:** Ziel-Projektion für evolutionäre Optimierung - mehrfach geglättet und symmetrisiert. Da die Größe der Verteilung von der Energie der Photoelektronen abhängig ist, sollte bei gleichen Abbildungsparametern auch die erzeugte Photoelektronenverteilung in etwa die gleiche Größe haben.

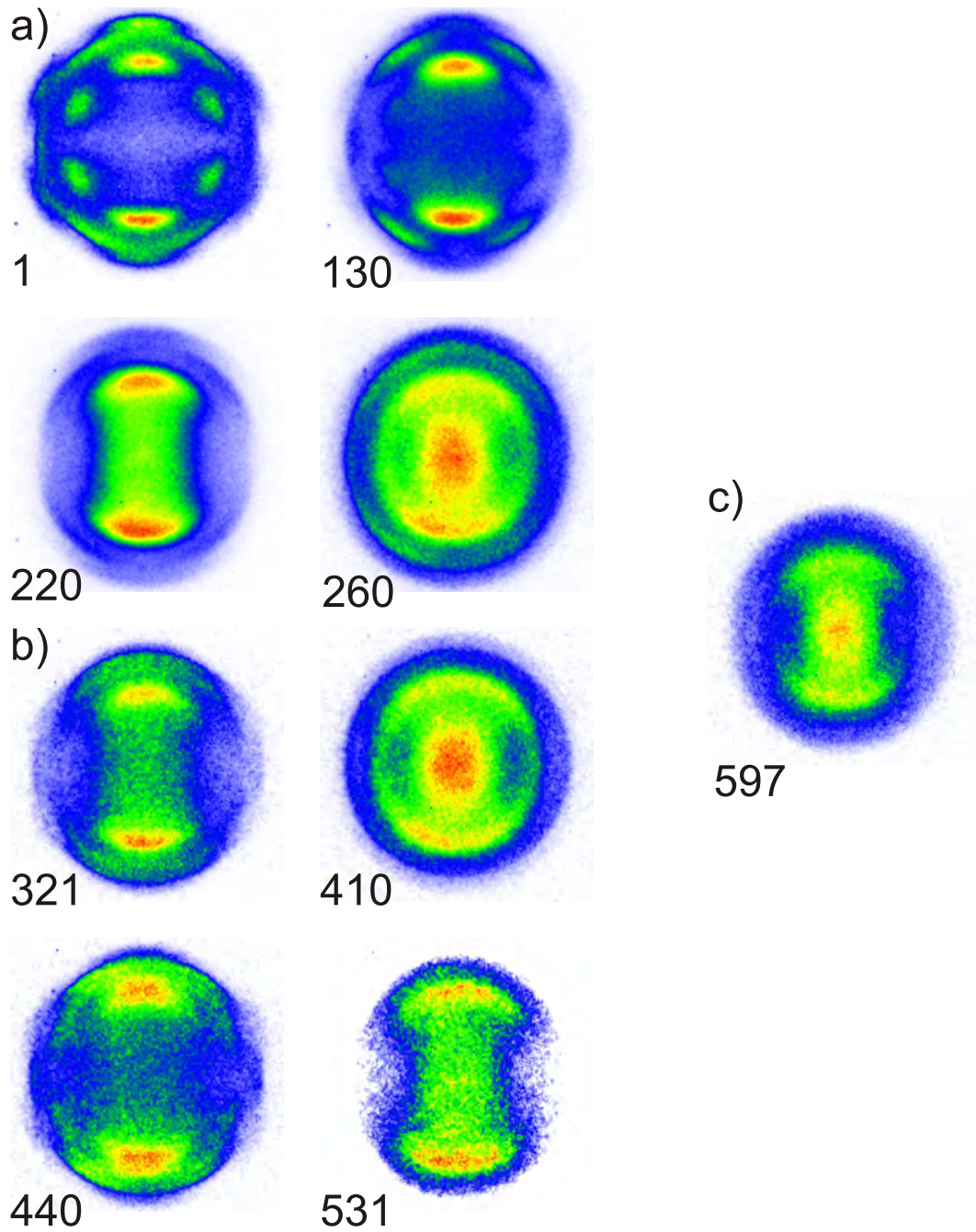
Die hierfür verwendeten Messungen wurden alle bei den gleichen Spannungen an den Elektroden des abbildenden Spektrometers aufgenommen. Daher sind die Abbildungseigenschaften des Abbildenden Spektrometers bei allen Einzelmessungen die gleichen gewesen. Diese Abbildungseigenschaften werden nun auch für die Evolution verwendet. Dadurch wird sichergestellt, dass der Fehler, der durch falsche Elektrodenspannungen verursacht wird, gering ist.

Neben der optimalen Vergrößerung der Photoelektronen wurde bei dieser Optimierung versucht, möglichst lange das Gesamtsystem stabil zu halten, um eine möglichst lange Messzeit für die Durchführung der evolutionären Optimierung zu gewährleisten. Mit etwa 600 gemessenen Individuen in über 5 Stunden war dies möglich geworden, so dass eine gute Konvergenz erreicht werden konnte (siehe Abbildung 6.27).



**Abbildung 6.27:** Verlauf der evolutionären Optimierung auf die in Abbildung 6.26 gezeigte Projektion. Dargestellt ist die Fitness für das jeweils beste Individuum der Population in schwarz und die mittlere Fitness der Gesamtpopulation in rot. Zur besseren Darstellung wurde oben der gesamte Verlauf der mittleren und maximalen Fitness gezeigt, während unten nochmals der Bereich der maximalen Fitness vergrößert dargestellt ist. Die Fitness errechnet sich aus der negativen Summe der quadratischen Differenz der gemessenen Projektion und der Zielprojektion. Je kleiner die quadratische Differenz ist, desto besser ist die Übereinstimmung zwischen den beiden Projektionen und desto höher ist die Fitness.

Einige ausgewählte Projektionen sind in Abbildung 6.28 gezeigt.



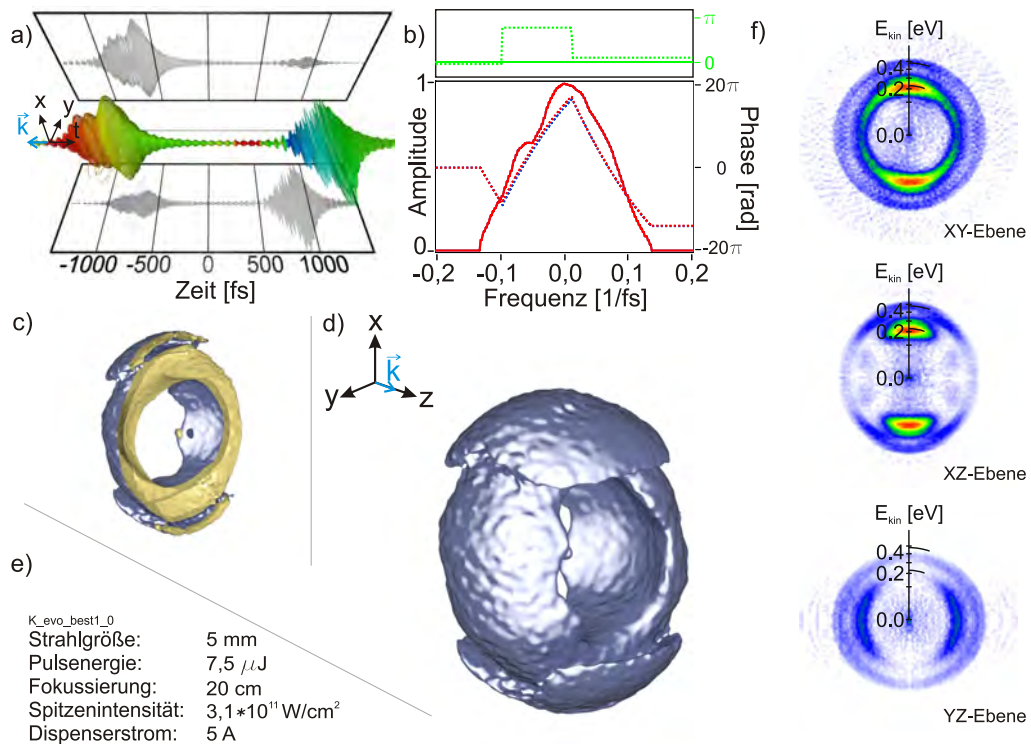
**Abbildung 6.28:** Ausgewählte Messungen aus der Evolution auf die Ziel-Projektion in Abbildung 6.26. (a) Messungen der ersten Hälfte der evolutionären Optimierung, bei denen nur wenig Ähnlichkeit mit der Ziel-Projektion vorhanden ist. (b) Messungen kurz vor Ende der Evolution. Deutlich sind einige Details zu erkennen, die in der Ziel-Projektion enthalten sind. (c) Beste Messung der Evolution. Die Nummern beschreiben den Verlauf der Evolution.



## KAPITEL 6. KOHÄRENTE KONTROLLE DREIDIMENSIONALER ELEKTRONEN-WELLENPAKETE

Man kann erkennen, dass die Konvergenz langsam voran schritt, da gerade in der ersten Hälfte der Evolution nur wenige Individuen ausreichend viele Details enthielten, um eine hohe Fitness zu erhalten. Die verwendete Fitnessfunktion zielte darauf ab, die quadratische Differenz der gemessenen Projektion und der Zielfunktion zu minimieren.

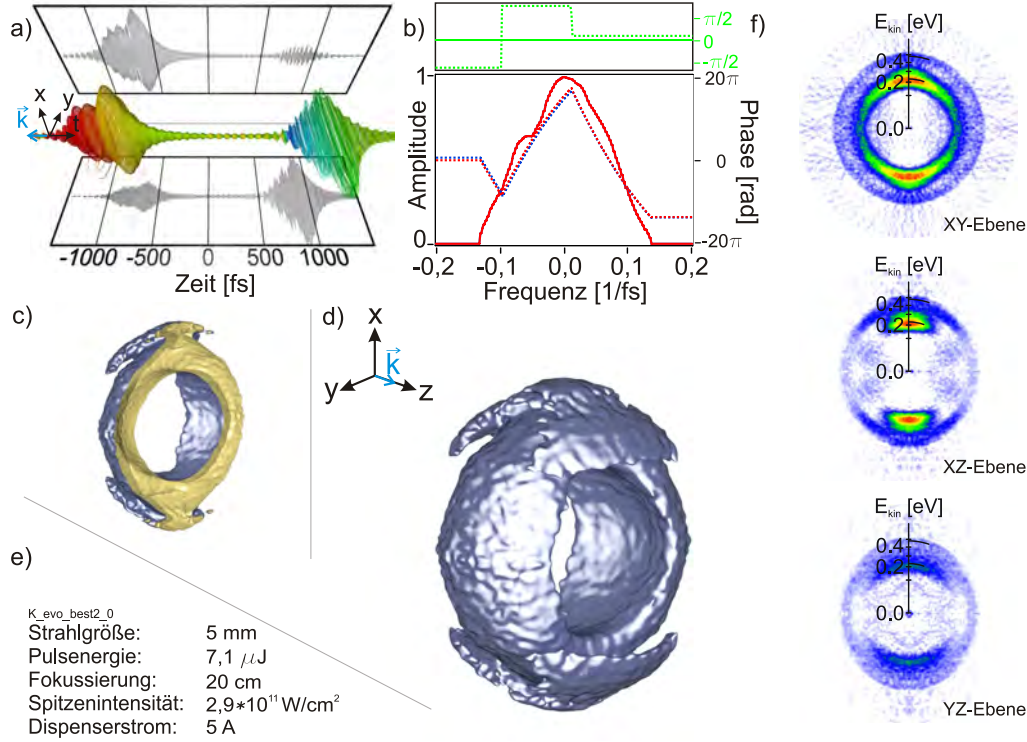
Die besten vier Individuen wurden anschließend tomographisch vermessen. Das beste Individuum ist in Abbildung 6.29 dargestellt.



**Abbildung 6.29:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen, deren Parameter dem besten Individuum entsprechen, das bei der evolutionären Optimierung auf die in Abbildung 6.26 gezeigte Ziel-Projektion erhalten wurde.

Anders als in dem Beispiel in Kapitel 6.5.1 beschriebenen Evolution ist nun nicht die gesamte Intensität der Photoelektronen in einem Ring, sondern in einer schalenartigen Struktur, die nicht über die klassischen  $f$ -Symmetrien erklärt werden kann. Der Laserpuls, der durch die Evolution gefunden wurde (siehe Abbildung 6.29a) besteht aus zwei Sub-Pulsen, die einen Abstand von über einer Pikosekunde haben und in unterschiedlichen Richtungen polarisiert sind mit verschiedenen elliptischen Anteilen. Die erzeugte dreidimensionale Photoelektronenverteilung kann man in

dem Schnittbild (siehe Abbildung 6.29f) sehr gut erkennen, daher wird hier auf eine alternative Darstellung verzichtet. Die ersten vier besten Individuen sind sehr ähnlich zu dem gezeigten besten Individuum, daher wird im folgenden lediglich noch das zweitbeste Individuum gezeigt (siehe Abbildung 6.30).



**Abbildung 6.30:** Schema-Darstellung der Informationen aus der 1+2 REMPI von Kalium mit polarisationsgeformten Laserpulsen, deren Parameter dem zweitbesten Individuum entsprechen, das bei der evolutionären Optimierung auf die in Abbildung 6.26 gezeigte Ziel-Projektion erhalten wurde.

Auch in dieser Messung wurde ein Doppel-Puls verwendet, der mehr als eine Pikosekunde Abstand hat und in unterschiedlichen Richtungen polarisiert ist. Die erzeugte Photoelektronenverteilung ist der in Abbildung 6.29 gezeigten sehr ähnlich. Dies ist eine Möglichkeit, die bei einer guten Evolution auftreten kann, da hier letztlich alle Individuen dem besten Individuum ähneln. Somit ist dies ein weiterer Hinweis auf den guten Verlauf der Evolution. Betrachtet man sowohl die Ziel-Projektion (Abbildung 6.26) als auch das beste Individuum (Abbildung 6.28c) so zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung der Ziel-Projektion und der gemessenen Projektion.

Mit Hilfe polarisationsgeformter Laserpulse konnte also eine nahezu frei gewählte

Signalverteilung mit einer evolutionären Optimierung erzeugt werden. Dies zeigt das hohe Maß an Kontrolle, das man über die dreidimensionale Struktur der Photoelektronen erlangt hat zusätzlich zu den in vorigen Kapiteln beschriebenen Methoden sehr deutlich. In einem letzten Abschnitt wird nun eine Zusammenfassung der verschiedenen Methoden der Kontrolle und Analyse der dreidimensionalen Photoelektronen dargestellt und zusätzlich ein Ausblick gegeben, wie diese Methode in Zukunft angewendet werden können.

## 6.6 Zusammenfassung

In Kapitel 5 wurden zunächst das für die Experimente verwendete atomare System, das Kalium-Atom, sowie die in diesem System auftretenden Starkfeld-Effekte vorgestellt. Hier wird besonders auf die AT-Aufspaltung Wert gelegt, da dieser Starkfeld-Effekt bei den durchgeführten Messungen stets eine Rolle spielte. Ziel des gesamten Kapitels war es, zu zeigen, dass man ein großes Maß an Kontrolle über die dreidimensionale Photoelektronen-Winkelverteilung erlangen kann, indem intensive polarisationsgeformte Laserpulse verwendet werden, um das Kalium-Atom anzuregen und zu ionisieren. Die dabei erreichbaren  $\Delta m$ -Untersustände sowie deren Interferenz, stellen die Basis dar, um die Photoelektronen-Winkelverteilung nach Belieben maßzuschneidern.

Die Verwendung von Laserpulsen mit unterschiedlicher, im allgemeinen sogar mit zeitabhängiger Polarisation verletzt eine der Grundvoraussetzungen der abbildenden Photoelektronenspektroskopie. Der Polarisationsvektor liegt dann nicht in einer Ebene parallel zum Detektor und so ist eine Rekonstruktion mit dem pBasex-Algorithmus nicht mehr möglich. Es ist notwendig eine neue Rekonstruktionstechnik zu entwickeln, die diese Voraussetzung nicht benötigt.

Diese Rekonstruktionstechnik wurde in Kapitel 5.3 vorgestellt und basiert auf einer bekannten Technik, die in der Medizintechnik seit langem Anwendung findet: Tomographie. Die Anpassung dieser grundlegenden Technik auf die Rekonstruktion dreidimensionaler Photoelektronen-Winkelverteilungen wurde erstmals in dieser Arbeit demonstriert. Die angewendeten Algorithmen basieren auf dem Fourier-Slice-Theorem, das als Grundidee für den Rekonstruktionsalgorithmus diente.

In einem weiteren Abschnitt wurde die Implementierung des Fourier-Slice-Theorems dargelegt, so dass mit einem durchschnittlichen Arbeitsplatzrechner eine Rekonstruktion durchgeführt werden kann. Daneben wird eine Möglichkeit dargestellt, wie man numerisch die dreidimensionale Photoelektronen-Verteilung aus der Wechselwirkung des Neutral-Systems mit den geformten Laserpulsen und



gleichzeitiger Ionisation berechnen kann. In den gezeigten Experimenten sind verschiedene Beispiele für die Kontrolle der dreidimensionalen Photoelektronen-Winkelverteilungen dargestellt, die durch Änderung der Elliptizität, des Spektrums und der Intensität der Laserpulse oder in einem weiteren Teil durch Formung der Polarisation der Laserpulse stattfinden kann. Als letztes Beispiel ist die evolutionäre Optimierung auf zwei unterschiedliche Ziel-Projektionen gezeigt worden, die darstellen, dass es durch Kombination all dieser Kontrollmöglichkeiten möglich ist, umfassende dreidimensionale Kontrolle auf das System auszuüben.

---

# Zusammenfassung und Ausblick

Mit Hilfe der energieaufgelösten Photoelektronenspektroskopie lässt sich die licht-induzierte Quantendynamik an isolierten Atomen und Molekülen im Detail studieren. Insbesondere auf dem Gebiet der kohärenten Kontrolle atomarer und molekularer Systeme mit maßgeschneiderten Femtosekunden-Laserpulsen trug diese Methode dazu bei, wesentliche Prozesse sowohl im störungstheoretischen als auch im nicht-störungstheoretischen Regime besser zu verstehen [42].

Die Information über die Winkelverteilung der Photoelektronen konnte in diesem Zusammenhang auf Grund nicht zur Verfügung stehender Experimentieranlagen vor dieser Arbeit kaum genutzt werden. Ziel dieser Arbeit war es deshalb, Methoden der energie- und winkelaufgelösten Photoelektronenspektroskopie mit den Femtosekunden-Pulsformungstechniken zu kombinieren und in Prototyp-Experimenten den wissenschaftlichen Nutzen dieser Kombination zu demonstrieren.

Nach der Weiterentwicklung eines vorhandenen abbildenden Photoelektronenspektrometers [11] wurden folgende Erkenntnisse gewonnen:

In einem Experiment zur Starkfeldanregung am Natrium-Atom konnte gezeigt werden, dass mit einer einfachen Änderung der instantanen Frequenz unterschiedliche Rydbergzustände selektiv bevölkert werden können. Unterschiedliche Ionisationswege wurden mit der zusätzlichen Winkelinformation eindeutig identifiziert, wobei auch transiente Beiträge energetisch weit entfernter Zustände (‘virtueller’ Zustände) detektiert werden konnten. Die Ergebnisse sind veröffentlicht in:

- M. KRUG, T. BAYER, M. WOLLENHAUPT, C. SARPE-TUDORAN, T. BAUMERT, S. S. IVANOV und N.V. VITANOV:  
*Coherent strong-field control of multiple states by a single chirped femtosecond laser pulse.*  
N. J. Phys., **11**:105051, 2009.

---

In einer weiteren Experimentserie wurde erstmals die Technik der Polarisationsformung mit der abbildenden Photoelektronenspektroskopie kombiniert. Es wurde gezeigt, dass über polarisationsgeformte Laserpulse “Designer-Elektronenwellenpakete” erzeugt werden können. Diese entstehen durch Kontinuums-Interferenz unterschiedlicher Ionisationspfade, wobei neben unterschiedlichen Quantenzahlen ( $n, l, m, s$ ) auch Stark Verschiebungen zum “Design” beitragen. Zur dreidimensionalen Rekonstruktion dieser “Designer-Wellenpakete” wurde erstmals für die abbildende Photoelektronenspektroskopie eine tomographische Rekonstruktionsmethode entwickelt. Die Ergebnisse sind veröffentlicht in:

- M. WOLLENHAUPT, M. KRUG, J. KÖHLER, T. BAYER, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT:  
*Three-dimensional tomographic reconstruction of ultrashort free electron wave packets.*  
Appl. Phys. B, **95**:647–651, 2009.
- M. WOLLENHAUPT, M. KRUG, J. KÖHLER, T. BAYER, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT:  
*Photoelectron angular distributions from strong-field coherent electronic excitation.*  
Appl. Phys. B, **95**:245–259, 2009.

Die Arbeit bildet die Basis für eine ganze Reihe weitergehender Untersuchungen: Beispielsweise ist der Übergang von der Multiphotonenionisation zur klassischen Feldionisation in Systemen mit Resonanzen noch schlecht verstanden. Hier können tomographisch rekonstruierte Photoelektronenverteilungen die für theoretische Vergleiche benötigte detaillierte Information bereitstellen.

In der Photoelektronenspektroskopie ist es bisher immer sehr aufwändig, die radialen Phasenverschiebungen auslaufender Elektronenwellen zu vermessen. Nachdem die “Designer-Wellenpakete” durch Kontinuumsinterferenzen gebildet werden, sollte die Ionisation mit speziell angepassten Pulsformen einen Zugang zu dieser Größe ermöglichen.

Auch für die molekulare Identifikation auf “Einzelmolekül”-Ebene könnte diese Technologiekombination einen Durchbruch darstellen. So ist zum Beispiel der Photoelektronen-Zirkulardichroismus an chiralen Substanzen bei Einphotonenanregung mit Synchrotronstrahlung bekannt. Inwieweit diese Effekte durch Multiphotonenionisation mit polarisationsgeformten Pulsen verstärkt werden können ist eine spannende Fragestellung, die zunächst nur experimentell beantwortet werden kann.

# Anhang A

## Tomographie-Algorithmus Erweiterung

Der Tomographie-Algorithmus, der in Kapitel 5.3 beschrieben wurde, kann durch einige kleine Modifikationen deutlich schneller und weniger rauschanfällig programmiert werden. Der relativ einfache Ansatz des Fourier-Slice-Theorems benötigt in der Durchführung wie beschrieben eine Interpolation komplexer Zahlen im Frequenzbereich, da man die zweidimensionale Fourier-Transformierte nur an radialen Stützlinien bestimmen kann. Durch die Interpolation werden die Daten durch numerische Artefakte gestört, was zu einer schlechten Auflösung führt. Die Interpolation komplexer Zahlen ist auch nur schwer möglich. Bei Verwendung einer großen Anzahl von Projektionen kann das Objekt hingegen gut rekonstruiert werden.

Um auch mit wenigen Projektionen eine gute und rechnerisch schnelle Rekonstruktion durchführen zu können, benutzt man eine Modifikation des Fourier-Slice Theorem, den sogenannten “filtered backprojection algorithm” [83]. Dieser Ansatz ist eines der besten Beispiele für effektive Computeralgorithmen, bei denen man durch analytisches Umformen einen unterschiedlichen Ansatz zur Implementierung bekommt. In dem Algorithmus wird das Fourier-Slice Theorem bzw. die Inverse 2D-Fourier-Transformation in Polarkoordinaten umgeschrieben

$$f(x, y) = \int_{-\infty}^{+\infty} \int_{-\infty}^{+\infty} F(u, v) e^{i 2\pi(ux+vy)} du dv, \quad (\text{A.1})$$

Hier beschreibt  $F(u, v)$  die 2D-Fourier-Transformierte. Es wird ersetzt:

$$u = w \cos \theta \quad (\text{A.2})$$

$$v = w \sin \theta \quad (\text{A.3})$$

$$\text{sowie } du dv = w dw d\theta, \quad (\text{A.4})$$

Es folgt daraus:

$$f(x, y) = \int_0^{2\pi} \int_0^{+\infty} F(w, \theta) e^{i 2\pi w(x \cos \theta + y \sin \theta)} w dw d\theta, \quad (\text{A.5})$$

Dieses Integral kann in zwei Bereiche aufgespalten werden:  $\theta \in [0^\circ, 180^\circ]$  und  $\theta \in [180^\circ, 360^\circ]$ . Gleichzeitig gilt jedoch auch  $F(w, \theta + 180^\circ) = F(-w, \theta)$ <sup>1</sup>, wodurch das Integral über den Winkel  $\theta$  jetzt von 0 bis  $\pi$  läuft, während das Integral über  $w$  jetzt statt von 0 bis  $+\infty$  von  $-\infty$  bis  $+\infty$  läuft

$$f(x, y) = \int_0^\pi \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} F(w, \theta) |w| e^{i 2\pi w t} dw \right] d\theta, \quad (\text{A.6})$$

Hierbei wurde folgende Ersetzung vorgenommen:

$$t(\theta) = x \cos \theta + y \sin \theta,$$

Zusätzlich kann man den inneren Teil des  $d\theta$ -Integrals nun implizit abhängig von  $\theta$  beschreiben, indem man die zweidimensionale Fouriertransformation  $F(w, \theta)$  durch die Fouriertransformation der Projektion unter einem Winkel von  $\theta$   $S_\theta(w)$  beschreibt

$$f(x, y) = \int_0^\pi \left[ \int_{-\infty}^{+\infty} S_\theta(w) |w| e^{i 2\pi w t} dw \right] d\theta, \quad (\text{A.7})$$

Die Gleichung A.7 kann nun folgendermaßen geschrieben werden:

$$f(x, y) = \int_0^\pi Q_\theta(x \cos \theta + y \sin \theta) d\theta \quad (\text{A.8})$$

mit

$$Q_\theta(t) = \int_{-\infty}^{+\infty} S_\theta(w) |w| e^{i 2\pi w t} dw, \quad (\text{A.9})$$

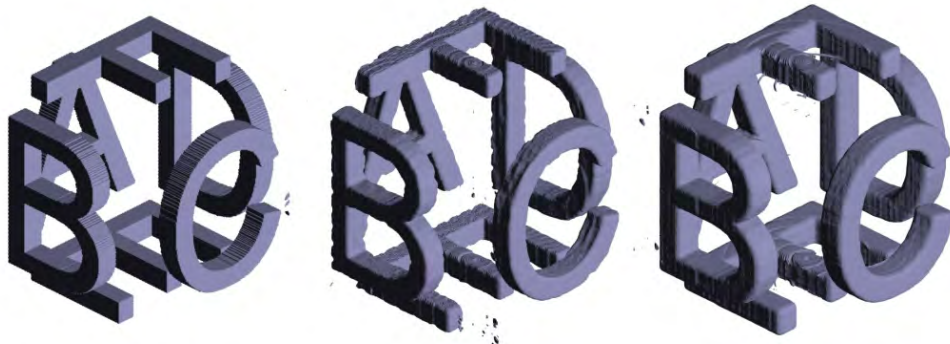
Mit dieser Art der Berechnung wird der Wert für  $f(x, y)$  im kartesischen Koordinatensystem ohne eine zweidimensionale Fouriertransformation berechnet und zusätzlich wird die Interpolation im Frequenzbereich vermieden. Die Gleichung A.9 stellt hier eine Filteroperation der Fourier-Transformierten dar. Daher wird diese Gleichung als “filtered projection” bezeichnet.

Gleichung A.8 wendet auf jede gefilterte Funktion aus Gleichung A.9 im kartesischen Koordinatensystem eine Rückprojektion an, weil für jedes Paar  $x$  und  $y$  ein Wert von  $t$  berechnet wird, gemäß  $t = x \cos \theta + y \sin \theta$  für einen festen Winkel von  $\theta$ . Dies bedeutet, dass für alle Punkte auf einer Linie senkrecht zur Geraden  $x \cos \theta + y \sin \theta = \text{const.}$  der gleiche Wert von Gleichung A.9 berechnet

---

<sup>1</sup>In Polarkoordinaten entspricht  $-r$  genau der Richtung  $\theta + 180^\circ$ .

wird. Daher kann dieser Vorgang als Rückprojektion bezeichnet werden, bzw. als “back-projection”. Wendet man dies für alle Winkel  $\theta$  an, so projiziert man die gefilterten Daten rückwärts über das Bild. Der Algorithmus wird insgesamt daher als “filtered back-projection”-Algorithmus beschrieben.



**Abbildung A.1:** Beispiel einer Rekonstruktion eines simulierten dreidimensionalen Objektes. Es wurden sechs Buchstaben in einer dreidimensionalen Anordnung orientiert und unter verschiedenen Winkeln auf einen Detektor abgebildet (senkrecht zur Achse F-E). Die einzelnen Projektionen wurden durch den Tomographie-Algorithmus wieder zu einem dreidimensionalen Objekt zusammengesetzt. Links im Bild ist eine mit PovRay generierte Ansicht des dreidimensionalen Objektes dargestellt. Deutlich sind die scharfen Ränder des Objektes zu erkennen. In der Mitte ist eine Darstellung des rekonstruierten Objektes gezeigt, die aus 90 Projektionen rekonstruiert wurde. Es ist zu erkennen, dass die Kanten der Buchstaben nur leicht abgerundet sind, da auf eine große Menge von Projektionen zurückgegriffen werden konnte. Rechts ist das rekonstruierte Objekt aus 30 Projektionen zu sehen, das an den Kanten etwas an Schärfe verliert, aber die Details sehr gut rekonstruieren kann. Da die Schärfe von Strukturen in den gemessenen Photoelektronen-Verteilungen nicht derart hoch ist, sollten im Durchschnitt 30 Projektionen ausreichen, um eine aussagekräftige Rekonstruktion zu erzeugen.

Die Fouriertransformation der Projektionen wird zusätzlich mit einem Hamming-Fenster multipliziert (siehe [83]), um das Rauschen zu minimieren, während durch “Zero-Padding”<sup>2</sup> Rekonstruktionsartefakte weitestgehend ausgeschlossen werden können. Weitergehend wird die Interpolation in Gleichung A.9, die für jeden Punkt

<sup>2</sup>Anhängen von Nullen an die zu transformierende Funktion, um eine höhere Auflösung im Frequenzbereich zu erhalten.

$(x, y)$  mit  $t = x \cos \theta + y \sin \theta$  durchgeführt werden muss, durch eine Stützstellen-Interpolation ersetzt, wobei statt einer linearen Interpolation zwischen zwei Punkten, eine von 32 Stützstellen direkt ausgewählt wird. Dies spart viel Rechenzeit, da die Interpolation für jeden Punkt  $(x, y)$  für jeden Winkel  $\theta$  einmal durchgeführt werden muss. Hier liegt aber auch die Möglichkeit der Parallelisierung. Für unterschiedliche  $\theta$  können die gesamten Bilder von unterschiedlichen Computerkernen berechnet und zum Schluß einfach aufaddiert werden. Die LabView-VI's wurden dementsprechend für eine Rekonstruktion auf einem Vierkern-System optimiert. Das Ergebnis ist bei einer geringen Anzahl von Projektionen (hier zwischen 16 und 36) durchaus akzeptabel und kann für eine große Anzahl an Slices innerhalb kurzer Zeit berechnet werden. Für die eigentliche Berechnung wird lediglich die Fouriertransformation der Projektion durchgeführt und mit der Filterfunktion (A.8) und dem Hamming-Window multipliziert und anschließend über die Bildebene zurückprojiziert (A.9). Insgesamt benötigt man für ein  $400 \times 400 \times 400$  Pixel Objekt auf einem Vierkern-Prozessor etwa 15 Minuten.

Als Beispiel wurde in Abbildung A.1 ein dreidimensionales Objekt, bestehend aus sechs Buchstaben auf einen Detektor projiziert und die Projektionen mit dem Tomographie-Algorithmus wieder rekonstruiert. Man kann erkennen, dass das rekonstruierte Objekt an den Ecken die Schärfe etwas verliert, aber ansonsten gut rekonstruiert werden konnte.



## Anhang B

# Photoelektronen- Winkelverteilungen

Im Rahmen dieser Arbeit kommen verschiedene Symmetrien von Photoelektronen-Winkelverteilungen vor, die in diesem Anhang in Form von Beispielen gezeigt werden. Der Winkelanteil der Photoelektronen-Wellenfunktionen basiert auf den Kugelflächenfunktionen, die durch zwei Quantenzahlen bestimmt sind: der Bahndrehimpuls  $l$  und die Magnetquantenzahl  $m$ . Die Kugelflächenfunktion  $Y_{lm}(\vartheta, \varphi)$  ist gegeben durch:

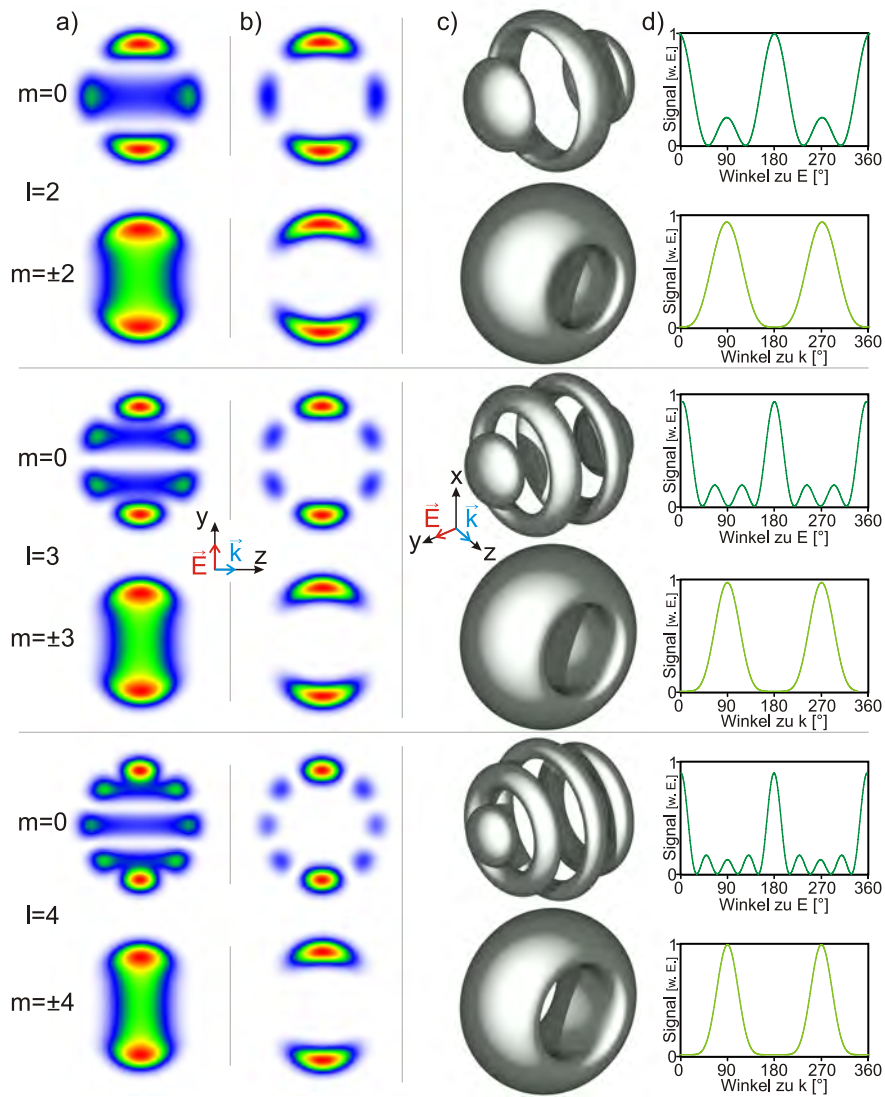
$$Y_{lm}(\vartheta, \varphi) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} N_{lm} P_{lm}(\cos \vartheta) e^{im\varphi} \quad (\text{B.1})$$

mit den (assoziierten) Legendre-Polynomen  $P_{lm}(\cos \vartheta)$

$$P_{lm}(\cos \vartheta) = \frac{(-1)^m}{2^l l!} (1 - \cos^2 \vartheta)^{\frac{m}{2}} \frac{d^{l+m}}{d(\cos \vartheta)^{l+m}} (\cos^2 \vartheta - 1)^l \quad (\text{B.2})$$

und dem Normierungsfaktor  $N_{lm} = \sqrt{\frac{2l+1}{2} \cdot \frac{(l-m)!}{(l+m)!}}$ .

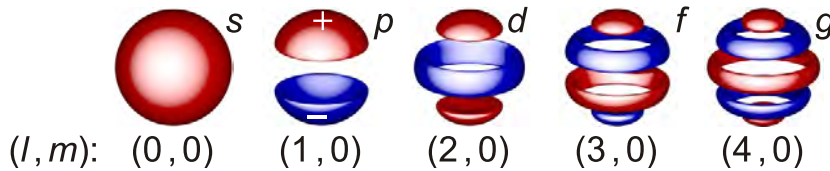
Mit Hilfe dieser Kugelflächenfunktion lassen sich im folgenden die Photoelektronen-Winkelverteilungen berechnen. Hierfür wird angenommen, dass die Ionisation von beispielsweise einem  $p$ -Zustand ( $l = 1$ ) mit einem Photon wegen den Auswahlregeln für Dipol-Übergänge zu einer  $s$ -Welle ( $\Delta l = -1$ ) und/oder einer  $d$ -Welle ( $\Delta l = +1$ ) führt. Die Intensität der einzelnen Wellen ist abhängig von den jeweiligen gebunden-freien Übergangsmomenten, die schwierig zu berechnen sind.



**Abbildung B.1:** Darstellung der verschiedenen simulierten dreidimensionalen Photoelektronenwellenpakete. (a) Spalte der simulierten Abel-transformierten 3D-Verteilung. (b) Schnitt durch die 3D-Verteilung in der  $x-y$ -Ebene, sowie in (c) eine Iso-Oberfläche des jeweiligen 3D-Wellenpaketes mit der Winkelverteilung in (d). Dargestellt sind die direkt adressierbaren Wellenpakete für  $l = 2, 3$  und  $4$ , die jeweils mit linear polarisiertem Licht ( $m = 0$ ) und mit zirkular polarisiertem Licht ( $m = \pm 2, \pm 3, \pm 4$ ) erzeugt werden können. In den Winkelverteilungen in (d) kann man gut die Anzahl der verschiedenen Knotenebenen bestimmen - bei  $d$ -Symmetrie 4 Knotenebenen im Winkelbereich  $[0^\circ, 360^\circ]$ , bei  $f$ -Symmetrie 6 Knotenebenen und bei  $g$ -Symmetrie 8 Knotenebenen. Man beachte, dass die Winkelverteilungen für linear polarisierte Anregung zur Laser-Polarisation hin definiert sind, während die zirkular angeregten Winkelverteilungen wie im atomaren Bild üblich zur Ausbreitungsrichtung hin definiert sind.

Es können unterschiedliche Übergangswahrscheinlichkeiten in den beiden Übergängen ( $\Delta l = \pm 1$ ) auftreten. Wie man jedoch in Abbildung B.1 sieht, kann der Übergang zur höheren  $l$ -Quantenzahl  $\Delta l = +1$  leicht durch eine höhere Knotenanzahl von dem Übergang  $\Delta l = -1$  unterschieden werden.

Für linear polarisiertes Licht treibt man stets Übergänge mit  $\Delta m = 0$ . Wenn das elektrische Feld jedoch elliptisch-polarisiert ist, ist dies nicht mehr der Fall und es werden auch andere  $\Delta m$ -Unterzustände adressiert. Die Magnetquantenzahl  $m$  läuft von  $-l$  bis  $l$  und kann somit  $2l + 1$  Werte annehmen. Für die quantenmechanische Beschreibung der Licht-Materie-Wechselwirkung in Simulationen ist es üblich, das elektrische Feld in links- und rechts-zirkular polarisierte elektrische Felder aufzuspalten und somit die verschiedenen Anregungen zu berechnen (siehe Kapitel 4.2), da links-zirkular polarisierte elektrische Felder einen Übergang  $\Delta m = +1$  und rechts-zirkular polarisierte elektrische Felder einen Übergang  $\Delta m = -1$  anregen. In Abbildung B.1 sind die entstehenden Elektronenwellenpakete für die Anregung mit linear polarisiertem Licht ( $m = 0$ ) gezeigt, ebenso wie die mit reinem zirkularem Licht ( $m \neq 0$ ) erreichbaren Photoelektronenwellenpakete. Für die Anregung mit linear-polarisierten Laserpulsen sind in Abbildung B.2 die Vorzeichen der verschiedenen Bereiche der Elektronenwellenpakete unterschiedlich farbig dargestellt. Die unterschiedlichen Vorzeichen können zum Beispiel dazu führen, dass eine auslaufende Welle mit  $d$ -Symmetrie von einem  $p$ -Zustand durch die ebenso mögliche Welle mit  $s$ -Symmetrie in der Art modifiziert wird, dass die Intensität des Rings um die  $y$ -Achse verringert wird und die Maxima in Richtung der  $y$ -Achse verstärkt werden. Diese Effekte sind in den in Kapitel 3.2 gezeigten Experimenten zu erkennen.



**Abbildung B.2:** Darstellung der Vorzeichen der simulierten dreidimensionalen Photoelektronenwellenpakete für unterschiedliche Quantenzahlen  $l$ . Da die Ionisation von einem Zustand mit der Quantenzahl  $l$  zu einer Welle mit  $l_e = l + 1$  und einer Welle mit  $l_e = l - 1$  führen, müssen bei einer kohärenten Superposition dieser beiden Wellen die Vorzeichen der verschiedenen Bereiche beachtet werden.

Bei Anregung mit elliptisch polarisiertem Licht bzw. mit polarisationsgeformten Laserpulsen müssen alle erreichbaren  $m$ -Unterzustände gemäß ihrer Ionisation kohärent aufsummiert werden und führen dann zur auslaufenden Elektronenwelle (siehe Kapitel 4.2).



# Anhang C

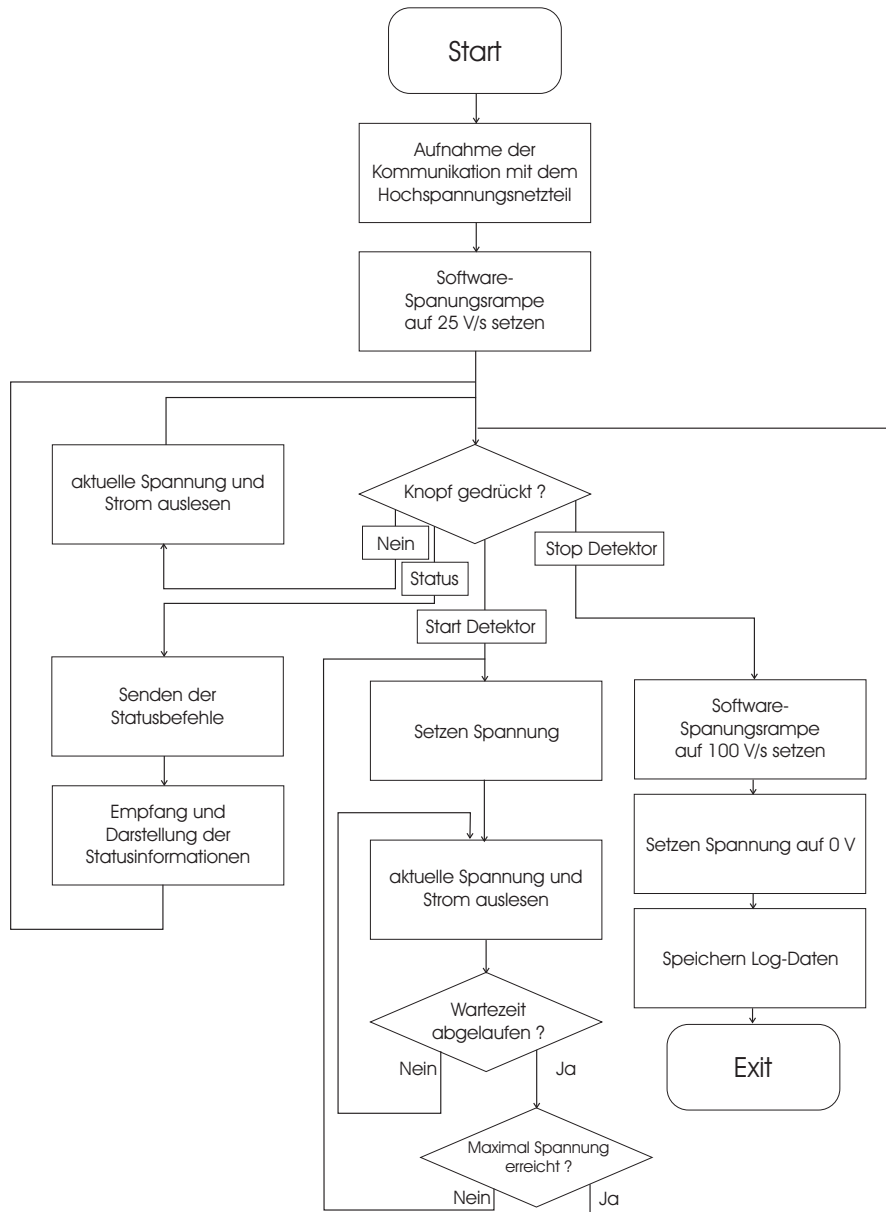
## Programme

In diesem Anhang ist die Vorgehensweise bei der Messung und Analyse von Photoelektronen-Winkelverteilungen beschrieben. Er soll ein Leitfaden zum besseren Verständnis der verwendeten Programme darstellen. In einem ersten Abschnitt wird auf das meistverwendete Messprogramm eingegangen. Im darauf folgenden Abschnitt wird das Analyseprogramm mit dem Rekonstruktionsalgorithmus beschrieben und schließlich im letzten Kapitel werden die verschiedenen Endauswertungsprogramme beschrieben, die in dieser Arbeit Verwendung fanden.

### C.1 Kontrollprogramme

Mit dem Messprogramm, dass für die in dieser Arbeit beschriebenen Experimente verwendet wurde, wird versucht, alle im Labor zur Verfügung stehenden Geräte mit zu integrieren. Da die Verwendung einer großen Anzahl an Geräten aber gemeinhin zu einer großen Anzahl von Problemen führt, werden jeweils nur die Geräte aktiviert, die für die aktuelle Messung verwendet werden. Hierzu gehören unter anderem Verschiebetische, Phasen- und Polarisationsformer, Schrittmotoren an Rotationshaltern, Schrittmotoren an Gradientenabschwächern, Laser-Leistungsmessgeräte und natürlich das verwendete Kamerasystem. Daneben wurde ein unabhängiges Kontrollprogramm verwendet, um das Detektorsystem und dessen Hochspannungsnetzteile zu kontrollieren. In einem ersten kleinen Abschnitt wird hier nun dieses Kontrollprogramm beschrieben. Anschließend wird das Messprogramm mit den unterschiedlichen Ansteuerungen beschrieben.

### C.1.1 Hochspannungs-Kontrollprogramm



**Abbildung C.1:** In diesem Flussdiagramm ist der Ablauf des Programms - iseg-hv-control - beschrieben. Für Details siehe Text.

In diesem Kapitel wird kurz das Kontrollprogramm der Hochspannungsnetzteile der Firma -ISEG-HV- beschrieben. Dieses Kontrollprogramm, im folgenden -

iseg-hv-control.vi - genannt, wird zum langsamen Hochfahren der Spannungen am Detektor verwendet. Dieses langsame Hochfahren ist notwendig, da zu schnelles Hochfahren der Spannungen zu Überschlügen führen kann oder bei Partikeln auf den MCPs<sup>1</sup> zu starken Signalen, die zu Schäden am Phosphorschirm führen können. In diesem Zusammenhang sollte man stets genau auf die maximal zulässige Spannung an den MCPs und dem Phosphorschirm achten, die in den Datenblättern zu finden sind. Ein Überschreiten dieser Spannungen führt unweigerlich zu Spannungsüberschlügen und somit zu Schäden an MCPs und dem Phosphorschirm. Somit wurde das Kontrollprogramm entwickelt, um automatisiert die Spannungen an den MCPs und dem Phosphorschirm hochzufahren. Die Startzeit des Detektors variiert zwischen 30 Minuten und 120 Minuten. Es empfiehlt sich für den normalen Betrieb den Modus mit 60 Minuten Startzeit zu verwenden. Längere Startzeiten empfehlen sich nach größeren Umbaumaßnahmen an der Anlage, wenn eventuell Luftfeuchtigkeit oder Restgase am Detektor vorhanden sein könnten. Kürzere Startzeiten sind möglichst zu vermeiden, können aber bei automatischer Abschaltung während einer Messung zur Reaktivierung verwendet werden. Eine Nebenoption ist das Auslesen der Statusinformationen der Netzteile, was mittels des Statusknopfes möglich ist.

Das Programm kann einfach nach dem Einschalten der Hochspannungsnetzteile aktiviert werden. Es wird eine Verbindung zu den beiden Netzteilen über die RS-232 Schnittstelle hergestellt und die Seriennummer ausgelesen, sowie die Spannungsrampe auf 25 V/s gesetzt. Diese und alle weiteren Informationen, die zwischen Computer und Netzteilen ausgetauscht werden, werden in den Textfeldern für das -Log- ausgegeben und nach Beenden des Programmes mit der aktuellen Zeit in Sekunden als Datei abgespeichert. Die einzelnen Schritte des Hochfahrens der Spannungen sind fest in das Programm integriert und weitere Szenarien können eingebaut werden, wie zum Beispiel für den Detektor der Elektronenbeugungsanlage [33] oder für andere Applikationen.

Zum Starten der Detektoraktivität muss lediglich der Startknopf gedrückt werden. Alle weiteren Schritte führt das Programm automatisch durch und zeigt die gesetzte und aktuelle Spannung mit einer Wiederholrate von etwa 0,2 1/s an. Parallel ist es in der Regel sinnvoll, das Detektorbild mit der mitgelieferten Software der Kamera *Lumenera LuCam Capture* darzustellen, um den Detektor im Auge zu behalten. Ist die Endspannung erreicht, schaltet das Programm automatisch in den Modus kontinuierlichen Auslesens der Spannung um. In diesem Modus kann das Programm beendet werden mit dem Knopf -EXIT- und der Detektor bleibt auf der gewählten Spannung bis das Programm erneut aufgerufen wird und der -STOP- Knopf gedrückt wird. Nach erfolgter Messung, wenn der Detektor heruntergefahren werden soll, startet man das Programm erneut und betätigt

---

<sup>1</sup>MCP - Multi-Channel-Plate - Viel-Kanal-Platte zur Verstärkung von Elektronen

nach der Initialisierung den -STOP- Knopf. In diesem Moment wird beiden Netzteilen eine Spannungsrampe von 100 V/s vorgegeben und die Spannung auf Null gesetzt. Die Netzteile fahren nun gleichmäßig innerhalb etwa einer Minute auf Null.

### C.1.2 Mess- und Steuerprogramm

Das Mess- und Steuerprogramm für das abbildende Photoelektronen-Spektrometer ist über die Jahre hinweg stetig weiterentwickelt worden. Der Anfang war ein einfaches Programm zur Aktivierung des Kamerasystems von *Lumenera* und zum Aufsummieren von Einzelbildern der Kamera. Das Programm wuchs mit jeder neuen Anwendung um weitere Funktionen. So wurde zum Beispiel die Steuerung des *SLM-128-NIR-PHS* der Firma *CRI* im Phasenmodulator [28, 29] über das Netzwerk mittels der *VISA*-Schnittstelle in *LabVIEW* eingebaut. Das in [91] beschriebene Programmpaket *LabDeviceManager* machte es im folgenden möglich, viele Geräte, die im Labor an einem Messrechner angeschlossen sind, für die Messungen zu verwenden. Dies ersparte meist lange Umbaumaßnahmen und macht die Programmierarbeit erheblich einfacher. Hierdurch werden Leistungsmessgeräte zur Überwachung der Laserleistung verfügbar, Schrittmotoren an Gradientenabschwächern machen Intensitätsmessreihen einfacher und Verschiebetische in Interferometern können einfache Anregungs-Abfrage-Szenarien<sup>2</sup> direkt messen.

Um aber auch einfache Messungen durchführen zu können, ohne auf alle Geräte zuzugreifen, aktiviert das Messprogramm lediglich die Geräte, die für die aktuelle Messung notwendig sind. Dies ist auch für den später eingebauten *CRI SLM-640-D-VN* im Polarisationsformer gültig, der jedoch nach vielen technischen und optischen Problemen gegen einen *Jenoptik SLM-S640d* ausgetauscht wurde.

Die Funktionen, die das Programm bietet, sind unter anderem ein Histogramm des aktuellen Kamerabildes. Dadurch kann sichergestellt werden, dass die Kamera nicht gesättigt ist und der Gamma-Faktor richtig eingestellt ist. Für Optik-Rotatoren sind verschiedene Messmodi verfügbar: Zum einen können drei Messpunkte unabhängig voneinander eingestellt und gemessen werden. Dies ist zum Beispiel bei Messungen mit unterschiedlichen Polarisationswinkeln oder von links- und rechts-zirkularem Laserlicht notwendig. Weiterhin bietet das Programm auch die Möglichkeit in gleichmäßigen Abständen eine Optik durchzudrehen. Die gleiche Routine ist auch in der Lage, die in der Arbeitsgruppe vorhandenen Rotations-Gradientenabschwächer zu drehen und somit intensitätsabhängige Messungen durchzuführen. Für solche Messungen ist es in der Regel notwendig, die Leistung zu überwachen. Dafür werden im Strahl mit einem Strahlteiler wenige Prozent der

---

<sup>2</sup>sogenannte Pump-Probe Messungen



verwendeten Laserpulsenergie abgezweigt und mit dem Laser-Leistungsmessgerät gemessen. Eine Korrelation der Stellungen des Rotations-Gradientenabschwächers mit den dann anliegenden Laserpulsenergien im abbildenden Spektrometer und am Überwachungsmesspunkt stellt sicher, dass sich die Leistung während der Messung nicht signifikant geändert hat.

Die Messung mit phasen-modulierten Laserpulsen stellt eine sehr große Menge an Variationen zur Verfügung, von denen meist die Variation eines Parameters in der Phasenfunktion besonders interessant ist. Daher steht die Möglichkeit zur Verfügung, einen Parameter der implementierten Phasenfunktionen gleichmäßig zwischen einem Start- und einem Endwert mit einer beliebigen Schrittweite zu variieren und für jeden Schritt ein Photoelektronen-Spektrum aufzunehmen. Mit dem Polarisationsformer erweitern sich die Möglichkeiten weiter, sodass zwei weitere Möglichkeiten eingebaut sind. Zum einen kann ein Laserpuls mit einer Phasenfunktion generiert werden, bei dem ein Teil des Spektrum mittels Phasenmodulation um einen kleinen Zeitabstand vor den Hauptpuls geschoben wird. Ein weiterer Teil des Spektrums wird hinter den Hauptpuls geschoben. Man erhält einen *farbigen* Dreifach-Puls mit variablen Intensitäten, die mit der Position der Sprungstellen eingestellt werden können (siehe auch Kapitel 4.1.2). Gleichzeitig kann jeder Spektralanteil noch in seinem Polarisations-Zustand geändert werden. Vier unterschiedliche Polarisationszustände sind ausgewählt: links-zirkular, rechts-zirkular, horizontal und vertikal. Neben dieser sehr speziellen Form der Polarisationsformung ist auch eine universelle Messmethode eingebaut, die aus einem Verzeichnis sämtliche Dateien einliest, die Phasen für den Polarisationsformer enthalten. Diese werden nacheinander abgerufen und gemäß der eingestellten Parameter wird die Messung durchgeführt. Hiermit sind dem Einfallsreichtum des Experimentators keine Grenzen mehr gesetzt.

Im Rahmen der Experimente in Kapitel 6 wurde das Messprogramm abermals erweitert und die Möglichkeit eingebaut, die tomographischen Projektionen der generierten Elektronenwellenpakete aufzunehmen. Dafür wird mit dem Optikrotator eine  $\lambda/2$ -Platte im Laserstrahl gedreht und somit die Polarisation der Laserpulse rotiert. Dies wird für einen Gesamtwinkel von  $180^\circ$  durchgeführt, um die notwendigen Projektionen für die Rekonstruktion mit dem Tomographie-Algorithmus zu erhalten. Eine Anzahl von 37 Projektionen für den Bereich von  $0^\circ$  bis  $180^\circ$  hat sich in Testmessungen als optimaler Kompromiss zwischen Messzeit und Auflösung herausgestellt. Hierbei wird die dreidimensionale Verteilung in jeweils  $5^\circ$ -Schritten gedreht und somit werden ausreichend viele Projektionen gemessen, um die Rekonstruktion durchführen zu können.

Diese Messung der Projektionen kann auch mit der Variation eines Abschwächers kombiniert werden, so dass intensitätsabhängige dreidimensionale Elektronenverteilungen gemessen werden können oder auch mit dem Anlegen von Phasenmasken

am Polarisationsformer, womit es möglich wird die dreidimensionale Elektronenverteilung für eine große Menge an polarisationsgeformten Laserpulsen zu bestimmen.

## C.2 Analyseprogramm

In dem Programm - *analysator\_vXX.vi* - sind alle notwendigen Routinen zusammengeführt, die notwendig sind, um die von der Kamera aufgenommenen Photoelektronenspektren zu zentrieren, passend zu beschneiden, etwaige Störsignale zu entfernen und die Photoelektronenspektren zu invertieren. Die bei der Analyse entstehenden Daten werden jeweils als ASCII-Daten und als Bitmap abgespeichert. Je nach Analysemethode erhält man das zentrierte und beschnittene Bild, das mit dem pBasex-Algorithmus invertierte Bild in polarer und kartesischer Darstellung, sowie den  $c_{kl}$ -Vektor. Weiterhin wird mit der Repellerspannung eine vorläufige Energieskala generiert, die zusammen mit den invertierten Daten zu radial aufintegrierten Photoelektronenspektren führt.

Da an den meisten Messtagen eine große Anzahl an einzelnen Messungen aufgenommen wurden, war es notwendig, die Analyse automatisiert ablaufen zu lassen. Um eine automatische Analyse durchführen zu können, ist es notwendig in erster Linie die Mitte der Photoelektronenverteilung zu bestimmen. Da für jeden Messtag die Korrekturfelder der Helmholtz-Spulen unterschiedlich justiert werden, ist die Position der Photoelektronenspektren an minimal unterschiedlichen Stellen auf dem Detektor.

Um die Mitte einer symmetrischen Signalverteilung zu finden, gibt es zahlreiche Methoden, die allerdings viel Zeit benötigen. Für das Analyseprogramm war es notwendig, das sowohl eine sichere, als auch eine schnelle Bestimmung des Zentrums der Photoelektronenverteilung durchgeführt werden kann. Manuell empfiehlt es sich, die Polardarstellung für unterschiedliche Cursor-Positionen anzusehen und dann auf Strukturen zu achten, die etwa parallel zur Winkelachse verlaufen. Sind diese Strukturen exakt parallel zur Winkelachse, ist das Zentrum gefunden.

Algorithmisch wird ein anderer Weg beschritten. Die effektivste Methode besteht aus einer Kombination dreier unterschiedlicher Methoden, die jeweils mehr Zeit benötigen und dann aber die Mitte umso genauer finden. Der einfachste Algorithmus läuft sehr schnell, findet die Mitte aber nur sehr ungenau. Der letzte dagegen findet die Mitte sehr genau, benötigt jedoch sehr viel Zeit. Der Algorithmus dazwischen liegt auch in Geschwindigkeit und Genauigkeit in der Mitte zwischen den beiden anderen.

Bei dem einfachsten Algorithmus handelt es sich um die Bestimmung des Schwer-

punktes. Er wird folgendermaßen berechnet:

$$\vec{r} = \frac{1}{m} \sum_i \vec{r}_i m_i \quad (\text{C.1})$$

Diese Berechnung verläuft relativ schnell und kann grob die Mitte der Photoelektronenverteilung bestimmen. Da der verwendete Detektor unterschiedliche Verstärkung auf den einzelnen Seiten haben kann und die Verteilungen im Experiment nicht immer perfekt symmetrisch sind, ist die Fehleranfälligkeit der Schwerpunktbestimmung hoch. Man bestimmt mit ihr lediglich den Punkt, um den im folgenden die weiteren Algorithmen angewendet werden.

Der nächste Algorithmus, der angewendet wird, beruht auf der Tatsache, dass ein Schnitt durch die Photoelektronenverteilung in horizontaler bzw. vertikaler Richtung eine Struktur mit verschiedenen Maxima erzeugt. Diese eindimensionale Struktur kann bei Wahl eines Punktes etwa in der Mitte es möglich machen, die Teilstruktur auf der einen Seite des gewählten Punktes mit der Teilstruktur der anderen Seite des Punktes zu vergleichen. Hierfür dreht man die eindimensionale Datenstruktur auf einer Seite um und bildet die Differenz. Ist diese Differenz minimal, so ist dies der wahrscheinlichste Mittelpunkt. Diese Mittelpunkte für alle Zeilen bzw. Spalten werden mit dem in der jeweiligen Zeile bzw. Spalte enthaltene maximalen Wert gewichtet, um unwichtige Details am äußeren Rand zu unterdrücken und ausgegeben. Hiermit hat man eine genauere Bestimmung des Mittelpunktes vorgenommen, die aber immer noch nicht sicher ist. Daher wird der hier bestimmte Mittelpunkt wiederum als Ausgangspunkt für den letzten und langsamsten Algorithmus verwendet. Bei diesem Algorithmus nutzt man die Eigenschaften der Symmetrie so weit möglich aus, um die optimale Mitte zu bestimmen. Für einen kleinen Bereich von Mittelpunkten wird jeweils die Polardarstellung berechnet und die vier Quadranten miteinander verglichen. Gewichtet mit der Intensität unter den verschiedenen Winkeln erhält man so wiederum eine zweidimensionale Karte, dessen Minimum den Punkt markiert, an dem alle vier Quadranten die gleiche Information enthalten. Aufgrund der durchgeführten Polartransformation wäre diese Analysemethode alleine sehr langsam. Nur die Vorbestimmung des Bereichs in dem der Mittelpunkt liegen muss, macht es möglich, dass der Algorithmus in einem kleinen Bereich in kurzer Zeit mit hoher Sicherheit die Mitte findet.

Der so gewonnene Mittelpunkt wird im folgenden verwendet, um das Bild quadratisch zu beschneiden und Strukturen in den Ecken der Daten zu entfernen, um den Rekonstruktionsalgorithmus zu unterstützen. Des weiteren ist es möglich, unerwünschte Bereiche im Bild zu entfernen. Dies kann notwendig werden, wenn sich auf den Detektor-MCPs kleine Partikel absetzen und ein kontinuierliches Signal erzeugen. Dieser Bereich des Fremdsignal wird dann durch das Messsignal der gegenüberliegenden Seite der Photoelektronenverteilung ersetzt und so eine weitere

Analyse erst möglich gemacht. Anschließend wird die Polartransformation durchgeführt und die vier Quadranten ihrer Symmetrie folgend aufaddiert.

Das so erhaltene polar-transformierte Messsignal wird nun mit dem pBasex-Algorithmus rekonstruiert (siehe Kapitel 1.3.2). Der so erhaltene Schnitt durch die dreidimensionale Photoelektronenverteilung wird dargestellt und, ebenso wie das modifizierte Messsignal und der  $c_{kl}$ -Vektor, gespeichert. Mittels der durchgeführten Energie-Spannungskalibrierung für das abbildende Spektrometer (siehe [11]) wird über die analytische Formel (1.22) und den Koeffizientenvektor  $c_{kl}$  die über alle Winkel aufsummierten energieaufgelösten Spektren berechnet und gespeichert. Hiermit hat man von der Messung alle notwendigen Informationen extrahiert, die für die finale Auswertung notwendig sind.

Zusätzlich wurde in das Analyseprogramm die für die tomographische Entfaltung notwendigen Subroutinen eingebaut, so dass im optimalen Fall nur die Störsignale des Detektors manuell markiert werden müssen und danach die komplette Rekonstruktion automatisch abläuft.

Hierbei verwendet das Analyse-VI die Dateinamen der tomographischen Projektionen, die als eindeutiger Marker für die Zugehörigkeit zu einer dreidimensionalen Elektronenverteilung dient. Die Messdaten werden ebenso wie oben beschrieben zentriert und von den Störsignalen befreit und dann durch den Dateinamen einer dreidimensionalen Elektronenverteilung zugeordnet. Ist dies für alle gemessenen Bilder durchgeführt worden, hat man mehrere Verzeichnisse, numeriert von "0000" bis zu einer Zahl, die der Anzahl der dreidimensionalen Elektronenverteilung entspricht. In dem Verzeichnis "0000" sind alle Messdaten, die nicht eindeutig einer dreidimensionalen Elektronenverteilung zugeordnet werden konnten und in den anderen Verzeichnissen sind die jeweiligen Projektionen der dreidimensionalen Elektronenverteilung, die in der Größe skaliert wurden, um die Rekonstruktion optimal durchzuführen. Nun werden aus den Projektionen die Linienintegrale extrahiert (siehe Kapitel 5.3), die die Ausgangsbasis für jeden Slice der dreidimensionalen Elektronenverteilung darstellen und werden in einer Datei zusammengefasst. Diese Datei hat die Endung "\*.tpd" für "tomography-projection-data". Aus jeder einzelnen tpd-Datei wird nun durch den Tomographie-Algorithmus ein Slice berechnet (Slice????.da0 - die ???? stehen für eine vierstellige Nummer, die die  $z$ -Position des Slice angibt), der die Intensitätsinformation dieser "Scheibe" der dreidimensionalen Elektronenverteilung enthält. Ist dies für alle tpd-Dateien durchgeführt, so ist die Rekonstruktion vollständig und es können dreidimensionale Daten erzeugt werden. Hierfür hat sich auf der einen Seite das sogenannte "df3"-Format angeboten, da dieses Format von 3D-Visualisierung Programmen (z.B. PovRay) unterstützt wird. Eine weitere Verarbeitung der Daten kann unter Umständen nochmals notwendig werden, daher wurde als Alternative eine Speicherung als Binär-Datei (\*.bin) vorgenommen mit einer Auflösung von 16 bit (unsigned Integer). Diese Da-

tei wird dann im weiteren verwendet, um wiederum df3-Dateien zu erzeugen, die aber während der Konvertierung modifiziert werden können.

Je nach verwendetem Computer besteht die Möglichkeit, dass die Arbeitsspeicher-Menge für die ganzen Operationen nicht ausreichend ist und der Computer bei der Generierung der Binärdateien oder der Generierung der df3-Dateien zuwenig Restspeicher hat. Hierfür sind entsprechende Programme vorbereitet, die dann nach einem Beenden und Neustarten von LabVIEW die entsprechenden Operationen durchführen können.

Im Idealfall kann das Programm entsprechend eingestellt werden und eigenständig alle notwendigen Massnahmen durchführen, die zur Rekonstruktion notwendig sind, bis schließlich zur dreidimensionalen Information oder im Fall des pBasex-Algorithmus zur kompletten  $c_{kl}$ -Sammlung der Messdaten.

## C.3 Auswertungsprogramm

Für die finale Auswertung bedient man sich Methoden, die für die jeweiligen Messungen und das Ziel der Messungen maßgeschneidert sind. Die im Rahmen des Analyseprogramms (siehe Anhang C.2) rekonstruierten Photoelektronenspektren in Form der  $c_{kl}$ -Vektoren werden weiterverarbeitet und visualisiert. Als Beispiel wird hier die im Kapitel 3 durchgeführte Auswertung der gechirpten Anregung von Natriumatomen gezeigt. Aus den  $c_{kl}$ -Vektoren werden mittels der Energiekalibrierung des abbildenden Spektrometers und der analytischen Formel (siehe 1.30) eindimensionale energieaufgelöste Photoelektronen-Spektren erzeugt. Diese Photoelektronen-Spektren werden in Abhängigkeit des Chirpparameters  $\varphi_2$  als zweidimensionale Oberfläche dargestellt. Hier wird eine Asymmetrie in den Energiekanälen der erzeugten Photoelektronen deutlich, die bei gleichem  $|\varphi_2|$ , aber unterschiedlichem Vorzeichen auftreten.

Ein weiterer Effekt der im Rahmen dieser Messung untersucht wurde, ist die Anregung der Natriumatome nicht nur über die Zweiphotonen-Resonanz  $4s \leftarrow \leftarrow 3s$ , sondern auch die Anregung  $5f, 6f \leftarrow \leftarrow \leftarrow 3s$  über drei Photonen. Diese Anregung, die in einem normalen "time-of-flight"(Flugzeit)-Elektronenspektrometer schwierig zu erkennen gewesen wäre, ist hier einfach von der resonanten Anregung  $5p, 6p, 7p \leftarrow 4s \leftarrow \leftarrow 3s$  zu trennen, da die Winkelverteilung über die  $f$ -Niveaus zu Photoelektronen-Spektren mit deutlich mehr Knotenpunkten führen. Diese können in den rekonstruierten Photoelektronen-Spektren ebenso wie in dem  $c_{kl}$ -Vektor gefunden werden. Zur Visualisierung kann über einen kleinen Bereich von kinetischer Energie der Photoelektronen aufintegriert werden, sodaß man ein Photoelektronen-Signal in Abhängigkeit des Winkels berechnet und die Knoten-

struktur hier visualisiert werden kann.

Eine alternative Analyse-Methode ist die Berechnung der Anisotropie-Parameter  $\beta_{2n}$ , die ein Maß für die Anisotropie der Winkelverteilung darstellt und primär bei Ionen-Imaging eine Rolle spielen (siehe [14]). Bei Elektronen und Multiphotonen-Anregung werden aber auch hohe  $n$  bei  $\beta_{2n}$  betrachtet, die nur wenig Informationen über die Elektronenwellen ergeben, da Interferenzen zwischen den verschiedenen Elektronen-Wellenpaketen möglich sind.

Zusammenfassend kann man sagen, dass die Trennung der Auswertung in Rekonstruktion der dreidimensionalen Winkelverteilungen sowie der Auswertung der rekonstruierten Spektren je nach Ziel der durchgeführten Messungen einen deutlichen Vorteil bringt. Die Analyse und Rekonstruktion läuft mittels der in Anhang C.2 beschriebenen Algorithmen vollständig automatisch ab und kann bei extremen Datenmengen auch über Nacht laufen. Die daraus entstehenden Rekonstruktionen und vor allem der  $c_{kl}$ -Vektor, der alle zur Rekonstruktion notwendigen Parameter enthält, ist von der Datenmenge sehr kompakt, da es sich ausschließlich um Koeffizienten einer analytischen Formel (1.30) handelt. Für die unterschiedlichen Auswertemethoden können jeweils maßgeschneiderte Programme erstellt werden, die beispielsweise den  $c_{kl}$ -Vektor verwenden, um zweidimensionale Karten einer atomaren Anregung zu generieren oder um eine gleichmäßige Abtastung eines Parameters darzustellen. Dies wurde für die in Kapitel 3 gezeigten Messungen gemacht.

# Anhang D

## Das Natrium-Atom

In diesem Anhang sind die für die Simulationen in Kapitel 3 notwendigen Zustände mit ihren Energien und den verwendeten Dipolmomenten dargestellt. In der ersten Tabelle sind die Energien der einzelnen Zustände dargestellt:

Zustand	$E_i$ [eV]
$3s_{1/2}$	0,0000
$3p_{1/2}$	2,1023
$3p_{3/2}$	2,1044
$4s_{1/2}$	3,1914
$3d_{3/2}$	3,6158
$3d_{5/2}$	3,6169
$4d_{5/2}$	4,2840
$4d_{3/2}$	4,2850
$4f_{5/2}$	4,2870
$4f_{7/2}$	4,2880
$5p_{1/2}$	4,3440
$5p_{3/2}$	4,3450
$5f_{5/2}$	4,5950
$5f_{7/2}$	4,5951
$6p_{1/2}$	4,6240
$6p_{3/2}$	4,6241
$6f_{5/2}$	4,7610
$6f_{7/2}$	4,7611
$7p_{1/2}$	4,7780
$7p_{3/2}$	4,7781

## ANHANG D. DAS NATRIUM-ATOM

---

In der zweiten Tabelle sind die Dipolmomente in atomaren Einheiten ( $e \cdot a_0$ ) dargestellt, wobei nur die untere linke Hälfte mit Werten gefüllt ist. Für die rechte obere Hälfte gelten die entsprechenden Werte der anderen Hälfte bei Vertauschung der Indizes. Auf die Dipolmomente der hochliegenden Zustände mit anderen hochliegenden Zuständen wurde verzichtet, da sie gleich Null sind und die Tabelle nur unübersichtlicher machen würden.

$\mu_{ij}$ [a.u.]	$3s_{1/2}$	$3p_{1/2}$	$3p_{3/2}$	$4s_{1/2}$	$3d_{3/2}$	$3d_{5/2}$	$4d_{5/2}$	$4d_{3/2}$
$3s_{1/2}$	×	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
$3p_{1/2}$	2,879	×	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
$3p_{3/2}$	4,072	0,000	×	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
$4s_{1/2}$	0,000	2,923	4,146	×	0,000	0,000	0,000	0,000
$3d_{3/2}$	0,000	5,571	0,789	0,000	×	0,000	0,000	0,000
$3d_{5/2}$	0,000	0,000	5,791	0,000	0,000	×	0,000	0,000
$4d_{5/2}$	0,000	0,000	1,042	0,000	0,000	0,000	×	0,000
$4d_{3/2}$	0,000	0,000	0,541	0,000	0,000	0,000	0,000	×
$4f_{5/2}$	0,000	0,000	0,000	0,000	9,890	0,580	0,000	0,000
$4f_{7/2}$	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	9,980	0,000	0,000
$5p_{1/2}$	0,090	0,000	0,000	0,768	0,180	0,000	0,000	0,000
$5p_{3/2}$	0,129	0,000	0,000	0,000	0,000	0,197	0,000	0,000
$5f_{5/2}$	0,000	0,000	0,543	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
$5f_{7/2}$	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,844	0,000	0,000
$6p_{1/2}$	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
$6p_{3/2}$	0,068	0,000	0,000	0,433	0,070	0,000	0,000	0,000
$6f_{5/2}$	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,027	0,000	0,000
$6f_{7/2}$	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,464	0,000	0,000
$7p_{1/2}$	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000	0,000
$7p_{3/2}$	0,043	0,000	0,000	0,238	0,000	0,000	0,000	0,000

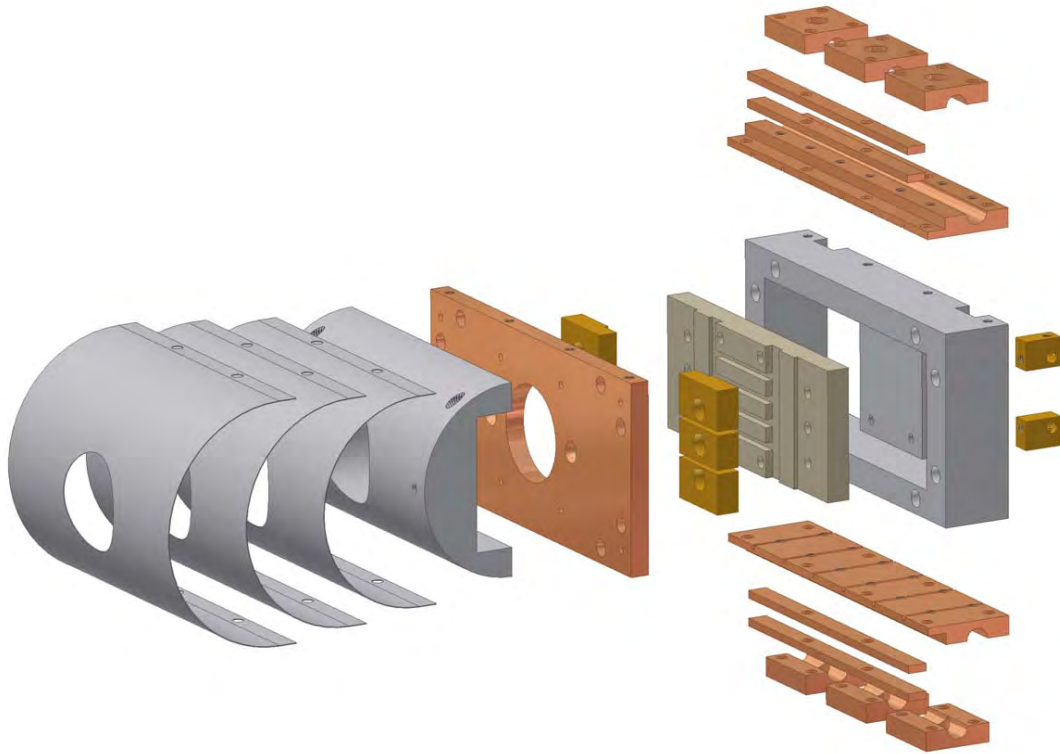


# Anhang E

## Dispenserhalter V3

In diesem Anhang wird der Dispenserhalter V3 dargestellt, der im Rahmen der durchgeführten Experimente verwendet wurde. Frühere Versionen des Dispenserhalters zeigten kleinere Probleme auf, die bei der Verwendung der Dispenser als Quellen von Alkalimetall-Atomen auftraten. Zum einen wurde das  $\mu$ -Metall, das zur Abschirmung der magnetischen Felder um die Dispenser nötig war, durch die bei hohen Strömen emittierten thermischen Elektronen stark erwärmt, was nach einigen Stunden zu einer Verringerung der Abschirmfähigkeit des  $\mu$ -Metalls führte. Gleichzeitig war die Teilchendichte, die man mit zwei Dispensern in den älteren Dispenserhaltern erreichen konnte, gerade an der Schwelle für gute Messungen. Weiterhin war das Auswechseln der Dispenser, was jedoch nur in zeitlichen Abständen von einigen Monaten notwendig war, äußerst schwierig, da kleinste Schrauben und Kontaktierungen ohne Kurzschluss zusammengebracht werden mussten. Mit dem in Abbildung E.1 gezeigten Dispenserhalter wurden die verschiedenen Probleme behoben. Eine Erhöhung der Dispenseranzahl auf vier Dispenser erhöhte die Teilchendichte im Interaktionsgebiet im günstigsten Fall um einen Faktor zwei. Die thermischen Elektronen, die nun verstärkt auftraten, wurden schon allein durch die höhere Wärmekapazität der abschirmenden Bauteile aufgenommen. Die nun dreischichtige  $\mu$ -Metall Abschirmung ist sehr gut gegen die wärmeableitenden Bauteile isoliert und funktionieren selbst nach mehreren Messtagen noch einwandfrei. Durch den neuen modularen Aufbau kann der Dispenserhalter leicht zerlegt und gereinigt werden, wobei die Verwendung von hauptsächlich M3-Schrauben den Zusammenbau deutlich erleichtert. Der Prototyp des Keramikhalters (siehe Abbildung E.1 - braun) wurde aus einer Keramik gefertigt, die aus Vorräten der Arbeitsgruppe genommen wurde. Diese Keramik war schon stark gealtert und daher sehr brüchig. Um die Verfügbarkeit weiterer Dispenserhalter sicherzustellen,

wurden diese aus **Macor®** gefertigt, die auch größten Temperaturen widerstehen können.



**Abbildung E.1:** Explosionszeichnung des Dispenserhalter V3. Eine speziell geformte Keramik (braun) wird in eine Aluminium-Rahmenkonstruktion eingesetzt. Die Dispenser werden mit mehreren Messing-Teilen auf der Keramik kontaktiert. Als Abdeckung wird eine Kupferplatte verwendet, die die entstehende Wärme zu den Seiten ableitet. Eine halbkreis-förmige Abdeckung sorgt für den Schutz des  $\mu$ -Metalls vor thermischen Elektronen aus den Dispensern. Die dreischichtige  $\mu$ -Metall Abschirmung ist thermisch durch das Vakuum gegen die Innenteile isoliert und wird an den Außenseiten der Kupferplatte angeschraubt. Die Kupferplatte kann durch oben und unten angebrachte weitere Kupferteile gekühlt werden, die mit Kühlwasser durchflossen werden. Alle Gewinde werden durch Querbohrungen und kleine Kanäle entlüftet, so dass keine Luft eingeschlossen werden kann, die später eventuell die Messungen stört.

# Liste der Veröffentlichungen

Die in dieser Dissertation enthaltenen Ergebnisse wurden zu Teilen in den folgenden Veröffentlichungen publiziert:

- M. WOLLENHAUPT, M. KRUG, J. KÖHLER, T. BAYER, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT:  
*Photoelectron angular distributions from strong-field coherent electronic excitation.*  
Appl. Phys. B, **95**:245–259, 2009.
- M. WOLLENHAUPT, M. KRUG, J. KÖHLER, T. BAYER, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT:  
*Three-dimensional tomographic reconstruction of ultrashort free electron wave packets.*  
Appl. Phys. B, **95**:647–651, 2009.
- M. KRUG, T. BAYER, M. WOLLENHAUPT, C. SARPE-TUDORAN, T. BAUMERT, S. S. IVANOV und N.V. VITANOV:  
*Coherent strong-field control of multiple states by a single chirped femtosecond laser pulse.*  
N. J. Phys., **11**:105051, 2009.

Des weiteren wurde im Rahmen meiner Promotion noch folgende Veröffentlichungen publiziert, die außerhalb des Rahmens der vorliegenden Dissertation liegen:

- C. HORN, M. WOLLENHAUPT, M. KRUG, T. BAUMERT, R. DE NALDA und L. BAÑARES:  
*Adaptive control of molecular alignment.*  
Phys. Rev. A, **73**(3):031401, 2006.

- 
- R. DE NALDA, C. HORN, M. KRUG, F. AUSFELDER, M. WOLLENHAUPT, L. BAÑARES und T. BAUMERT:  
*Pulse shaping control of spatially aligned rotational wavepackets of N<sub>2</sub> and O<sub>2</sub>.*  
In: CASTLEMAN JR., W. (Herausgeber): *Femtochemistry VII: Fundamental Ultrafast Processes in Chemistry, Physics, and Biology*, 510–513. Elsevier, 2006.
  - R. DE NALDA, C. HORN, M. WOLLENHAUPT, M. KRUG, L. BAÑARES und T. BAUMERT:  
*Pulse shaping control of alignment dynamics in N<sub>2</sub>.*  
Journal of Raman Spectroscopy, **38**(5):543–550, 2007.
  - M. WOLLENHAUPT, T. BAYER, M. KRUG, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT:  
*Coherent control of electrons, atoms and molecules with intense shaped light pulses.*  
Journal of Physics: Conference Series, **88**(5):012053, 2007.

# Danksagung

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

An erster Stelle ist Prof. Dr. Thomas Baumert zu nennen, der es ermöglicht hat, die Doktorarbeit in der Arbeitsgruppe Experimentalphysik III durchzuführen. Das von ihm entgegengebrachte Vertrauen, seine ständige Bereitschaft zur Diskussion und zahlreiche Ideen haben zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen.

Besonderer Dank gilt Priv. Doz. Dr. habil. Matthias Wollenhaupt, der diese Arbeit mit Diskussionen und wissenschaftlichen Gesprächen begleitet hat und immer wieder Anstöße für neue Ideen und Experimente gab, sowie bei der Publikation der Veröffentlichungen maßgeblich beteiligt war.

Ebenso gilt mein besonderer Dank meinen Mitstreitern Jens Köhler, Tim Bayer und Andrea Klumpp für die Hilfe bei zahlreichen Projekten.

Weiterhin möchte ich den anderen Mitgliedern der Arbeitsgruppe Experimentalphysik III danken, die bei angenehmer Arbeitsatmosphäre immer mit Rat und Tat zur Seite standen: A. Assion, R. Bäumner, E. Brühl, L. Englert, Ch. Gerbig, M. Gerlach, O. Graefe, L. Haag, A. Horn, C. Horn, T. Kalas, P. Kasper, D. Liese, C. Lux, F. Majorov, U. Meier-Diedrich, J. Mildner, A. Präkelt, S. Reinhard, M. Ruge, J. Schneider, C. Sarpe-Tudoran, E. Weber, M. Winter.

Zum Abschluss möchte ich auch den Kooperationspartnern danken mit denen ich Experimente machen konnte oder mit denen wir uns ausgetauscht haben: Universidad Complutense de Madrid - Rebeca de Nalda, Judith Dura und Luis Bañares; Sofia University - Nikolay V. Vitanov und Svetoslav S. Ivanov

---

# Literaturverzeichnis

- [1] KRUG, M., T. BAYER, M. WOLLENHAUPT, C. SARPE-TUDORAN, T. BAUMERT, S.S. IVANOV und N.V. VITANOV: *Coherent strong-field control of multiple states by a single chirped femtosecond laser pulse*. New Journal of Physics, 11:105051, 2009.
- [2] WOLLENHAUPT, M., M. KRUG, J. KÖHLER, T. BAYER, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT: *Photoelectron angular distributions from strong-field coherent electronic excitation*. Appl. Phys. B, 95:245–259, 2009.
- [3] WOLLENHAUPT, M., M. KRUG, J. KÖHLER, T. BAYER, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT: *Three-dimensional tomographic reconstruction of ultrashort free electron wave packets*. Appl. Phys. B, 95:647, 2009.
- [4] WOLLENHAUPT, M., A. ASSION und T. BAUMERT: *Springer Handbook of Lasers and Optics (Editor F. Träger): Kapitel 12 - Femtosecond Laser Pulses: Linear Properties, Manipulation, Generation and Measurement*, Band 1. Springer, Berlin, 2007.
- [5] DIELS, JEAN-CLAUDE und WOLFGANG RUDOLPH: *Ultrashort Laser Pulse Phenomena: Fundamentals, Techniques, and Applications on a Femtosecond Time Scale*, Band 1. Academic Pr Inc, 1996.
- [6] KÖHLER, JENS: *Aufbau eines hochauflösenden Polarisationspulsformers für Femtosekunden-Laserpulse*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 2006.
- [7] D.J. JONES, S.A. DIDDAMS, J.K. RANKA A. STENTZ R.S. WINDELER J.L. HALL S.T. CUNDIFF: *Carrier-Envelope Phase Control of Femtosecond Mode-Locked Lasers and Direct Optical Frequency Synthesis*. Science, 288:635–639, 2000.
- [8] NUERNBERGER, PATRICK: *Differences and analogies between linearly chirped and colored double pulses in the femtosecond regime*. Optics Communications, 282:227–235, 2009.

- [9] ENGLERT, L., B. RETHFELD, L. HAAG, M. WOLLENHAUPT, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT: *Control of ionization processes in high band gap materials via tailored femtosecond pulses*. Optics Express, 15:17855, 2007.
- [10] LIESE, DIRK: *Zeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie an Kaliumatomen in intensiven Femtosekundenlaserfeldern*. Doktorarbeit, Universität Kassel, 2007.
- [11] KRUG, MARC: *Aufbau eines abbildenden Photoelektronen-Spektrometers*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 2005.
- [12] V. SCHYJA, T.LANG und H.HELM: *Channel switching in above-threshold ionization of xenon*. Phys. Rev. A, 57:3692–3697, 1997.
- [13] EPPINK, A.T.J.B. und DAVID H. PARKER: *Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen*. Rev. Sci. Instr., 68:3477–3484, 1997.
- [14] GARCIA, GUSTAVO A., LAURENT NAHON und IVAN POWIS: *Two-dimensional charged particle image inversion using a polar basis function expansion*. Rev. Sci. Instr., 75:4989–4996, 2004.
- [15] C.BORDAS, F.PAULIG, H.HELM und D.L.HUESTIS: *Photoelectron imaging spectrometry: Principle and inversion method*. Rev. Sci. Instr., 67:2257–2268, 1996.
- [16] WHITAKER, BENJAMIN (Herausgeber): *Imaging in Molecular Dynamics - Technology and Applications*. Cambridge University Press, 2003.
- [17] DRIBINSKI, VLADIMIR, ALEXEI OSSADTCHI, VLADIMIR A. MANDELSHTAM und HANNA REISLER: *Reconstruction of Abel-transformable images - The Gaussian basis-set expansion Abel transform method*. Rev.Sci.Instr., 73:2834, 2002.
- [18] PRESS, W. H.: *Numerical Recipes in Fortran 90: The Art of Parallel Scientific Computing*, Band 2nd ed. Cambridge University Press, Cambridge, 1996.
- [19] STRUVE, W. S.: *Fundamentals of Molecular Spectroscopy*. John Wiley & Sons, New York, 1989.
- [20] STEINFELD, J.I. (Herausgeber): *Molecules and Radiation: An Introduction to Modern Molecular Spectroscopy*. MIT Press, 1985.



- [21] WOLLENHAUPT, MATTHIAS (Herausgeber): *Observation and Coherent Control of Atomic and Molecular Dynamics*. Habilitationsschrift - Uni Kassel, 2004.
- [22] HORN, CHRISTIAN: *Vektorielle Quantenkontrolle an Molekülen mit Hilfe von maßgeschneiderten Femtosekundenlaserpulsen*. Doktorarbeit, Universität Kassel, 2007.
- [23] BAYER, TIM: *Kohärente Kontrolle von Kalium-Atomen in intensiven Laserfeldern: Kontrolllandschaften und Optimierung der selektiven Bevölkung bekleideter Zustände*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 2006.
- [24] PHYSICS, SPECTRA (Herausgeber): *Spectra Physics Laser Manual Indi-30*. Spectra Physics, 1998.
- [25] *User's Manual for Mirror-Dispersion-Controlled Ti:Sapphire Oscillator: Femtosource Scientific SPro*. Wien, 2000.
- [26] O'SHEA, P., M. KIMMEL, X. GU und R. TREBINO: *Highly simplified device for ultrashort-pulse measurement*. Opt. Lett., 26:932–934, 2001.
- [27] *User's Manual for Femtosecond Multipass Amplifier: Femtopower Pro*. Wien, 2000.
- [28] PRÄKELT, A., M. WOLLENHAUPT, A. ASSION, CH. HORN, C. SARPE-TUDORAN, M. WINTER und T. BAUMERT: *Compact, robust, and flexible setup for femtosecond pulse shaping*. Rev. Sci. Instr., 74:4950–4953, 2003.
- [29] PRÄKELT, ANDREAS: *Hochleistungspulsformer in Kompaktbauweise*. Diplomarbeit, Universität Kassel, 2003.
- [30] WÖSSNER, DIRK: *Femtosekundenzeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie am Natrium-Dimer und Aufbau einer Molekularstrahlapparatur*. Diplomarbeit, Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 1997.
- [31] GEYER, ULF: *Photoelektronen Bildspektroskopie zur Ionisation von Rydbergatomen mittels THz-Strahlung*. Diplomarbeit, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, 2002.
- [32] WIEHLE, ROLF, BERND WITZEL, ERIC CORMIER und HANSPETER HELM: *Dynamics of strong-field above-threshold ionization of argon: Comparison between experiment and theory*. Phys.Rev.A, 67:063405, 2003.
- [33] WINTER, M.: *Messung von zeitlichen und räumlichen Strukturen mit ultrakurzen Elektronenpulsen*. Doktorarbeit, Universität Kassel, 2007.

- [34] BAUMERT, T., T. BRIXNER, V. SEYFRIED, M. STREHLE und G. GERBER: *Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback*. Appl. Phys. B, 65:779, 1997.
- [35] YELIN, D., D. MESHULACH und Y. SILBERBERG: *Adaptive femtosecond pulse compression*. Opt. Lett. 22, 22:1793, 1997.
- [36] BAUMERT, T., J. HELBING und G. GERBER: *Advances in Chemical Physics*. Wiley, 1997.
- [37] RICE, S. und M. ZHAO: *Optical Control of Molecular Dynamics*. Wiley, 2000.
- [38] SHAPIRO, M. und P. BRUMER: *Principles of the Quantum Control of Molecular Processes*. Wiley, 2003.
- [39] RABITZ, H., R. DE VIVIE-RIEDLE, M. MOTZKUS und K. KOMPA: *Whither the Future of Controlling Quantum Phenomena?* Science, 288:824, 2000.
- [40] LEVIS, R. und H. RABITZ: *Closing the Loop on Bond Selective Chemistry Using Tailored Strong Field Laser Pulses*. J. Phys. Chem. A, 106:6427, 2002.
- [41] DANTUS, M. und V. LOZOVY: *Experimental Coherent Laser Control of Physicochemical Processes*. Chem. Rev., 104:1813, 2004.
- [42] WOLLENHAUPT, M., V. ENGEL und T. BAUMERT: *Femtosecond Laser Photoelectron Spectroscopy on Atoms and Small Molecules: Prototype Studies in Quantum Control*. Annu. Rev. Phys. Chem., 56:25, 2005.
- [43] BRIXNER, T., T. PFEIFER, G. GERBER, M. WOLLENHAUPT und T. BAUMERT: *Femtosecond Laser Spectroscopy*. Springer, 2005.
- [44] TANNOR, D.: *Introduction to Quantum Mechanics*. University Science Books, 2006.
- [45] FIELDING, H., T. BAUMERT und M. SHAPIRO: *41 - Special Issue on Coherent Control*. 2008.
- [46] JUDSON, R. S. und H. RABITZ: *Teaching lasers to control molecules*. Phys. Rev. Lett., 68:1500, 1992.
- [47] ASSION, A., T. BAUMERT, M. BERGT, T. BRIXNER, B. KIEFER, V. SEYFRIED, M. STREHLE und G. GERBER: *Control of Chemical Reactions by Feedback-Optimized Phase-Shaped Femtosecond Laser Pulses*. Science, 282:919, 1998.

- [48] BAUMERT, T., T. BRIXNER, V. SEYFRIED, M. STREHLE und G. GERBER: *Femtosecond pulse shaping by an evolutionary algorithm with feedback*. Appl. Phys. B, 65:779, 1997.
- [49] MESHULACH, D., D. YELIN und Y. SILBERBERG: *Adaptive ultrashort pulse compression and shaping*. Opt. Comm., 138:345, 1997.
- [50] BARDEEN, C. J., V. V. YAKOLEV, K. R. WILSON, S. D. CARPENTER, P. M. WEBER und W. S. WARREN: *Feedback quantum control of molecular electronic population transfer*. Chem. Phys. Lett., 280:151, 1997.
- [51] 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.
- [52] DUDOVICH, N., T. POLACK, A. PE'ER und Y. SILBERBERG: *Simple Route to Strong-Field Coherent Control*. Phys. Rev. Lett., 94:083002, 2005.
- [53] TRALLERO-HERRERO, C., J. L. COHEN und T. WEINACHT: *Strong-Field Atomic Phase Matching*. Phys. Rev. Lett., 96:063603, 2006.
- [54] ZHDANOVICH, S., E. A. SHAPIRO, M. SHAPIRO, J. W. HEPBURN und V. MILNER: *Population Transfer between Two Quantum States by Piecewise Chirping of Femtosecond Pulses: Theory and Experiment*. Phys. Rev. Lett., 100:103004, 2008.
- [55] BAYER, T., M. WOLLENHAUPT, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT: *Robust Photon Locking*. Phys. Rev. Lett., 102:023004, 2009.
- [56] FROHNMEYER, T., M. HOFMANN, M. STREHLE und T. BAUMERT: *Mapping molecular dynamics (Na<sub>2</sub>)<sup>+</sup> in intense laser fields: another dimension to femtochemistry*. Chem. Phys. Lett., 312:447, 1999.
- [57] VITANOV, N. V., T. HALFMANN, B. W. SHORE und K. BERGMANN: *Laser-Induced Population Transfer by Adiabatic Passage Techniques*. Annu. Rev. Phys. Chem., 52:763, 2001.
- [58] SUSSMAN, B. J., D. TOWNSEND, M. Y. IVANOV und A. STOLOW: *Dynamic Stark Control of Photochemical Processes*. Science, 314:278, 2006.
- [59] GONZALEZ-VAZQUEZ, J., I. R. SOLA, J. SANTAMARIA und V. S. MALINOVSKY: *Quantum control of spin-orbit coupling by dynamic Stark-shifts induced by laser fields*. Chem. Phys. Lett., 431:231, 2006.

- [60] WOLLENHAUPT, M., D. LIESE, A. PRÄKELT, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT: *Quantum control by ultrafast dressed states tailoring*. Chem. Phys. Lett., 419:184, 2006.
- [61] WOLLENHAUPT, M., A. PRÄKELT, C. SARPE-TUDORAN, D. LIESE, T. BAYER und T. BAUMERT: *Femtosecond strong-field quantum control with sinusoidally phase-modulated pulses*. Phys. Rev. A, 73:063409, 2006.
- [62] WOLLENHAUPT, M. und T. BAUMERT: *Ultrafast strong field quantum control on K<sub>2</sub> dimers*. J. Photochem. Photobiol. A, 180:248, 2006.
- [63] WOLLENHAUPT, M., A. PRÄKELT, C. SARPE-TUDORAN, D. LIESE und T. BAUMERT: *Quantum control by selective population of dressed states using intense chirped femtosecond laser pulses*. Appl. Phys. B, 82:183, 2006.
- [64] MELINGER, J. S., SUKETU R. GANDHI, A. HARIHARAN, J. X. TULL und W. S. WARREN: *Generation of narrowband inversion with broadband laser pulses*. Phys. Rev. Lett., 68:2000, 1992.
- [65] BALLING, P., D. J. MAAS und L. D. NOORDAM: *Interference in climbing a quantum ladder system with frequency-chirped laser pulses*. Phys. Rev. A, 50:4276, 1994.
- [66] CHATEL, B., J. DEGERT, S. STOCK und B. GIRARD: *Competition between sequential and direct paths in a two-photon transition*. Phys. Rev. A, 68:041402, 2003.
- [67] DJOTYAN, G. P., J. S. BAKOS, G. DEMETER, P. N. IGNACZ, M. A. KEDVES, ZS. SÖRLEI, J. SZIGETI und Z. L. TOTH: *Coherent population transfer in Rb atoms by frequency-chirped laser pulses*. Phys. Rev. A, 68:053409, 2003.
- [68] NAKAJIMA, T.: *Above-threshold ionization by chirped laser pulses*. Phys. Rev. A, 75:053409, 2007.
- [69] CLOW, S. D., C. TRALLERO-HERRERO, T. BERGEMAN und T. WEINACHT: *Strong Field Multiphoton Inversion of a Three-Level System Using Shaped Ultrafast Laser Pulses*. Phys. Rev. Lett., 100:233603, 2008.
- [70] S. ZAMITH, J. DEGERT, S. STOCK B. DE BEAUVOIR V. BLANCHET M. A. BOUCHENE B. GIRARD: *Observation of Coherent Transients in Ultrashort Chirped Excitation of an Undamped Two-Level System*. Phys. Rev. Lett., 87:033001, 2001.
- [71] [www.nist.gov](http://www.nist.gov).

- [72] BRIXNER, T.: *Adaptive Femtosecond Quantum Control*. Doktorarbeit, Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 2001.
- [73] BAYER, T., M. WOLLENHAUPT und T. BAUMERT: *Strong-field control landscapes of coherent electronic excitation*. J. Phys. B: Special Issue on Coherent Control, 41:074007–1, 2008.
- [74] BAYER, T., M. WOLLENHAUPT, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT: *Robust Photon Locking*. Phys. Rev. Lett., 102:023004–1, 2009.
- [75] BRANSDEN, B.H.: *Physics of Atoms and Molecules*. Prentice Hall, 2003.
- [76] S.H., AUTLER und TOWNES C.H.: *Stark Effect in Rapidly Varying Fields*. Phys. Rev., 100:703, 1955.
- [77] WOLLENHAUPT, M., A. PRÄKELT, D. LIESE, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT: *Quantum control and quantum control landscapes using intense shaped femtosecond pulses*. J. Mod. Opt., 52:2187–2195, 2005.
- [78] 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: Quantum Semiclass. Opt., 7:S270–S276, 2005.
- [79] WOLLENHAUPT, M., D. LIESE, A. PRÄKELT, C. SARPE-TUDORAN und T. BAUMERT: *Quantum control by ultrafast dressed states tailoring*. Chem. Phys. Lett., 419:184, 2005.
- [80] WOLLENHAUPT, M., A. PRÄKELT, C. SARPE-TUDORAN, D. LIESE und T. BAUMERT: *Quantum control by selective population of dressed states using intense chirped femtosecond laser pulses*. Appl. Phys. B, 82:183, 2006.
- [81] WOLLENHAUPT, M., A. PRÄKELT, C. SARPE-TUDORAN, D. LIESE, T. BAYER und T. BAUMERT: *Femtosecond strong-field quantum control with sinusoidally phase-modulated pulses*. Phys. Rev. A, 73:063409–1, 2006.
- [82] BRIXNER, T., G. KRAMPERT, T. PFEIFER, R. SELLE, G. GERBER, M. WOLLENHAUPT, O. GRAEFE, C. HORN, D. LIESE und T. BAUMERT: *Quantum control by ultrafast polarization shaping*. Phys. Rev. Lett., 92(20):208301, 2004.
- [83] KAK, AVINASH C. und MALCOLM SLANEY: *Principles of Computerized Tomographic Imaging*. The Institute of Electrical and Electronics Engineers, inc. (IEEE Press), 1987.
- [84] [www.povray.org](http://www.povray.org).

- [85] *Model 5540 User's Manual – The Berek Polarization Compensator.*
- [86] PLEWICKI, M., F. WEISE, S. M. WEBER und A. LINDINGER: *Phase, amplitude, and polarization shaping with a pulse shaper in a Mach-Zehnder interferometer.* Appl. Opt., 45:8354, 2006.
- [87] NINCK, M., A. GALLER, T. FEURER und T. BRIXNER: *Programmable common-path vector field synthesizer for femtosecond pulses.* Opt. Lett., 32:3379, 2007.
- [88] MASIHZADEH, O., P. SCHLUP und R.A. BARTELS: *Complete polarization state control of ultrafast laser pulses with a single linear spatial light modulator.* Opt. Express, 15:18025, 2007.
- [89] WEISE, F. und A. LINDINGER: *Full control over the electric field using four liquid crystal arrays.* Opt. Lett., 34:1258, 2009.
- [90] BUTZ, T.: *Fouriertransformation für Fußgänger.* B.G. Teubner Verlagsgesellschaft Leipzig, 2 Auflage, 2000.
- [91] HAAG, LARS: *LIBS.* Doktorarbeit, Universität Kassel, (work in progress).