

GEFÖRDERT VOM



Bundesministerium  
für Bildung  
und Forschung

## Schlussbericht

Verbund: nein

Zuwendungsempfänger: Universität Münster  
Projektleitung: Prof. Dr. Helmut Zacharias  
E-Mail: [hzach@uni-muenster.de](mailto:hzach@uni-muenster.de)  
Förderkennzeichen: 05K19PM1  
Förderzeitraum: 01.07.2019 - 31.12.2023  
Zuwendung: 1.082.323,08 €  
Projektträger: Projektträger DESY

Zusätzlicher Kontakt: [office.son@uni-muenster.de](mailto:office.son@uni-muenster.de)  
Zusätzlicher Name: Anja Fliß

Genutzte Großgeräte:	Labor DESY	Gerät FLASH	Experiment
Diplomarbeiten:	0		
Dissertationen:	0		
Habilitationen:	0		
Referierte Publikationen:	6		
Andere Veröffentlichungen:	8		
Patente:	0		
Bachelorarbeiten:	1		
Masterarbeiten:	0		
Staatsexamen:	0		

Dieser Bericht wurde beim Projektträger über einen individuellen Online-Zugang vom Projektleiter eingereicht und am 26.06.2024 11:35 für eine Veröffentlichung freigegeben.

# Schlussbericht

Zuwendungsempfänger: Universität Münster

Projektleitung: Prof. Dr. Helmut Zacharias  
Center for Soft Nanoscience  
Universität Münster  
Busso-Peus-Str. 10  
48149 Münster

Verbund: - - -

Thema: Erweiterung der FLASH2-SDU für Zweifarben Pump/Probe-Experimente

## Zusammenfassung

Für die zeitaufgelöste Untersuchung von Dynamiken von Atomen, Molekülen und Festkörper wurde im Rahmen der Vorgängerprojekte (05K13PM2, 05K16PM1) eine Strahlteiler- und Verzögerungseinheit (engl. split-and-delay unit, SDU) aufgebaut. Die SDU ermöglicht es den Nutzern, mit den vom Freielektronen Laser (FEL) FLASH2 bereitgestellten ultrakurzen Pulsen im Bereich des extremen Ultraviolett und weichen Röntgenbereichs Pump/Probe-Experimente durchzuführen. Mit der SDU können zeitliche Verzögerungen von - 5 ps bis + 18 ps eingestellt werden. Mit einem zeitlichen Jitter von 120 as wird eine Zeitauflösung im Subfemtosekundenbereich erreicht. Eine weitere herausragende Eigenschaft ist die hohe Gesamttransmission der SDU über den betrachteten Energiebereich. Für die Fundamentalen wird beispielsweise  $T = 50\%$  erreicht. Dies wird durch die ausschließliche Verwendung von reflektiven Optiken und sehr flache Reflektionswinkeln erreicht. Zudem werden, je nach verwendeter Wellenlänge, unterschiedliche Reflektionsbeschichtungen angewendet. Die Entwicklung eines Zweifarben-Betriebs von FLASH2, die sich die variablen Gap-Undulatoren zunutze macht, um zwei verschiedene Photonenenergien im FEL simultan zu erzeugen, eröffnet die Möglichkeit, Zweifarben-Experimente mit präzise auf das zu untersuchende System abgestimmten Photonenenergien durchzuführen. Jedoch sind beide erzeugten Farben zeitlich und räumlich überlagert, sodass eine Zuordnung des Beitrags einer Farbe zum im Experiment stattfindenden physikalischen Prozess nicht möglich ist.

Ziel des Vorhabens ist es, zeitaufgelöste Zweifarben-Experimente mittels der SDU zu ermöglichen. Dieses Ziel wurde zum Einen durch einen zusätzlichen Strahlengang mit reflektiven Beugungsoptiken, zum Anderen durch den Einsatz geeigneter Filterkombinationen, die über ein Loadlock in die jeweiligen Strahlengänge eingebracht werden können, erreicht. Dabei konnte nahezu der gesamte Energiebereich, der durch Kombinationen der beiden Photonenenergien von FLASH2 bereitgestellt werden kann, abgedeckt werden. Im Berichtszeitraum wurde ein erstes zeitaufgelöstes Zweifarben Pump-Probe Nutzerexperiment erfolgreich durchgeführt.

# Bericht

## 1 Aufgabenstellung und Voraussetzungen, unter denen das Vorhaben durchgeführt wurde

Das Ziel des Projektes war die Ermöglichung von Zweifarben Pump/Probe Experimente am FLASH2 über die in den Vorgängerprojekten (05K13PM2, 05K16PM1) gebaute SDU. Die geplanten Experimente umfassen u.a. Pump/Probe-Experimente an atomaren und molekularen Systemen sowie Festkörpertargets, insbesondere magnetische Systeme. Zudem ist die Untersuchung der FEL-Strahlung selbst, insbesondere der zeitlichen und räumlichen Kohärenz sowie der zeitlichen Pulseigenschaften durchführbar. Eine hohe Transmission über den Energiebereich der Fundamentalen wird durch die komplementäre Verwendung zweier unterschiedlicher Beschichtungen erreicht. Für Photonenenergien bis 800 eV wird eine Nickelbeschichtung verwendet. Oberhalb dieser Photonenenergie wird eine Platinbeschichtung verwendet, die für diesen Bereich eine höhere Reflektivität aufweist. Die Strahlteilung erfolgt nach dem Prinzip der geometrischen Wellenfrontenteilung mittels eines zum Teil in den Strahl hineinragenden Strahlteilerspiegels. Nach der räumlichen Trennung und zeitlichen Verschiebung werden die beiden Teilstrahlen an einem Rekombinierspiegel wieder zusammengeführt und am Ort des Experimentes räumlich überlagert. Typischerweise wird als zusätzliche Optik eine KB-Optik verwendet, die die beiden Strahlen zusätzlich auf einen Strahldurchmesser von typischerweise unter 100 µm verkleinert. Die SDU bedient die FL24 und sollte im Rahmen des Vorgängerprojektes am FLASH2 fest installiert werden. Mittlerweile kann über einen hinter der SDU neu eingebauten Verteilerspiegel auch die FL23 bedient werden. Ein Umbau der SDU erfordert das Herausnehmen der gesamten Kammer aus dem Strahlengang und führt zu einer mehrwöchigen Unterbrechung des Betriebs der Beamline. Während des Projektes war folglich kein direkter Zugriff auf die SDU möglich.

2019 konnte gezeigt werden, dass mit den variable-gap Undulatoren des FLASH2 ein Zweifarben-Betrieb möglich ist: Dabei werden in den Undulatoren zwei Farben simultan erzeugt. Unterschiedliche Photonenenergien können über die charakteristischen Resonanzen einzelne Elemente selektiv anregen. Der entwickelte Zweifarben-Betrieb ermöglicht eine Vielfalt an Experimenten, in der in einem Experiment zwei verschiedene Resonanzen spezifisch angeregt und dadurch der zeitliche Verlauf elementsensitiv nachvollzogen werden kann. Während der FEL die nötige Strahlung bereitstellt, stellt die SDU das Werkzeug dar, um die Strahlung für Zweifarben Pump/Probe Experimenten zu nutzen: Sie trennt die beiden Farben zeitlich und räumlich.

Die Trennung der beiden Farben sollte im Rahmen des Projektes über zwei verschiedene Techniken erfolgen: Zum Einen über den Einsatz unterschiedlicher Filterkombinationen, mit denen in der SDU eine Trennung der beiden vorliegenden Farben in den jeweiligen Strahlengängen erfolgt, zum Anderen über die Verwendung eines chirpkompensierten Monochromators. Da Letzterer über einen großen Photonenenergiebereich verwendbar sein soll, musste eine Gittergeometrie gewählt werden, die einen großen Energiebereich abdeckt und gleichzeitig nach dem Verlassen des Pulses aus der SDU die Pulsdauer weitgehend erhält. Dazu waren Simulationen der möglichen Monochromatoraufbauten notwendig. Anschließend mussten die Ergebnisse in eine mechanische Konstruktion des Systems umgesetzt werden, die der vorgegebene, begrenzte räumliche Platz innerhalb der SDU vorgab. Um Filter für unterschiedliche Experimente flexibel und kurzfristig in die drei Strahlengänge einbringen zu können, war im Rahmen des Projektes der Einbau einer speziellen Filterschleuse geplant. Zur Erreichung des Ziel war ein umfangreicher Umbau und Erweiterung der SDU für beide geplante Techniken nötig, da zu Beginn des Gesamtprojektes die Erweiterung auf den Anwendungsfall solcher Zweifarben-Experimente nicht geplant war. Über den gesamten Projektzeitraum wurde zudem die Nutzung der SDU in Nutzerexperimenten betreut sowie eigene Experimente in Kooperation mit dem DESY durchgeführt.

## 2 Wissenschaftlicher und technischer Stand, an den angeknüpft wurde

FLASH2 am DESY stellt den Nutzern ultrakurze, teilweise kohärente Pulse im extremen Ultraviolett und weichem Röntgenbereich mit Photonenenergien im Bereich von  $14 \text{ eV} < h\nu < 376 \text{ eV}$  zur Verfügung. Diese Lichtpulse ermöglichen die Untersuchung von atomaren und molekularen Prozessen auf der Femtosekundenzeitskala mittels Pump/Probe-Experimenten. Zur Durchführung dieser Experimente wurde im Rahmen der Vorgängerprojekte (05K13PM2, 05K16PM1) eine Strahlteiler- und Verzögerungseinheit (SDU) entwickelt. Diese nutzt das Prinzip der Wellenfrontenstrahlteilung und ermöglicht mittels der Nutzung von Reflexion unter streifenden Einfall eine vergleichsweise hohe Gesamttransmission. Gleichzeitig kann bei einer subfemtosekunden Zeitauflösung eine Verzögerung im Pikosekundenbereich eingestellt werden.

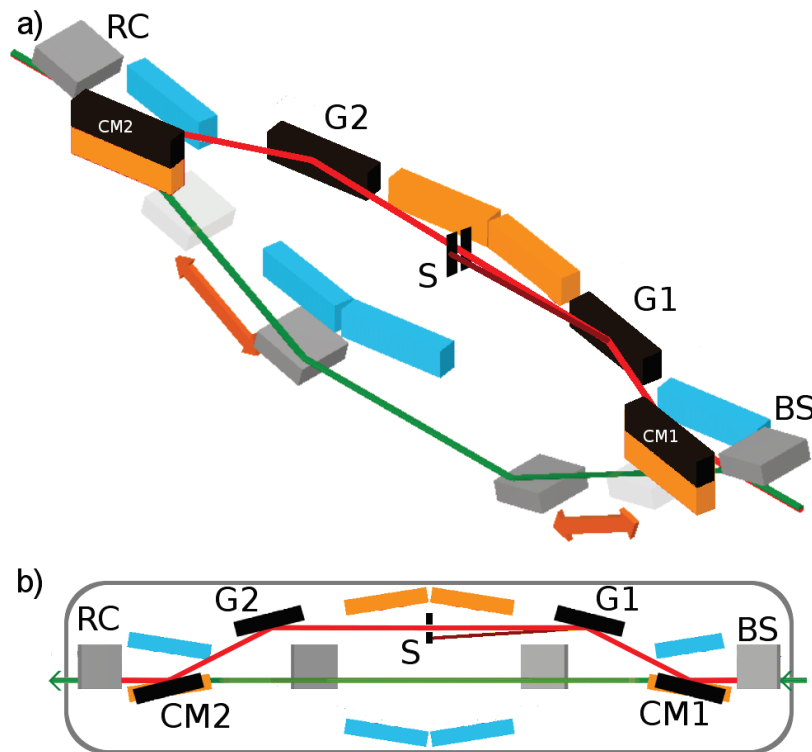


Abbildung 1: Schematische Darstellung der Strahlengänge der SDU für FLASH2.

In Abbildung 1 ist der Strahlengang der SDU für FLASH2 dargestellt. Der von rechts einlaufende Puls trifft auf den Strahlteilerspiegel BS. Der obere Teil des Strahls (grün) wird nach unten reflektiert. Dort wird dieser Teilstrahl von zwei Spiegeln, die entlang der Strahlachse bewegt werden können, reflektiert. Durch die Position der Spiegel wird die Länge des optischen Weges, den der Strahl innerhalb der SDU nimmt, eingestellt. Diese setzt sich über die Lichtgeschwindigkeit in eine Zeitverzögerung der beiden Strahlen zueinander um. Der untere Teil des Strahls (rot) läuft hingegen unterhalb des Spiegel BS entlang. Der folgende Verlauf ist dann von der Auswahl des Strahlenganges abhängig. Zur Antragsstellung konnte ausgewählt werden, ob dieser Teilstrahl entweder von nickelbeschichteten Spiegeln (orange) oder platinbeschichteten Spiegeln (blau) reflektiert wird. In dem innerhalb dieses Projektes realisierten Monochromatorstrahlengang (schwarz) können die zwei Farben getrennt werden, so dass Zweifarben Pump/Probe-Experimente durchgeführt werden können.

## 3 Planung und Ablauf des Vorhabens sowie Kooperation mit Dritten

Die im Balkenplan grün dargestellten Arbeiten wurden wie geplant erledigt. Hellgrün dargestellte Arbeiten wurden mit Verzögerung zum ursprünglichen Arbeitsplan erledigt, rot dargestellte Arbeiten wurden auf einen späteren Zeitpunkt verschoben. Die während des Berichtszeitraums außerplanmäßig nötig gewordene Optimierung der Langzeit-Pointing-Stabilität der SDU ist violett dargestellt. Die im Rahmen dieses Projektes durchgeführten Arbeiten erfolgten in enger Kooperation mit den Mitarbeitern des FLASH. Ein Großteil der Projektarbeiten erfolgte während der Corona-Pandemie, sodass sich einige Teile der Arbeiten aufgrund von Lockdowns, Arbeitsbeschränkungen und weiteren Maßnahmen sowie Lieferengpässen erheblich verzögerten.

Zunächst wurden die Nutzeranforderungen evaluiert. Zeitgleich wurde mit dem Design für die Filtereinheit begonnen. Diese konnte mit dem im ersten Halbjahr 2020 geplanten Einbau der gesamten SDU erfolgen. Bei der Einrichtung der SDU konnten bereits erste Kohärenzmessungen der FEL-Strahlung aufgenommen werden. Entsprechend konnte neben anderen mit der SDU durchgeführten Experimente mit dieser Filtereinheit bereits im Jahr 2021 ein erstes Zweifarben-Experiment durchgeführt werden, bei dem die zeitliche Entwicklung von Chlorbrommethan und dessen Derviate erfolgreich untersucht wurde. Dazu wurde bewusst ein Zweifarben-Pump/Probe Experiment gewählt: Die M-Schale der Bromatome des jeweiligen Zielmoleküls wurde mit einer spezifischen Photonenenergie angeregt und anschließend der Zustand zu einem verzögerten Zeitpunkt anhand der Anregung der Chlor L2p-Schale abgefragt. Die SDU war dabei eine Schlüsselkomponente dieses Experimentes, mit der die zeitliche Auflösung des Experimentes sowie die Trennung der beiden Farben in den jeweiligen Strahlengängen erfolgte, um die selektive Anregung der Atome zu ermöglichen. Die Veröffentlichung der Ergebnisse dieser Strahlzeit durch die Nutzergruppe steht derzeit noch aus. Allerdings wurde in den Experimenten eine Langzeit-Drift gemessen, die zu einem teilweisen Verlust des Überlapps der beiden Teilstrahlen führte. Diese konnte auf eine Instabilität einer mechanischen Komponente des Bewegungsmechanismus der SDU zurückgeführt werden. Die Identifizierung und Abstellung dieses Problems hat außerplanmäßig Zeit und personelle Ressourcen gekostet.

Für den Monochromator wurden anfangs die notwendigen Spezifikationen der optischen Elemente, insbesondere der Gitter, unter Berücksichtigung des begrenzten räumlichen Platzes simuliert. Verzögerungen in diesem Teilprojekt erfolgten insbesondere durch die Anschaffung der benötigten Gitter, bei denen bereits unter normalen Bedingungen die Lieferzeit weit über ein Jahr beträgt. Dazu verzögerten, neben den allgemeinen Verzögerungen während der Corona-Pandemie, geänderte Spezifikationen der Gitter (durch einen gewünschten größeren Energiebereich seitens FLASH) und zwei außerplanmäßige Shutdowns der Fertigungsanlage am HZB die Lieferzeit der Gitter.

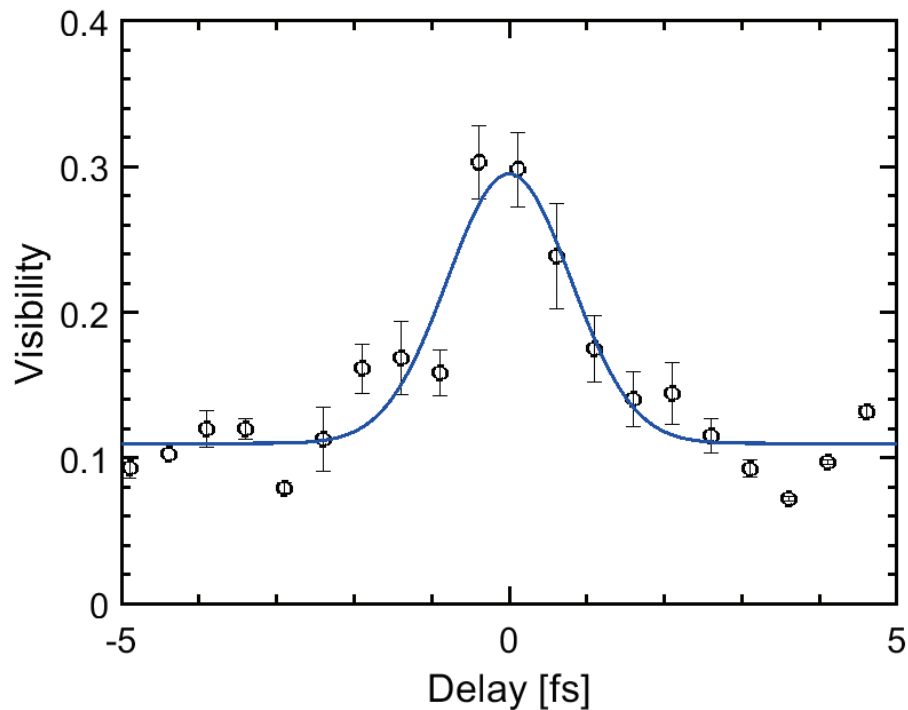


Abbildung 2: Autokorrelation von ultrakurzen FEL-Pulsen im unteren Femtosekundenbereich. Die Halbwertsbreite der Messung beträgt  $(1.88 \pm 0.21)$  fs (FWHM), was in diesem Fall einer Pulsdauer von  $(1.26 \pm 0.37)$  fs entspricht.

Zudem konnten in enger Kooperation mit dem DESY die SDU zur Prüfung unterschiedlicher Methoden zur Erzeugung ultrakurzer Pulse im (sub-)Femtosekundenbereich eingesetzt werden. Derzeit ist unseres Wissens nach die SDU das einzige Instrument am FLASH2, welches Messungen mit der erforderlichen zeitlichen Genauigkeit im Subfemtosekundenbereich durchführen kann. Dazu wurden Visibilitäten mit unterschiedlicher Zeitverzögerung der beiden Teilpulse aufgenommen. Aus der Halbwertsbreite (engl. full width at half maximum, FWHM) kann auf die Kohärenzzeit sowie auf kürzest mögliche Pulsdauer der gemessenen Pulse geschlossen werden. Ein publiziertes Ergebnis dieser Messreihe ist in Abbildung 2 dargestellt. Die gemessene Halbwertsbreite der Messung beträgt  $(1.88 \pm 0.21)$  fs (FWHM), welche wiederum einer Kohärenzzeit von  $(0.94 \pm 0.11)$  fs entspricht. Mit zu diesem Modus simulierten Pulsen ergibt sich ein Faktor  $0.67 \pm 0.12$  zwischen der gemessenen Messung und der Pulsdauer. Entsprechend ergibt sich eine rechnerische Pulsdauer von  $(1.26 \pm 0.37)$  fs (FWHM). Mit diesen Messungen wurde gezeigt, dass am FLASH2 bereits jetzt Pulsdauern im Bereich von einer Femtosekunde erzeugt werden können und den Nutzern am FLASH2 bald Pulsdauern im Attosekundenbereich bereitgestellt werden könnten.

	2019				2020				2021				2022				2023			
	1.	2.	3.	4.	1.	2.	3.	4.	1.	2.	3.	4.	1.	2.	3.	4.	1.	2.	3.	4.
Evaluation der Nutzeranforderungen			■	■																
Simulation des Gitterstrahlenganges			■	■																
Design der Filtereinheit			■	■																
Konstruktion der Filtereinheit					■	■	■													
Design des Gitterstrahlenganges					■	■	■	■												
Konstruktion des Gitterstrahlenganges									■	■	■	■	■	■	■	■				
Implementierung der Filter							■	■												
Erste Experimente mit Filtern									■	■	■	■								
Optimierung der Langzeit-Pointing-Stabilität													■	■	■	■				
Test der Gitter mit HHG																	■			
Test der Gitter an einem Synchrotron																				
Optimierung des Gitterstrahlenganges																	■	■	■	■
Implementierung der Gitter																				■
Erste Experimente mit Gittern																				■

**4 Verwendung der Zuwendung (wichtigste Positionen des zahlenmäßigen Nachweises, z. B. Investitionen, Personalmittel)**

Die im Projektantrag vorgesehenen Investitionen sind im Folgenden aufgeführt. Die bei der Antragstellung vorgesehenen Kosten der einzelnen Komponenten sind direkt bei der Bezeichnung der Komponenten, die tatsächlich ausgegebenen in der Spalte rechts aufgeführt. Abweichungen, die sich im Verlauf des Projektes als notwendig erwiesen haben, sind im Einzelnen begründet. Die Mittel, die durch nicht mehr erforderliche Anschaffungen eingespart wurden, konnten für Komponenten, die teurer als geplant waren oder in nicht beantragte Komponenten, die sich im Laufe der Projektlaufzeit als nötig erweisen und in der Liste mit in Klammern gesetzten Positionsnummer aufgeführt sind, sowie für eine kostenneutrale Projektverlängerungen verwendet werden.

1. PC mit SPS-Schnittstelle + Bildschirm	1.435 €
Fa. Beckhoff, 1057€	
2. 3 Sätze Filter	26.3312 €
Fa. Lebow, 16.632€	
3. Fiterrad	0 €
Fa. SmarAct, 28524€	
4. UHV-Getriebemotoren VSS 32.200	24.133 €
Fa. Phytron, 17.144€	
5. Piezoaktuatoren	0 €
Fa. Piezo Systeme Jena, 62.696€	
6. Satz SPS-Steuerungseinheiten	7.839 €
Fa. Beckhoff, 5.063€	
7. Satz UHV-Durchführungen	10.489 €
Fa. Allectra, 3.661€	
8. Motorisierte z-Hübe	10.547 €
Fa. Pfeiffer, 18.699€	
9. Turbomelekularpumpe	30.998 €
Fa. Pfeiffer, 18.475€	
10. Eckventile	0 €
Fa. Lesker, 3.195€	
11. UHV-Schieber CF100	9.539 €
Fa. Lesker, 9.539€	
12. Toroidspiegel	52.122 €
Fa. Zeiss, 53.074€	
13. Beschichtung zweier Toroidspiegel	0 €
Fraunhofer IWS, 3.332€	
14. Beugungsgitter	129.307 €
Fa. Horiba, 285.600€	
15. MCP-Detektor mit Fluoreszenzschirm	5.643 €
Proxivision, 5.891€	
16. Hochspannungsnetzteil 10kV	5.998 €
Fa. Heinzinger, 1.806€	
17. YAG-Schirme	2.398 €
Fa. Korth Kristalle, 2.886€	

18. Kamera mit Objektiv	8.072 €
Fa. Rauscher, 581€	
19. UHV-Kammer 800mm	36.120€
Fa. Pfeiffer, 4.106€	
20. Schiebeventil	5.077 €
Fa. Lesker, 4.270€	
21. Eckventil	0 €
Fa. Lesker, 1.065€	
22. Scrollpumpe Triscroll 300	4.488 €
Fa. Agilent, 3.779€	
23. Turbopumpe HiPace 300H	9.046 €
Fa. Pfeifer, 8.342€	
24. Ionengetterpumpe Vaclon Plus 300	0 €
Fa. Agilent, 10.397€	
25. Druckmessgerät	2.515 €
Fa. Pfeifer, 1.937€	
26. Satz Optiken	7.540 €
Fa. Newport, 1.561€	
27. Piezoelektrischer Spiegelhalter	10.788 €
Fa. SmarAct, 38.032€	
28. UHV-Schrittmotoren VSS32.200	24.133 €
Fa. Phytron, 17.136€	
(29.) Massenspektrometer HAL/3F	21.895 €
Fa. Hiden Analytical Europe GmbH	
(30.) 8 Interferometer-Glasfaser, UHV-tauglich, geschirmt, strahlungshart	8.140 €
Fa. Attocube systems AG	
(31.) Transportflansche	39.162 €
Fa. NBF GmbH + Co KG	
(32.) Reinraumzelt Laminarflow Kabine	37.259 €
Fa. Schilling Engineering GmbH	
(33.) XUV sensitive UHV-Kamera	35.629 €
Excelitas PCO GmbH	

**Zu Pos. 1, 6, 7:**

Zur Programmierung und Ansteuerung der UHV-Motoren über die SPS-Steuereinheiten

**Zu Pos 2:**

Zum Herausfiltern der unterschiedlichen Farben.

**Zu Pos 4:**

Zur Justage des Nick-, Roll- und Gierwinkels der Gitter und Zylinderspiegel mithilfe der kardanischen Spiegelhalter.

**Zu Position 8:**

Zum Einfahren der Filter in die Filtereinheiten.

**Zu Position 9+11+20+22+23+25:**

Zur Erzeugung und Erhaltung des Ultrahochvakuums und Vorvakuums der einzelnen Vakuumbereiche.

**Zu Position 12:**

Zur Fokussierung der Strahlung auf den Spalt.

**Zu Position 14:**

Als dispersives Elemente zur Trennung und Zusammenführung der Farben.

**Zu Position 15-18:**

Für Tests, Justage, Positionsbestimmung und zur Kalibration des Zweifarbstrahlenganges.

**Zu Position 19:**

Für die Tests, Kalibration und Vorjustage des Gitterstrahlengangs.

**Zu Position 26:**

Zur Einjustierung des Strahls.

**Zu Position 27:**

Zur hochpräzisen Einjustierung des Spaltes im Gitterstrahlengang zur Auswahl der Farben.

**Zu Position 28:**

Zum Einfahren der Gitter in die Strahlengänge.

**Zu Position (29):**

Zur Prüfung und Einhaltung der Restgasanalyse-Anforderungen des DESY.

**Zu Position (30):**

Wurden als Ersatzteile zur Reparatur von defekten Glasfasern in der SDU benötigt.

**Zu Position 31:**

Die Transportflansche werden benötigt, um einen partikelfreien Ein- und Ausbau der UHV-Kammer unter restriktiven räumlichen Bedingungen zu ermöglichen.

**Zu Position 32:**

Das Reinraumzelt wird benötigt, um den Zusammenbau einzelner Reinraumkomponenten außerhalb des Reinraums, beispielsweise auch am Einbau am DESY, zu ermöglichen.

**Zu Position 33:**

Die UHV-Kamera wird für die Messung der Visibilität bei höheren Photonenenergien von FLASH2 benötigt.

## Miete

Aufgrund der verlängerten Projektlaufzeit musste die Raummiete für den gesamten Zeitraum des Projektes gezahlt werden.

## 5 Erzielte Ergebnisse mit Gegenüberstellung der vereinbarten Ziele

Ziel des Vorhabens ist die Ermöglichung von Zweifarben Pump/Probe Experimente am FLASH2 mittels zweier komplementärer Techniken. Zum Einen soll dies über den Einsatz spezieller Filterkombinationen erreicht werden, zum Anderen über die Verwendung eines Monochromators mit breiter spektraler Akzeptanz und niedrigem Auflösungsvermögen, um die zeitliche Streckung der Pulse zu minimieren. Dies ist nötig, um in Experimenten weiterhin eine Zeitauflösung im Femtosekundenbereich zu gewährleisten. Bau und Test der Monochromatorkomponenten wurden durchgeführt sowie ihr Einbau in die SDU vorbereitet. Der Einbau des Monochromators steht derzeit aus und soll im Rahmen des nächsten Shutdowns durchgeführt werden. Die erstgenannte Methode wurde bereits erfolgreich in die SDU am FLASH2 integriert und ein erstes Zweifarben-Nutzerexperiment mit dieser Methode durchgeführt, sodass dieses Ziel vollumfänglich erreicht worden ist. Im Rahmen des Umbaus wird in der kommenden Strahlzeit die Filterkammer umgebaut und modifiziert, sodass sie eine leichtere Zugänglichkeit während eines Nutzerexperiment aufweist. Die spektrale Abdeckung, die mit Hilfe der Filterkammer möglich ist, ist für die in Betracht kommenden Filtermaterialien in Abbildung 3 dargestellt. Dabei ist  $h\nu_i$  die Photonenenergie, die in dem jeweiligen Teilstrahl genutzt werden soll und  $h\nu_a$  die Photonenenergie, die in ebendiesem Teilstrahl unterdrückt werden soll. Der erweiterte, komplementäre Bereich wird durch den Einsatz des Monochromators möglich sein, der in in dieser Abbildung als schraffierter Bereich dargestellt ist. In erster Beugungsordnung ist mit dem Monochromator derzeit der Spektralbereich der Fundamentalen (schwarz eingerahmter Bereich) von FLASH2 ab 150 eV zugänglich. Höhere Energien bis zu 780 eV, die beispielsweise durch den zukünftig am FLASH2 eingebauten Afterburner mit hinreichender Intensität erzeugt werden können, können unter Verwendung der zweiten Beugungsordnung genutzt werden.

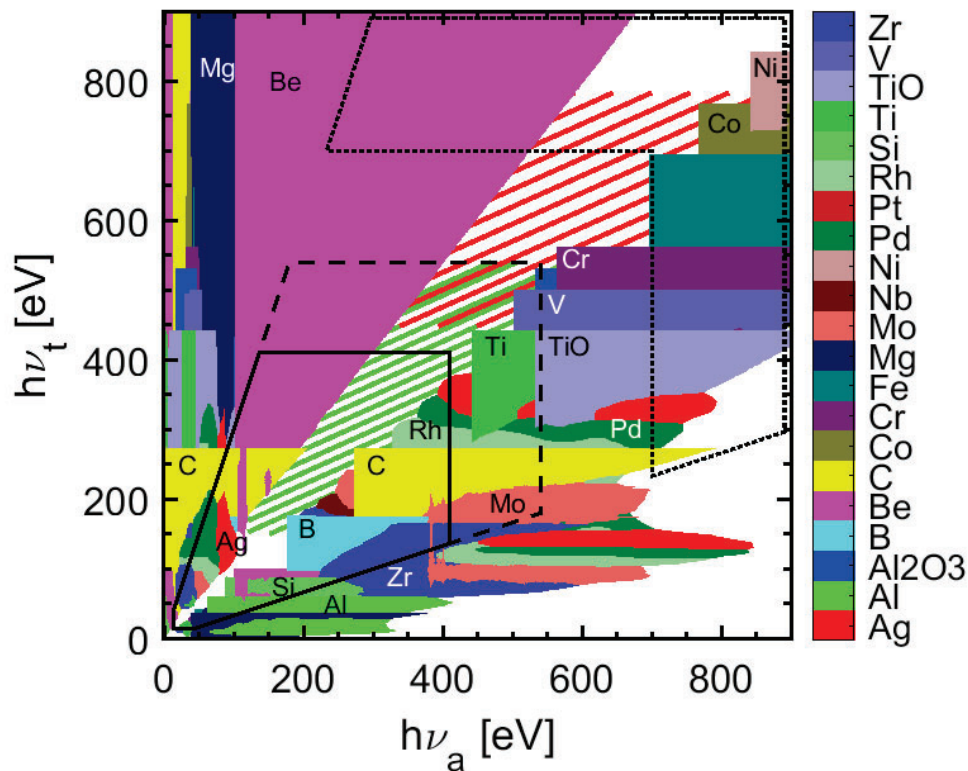


Abbildung 3: Der für Zweifarben-Experimente zugängliche Parameterbereich für das Energiepaar  $h\nu_t$  und  $h\nu_a$ . Farblich markiert sind die einzelnen Elemente, die für das gewählte Energiepaar die optimale Filtereigenschaft aufweist. Die schraffierten Bereiche stellen den durch den Monochromator zugänglichen Energiebereich in erster (grün) und zweiter (rot) Beugungsordnung dar.

## 6 Notwendigkeit und Angemessenheit der geleisteten Arbeit

Die in den Vorgängerprojekten (05K13PM2 und 05K16PM1) gebaute SDU wird Nutzern des FLASH die Durchführung von Zweifarben Pump/Probe Experimenten mit kohärenten, intensiven Pulsen im Bereich des extremen Ultravioletts und der weichen Röntgenstrahlung ermöglichen. Ohne die in vorhergehenden Absätzen beschriebene Filtereinheit und des chirpkompensierten Monochromators wären diese Art von Experimenten nicht möglich.

## 7 Voraussichtlicher Nutzen, insbesondere Verwertbarkeit der Ergebnisse

Die SDU wird den Nutzern des FLASH zur Verfügung stehen und die Untersuchung ultrakurzer physikalischer und chemischer Prozesse ermöglichen. Sie dient somit der Grundlagenforschung. Eine direkte kommerzielle Verwertung der Ergebnisse wird nicht angestrebt.

## 8 Während der Durchführung des Vorhabens dem Zuwendungsempfänger bekannt gewordenen Fortschritt auf dem Gebiet des Vorhabens bei anderen Stellen

Zum Anfang des Projektzeitraums wurde der erste Bericht veröffentlicht, dass am FLASH2 erstmals gelungen war, den FEL in einem Zweifarben-Modus mit hohem spektralen Abstand zu betreiben. In

dem vorgestellten Fall wurde der FEL bei 7 nm und 10 nm betrieben. Dabei wurden Pulsenergien von jeweils 30  $\mu\text{J}$  für beide Farben erreicht.

2022 wurde am SwissFEL mit einem vergleichbaren Zweifarbenmodus Photonenenergien von 915 eV und 350 eV mit Pulsdauern im Bereich von etwa 40 fs erzeugt. Erstgenannte Farbe wies dabei eine Pulsenergie von 30  $\mu\text{J}$  auf; Für die zweitgenannte Farbe betrug die Pulsenergie 100  $\mu\text{J}$ . Zusätzlich wurde dieser Modus mit der sogenannten fresh-slice Methode kombiniert, um sehr kurze Pulse mit 5 fs und 250  $\mu\text{J}$  (915 eV) und 10 fs und 120  $\mu\text{J}$  (350 eV) zu erzeugen. Diese Ergebnisse zeigen, dass prinzipiell das Potential der SDU in Bezug auf seine zeitlichen und spektralen Leistungsfähigkeit voll ausgenutzt werden kann.

## 9 Erfolgte und geplante Veröffentlichungen der Ergebnisse

### 9.1 Referierte Publikationen (z. B. in Fachzeitschriften oder -büchern und referierte Konferenzproceedings)

M. Dreimann, F. Wahlert, D. Eckermann, F. Rosenthal, S. Roling, T. Reiker, M. Kuhlmann, S. Toleikis, M. Brachmanski, R. Treusch, E. Plönjes, B. Siemer, H. Zacharias, The soft X-ray and XUV split-and-delay unit at beamlines FL23/24 at FLASH2, J. Synchrotron. Rad. **30**, 479-489, 2023

E. Schneidmiller, M. Dreimann, M. Kuhlmann, J. Rönsch-Schulenburg, H. Zacharias, Generation of Ultrashort Pulses in XUV and X-ray FELs via an Excessive Reverse Undulator Taper, Photonics **10**(6), 653, 2023

J. Krása, T. Burian, V. Hájková, J. Chalupský, Š. Jelínek, K. Frantálová, M. Krupka, Z. Kuglerová, S.K. Singh, V. Vozda, L. Vysín, M. Šmíd, P. Perez-Martin, M. Kuhlmann, J. Pintor, J. Cikhart, M. Dreimann, D. Eckermann, F. Rosenthal, S.M.Vinko, A. Forte, T. Gawne, T. Campbell, S. Ren, Y. Shi, T. Hutchinson, O. Humphries, T. Preston, M. Makita, M. Nakatasutsumi, X. Pan, A. Köhler, M. Harmand, S. Toleikis, K. Falk, L. Juha, Ion emission from warm dense matter produced by irradiation with a soft x-ray free-electron laser, Matter Radiat. Extremes **9**, 016602, 2024

M. Dreimann, F. Wahlert, S. Roling, R. Treusch, E. Plönjes, H. Zacharias, Development and performance simulations of a soft x-ray and XUV split-and-delay unit at the beamlines FL23/FL24 at FLASH2 for time-resolved two-color pump/probe experiments, J. Synchrotron Rad. (akzeptierter Beitrag, Veröffentlichung steht aus)

M. Dreimann, S. Roling, F. Wahlert, S. Eppenhoff, M. Kuhlmann, S. Toleikis, M. Brachmanski, R. Treusch, E. Plönjes, H. Zacharias, A XUV and soft X-ray split-and-delay unit for FLASH2, Proc. SPIE **11776**, EUV and X-ray Optics, Sources, and Instrumentation, 117760R, 2021

M. Dreimann, D. Eckermann, S. Roling, T. Reiker, F. Rosenthal, F. Wahlert, M. Kuhlmann, S. Toleikis, R. Treusch, E. Plönjes, H. Zacharias, Enabling time-resolved experiments with ultrashort FEL pulses via the split-and-delay unit for FLASH2, Proc. SPIE **12581**, X-Ray Free-Electron Lasers: Advances in Source Development and Instrumentation VI, 125810P, 2023

### 9.2 Andere Veröffentlichungen (z. B. Konferenzbeiträge wie Vorträge und Poster, unreferierte Proceedings, Conference Notes)

Poster: M. Dreimann, S. Roling, I. Zadyraka, M. Kuhlmann, E. Plönjes, F. Wahlert, F. Rosenthal, M. Wöstmann, H. Zacharias, An XUV and soft X-ray split-and-delay unit for FLASH2, DESY Photon Science Users' Meeting 2020

Poster: M. Dreimann, S. Roling, I. Zadyraka, M. Kuhlmann, E. Plönjes, F. Wahlert, F. Rosenthal, M. Wöstmann, H. Zacharias, An XUV and soft x-ray split-and-delay unit for FLASH2, DESY Photon Science Users' Meeting 2021 (online)

Vortrag: M. Dreimann, S. Roling, F. Wahlert, S. Eppenhoff, M. Kuhlmann, S. Toleikis, M. Brachmanski, R. Treusch, E. Plönjes, H. Zacharias, A XUV and soft X-ray split-and-delay unit for FLASH2, SPIE EUV and X-ray Optics, Sources, and Instrumentation 2021 (online)

Poster: M. Dreimann, D.Eckermann, S. Roling, M. Kuhlmann, E. Plönjes, F. Wahlert, F. Rosenthal, M. Wöstmann, H. Zacharias, An XUV and soft x-ray split-and-delay unit for FLASH2, DPG Frühjahrstagung Erlangen (virtuell), 2022

Poster: M. Dreimann, D. Eckermann, S. Roling, M. Kuhlmann, S. Toleikis, F. Wahlert, R. Treusch, E. Plönjes, H. Zacharias, Enabling time-resolved two-color experiments with the split-and-delay unit for FLASH2, SNI Berlin, 2022

Vortrag: M. Dreimann, H.Zacharias: An upgraded split-and-delay unit for FLASH1, FLASH THz User Workshop, 2023

Poster: M. Dreimann, F. Wahlert, D. Eckermann, F. Rosenthal, S. Roling, M. Wöstmann, T. Reiker, M. Von Piechowski, P.G. Shine, F. Lever, J. Schwarz, M. Kuhlmann, S. Toleikis, M. Brachmanski, M. Martins, R. Treusch, E. Plönjes, M. Gühr, B. Siemer, H. Zacharias, Performance of the XUV and soft x-ray split-and-delay unit at FLASH2, DESY Photon Science Users' Meeting, 2023

Poster: M. Dreimann, E. Schneidmiller, D. Eckermann, F. Wahlert, S. Roling, M. Wöstmann, V. Kärcher, T. Reiker, M. Kuhlmann, S. Toleikis, R. Treusch, E. Plönjes, H. Zacharias, Investigation of ultrashort FEL pulses utilizing the split-and-delay unit at FLASH2, DPG Frühjahrstagung Hannover, 2023

E. Schneidmiller, Beating the coherence time, Photon Science: Highlights and Annual Report, S. 74 2023

### **9.3 Abschlussarbeiten (Bachelor, Master, Diplom, Staatsexamen, Promotion, Habilitation)**

Tobias Spiekermann: „Aufbau, Charakterisierung und Optimierung der Strahlteiler- und Verzögerungseinheit für den FEL FLASH2 bei DESY“, Bachelorarbeit, Universität Münster, 2019

## Kurzbericht

- öffentlich -

Zuwendungsempfänger: Universität Münster

Projektleitung: Prof. Dr. Helmut Zacharias  
Center for Soft Nanoscience  
Universität Münster  
Busso-Peus-Str. 10  
48149 Münster

Verbund: ---

Thema: Erweiterung der FLASH2-SDU für Zweifarben Pump/Probe-Experimente

### 1. Ziel und Inhalt des Projektes

Das Ziel des Vorhabens war die Ermöglichung von zeitaufgelösten Zweifarben-Experimenten mit der bereits installierten Strahlteiler- und Verzögerungseinheit (engl. split-and-delay unit, SDU), die im Rahmen der Vorgängerprojekte gebaut wurde. Diese ermöglicht in Verbindung mit dem Freie-Elektronen Laser (FEL) FLASH2 die Untersuchung ultraschneller Prozesse auf der molekularen und atomaren Ebene mit extremer Ultraviolett und weicher Röntgenstrahlung. Diese Prozesse laufen auf einer extrem kurzen Zeitskala von Femtosekunden ( $10^{-15}$  s) ab. Da es nicht möglich ist, derart schnelle Vorgänge mit herkömmlichen zeitaufgelösten Techniken zu beobachten, wurden Pump/Probe Experimente entwickelt. In diesen Experimenten wird die zu untersuchende Reaktion durch einen initialen, intensiven Lichtpuls ausgelöst und der zeitliche Verlauf der Reaktion durch einen nachfolgenden Lichtpuls, der nach einem genau definierten Zeitabstand auf die Probe trifft, abgefragt. Dieses Verfahren wird für viele verschiedene Zeitabstände zwischen den beiden Lichtpulsen wiederholt, wodurch der zeitliche Verlauf des untersuchten Prozesses aus den Einzeldaten rekonstruiert werden kann.

Die Zeitabstände zwischen den einzelnen Pulsen des Freie-Elektronen Lasers sind normalerweise zu lang, um Prozesse im Femtosekundenbereich aufzulösen. Dieses Problem kann mittels einer SDU gelöst werden: Die SDU teilt einen Lichtpuls in zwei Teilstrahlen auf, die dann innerhalb der SDU über Spiegel auf zwei unterschiedlich lange Strecken geführt werden. Die Spiegel können dabei so verstellt werden, dass sich die Streckenlängen relativ zu einander ändern. Diese Weglängendifferenz führt zu der gewünschten, einstellbaren Zeitdifferenz der beiden Pulsen zueinander. Die im Rahmen des Vorgängerprojektes entwickelte SDU deckt den gesamten Spektralbereich von FLASH2 ab. Unterschiedliche Elemente reagieren typischerweise unterschiedlich (stark) auf eine Anregung bzw. Abfrage mit einer bestimmten Photonenenergie, sodass diese Methode genutzt werden kann, um elementsensitive Untersuchung der Reaktion zu durchzuführen. Mittlerweile gibt es Techniken, mit denen im FEL zwei Photonenenergien simultan erzeugt werden, wodurch zwei unterschiedliche Elemente des Systems getrennt voneinander angesprochen werden können. In Kombination mit der im Rahmen dieses Projektes Erweiterung der SDU werden die Eingangs erwähnten Zweifarben-Experimente möglich: Die beiden Farben können mit Hilfe der SDU räumlich und zeitlich voneinander getrennt und wieder zusammengeführt

werden, sodass mit dem ersten Puls ein Prozess elementspezifisch angeregt und anschließend zu einem definierten Zeitpunkt die Reaktion an einem anderen Element untersucht werden.

## 2. Ablauf und Ergebnisse des Vorhabens

Diese Zweifarben-Experimente werden nun zum Einen durch einen zusätzlichen Strahlengang und zum Anderen durch den Einsatz geeigneter Filterkombinationen, die über ein spezielle Vorrichtung in die jeweiligen Strahlengänge eingebracht werden können, erreicht. Die beiden Vorgehensweisen sind komplementär, wie in Abbildung 1 dargestellt ist. Während die Filter typischerweise Farbenkombinationen abdecken, die eine große Energiedifferenz aufweisen (vollflächige Flächen), deckt das Gitter kleine Energiedifferenzen in dem physikalisch interessanten Energiebereich von  $h\nu = 150$  eV bis  $h\nu = 780$  eV ab. Die Filter können durch ein spezielles Loadlock-System in die jeweiligen Strahlengänge eingebracht werden und ermöglichen ein auch kurzfristiges Einführen von speziell auf das jeweilige Experiment ausgewählte Filter.

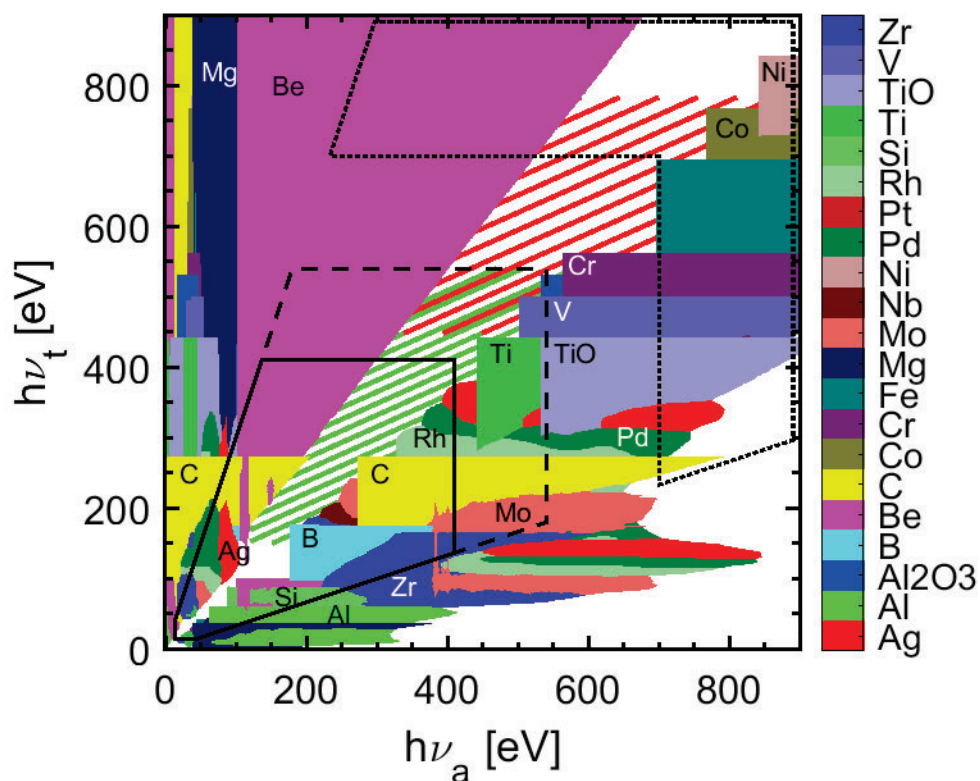


Abbildung 1: Abdeckung der möglichen Photonenenergiekombinationen von transmittierter Photonenenergie  $h\nu_t$  und unterdrückter Photonenenergie  $h\nu_a$ . Der Gitteraufbau deckt in erster Beugungsordnung (grün schraffiert) und in zweiter Beugungsordnung (rot schraffiert) einen Energiebereich von  $h\nu = 150$  bis  $h\nu = 780$  eV ab. Der schwarz eingerahmte Bereich stellt den derzeit von FLASH2 zugänglichen Energiebereich dar. Der gestrichelte Bereich zeigt die Erweiterung nach einem Upgrade der Beschleuniger. Der gepunktete Bereich ist der Energiebereich, der durch den Afterburner erreicht werden kann.

Der Gitteraufbau trennt die Farben über das physikalische Prinzip der Beugung mittels der Gitter. Dadurch können auch sehr geringe Differenzen der Photonenenergien getrennt werden, die in Abbildung 1 mit dem grün (in erster Beugungsordnung) und rot (in zweiter Beugungsordnung) schraffierten Bereiche veranschaulicht werden. Dazu wurde ein Gitteraufbau entwickelt und gebaut, der aus zwei Zylinderspiegeln, zwei Gittern mit variierter

Linienbreite (VLS-Gitter) und einem Schlitz besteht. Der schematische Aufbau ist in Abbildung 2 dargestellt: Zunächst wird der Puls am Strahlteilerspiegel BS getrennt. Der erste Zylinderspiegel CM1 bildet den unteren Teilstrahl (rot) auf den Schlitz S ab. Das VLS-Gitter G1 ist speziell so ausgelegt, dass es den Strahl am Schlitz S in seine einzelnen spektralen Bestandteile zerlegt, sodass die Trennung mit Hilfe des Schlitzes erfolgt. Aufgrund der Zerlegung wird der Puls zeitlich stark gestreckt, sodass allein mit dieser Kombination keine Experimente im Femtosekundenbereich möglich sind. Daher wird anschließend der aufgespaltene Strahl durch das Gitter G2 und den Zylinderspiegel CM2 so zusammengeführt, dass der ursprüngliche Strahl, abzüglich der ungewünschten Farbe, am Spiegel RC zusammengeführt wird. Der obere Teilstrahl wird wie im ursprünglichen Aufbau nach unten abgelenkt und zeitlich verzögert werden.

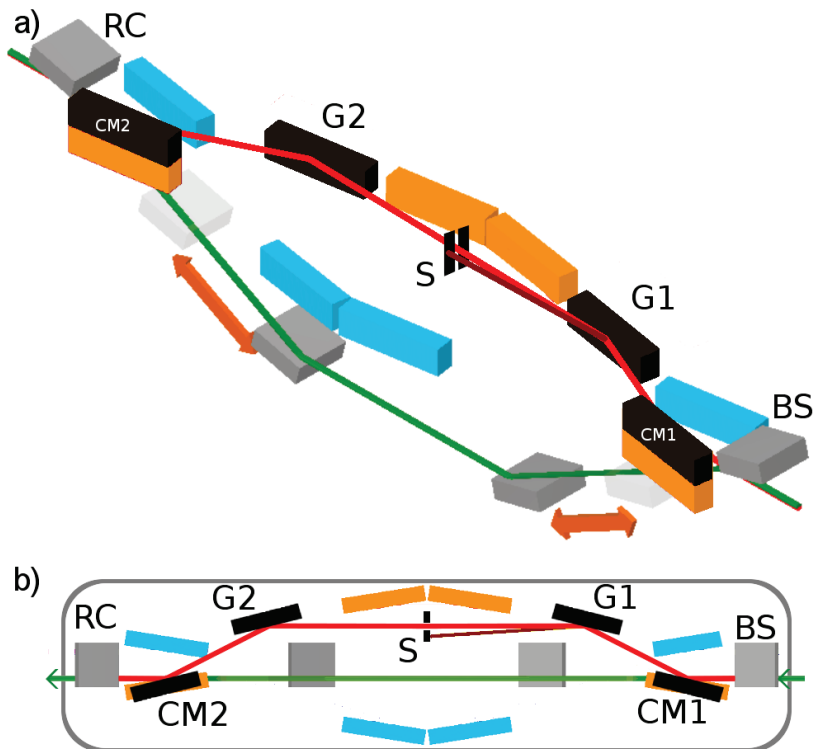


Abbildung 2: Schematischer Aufbau des Gitterstrahlenganges, bestehend aus Zylinderspiegeln (CM1, CM2), VLS-Gittern (G1, G2) und einem Schlitz zum Trennen der zwei Farben.

### 3. Darstellung der wesentlichen Ergebnisse und deren konkreter Nutzen sowie ggf. die Zusammenarbeit mit anderen Forschungseinrichtungen

Die SDU wird der Grundlagenforschung dienen. Sie wird allen Nutzern des FLASH2 am DESY zur Verfügung stehen. Die damit durchgeführten Zweifarben Pump/Probe Experimente werden wichtige Erkenntnisse bezüglich des zeitlichen Verhaltens physikalischer und chemischer Prozesse ermöglichen. Ein Hauptaugenmerk wird perspektivisch auf die Untersuchung atomarer, molekularer, magnetischer und Festkörper-Systeme liegen.