



Doctoral Thesis

## **Attosecond transient absorption spectroscopy: controlling extreme ultraviolet light-matter interaction**

**Author(s):**

Herrmann, Jens

**Publication Date:**

2014

**Permanent Link:**

<https://doi.org/10.3929/ethz-a-010414698> →

**Rights / License:**

[In Copyright - Non-Commercial Use Permitted](#) →

This page was generated automatically upon download from the [ETH Zurich Research Collection](#). For more information please consult the [Terms of use](#).

DISS. ETH NO. 22263

**ATTOSECOND TRANSIENT ABSORPTION SPECTROSCOPY:  
CONTROLLING EXTREME ULTRAVIOLET LIGHT-MATTER  
INTERACTION**

A thesis submitted to attain the degree of  
DOCTOR OF SCIENCES of ETH ZURICH  
(Dr. sc. ETH Zurich)

presented by  
JENS HERRMANN  
Dipl.-Phys., Philipps-Universität Marburg

born on 20.04.1986

citizen of Germany

accepted on the recommendation of

Prof. Dr. Ursula Keller, examiner  
Prof. Dr. Mauro Nisoli, co-examiner  
PD Dr. Lukas Gallmann, co-examiner

2014

# Abstract

In the framework of this thesis, we discuss the application of attosecond transient absorption spectroscopy to examine the light-matter interaction in the extreme ultraviolet (XUV) spectral range. We focus our work on the investigation and control of the optical properties of helium (He) and polycrystalline diamond on an ultrafast time scale.

Attosecond transient absorption spectroscopy is still a relatively young discipline of attosecond science. Even though femtosecond transient absorption spectroscopy is a well-known and established experimental technique, it required the creation of coherent XUV bursts of attosecond duration with higher-order harmonic generation (HHG) to extend the technique into the attosecond regime. As an all optical technique, it is based on the cross-correlation of pulsed XUV radiation with femtosecond infrared (IR) pulses in the sample under investigation and the subsequent detection of the transmitted radiation. Its high temporal resolution allows to explore electron dynamics on their natural time scale.

In this thesis, we examine the optical properties of He in the XUV spectral range in different experiments. In a first part, we present a combined theoretical and experimental discussion of the off-resonant excitation of a quantum-mechanical two-level system. The temporal evolution of the dipole response provides new insights which we exploit for the creation and control of optical absorption and gain. In a second experimental part, we discuss the role of interfering electron wavepackets (EWPs) for sub-

cycle oscillations in the transmitted XUV intensity observed in various recent publications. Our results show that the impact of EWP interference on the intensity modulations is less important than previously assumed. In a third attosecond transient absorption experiment in He, we present a new technique for the delay-zero calibration, where the maximum of the XUV and IR envelope overlap, for experiments employing an attosecond pulse train (APT) in combination with a femtosecond IR pulse. Finally, we introduce simulations for attosecond transient absorption spectroscopy in He based on the solution of the von-Neumann equation.

In addition to the experiments in He, we present attosecond solid-state transient absorption spectroscopy in a polycrystalline diamond membrane. Our experimental data reveal the fully reversible modification and control of the optical transmission of polycrystalline diamond in the XUV spectral range with the help of the femtosecond IR pulse.

## Kurzfassung (German)

Wir analysieren in der vorliegenden Arbeit die Licht-Materie Wechselwirkung extrem ultravioletter (EUV) Strahlung mit Hilfe von transientser Absorptionsspektroskopie. Die Verwendung von Lichtimpulsen im Attosekundenzeitbereich erlaubt es uns die Elektronendynamik in Atomen und Festkörpern auf ihrer natürlichen Zeitskala zu beobachten. Der Schwerpunkt der Arbeit liegt auf der Untersuchung von Helium (He) und polykristallinem Diamant. Dabei konzentrieren wir uns auf die Änderungen der optischen Eigenschaften und deren Kontrolle unter dem Einfluss von ultrakurzen Lichtimpulsen.

Transiente Absorptionsspektroskopie basiert auf einer Kreuzkorrelation zweier Lichtimpulse in der zu untersuchenden Probe. Die variable Verzögerung zwischen den sogenannten Anrege- und Abfrageimpulsen erlaubt es Informationen zu dynamischen Prozessen innerhalb der Probe zu erhalten. Man detektiert in transientser Absorptionsspektroskopie die spektral aufgelöste, transmittierte Strahlung als Funktion der Verzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Es handelt sich somit um eine rein optische Messtechnik. Das Prinzip von transientser Absorptionsspektroskopie hat sich bereits als sehr erfolgreich im Femtosekundenzeitbereich erwiesen. Nichtsdestoweniger besteht ein sehr grosses Interesse daran Prozesse im sub-Femtosekundenbereich zu untersuchen, da die Dynamik von Elektronen in Atomen zu grossen Teilen auf einer Zeitskala von wenigen Femtosekunden bis hin zu Attosekunden stattfindet. Die Erzeugung höherer Harmonischer und den damit einhergehenden Lichtimpulsen mit

einer Dauer von weniger als einer Femtosekunde, erlauben schliesslich transienten Absorptionsexperimente im Attosekundenzeitbereich.

Wir diskutieren in den folgenden Kapiteln die Ergebnisse verschiedener transientser Absorptionsmessungen mit EUV Strahlung in He. Wir stellen zu Beginn die theoretische und experimentelle Untersuchung von He bei nicht resonanter Anregung vor. Unser theoretisches Modell gibt uns einen Einblick in die zeitaufgelöste atomare Dipolantwort und schlägt eine Methode vor, optische Absorption und Verstärkung zu erzeugen. Eine anschliessende experimentelle Überprüfung bestätigt unsere theoretischen Vorhersagen. In einem weiteren Experiment diskutieren wir den Einfluss von interferierenden Elektronenwellenpaketen auf Modulationen in der transmittierten EUV Strahlung als Funktion der Verzögerung zwischen Anrege- und Abfrageimpuls. Unsere Resultate zeigen auf, dass der Effekt der Wellenpaketinterferenz von geringerer Bedeutung ist als bisher angenommen. Ein drittes Experiment präsentiert eine neue experimentelle Methode zur Ermittlung des zeitlichen Überlapps von Anrege- und Abfrageimpuls in transientser Absorptionsspektroskopie im Attosekundenzeitbereich. Abschliessend zeigen wir die Ergebnisse von Simulationen für transiente Absorptionsmessungen in He, die auf der Lösung der von-Neumann-Gleichung basieren.

Des Weiteren präsentieren wir in dieser Arbeit die ersten transienten Absorptionsexperimente im Attosekundenzeitbereich mit polykristallinen Diamanten. Unsere experimentellen Resultate zeigen eine vollständig reversible Änderung und Kontrolle der Transmission für EUV Strahlung mit Hilfe eines Femtosekunden IR Lichtimpulses auf.