

D_2 in ultrakurzen, hochintensiven
Laserpulsen

Diplomarbeit

von

André Staudte

Lawrence Berkeley National Laboratory
Berkeley, CA
USA

und

Institut für Kernphysik
Frankfurt am Main
Deutschland

Juni 2001

meinen Eltern und Nelly

Vorwort

Zur vorliegenden Arbeit möchte ich noch ein paar Bemerkungen in eigener Sache machen. Ich habe mich bewußt dafür entschieden, diesen Abschnitt meiner Arbeit voranzustellen, um den Menschen, die, in welcher Weise auch immer, einen Anteil daran haben, meine Wertschätzung zu zeigen.

Ich möchte zuerst Mike Prior für seine großartige Betreuung und Zusammenarbeit während des gesamten Jahres danken. Für seine wirklich effektive Hilfe bei der Suche einer Unterkunft, für die Parkerlaubnis auf dem Laborgelände, für die zahllosen Kaffees nach dem Mittagessen, seine Freizügigkeit mit meinem Urlaub und vielem mehr. Während der ersten Hälfte meines Aufenthalts verbrachte Prof. Lew Cocke ein *sabbatical* als Gast von Mike. Von Lew lernte ich mehr Physik als in den vorangegangenen 3 Jahren. Wir arbeiteten an molekularen Stoßexperimenten und bereiteten parallel das erste Laserexperiment meines Aufenthalts in Berkeley vor. Wir führten dieses Experiment schließlich in zwei Wochen im Januar 2000 durch (Messung a)). Ein Satz von Lew begleitet mich seitdem in der Physik: *“Let’s push on with this experiment!”*. Die anschließende Datenanalyse wies auf einen aufregenden neuen Prozess hin, jedoch konnten wir zum damaligen Zeitpunkt keine schlüssige Interpretation der Daten geben, sodaß ich lange Zeit an der Qualität unserer Daten große Zweifel hatte. Außerdem waren wir anfangs ratlos, was die Interpretation der Daten betraf. Eine Wiederholungsmessung mußte her, um Licht in die Sache zu bringen. Sie fand innerhalb von 10 Tagen im Mai 2000 statt (Messung b) und c)), diesmal waren allerdings nur Mike und ich verfügbar. Probleme mit den Detektoren, welche die Ausheizphasen nicht überstanden, verkürzten die Meßzeit auf 4 Tage, die wir dann rund um die Uhr nutzten. Wegen auf den ersten Blick geringen Änderungen der Laserparameter konnten wir die fraglichen Strukturen nicht reproduzieren, beobachteten dafür aber andere neue Strukturen, die wir einem weiteren neuen Prozess zuschrieben. Cedric Ray, der nach Nelly mir liebste Franzose, war am Januarexperiment beteiligt und neben einem Arbeitskollegen ein sehr guter Freund. Mein Grundverständnis des Lasers und viele technische Details in dieser Arbeit verdanke ich Henry Chong, der auch für den Laser zuständig war. Bob Schoenlein und Erni Glover danke ich für die zur Verfügungstellung des Lasersystems und die gute Zusammenarbeit.

In Berkeley trat ich in die Fußstapfen von Achim Czasch. Ich konnte mich bei allen Fragen, ob organisatorischer Art oder zu unserem Datenaufnahmesystem, immer auf seine schnelle Hilfe verlassen. Noch bevor ich nach Berkeley ging, hatte ich den ersten Kontakt mit der Laser-Atomphysik in einem Experiment von Reinhard Dörner. Zusammen mit Matthias Weckenbrock und Thorsten Weber führten wir das erste Laserexperiment unserer Gruppe durch. Von Thorsten und Reinhard habe ich die ersten Einblicke in die Meßtechnik und Korrekturen der Diplomarbeit bekommen. Reinhard hat mit dem Laserexperiment ein neues hochaktuelles Forschungsgebiet in unserer Gruppe begonnen, das außer Publikationen auch Nachwuchs anzieht und damit in jeder Hinsicht die Erwartungen weit übertroffen hat. In gewisser Weise war das damalige Experiment der Vorläufer unserer Arbeit in Berkeley. Ich wäre

allerdings nie nach Berkeley gekommen, wenn nicht Prof. Schmidt-Böcking gewesen wäre. Seine großartige Betreuung von Frankfurt aus beinhaltete sogar regelmäßige Telefonanrufe! Ihm verdanke ich das beste Jahr meines Studiums.

Für anregende Diskussionen auf dem SILAP 2000 Workshop möchte ich Prof. Corkum, Jan Posthumus und Horst Rottke danken. Ich möchte an dieser Stelle auch der Studienstiftung für die finanzielle Unterstützung während meines US Aufenthalts danken.

Andreas Schleifenbaum, Cerstin Franz, Kiyoshi Shirato und Ysidro Acosta waren meine Mitbewohner im Haus an der 2643 Stuart Street und meine *Berkeley-family*. Ohne sie wäre die Zeit nicht halb so schön gewesen. Als Chemiker war Andreas für den *chef de cuisine* prädestiniert und wir genossen seine Kochkünste ausgiebig. Aber auch Diskussionen mit Andreas über Atomphysik waren und sind immer wieder anregend und lehrreich für mich. Cerstin ist für jede verrückte Idee zu haben, wenn sie nicht gerade – wie leider beinahe immer – arbeitet. Sie teilte meine Euphorie über die Bay Area und *KFRC San Francisco - more ooldies!*. Kiyoshi wurde auf unserer gemeinsamen Trekkingtour durch die von Bären verseuchte Wildnis des Yosemite National Parks mein Bruderherz und lehrte mich japanische Kartoffelpuffer. Durch Ysidro lernte ich Berkeley von einer anderen Seite kennen und die wirkliche Bedeutung von Toleranz.

Schliesslich und endlich möchte ich meinen Eltern danken, daß sie mir dieses Studium ermöglichten und mich immer in allen meinen Entscheidungen unterstützen. Nelly, Dir danke ich für Dein Vertrauen in unsere Liebe, die uns dieses Jahr hat überstehen lassen.

Ich hoffe, daß ein jeder Leser mit etwas gutem Willen wenigstens über die folgenden Seiten gelangt und vielleicht etwas von der Faszination vermittelt bekommt, die mich in Berkeley erfaßt und bis heute nicht losgelassen hat.

Friedrichsdorf, Deutschland
1. Juni 2001

André Staudte

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Hintergrund	5
2.1	Atome in Laserfeldern	5
2.1.1	Multiphoton Ionisation	6
2.1.2	Tunnelionisation	7
2.1.3	quantitative Modelle	12
2.2	Moleküle in Laserfeldern	15
2.2.1	Lichtinduzierte Dissoziation	15
2.2.2	Lichtinduzierte Stabilisierung	18
2.2.3	Dissoziative Ionisation	20
2.2.4	Orientierungseffekte	22
3	Das Experiment	25
3.1	Das Vakuumsystem	25
3.2	Das Target	26
3.3	Das Spektrometer	27
3.4	Der Detektor	30
3.4.1	Das Multichannelplate	30
3.4.2	Der Delayline-Detektor	31
3.5	zur Signalverarbeitung	32
3.6	Die Optik	35
3.7	Der Laser	35
3.7.1	Das Funktionsprinzip	35
3.7.2	Der Fokus	38
3.7.3	Die Stabilität	38
3.7.4	Spezifikationen	40
4	Datenanalyse	41
4.1	Kalibrierung des Flugzeitspektrums	41
4.2	Kalibrierung des Ortsspektrums	42
4.3	Aufstellen und Lösen der Bewegungsgleichungen	43
4.4	Aufbereitung der Daten	44
4.5	Ableitung der Darstellungen	45
5	Die Messung	51
6	Diskussion	57
6.1	Aussagekraft der Daten	57
6.1.1	Detektionseffizienz	57
6.1.2	Meßgenauigkeit	57
6.1.3	Maxwell - Boltzman Verteilung	60

6.1.4	Zufallskoinzidenzen	62
6.1.5	Raumladungseffekte	62
6.2	Interpretation der Daten	64
6.2.1	Messung a)	64
6.2.2	Messung b) und c)	68
7	Zusammenfassung	75

Kapitel 1

Einleitung

*Es läßt sich ohne sonderlich viel Witz so schreiben,
daß ein anderer sehr vielen haben muß, es zu verstehen.*

Georg C. Lichtenberg

Im Jahr 1922 wurde der Nobelpreis an einen Mann vergeben, der zu dieser Zeit schon weltbekannt war. Die höchste aller wissenschaftlichen Auszeichnungen wurde jedoch nicht für jene Arbeit *“Zur Elektrodynamik bewegter Körper”* zur speziellen Relativitätstheorie von 1905 verliehen, mit der seine Berühmtheit begründet war, sondern er erhielt die Auszeichnung für seine Arbeit zum photoelektrischen Effekt. Dieser Mann war Albert Einstein. Seine Arbeit *“Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt”* ebenfalls von 1905 war nichtsdestotrotz ein Beitrag von außerordentlicher Bedeutung, erbrachte sie doch den Beweis, daß Licht eine Korpuskularstruktur besitzt. Somit verhalf Einstein der Ansicht Newtons zu neuem Ansehen, Licht werde in kleinen Korpuskeln (lat. *korpus* – Körper) ausgestrahlt, die als Grundlage für die geometrische Optik galt. Ende des neunzehnten Jahrhunderts hatte sich nämlich die Auffassung durchgesetzt, Licht wäre ausschließlich als elektromagnetische Welle zu betrachten. Dieses Paradigma war so stark, daß selbst, als zur Erklärung des Emissionsspektrums der Schwarzkörperstrahlung von Max Planck eine Quantisierung (lat. *quantum* – Menge) des Energieaustauschs zwischen Materie und Strahlung eingeführt werden mußte, dies nur als mathematischer Kunstgriff angesehen wurde. Planck selbst zweifelte an Teilchencharakter des Lichtes mindestens bis ins Jahr 1913 (als er in seinem Gutachten für die Preußische Akademie Einsteins Verdienste rühmte, nannte er die Lichtquantenhypothese “spekulativ”, mit der Einstein über das Ziel hinausgeschossen sei).

Der photoelektrische Effekt ist heute Grundwissen, das in der Schule vermittelt wird. In einem klassischen Aufbau von Hallwachs (1888) wird eine Metallplatte elektrisch negativ geladen, an welche ein Elektrometer angeschlossen ist. Bestrahlung der Metallplatte mit ultraviolettem Licht läßt die Ladung langsam verschwinden. Hingegen führt die Verwendung von rotem oder grünem Licht zu keiner Entladung der Metallplatte. Auch die Erhöhung der Intensität, etwa durch Verkürzung des Abstandes zur Lichtquelle, oder die Verlängerung der Bestrahlungszeit zeigt keine Auswirkung auf den Ladungszustand der Metallplatte. Wie kommt das zustande? Damit sich die negativ geladene Metallplatte entlädt, müssen Elektronen dieselbige verlassen. Die Elektronen müssen dazu eine bestimmte Energie aufbringen, um das Metall zu verlassen. Diese Energie, als Austrittsarbeit W_0 bezeichnet, ist materialabhängig. Bestände das Licht nun aus Wellen, könnte die Austrittsarbeit bei jeder Wellenlänge durch einfache Erhöhung der Intensität oder Verlängerung der Bestrahlung aufgebracht werden. Dies ist aber, wie im Experiment gezeigt wird, nicht der

Fall. Einstein nahm also an, Licht einer Frequenz ν bestände aus Korpuskeln, den Photonen, mit einer wohlbestimmten Energie E_ν

$$E_\nu = h\nu$$

wobei h die von Planck eingeführte Quantisierungskonstante ist. Absorbiert also ein Elektron ein Photon mit einer Energie größer als der Austrittsarbeit, wird das Elektron das Metall verlassen. Das Elektron besitzt dann exakt die Differenz zwischen Photonenenergie und Austrittsarbeit an Bewegungsenergie:

$$E_{kin} = h\nu - W_0 \quad (1.1)$$

Durch Messung der kinetischen Energie der Elektronen kann die Größe der numerischen Konstante h bestimmt werden. Die Austrittsarbeit W_0 wird über die Glühemission bestimmt. Es stellt sich heraus, daß das so bestimmte h denselben Wert hat, wie die von Planck bei der Aufstellung des Strahlungsgesetzes aufgrund theoretischer Überlegungen eingeführte Größe. Die Konstante h wird fernerhin als Plancksches Wirkungsquantum bezeichnet und hat den numerischen Wert

$$h = 6,626 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$$

Soweit der Stoff aus Schulbüchern. Die Natur wäre jedoch von überraschender Einfachheit, wenn damit schon der Weisheit letzter Schluß gefunden wäre. Ist es denn nicht möglich, mag man findig fragen, daß mehrere niederenergetische Photonen gleichzeitig absorbiert werden und somit dem Elektron die nötige Energie vermitteln, die es benötigt, um das Metall zu verlassen? Das würde dem Intensivieren des roten Lichts entsprechen. Das Experiment hat aber gezeigt, daß die Erhöhung der Intensität für rotes Licht ohne Wirkung bleibt. Das Elektron kann demzufolge offenbar nur ein Photon auf ein Mal absorbieren. Nichtsdestotrotz zeigt sich später, daß die gleichzeitige Absorption mehrerer Photonen tatsächlich möglich, wenngleich bei niedrigen Intensitäten auch äußerst unwahrscheinlich ist.

Trotz der bahnbrechenden Schlußfolgerungen von Einstein bedurften die Beugungs- und Interferenzversuche von Huygens, Fresnel u.a. weiterhin der Erklärung durch elektromagnetische Wellen. Dieser scheinbare Antagonismus ist eine Repräsentation des schlagwortartig bekannten Paradigmas des Welle-Teilchen Dualismus. Licht läßt sich also je nach Versuchsbedingungen entweder mit dem Wellen- oder mit dem Teilchenbegriff beschreiben. Vor diesem Hintergrund liegt es nicht fern, zu fragen, ob nicht auch eine Ionisation eines neutralen Körpers möglich ist, so daß der Wellencharakter des Photons die dem Prozess zugrundeliegende Ursache wäre. In der Tat ist auf den ersten Blick nicht erkennbar, warum ein genügend starkes elektrostatisches Feld ein Atom nicht ionisieren können soll. Die Schwierigkeit hierbei liegt in der experimentellen Durchführbarkeit. Um ein Elektron einem Atomkern zu entreißen, muß mindestens die Feldstärke aufgebracht werden, die das Elektron im Mittel vom Atomkern verspürt. Um ein Gefühl für die im Atom herrschenden elektrischen Feldstärken zu bekommen, untersuchen wir das Wasserstoffatom: Ein Elektron im Wasserstoffatom hat im Mittel einen Abstand von $5,29 \cdot 10^{-11} \text{ m}$ vom Kern, was als Bohrscher Radius r_0 oder eine atomare Einheit (a.u.) definiert wird. Das elektrische Feld \vec{E} einer Elementarladung in diesem Abstand besitzt die Stärke

$$|\vec{E}| = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 r_0^2} \approx 5 \cdot 10^9 \frac{\text{V}}{\text{cm}}$$

Ein elektrostatisches Feld von fünf Milliarden Volt pro Zentimeter ist nicht realisierbar: ein Lichtbogen zwischen den Elektroden würde das Feld schon bei wesentlich geringeren Spannungen zusammenbrechen lassen. Es ist jedoch denkbar,

diese Feldstärke in einem von der Materie losgelösten, zeitlich veränderlichem elektrischen Feld – einer elektromagnetischen Welle – zu erzeugen. Dabei könnte man sich die Eigenschaft elektromagnetischer Felder zu Nutze machen, durch geeignete Überlagerung eine Verstärkung zu erhalten.

Genau das ist heute möglich: In Laserpulsen werden Intensitäten erzeugt, die eine simultane Absorption vieler Lichtquanten wahrscheinlich machen. Gleichzeitig herrschen Feldstärken in den Laserpulsen, die größer als das atomare Feld von $5 \cdot 10^9 V/cm$ sind. Um diese Intensitäten zu erzeugen, müssen alle Photonen eines Pulses auf kleinstmöglichem Raum zusammengedrängt werden. Das geschieht in Strahlrichtung durch Verkürzung der Pulsdauer und senkrecht dazu durch optische Fokussierung. Heute kann man Pulse mit der unvorstellbar kurzen Dauer von nur einigen Femtosekunden ($10^{-15}s$) erzeugen. Eine Femtosekunde verhält sich zu einer Sekunde, wie diese Sekunde sich zu 32 Millionen Jahren verhält! Das Licht mit seiner immensen Geschwindigkeit von $300\,000\,km/s$ legt in dieser Zeit gerade mal einen 10000tel Millimeter zurück. Diese Distanz ist auch die Ausdehnung eines solchen Pulses. Fokussierung dieser Lichtpulse erzeugt Intensitäten, die $10^{20}W/cm^2$ übersteigen. Diese Intensitäten sind größer, als wenn die gesamte auf die Erde einfallende Sonnenstrahlung ($2,7 \cdot 10^{17}W$) auf einen Stecknadelkopf fokussiert würde! Die so komprimierten Laserpulse werden nicht zu unrecht auch "Lichtgeschosse" (engl. *light bullets*) genannt: Bei Intensitäten und Pulsdauern, wie sie in der vorliegenden Arbeit verwendet werden, addieren sich die winzigen Impulse der Photonen im Fokus zu dem unglaublichen Druck von $7GPa$ bzw. $70\,000Bar$!

Mit solchen Laserpulsen ist es also möglich, Atome und Moleküle in einer Zeitspanne zu ionisieren, die klein ist gegen die Schwingungsdauer des Moleküls. Beim einfachsten neutralen Molekül, dem Wasserstoffmolekül H_2 , dauert eine Schwingung ungefähr $1,3 \cdot 10^{-14}s$. Durch die Ionisation wird die Kernbewegung gleichsam eingefroren und die entstehenden geladenen Fragmente fliegen auseinander. Der Zustand des Moleküls zum Zeitpunkt der Ionisation kann dann durch Messung der Fragmente rekonstruiert werden. Mit anderen Worten kann der Laserpuls als eine Art Ultrahochgeschwindigkeitskamera die Schwingungsbewegung der Kerne sichtbar machen. Aber auch Umlagerungen, bzw. Strukturänderungen von Molekülen in chemischen Reaktionen können so beobachtet werden. Für die Chemie und die Molekularbiologie sind solche sogenannten ultra-schnellen Prozesse von großem Interesse und erst 1999 wurde dafür der Nobelpreis in Chemie vergeben. Die grundlegende Physik der Wechselwirkung von Materie in solchen hochdichten Photonennflüssen ist höchst interessant und kann als ausgezeichnete Test der quantentheoretischen Modelle dienen. Besonders bemerkenswert mit Hinblick auf mögliche Anwendungen ist die Verwendung von Laserpulsen zur Kernfusion.

Seit nun schon ungefähr zehn Jahren gibt es das Gebiet der *Femtochemie* und *Femtoatomphysik* und Fortschritte in der Erzeugung immer kürzerer Pulse geben Hoffnungen Nahrung, bald den Attosekundenbereich ($10^{-18}s$) zu erreichen. In diesen zeitlichen Größenordnungen finden die Bewegungen der Elektronen im Atom statt. Dann hätte man eine Kamera, die die tiefstliegende Dynamik von Atomen zu beleuchten im Stande ist.

Kapitel 2

Hintergrund

There is a theory which states that if ever anyone discovers exactly what the universe is for and why it is here, it will instantly disappear and be replaced by something even more bizarre and inexplicable.

There is another theory which states that this has already happened.

Douglas Adams

2.1 Atome in Laserfeldern

In dem Artikel “*Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen*” [39] in den *Annalen der Physik* diskutierte die spätere Nobelpreisträgerin Göppert-Mayer 1931 erstmalig die Möglichkeit der gleichzeitigen Absorption zweier niederenergetischer Photonen beim Übergang zu einem nächsthöheren Quantenzustand. Sie betrachtete die Wechselwirkung eines Atoms mit einem Strahlungsfeld. Dem Ansatz anderer Arbeiten folgend behandelte sie die Wechselwirkung zwischen Strahlungsfeld und Atom als Störung und erhielt in der ersten Näherung der Störungsrechnung die damals schon bekannte Gleichung für Absorption und Emission eines Photons. In der zweiten Näherung erscheinen Terme, die für die zum damaligen Zeitpunkt ebenfalls bekannten Prozesse des Ramaneffektes und der Dispersion verantwortlich zeichnen. Göppert-Mayers Verdienst war es nun, zu zeigen, daß diese 2. Näherung ebenfalls die Effekte der simultanen Emission und Absorption zweier Lichtquanten enthielt und eine Übergangswahrscheinlichkeit für die beiden Prozesse zu geben. Kramers und Heisenberg [50] hatten zuvor schon im Jahre 1925 die Wahrscheinlichkeit für eine erzwungene Doppelemission berechnet, bei der ein angeregtes Atom durch Einfall eines niederenergetischen Photons in den Grundzustand zurückkehrt und dabei seine Anregungsenergie aufteilt in ein Photon derselben Wellenlänge wie die des einfallenden Photons und eines mit der Differenzenergie.

Nach der Vorhersage der Absorption von mehreren Lichtquanten in einem Elementarakt 1931 gelang erst 1950 die direkte Beobachtung dieses Prozesses bei Radiofrequenzen [42]. Anfang der Sechziger setzte die durch weitere Beobachtungen von Multiphotonenübergängen herausgeforderte Weiterentwicklung der Theorie solcher Prozesse ein. Das Aufkommen leistungsstarker Laser in den Siebzigern ermöglichte die Beobachtung dieser Übergänge in freien Atomen. Naturgemäß sind diese einfachsten Systeme der Maßstab, an dem sich die Modelle messen lassen müssen. Die weitere Steigerung der Pulsleistung durch das Vorstoßen in den Femtosekundenbereich und die Entwicklung der sogenannten *chirped*-Pulsverstärkung Anfang der Neunziger ermöglichte die Untersuchung ganz neuer Phänomene. Bei den so erzielten Intensitäten erreicht das Laserfeld die atomare Feldstärke und die Wechselwirkung zwischen Atom und Laserfeld nimmt semiklassische Züge an. Die Tren-

nung dieser beiden Intensitätsbereiche ist durch einen von Keldysh schon 1965 entwickelten Parameter möglich. Ziel dieses Abschnittes ist es, die verschiedenen Wechselwirkungsmechanismen zwischen Atom und Laserfeld im Einzelnen vorzustellen. Grundsätzlich werden Laserfelder betrachtet, deren Wellenlänge groß ist gegen die Anregungs-, bzw. Ionisationsenergie.

2.1.1 Multiphoton Ionisation

Multiphoton Ionisation (MPI) bezeichnet die Ionisation durch Absorption mehrerer niederenergetischer Photonen und setzt bei vergleichsweise geringen Intensitäten ein. Die Störungstheorie niedrigster Ordnung kann Ionisationsraten von MPI bei geringen Intensitäten recht genau vorhersagen. Die n -Photonen Ionisationsrate ist demnach durch die einfache Beziehung

$$\Gamma_n = \sigma_n I^n \quad (2.1)$$

mit der Intensität I des Lasers im Fokus verknüpft. n ist die minimal nötige Anzahl an Photonen, um die Ionisationsschwelle zu erreichen. σ_n ist der generalisierte Wirkungsquerschnitt, welcher recht schwierig zu berechnen ist, da Prozesse höherer Ordnung berücksichtigt werden müssen, um eine genaue störungstheoretische Bestimmung dieser Größe zu ermöglichen [51, 30]. Wie man der Gl. 2.1 entnehmen kann, ist die Abhängigkeit der Ionisationsrate von der Laserintensität hochgradig nichtlinear. Diese Beziehung wurde experimentell bis zu einem $n = 22$, d.h. der 22-Photon Ionisation, an Helium verifiziert [55]. Wird die Intensität allerdings über einen kritischen Wert hinaus erhöht, gilt die Beziehung 2.1 nicht mehr. Ab einer bestimmten Intensität wird die Zahl der nicht ionisierten Atome im Fokus ein begrenzender Faktor und MPI kann im sich ausweitenden Fokusrandbereich stattfinden. Man spricht von der Sättigungsintensität I_s .

Above Threshold Ionisation

Soweit wurde nur die MPI für die mindestens nötige Anzahl Photonen zur Überwindung des Ionisationspotentials diskutiert. MPI, bei der mehr Photonen als diese Mindestanzahl absorbiert werden, heißt *Above Threshold Ionisation* (ATI). Hier ist besonders bemerkenswert die Tatsache, daß das praktisch schon ionisierte also freie Elektron weitere Photonen absorbiert, was auf den ersten Blick die Impuls- und Drehimpulserhaltung zu verletzen scheint. Man geht davon aus, daß das Elektron die zusätzlichen Photonen absorbiert, während es noch unter dem Einfluß des Kernpotentials steht und so Drehimpuls ausgetauscht werden kann. Auch in diesem Fall wurde die Störungstheorie erfolgreich angewandt, so daß eine Verallgemeinerung von Gl. 2.1 getroffen werden kann

$$\Gamma_{n+s} \propto I^{n+s} \quad (2.2)$$

Hierbei bezeichnet s die Anzahl der zusätzlich zur Ionisationsenergie absorbierten Photonen. Die kinetische Energie der Photoelektronen ist eine einfache Abwandlung der von Einstein für den Photoeffekt aufgestellten Gleichung (vgl. mit Gl. 1.1)

$$E_{kin} = (n + s) h\nu - W_0 \quad (2.3)$$

Das Energiespektrum der Photoelektronen sollte also in Abständen von $h\nu$ Peaks aufweisen, wobei aufgrund der Intensitätsabhängigkeit in Gl. 2.2 die ATI Peaks mit höherer Ordnung sehr schnell sehr klein werden. ATI-Spektren sind schon in den frühen 80ern beobachtet worden. In späteren Untersuchungen wurde mit zunehmenden Intensitäten eine schrittweise Abweichung des ATI-Spektrums von der durch Gl. 2.2 bestimmten Intensitätsabhängigkeit festgestellt: Absorptionspeaks höherer

Ordnung wurden überproportional größer. Außerdem wurde die Unterdrückung des ersten ATI-Peaks beobachtet. Dieser Effekt wird der *AC-Stark* Verschiebung zugeschrieben. Die *AC-Stark* Verschiebung (engl. *AC: alternating current*) ist der Einfluss des periodischen elektrischen Feldes des Laserlichtes auf die atomaren Zustände. Das freie Elektron besitzt im zeitlich veränderlichen elektrischen Feld des Lasers eine Schwingungsenergie, die allgemein als *ponderomotive* Energie bezeichnet wird und sich berechnet zu

$$U_p = \frac{1}{m_e} \left(\frac{e E}{2\omega} \right)^2 \quad (2.4)$$

mit der lokalen Feldstärke E und der Frequenz des Laserfeldes ω . In sehr intensiven Feldern macht sich der Einfluß des Laserfeldes auch auf die gebundenen Elektronen bemerkbar. Dabei ist die Verschiebung der Rydbergzustände, also der hochangeregten Zustände, und der Kontinuumszustände in der Größenordnung der ponderomotiven Energie, während die atomaren Grundzustände in unmittelbarer Nähe des Kerns eine nur geringe Verschiebung erfahren. Demzufolge erhöht sich die Ionisationsenergie aus dem Grundzustand um etwa die ponderomotive Energie U_p des freien Elektrons. Diese Erhöhung der Ionisationsschwelle kann dazu führen, daß die Mindestanzahl der zur Ionisation des ungestörten Atoms benötigten Photonen wächst. Je nach Pulsdauer wird allerdings in den Pulsflanken schon eine Ionisation einsetzen, in der die *AC-Stark* Verschiebung noch keinen großen Einfluß ausübt und somit die ATI-Peaks niedrigster Ordnung nicht vollständig unterdrückt sind.

High Harmonic Generation

Durch Multiphotonübergänge im Atom können Elektronen in angeregte Zustände übergehen, deren Energie einem Vielfachen der Photonenenergie entspricht. Beim Zerfall dieser Zustände kehrt das angeregte Elektron in den Grundzustand zurück und emittiert dabei die gesamte Anregungsenergie in einem Photon. Da die Elektronen eine diskrete Anzahl Photonen absorbieren, ist die Wellenlänge der reemittierten Photonen eine ganzzahlige höhere Harmonische der Laserwellenlänge. Dieser Prozess wird Erzeugung höherer Harmonischer – oder griffiger: *High Harmonic Generation* (HHG) – genannt. Die HHG über inneratomare Resonanzen kann allerdings nur für relativ niedrige Ordnungen der Harmonischen verantwortlich gemacht werden, die noch dazu von der atomaren Struktur abhängig sind. 1987 wurde von Shore und Knight [84] darauf hingewiesen, daß beim Übergang von hochangeregten Kontinuumszuständen zu gebundenen Zuständen ebenfalls höhere Harmonische erzeugt werden können. Durch *Above Threshold Ionisation* werden die hochangeregten Kontinuumszustände bevölkert, die beim Zerfall höhere Harmonische bis zur 37. Ordnung [28] ergeben können!

2.1.2 Tunnelionisation

Mit zunehmender Intensität des Laserfeldes wächst die durch das Licht induzierte elektrische Feldstärke bis es vergleichbar dem atomaren Feld wird, welches das gebundene Elektron verspürt. Es ist offensichtlich, daß in diesem Falle die Störungstheorie dem Problem unangemessen ist. Stattdessen kann man auf eine klassische Beschreibung der Situation ausweichen. Ist die Wellenlänge des Laserlichtes groß gegen die Abmessungen des Atoms, kann für hinreichend kleine Zeiten ein über die Dimensionen des Atoms konstantes Feld angenommen werden. Das dieses Feld erzeugende Potential wird dem Bindungspotential des Atoms überlagert. Auf diese Weise wird die Potentialschwelle auf einer Seite zu einer Potentialbarriere endlicher Breite, sodaß eine Wahrscheinlichkeit besteht, daß das Elektron durch diese Barriere hindurchtunnelt.

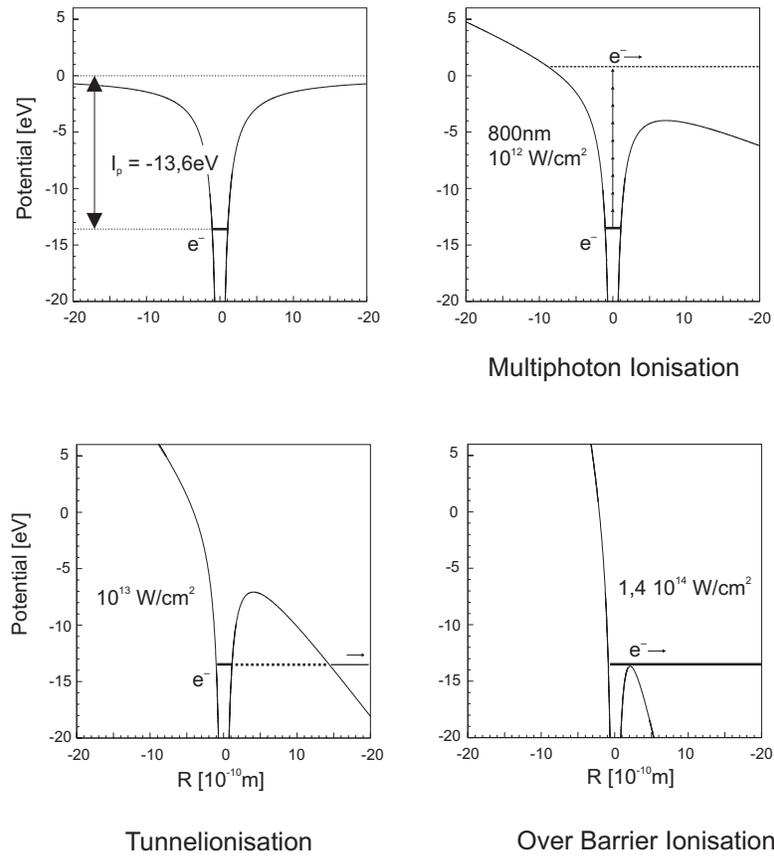


Abb. 2.1. Ionisationsmechanismen in den verschiedenen Intensitätsregimen am Beispiel des Wasserstoffatoms im 800nm Laserfeld. Dargestellt ist das 1D-Coulombpotential des Protons, dem ein elektrostatisches Feld verschiedener Intensitäten (siehe Gl. 2.5) überlagert ist.

Over Barrier Ionisation

Ein weiteres Anwachsen der Intensität führt schließlich zur gänzlichen Unterdrückung der Ionisationsschwelle, sodaß das elektronische Wellenpaket ungehindert aus dem Atom herauslaufen kann. Diese spezielle Art der Tunnelionisation (schließlich wird das Wellenpaket auch an einer unterdrückten Barriere noch teilweise reflektiert) nennt man *Over Barrier Ionisation* (OBI). Es läßt sich leicht bestimmen bei welcher Laserintensität dieser Prozess einsetzt. Dazu muß das Potentialmaximum, das durch Überlagerung von Laserpotential und Bindungspotential entsteht, der Ionisationsenergie gleichgesetzt werden. Wir gehen wieder davon aus, daß die Wellenlänge des Lichts groß ist gegen die Atomabmessungen und wir folglich ein quasistatisches externes Potential $-E \cdot r$ annehmen können. Das Bindungspotential wird durch ein einfaches Coulombpotential angenähert, sodaß das durch Überlagerung gewonnene totale Potential V gegeben ist durch

$$V = -\frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 r} - E \cdot r$$

mit der elektrischen Feldkonstanten $\epsilon_0 = 8,85 \cdot 10^{-12} \text{ As/Vm}$. Das Maximum dieses Potentials ist, wie man sich leicht überzeugt, an der Stelle

$$r_{max} = \sqrt{\frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 E}}$$

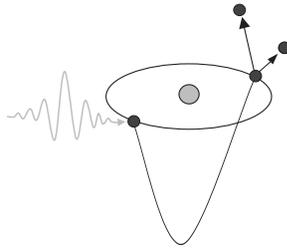


Abb. 2.2. Schematische Darstellung der Doppelionisation eines Atoms durch *Recollision*.

durch

$$V_{max} = -2\sqrt{\frac{ZeE}{4\pi\epsilon_0}}$$

gegeben. Gleichsetzen mit dem Ionisationspotential I_p ergibt

$$E = \frac{\pi\epsilon_0 I_p^2}{Ze^3}$$

Die Lichtintensität I im Fokus hängt mit der induzierten Feldstärke E auf folgende Weise zusammen

$$E = \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}} \quad , \quad (2.5)$$

mit der Lichtgeschwindigkeit c . Somit kann die kritische Lichtintensität I_{OBI} berechnet werden, bei der die *Over Barrier Ionisation* einsetzt:

$$I_{OBI} = \frac{c \pi^2 \epsilon_0^3 I_p^4}{2 Z^2 e^6} \quad (2.6)$$

In einer etwas handlicheren Form geschrieben lautet diese Gleichung dann

$$I_{OBI}[W/cm^2] = 4 \cdot 10^9 \frac{(I_p[eV])^4}{Z^2} \quad (2.7)$$

Recollision - Rescattering

Wir haben festgestellt, daß in hohen Laserintensitäten das freie Elektron aufgrund seiner Schwingungsbewegung im Laserfeld eine merkliche Energie erhält. Die Energie, die das Elektron im ponderomotiven Potential erfährt, kann ausreichen, um ein weiteres Elektron durch Stoßionisation ins Kontinuum zu heben. Dieser Prozess wird *Recollision* oder auch *Rescattering* genannt und wurde von Corkum [16] u.a. entwickelt, als Reaktion auf die Diskrepanz der experimentell bestimmten Doppelionisationsrate von Helium zur Vorhersage der ADK-Theorie [31] (siehe Abb. 2.3). Corkums Modell konnte den nicht-sequentiellen Teil in der Ionisationsrate der He^{2+} Rate - das berühmte He^{2+} "Knie" - sehr gut erklären [16] und erst vor kurzem (1999) sind von Weber et al. detaillierte Messungen an Helium und Argon unter Einsatz von COLTRIMS durchgeführt worden, die das *Recollision* Modell auf mikroskopischer Ebene unterstützen. Dabei sind sowohl die Impulse der Photoelektronen [96] als auch der Ionen [97, 98] gemessen worden. Die dann von Becker und Faisal [7] quantenmechanisch unter Berücksichtigung der Elektronenwechselwirkung berechneten Impulsverteilungen der Ionen stimmen im Rahmen des experimentellen Auflösungsvermögen mit den Beobachtungen überein. Die Elektronenimpulsverteilungen konnten Sacha und Eckhardt [73, 74] mit einem erweiterten (klassischen) *Recollision* Modell gut reproduzieren.

In Corkums *Recollision* Modell wird ein freies Elektron durch Tunnelionisation mit einer Wahrscheinlichkeit in einem bestimmten Abstand vom Ursprungion

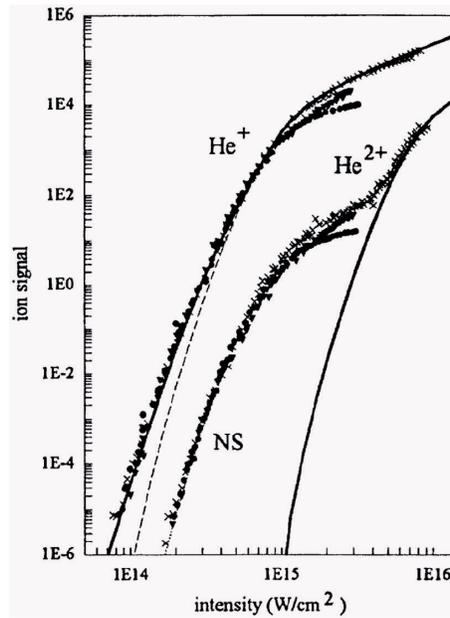


Abb. 2.3. Die Ionisationsraten von He^{1+} und He^{2+} in Abhängigkeit von der Laserintensität. Die durchgezogenen Kurven sind die durch die ADK-Theorie vorhergesagten Ionisationsraten, die nur sequentielle Doppelionisation berücksichtigt. Aus [93] entnommen.

erzeugt. Die Ionisationswahrscheinlichkeit dieses ersten Schrittes wird durch die ADK-Theorie [2] korrekt vorhergesagt. Das Elektron erfährt eine Beschleunigung im elektrischen Feld des Lasers weg vom Ion. Zu einem späteren Zeitpunkt jedoch kehrt sich die Polarisation des Laserfeldes um und das Elektron wird zurück auf das Ion beschleunigt. Das Elektron kann beim Passieren des Ions einen Stoß mit einem noch gebundenen Elektron ausführen und dieses möglicherweise ionisieren. Das Laserfeld wird durch ein periodisch veränderliches elektrisches Feld der Frequenz ω_0 des Laserlichtes angenähert

$$\vec{E} = E_0(e_x \cdot \cos \omega_0 t + e_y \cdot \sin \omega_0 t) \quad .$$

Der Einfluß des Coulombpotentials des Ions auf das freie Elektron wird vernachlässigt, sodaß wir die Elektronenbewegung einfach klassisch behandeln können. Weiterhin wird das Magnetfeld der elektromagnetischen Welle vernachlässigt und angenommen, daß das Elektron zum Zeitpunkt der Ionisation t_0 im Abstand Null ($x_0 = 0$) vom Ion entsteht und keinen Impuls besitzt ($v_0 = 0$)[17]. Nun können die Newtonschen Bewegungsgleichungen aufgestellt werden

$$\begin{aligned} x &= -\frac{eE_0}{m_e \omega_0^2} \cos \omega_0 t \\ y &= -\alpha \frac{eE_0}{m_e \omega_0^2} \sin \omega_0 t \\ v_x &= \frac{eE_0}{m_e \omega_0} \sin \omega_0 t \\ v_y &= -\alpha \frac{eE_0}{m_e \omega_0} \cos \omega_0 t \quad , \end{aligned}$$

wobei $\alpha = 0$ für lineare und $\alpha = \pm 1$ für zirkuläre Polarisation ist. Aus den ersten beiden Gleichungen wird ersichtlich, daß bei zirkularer Polarisation das Elektron

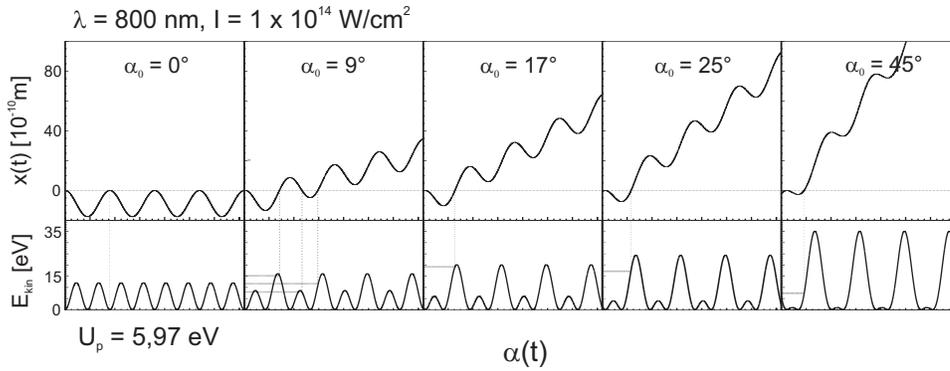


Abb. 2.4. Darstellung des Elektronenbewegung nach Gl. 2.9 in Abhängigkeit von der Phase $\alpha(t) = \omega_0 t$ des Lasers für verschiedene Ionisationsphasen $\alpha_0 = \omega_0 t_0$. *Recollision* findet statt, wenn $x(\alpha) = 0$ ist. In der zweiten Reihe ist die kinetische Energie des Elektrons $E_{kin} = v_x^2 m_e / 2$ unter Verwendung von Gl. 2.8 dargestellt. Man sieht in dem Beispiel, daß bei einer Startphase von 17° die höchste *Recollision*energie von ca. 19eV verzeichnet wird. Das entspricht bei den zugrundeliegenden Bedingungen ungefähr $3,17U_p$.

nicht zum Ion zurückkehren kann ($x(t) = 0$ und $y(t) = 0$). Deshalb betrachten wir nur den Fall der linearen Polarisation. Wird das Elektron zum Zeitpunkt t_0 in das Laserfeld mit der Phase $\omega_0 t_0$ geboren, besitzt es zu einem späteren Zeitpunkt t die Geschwindigkeit

$$v_x(t) = \frac{eE_0}{m_e \omega_0} (\sin \omega_0 t - \sin \omega_0 t_0) \quad . \quad (2.8)$$

Integration dieser Gleichung liefert den Ort des Elektrons zum Zeitpunkt t

$$x(t) = -\frac{eE_0}{m_e \omega_0^2} (\cos \omega_0 t + t \omega_0 \sin \omega_0 t_0 - \cos \omega_0 t_0 - \omega_0 t_0 \sin \omega_0 t_0) \quad . \quad (2.9)$$

Der Ort des Elektrons ist also durch eine der Oszillationsbewegung $\cos \omega_0 t$ überlagerten Driftbewegung der Form $t \cdot a + b$ gegeben. Es ist nun von Interesse, zu bestimmen, welche kinetische Energie $m_e / 2 v^2$ das Elektron beim Wiederauftreffen auf das Ion besitzt, d.h., wenn es nicht zuvor durch die Driftbewegung schon zuweit vom Ion weggeführt wurde (siehe Abb. 2.4). Dies ist abhängig von der Phase des Feldes zu der die Tunnelionisation stattgefunden hat. Die so erreichbare maximale kinetische Energie bestimmt sich zu $3,17U_p$ bei einer Phase von $\omega_0 t_0 = 17^\circ$ und 197° .

Selbstverständlich kann das zum Ion zurückbeschleunigte Elektron auch wieder rekombinieren, das heißt in einen gebundenen Zustand zurückkehren, und dabei seine gesamte Energie in einem Photon abgeben. Die höchste emittierbare Energie kann den obigen Überlegungen folgend somit nicht größer als $I_p + 3,17U_p$ sein. Dieser Prozess ist damit dem der Erzeugung höherer Harmonischer durch ATI verwandt, kann jedoch keine ganzzahlige Beziehung zwischen Laserfrequenz und Frequenz der Rekombinationsstrahlung mehr garantieren. Daß trotzdem diskrete höhere Harmonische beobachtet werden, macht die Grenzen des einfachen *Recollision*modells deutlich. Trotz dieses Mangels wird die maximale Energie der Rekombinationsstrahlung ungefähr richtig vorhergesagt.¹

¹Weitergehende Diskussionen der Laser-Atomphysik können in [56] gefunden werden.

relativistische Effekte

Bis heute sind relativistische Effekte in den wenigsten Modellen berücksichtigt. Die Frage ist, ab welchen Intensitäten relativistisch gerechnet werden muß. Offensichtlich ist das der Fall, wenn die ponderomotive Energie U_p des freien Elektrons in die Größenordnung seiner Ruheenergie mc^2 gelangt

$$\begin{aligned} I_{rel} &= 2\epsilon_0 \frac{m_e^2 c^3 \omega^2}{e^2} \\ I_{rel}[W/cm^2] &= 5,4 \cdot 10^{24} \lambda[nm]^{-2} \quad . \end{aligned} \quad (2.10)$$

Für eine Wellenlänge von $800nm$ erhält man so zum Beispiel eine Intensität I_{rel} von $8 \cdot 10^{18} W/cm^2$, bei der relativistische Effekte nicht mehr vernachlässigt werden können. Bei solchen Super-Intensitäten wird es sicherlich ein Menge neuer Phänomene geben und die Untersuchung dieses Intensitätsregimes hat bereits begonnen. So wurde durch Bestrahlung von Edelgasclustern mit ultrakurzen Pulse bei Intensitäten von $10^{16} - 10^{18} W/cm^2$ eine sehr intensive Röntgenstrahlung von $5keV$ Photonen beobachtet [27, 25]. Das entspricht einer Wellenlänge von $6pm$! Noch aufregender ist die Beobachtung von Zweiback et al [104] von $2,5MeV$ Neutronen bei der Bestrahlung von Deuteriumclustern mit $800nm, 35fs$ Pulsen bei einer Intensität von $10^{17} W/cm^2$: Offensichtlich werden im Gefolge der Clusterionisation Deuteronen aus den Clustern emittiert, so daß die Deuteronen aufgrund der Impulserhaltung eine solche kinetische Energie erhalten, die die Kernfusion zweier Deuteronen ermöglicht! Das ist Kernfusion auf dem Küchentisch! Kernfusion im großen Maßstab wird am Petawatt ($10^{15}W$) Laserensemble in Livermore, CA bei Intensitäten von $10^{21} W/cm^2$ untersucht [61].

2.1.3 quantitative Modelle

Keldysh - Theorie

Keldysh stellte 1965 [49] ein erstes Modell auf, das sowohl Multiphotonionisation, als auch Tunnelionisation beschreiben konnte. Der Übergang von Multiphoton- zu Tunnelionisation wird demnach bei einer Laserfrequenz stattfinden, bei der die mittlere Tunnelzeit des Elektrons durch die Potentialbarriere in der Größenordnung der Periodendauer des Laserfeldes ist. Keldyshs Arbeit lieferte einen Parameter, der es möglich machte, die beiden Intensitätsregimes von einander zu trennen. Dieser Parameter ist der vielbemühte Keldysh-Parameter und bestimmt sich als Verhältnis der Laserfrequenz ω zur kritischen Frequenz des Atoms ω_t

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_t} = \frac{\omega \sqrt{2m_e I_p}}{eE} \quad , \quad (2.11)$$

beziehungsweise unter Verwendung des ponderomotiven Potentials in Gl. 2.4

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad . \quad (2.12)$$

Für Frequenzen $\omega < \omega_t$ ist der Ionisationsprozess folglich am besten durch Tunnelionisation beschrieben. Mit anderen Worten kann das Laserfeld dann klassisch betrachtet werden. Bei großen Frequenzen gegen ω_t hingegen ist die Multiphotonionisation das besser zutreffende Modell. Hier kommt der Quantencharakter des Lichts zum Tragen.

$$\gamma \ll 1 \quad (2.13)$$

Tunnelionisation

$$\gamma \gg 1 \quad (2.14)$$

Multiphoton Ionisation

Für den Experimentalphysiker ist es immer von Nutzen, wenn in einer Formel nur direkte Meßgrößen enthalten sind, deshalb sei hier noch die Abhängigkeit des Keldysh-Parameters von der Intensität gegeben (siehe Gl. 2.5)

$$\begin{aligned} \gamma &= \frac{\sqrt{m_e \epsilon_0 c^3}}{e} \cdot \omega \sqrt{\frac{I_p}{I}} \\ &= \frac{231,6}{\lambda[\text{nm}]} \cdot \sqrt{\frac{I_p[\text{eV}]}{I[10^{14} \text{W}/\text{cm}^2]}} \quad . \end{aligned} \quad (2.15)$$

Keldysh betrachtete in seiner Arbeit die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen der Stark-verschobenen Grundzustandswellenfunktion des Wasserstoffelektrons und der Wellenfunktion des freien Elektron in einer ebenen elektromagnetischen Welle außerhalb des Einflusses des Coulombpotentials des Ions. Die Schrödingergleichung für das freie Elektron in einer ebenen elektromagnetischen Welle ist analytisch exakt lösbar und die resultierende Wellenfunktion wird als Volkov-Zustand bezeichnet [92]. In dem elektrischen Feld $E(t) = E_0 \cos \omega t$ ist die Wellenfunktion des freien Elektrons gegeben durch

$$\psi_{\text{volkov}}(\mathbf{r}, t) = \exp\left(\frac{i}{\hbar}[\mathbf{p} + \frac{eE}{\omega} \sin \omega t] \mathbf{r} - \frac{i}{\hbar} \int_0^t \frac{1}{2m_e} [\mathbf{p} + \frac{eE}{\omega} \sin \omega \tau]^2 d\tau\right)$$

Die Wellenfunktion des n-ten gebundenen Zustands ist

$$\psi_n(\mathbf{r}, t) = \psi_n(\mathbf{r}) \exp\left(\frac{i}{\hbar}(I_n t - \frac{\sigma_n e F}{\omega} \sin \omega t)\right)$$

unter Berücksichtigung des linearen Stark-Effekts auf das n-te Energieniveau

$$I'_n(E) = I_n - \sigma_n e E - \alpha_n \frac{1}{2} e^2 E^2 \quad .$$

Hierbei sind σ_n, α_n Koeffizienten, die die Stark-Verschiebung des n-ten Energieniveaus beschreiben.

Die Gesamtwellenfunktion des Systems wird nun nach den diskreten gebundenen Zustandsfunktionen und den kontinuierlichen Volkov-Zuständen entwickelt. Dabei wird die zeitliche Entwicklung des Gesamtsystems durch einen Satz gekoppelter Differentialgleichungen erster Ordnung beschrieben, deren Lösungen die zeitabhängigen Entwicklungskoeffizienten der gebundenen und Volkov-Zustände sind.

Keldysh's Theorie wurde u.a. von Faisal [29] und Reiss [68] weiter entwickelt und liefert gute Vorhersagen der Photoelektronenspektren in zirkular polarisiertem Licht, in welchem Resonanzen von atomaren Zuständen minimal werden. So ist denn auch die Modellierung der Ionisation in linear polarisiertem Licht bedeutend schlechter. Das Modell gerät an seine Grenzen bei sehr kurzen Laserpulsen und wenn die Ionisationsrate in die Sättigung gelangt (siehe Abschnitt 2.1.1). Die Vernachlässigung des Coulombpotentials des Ions hat, was schon Keldysh bewußt war, zur Folge, daß die Ionisationsrate um ein bis zwei Größenordnungen unterschätzt wird, so daß ein mehr oder weniger beliebiger Korrekturfaktor verwendet werden muß (siehe Abb. 2.5).

ADK - Theorie

Das Tunnelionisationsmodell von Ammosov, Delone und Krainov (ADK) [2] ist ein zentraler Bestandteil vieler jüngerer Theorien. So verwandte Corkum die durch

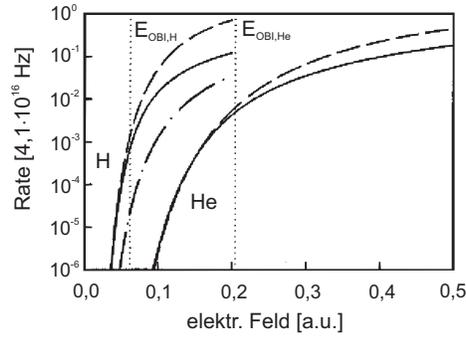


Abb. 2.5. Vergleich der Ionisationsraten von Wasserstoff und Heliumatomen in Abhängigkeit von der Feldstärke des Lasers. Durchgezogene Linie - numerische Rate, unterbrochene Linie - ADK Theorie, unterbrochen-punktiierte Linie - Keldysh Theorie. Die senkrechten Linien geben die Feldstärken E_{OBI} für Wasserstoff, bzw. Helium an. Aus [8] entnommen.

ADK berechnete Ionisationswahrscheinlichkeit in seinem *Recollision* Modell [16]. Wesentlich für die ADK Theorie ist, daß sie in einem quasistatischen elektrischen Feld den Einfluß des Coulombpotentials des Ions auf das tunnelionisierte Elektron in geringen Abständen vom Ion berücksichtigt, bei denen der Einfluß des Laserfeldes noch vernachlässigt werden kann. Das führt dazu, daß die berechnete Ionisationsrate für $\gamma < 1$ und $E < E_{OBI}$ recht genau mit der gemessenen übereinstimmt. Hierbei ist E_{OBI} die Feldstärke, die zur vollständigen Unterdrückung des Bindungspotentials führt und somit *Over Barrier Ionisation* einsetzt. Für Feldstärken bei denen das Elektron “ungehindert” das Atom verlassen kann, verliert die ADK - Theorie ihre Vorhersagekraft und überschätzt die Ionisationsrate (siehe Abb. 2.5).

Floquet - Theorie

In der Floquet - Theorie wird der Hamiltonoperator des semiklassischen, zeitabhängigen Atom - Laserfeld Systems

$$H(t) = H_0 + H_1(t)$$

in den zeitunabhängigen Floquet Operator K

$$K(n) = H_0 + n\hbar\omega + V \cdot (S_n^+ + S_n^-) \quad (2.16)$$

überführt [30, 40, 10]. Der zeitabhängige Hamiltonoperator $H(t)$ enthält das elektrische Feld $\mathbf{E}(t) = \varepsilon E_0 \cos(\omega t + \theta)$ (ε ist der Einheitspolarisationsvektor), so daß die ausgeschriebene Schrödingergleichung des Systems

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(\mathbf{r}, t) = [H_0 + \mu(\mathbf{r})\mathbf{E}(t)]\psi(\mathbf{r}, t)$$

lautet. Dabei bezeichnet $\mu(\mathbf{r})$ das Dipolmoment und H_0 den Hamiltonoperator des Atoms $H_0\psi_i = \varepsilon_i\psi_i$. Stark vereinfacht gesprochen wird die Zeitabhängigkeit in der Floquet - Theorie unter Verwendung der Periodizität des elektrischen Feldes in eine Abhängigkeit von der Anzahl n der Perioden transformiert. Das n in Gl. 2.16 kann auch als Anzahl der vom Feld absorbierten Photonen aufgefaßt werden. An Gl. 2.16 wird deutlich, daß durch die Floquet Transformation die Zeit auf Kosten der Dimension des Hamiltonoperators eliminiert worden. Der Floquet - Hamilton Operator ist unendlichdimensional. Die Floquet Theorie erweist sich bei der Deutung von Dissoziationsspektren von Molekülen als besonders hilfreich.

2.2 Moleküle in Laserfeldern

Es ist verständlich, daß Atome als einfachste Systeme für die Untersuchung der Laser-Materie Wechselwirkung von vorrangigem Interesse sind. Geht man in der Komplexität der Materie einen Schritt weiter, gelangt man zum Molekül, genauer gesagt zum diatomaren homonuklearen Molekül X_2 . Diese Klasse der Moleküle wird in ihrer einfachsten Form durch das molekulare Wasserstoffion H_2^+ repräsentiert. Es ist also nicht verwunderlich, daß ein Großteil der Anstrengungen von Physikern auf die Untersuchung des Wasserstoffmoleküls, bzw. des erwähnten molekularen Wasserstoffions verwendet wurde und immer noch wird. Daneben wurde ein breites Spektrum von einfachen Molekülen wie z.B. HCl [23], Cl_2 [81], I_2 [86, 63, 64, 65, 52, 53] und NO [87] bis zu mehratomigen Molekülen wie Wasser [78], Kohlendioxid [77] und organischen Verbindungen [21] untersucht.² Auf der anderen Seite dieses interdisziplinären Forschungsgebietes steht die "Femto - Chemie", welche die Laserpulse als eine Art Hochgeschwindigkeitskamera benutzt, um den zeitlichen Verlauf chemischer Reaktionen in kleinstmöglichen Schritten zu beobachten [100]. Dabei ist auch D_2 ein Untersuchungsobjekt der Chemiker (siehe z.B. [41]). Erst 1999 vergab die Königliche Schwedische Akademie der Wissenschaften den Nobelpreis für Chemie an A.H. Zewail für seine Studien der Übergangszustände chemischer Reaktionen mittels Femtosekundspektroskopie [58].

Der Entwicklung ultrakurzer energiereicher Laserpulse folgend ist dieses Gebiet ähnlich der Laser-Atomphysik erst ca. 10-15 Jahre alt, was nach Maßstäben der Physik gesprochen mitnichten ein hohes Alter ist. Die Meßmethoden in beiden Gebieten sind nahezu identisch, d.h. auch hier wurde bis Ende der Neunziger praktisch ausschließlich Flugzeitspektroskopie der Elektronen und Ionen eingesetzt. Eine Schwierigkeit tritt jedoch im Vergleich zur Untersuchung von Atomen hinzu. Die Ionisation oder auch einfach nur Dissoziation von Molekülen liefert mehrere Fragmente, die eine elektrische Ladung besitzen (Ionen und Elektronen), aber zum Teil auch ungeladen (Dissoziationfragmente) sein können. Zu dem schwanken die freigesetzten kinetischen Energien der Fragmente in einem bedeutend größeren Bereich, als Folge der verschiedenen Wechselwirkungsprozesse. Dementsprechend ist die Messung der Fragmente aufwendiger und die Deutung der Spektren komplizierter.

Die der Materie hinzugefügte Komplexität schafft sich in der Wechselwirkung mit dem Laserfeld in einer Vielfalt neuer Prozesse Ausdruck. So tritt als wirklich neuer Prozess die lichtinduzierte Dissoziation des Moleküls zu den von Atomen her bekannten Prozessen hinzu. Weiterhin beobachtet man aufgrund des Zweizentrenpotentials in Verbindung mit der Dissoziation einen neuen Ionisationsmechanismus. Bei höheren Intensitäten ist auch eine Stabilisierung des dissoziierenden Moleküls denkbar. Die durch die Molekülachse gegebene Asymmetrie schließlich fordert Untersuchungen über den Einfluß der Laserpolarisation in Bezug auf die Molekülachse heraus. Die theoretische Darstellung dieser Prozesse ist, abgesehen von der Dissoziation, noch nicht so weit gediehen, wie es bei atomaren Systemen der Fall ist. Die folgenden Abschnitte sollen den Leser mit den Arbeiten zum Wasserstoffmolekül und dessen Wechselwirkungsmechanismen im Laserfeld vertraut machen.

2.2.1 Lichtinduzierte Dissoziation

Ein Molekül besitzt gegenüber einem Atom zusätzlich zu den drei translatorischen Freiheitsgraden die inneren Freiheitsgrade der Rotation und der Vibration. Die Abstände zwischen den Vibrationszuständen sind hierbei im allgemeinen um ein bis zwei Größenordnungen größer als zwischen den Rotationszuständen. Die Wel-

²siehe [38] für eine Review der Arbeiten vor 1995

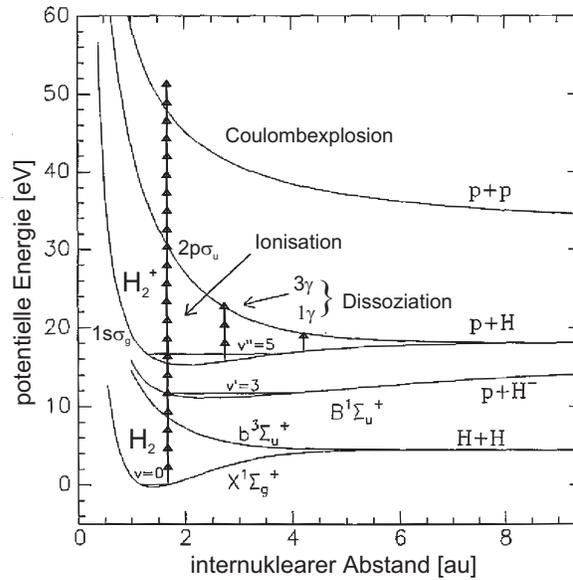


Abb. 2.6. Ausgewählte Potentialkurven von H_2 . Die vertikalen Pfeile entsprechen möglichen Photonenübergängen mit einer Wellenlänge von 532nm . Entnommen aus [101].

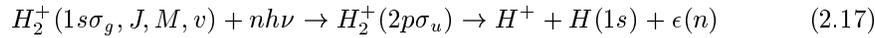
Wellenlänge des Laserlichtes von 800nm entspricht einer Photonenenergie von $1,5\text{eV}$ und ist damit ungefähr zehnmal so groß wie der Abstand zweier Vibrationszustände im Wasserstoffmolekül. Betrachtet man das vereinfachte Potentialdiagramm von H_2 in Abb. 2.6 kann man sich leicht einen Überblick über die möglichen Dissoziationskanäle verschaffen.

Vom Grundzustand des neutralen Moleküls ausgehend, ist eine Anregung desselben in den Zustand $^3\Sigma_u^+$ denkbar, von dem aus das Molekül in zwei neutrale Atome dissoziiert. Die Wahrscheinlichkeit für diesen Übergang ist jedoch gering, da der Übergang zwischen dem Singulett-Grundzustand $^1\Sigma_g^+$ und dem Triplettzustand $^3\Sigma_u^+$ verboten ist³. Das Molekül könnte aber auch so viele Photonen absorbieren, daß beide Elektronen ionisiert werden und sich plötzlich zwei nackte Kerne im Gleichgewichtsabstand des Wasserstoffmoleküls gegenüber sitzen. Das entspräche einem senkrechten (Frank - Condon) Übergang vom Grundzustand auf die Coulombexplosionskurve. Coulombexplosion heißt dieser Zustand deshalb, weil die elektrischen (Coulomb) Felder der beiden Kerne nicht mehr durch die elektronische Ladung abgeschirmt sind und sich nun aufgrund des geringen internuklearen Abstandes mit großer Kraft abstoßen. Dieser Prozess benötigt zwar eine äußerst hohe Anzahl an gleichzeitig absorbierten Photonen und ist damit als Multiphotonenprozess hoher Ordnung sehr unwahrscheinlich, würde jedoch eine sehr hohe charakteristische kinetische Energie der Protonen erzeugen, was experimentell leicht zu beobachten wäre. Bis heute sind keine eindeutigen Beweise für eine solche plötzliche Doppelionisation des Wasserstoffmoleküls bekannt.

Schließlich ist ein Zweistufen-Mechanismus denkbar, bei dem zuerst via MPI das molekulare Ion im elektronischen Grundzustand $1s\sigma_g$ gebildet wird und anschließend durch den Dipol-erlaubten Übergang in den nächsthöheren dissoziativen

³Symmetrieüberlegungen zeigen: das Dipolmoment muß gegenüber einer Vertauschung der Elektronen invariant sein, die Wellenfunktion des Triplettzustands ist antisymmetrisch während sie im Singulettzustand symmetrisch im Ort ist. Das Dipolmoment kann jedoch nicht beide Symmetrien besitzen, folglich ist der Übergang verboten.

Zustand, den $2p\sigma_u$ Zustand, gehoben wird, von dem aus es in ein Proton und ein Wasserstoffatom dissoziiert. Es stellt sich heraus, daß dieser Prozess



bei Intensitäten unter $5 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ alle anderen Prozesse dominiert. Er wurde 1990 von Giusti-Suzor *et al.* [36] vorhergesagt. Gleichzeitig behaupteten Bucksbaum *et al.* in einem Letter [9], gerade diesen Prozess beobachtet zu haben. Kurz darauf gaben Zavriyev *et al.* [101] in einer umfangreichen Arbeit die experimentelle Bestätigung: Die Messung der Protonen und Photoelektronen ergab keinen Hinweis auf eine Dissoziation des neutralen Moleküls vor der ersten Ionisation. Der Ablauf der Interaktion in zwei Stufen ist seitdem mehrfach bestätigt worden (z.B. [1]) und gilt als gesichert.

Zavriyev *et al.* beobachteten, daß mit zunehmender Intensität auch die niedrigen Vibrationszustände dissoziieren, jedoch alle mit einer kinetischen Energie, die dem 1-Photonen Übergang $1s\sigma_g \rightarrow 2p\sigma_u$ entsprach und nur bei einem internuklearen Abstand von $2,5 \text{au}$ (für die verwendeten 532nm) zu beobachten sein sollte (siehe Abb. 2.6). Die meisten populierten Schwingungszustände sind jedoch auf geringere Abstände beschränkt. Es mußte also durch die Kopplung mit dem Feld eine beträchtliche Deformation des Grundzustandes angenommen werden. Um den Einfluß des Feldes auf die ungestörten Zustände $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ deutlich zu machen, begeben wir uns in das Floquet Bild der sogenannten *dressed states*⁴. Ein *dressed state* wird demnach aus dem ungestörten Zustand und einer bestimmten Anzahl Photonen gebildet (siehe Gl. 2.16). So wird aus jedem ungestörten Zustand eine beliebig große Anzahl von *dressed states*, die um $n\hbar\omega$ gegenüber dem ungestörten Zustand verschoben sind (Abb. 2.7). Hierbei ist von Bedeutung, daß die Polarisation der Photonen entlang der Molekülachse weist, da das elektrische Feld des Photons nur dann auf die molekulare Schwingung Einfluß hat. Die Betrachtung zweier Zustände im Floquet Bild führt im allgemeinen zu Kreuzungen der Potentialkurven. Die 1-Photonen Dissoziation wäre in diesem Bild dann Kreuzung zwischen dem ungestörten Zustand $1s\sigma_g$ und dem $2p\sigma_u - 1\hbar\omega$ Zustand. Aufgrund der Dipolkopplung der beiden Zustände ist diese Kreuzung nicht verboten und es gibt eine Wahrscheinlichkeit, daß das Molekül an der Kreuzung in einem sogenannten *adiabatischen Übergang*⁵ dem $2p\sigma_u - 1\hbar\omega$ Potential folgt und dissoziiert. Kreuzungen, die durch Absorption einer geraden Anzahl Photonen entstehen, sind aufgrund der Paritätserhaltung verboten. Die sich aus der Überlagerung der gekreuzten Zustände ergebenden Potentialkurven heißen *adiabatisch*. Man kann sich die ungestörten Potentialkurven auch als durch die Photonenkopplung deformiert denken. Zwischen den adiabatischen Potentialkurven entsteht somit eine Öffnung, durch die höhere Vibrationszustände dissoziieren können. Zunehmende Lichtintensitäten bewirken, daß die Öffnung zwischen den adiabatischen Potentialen größer wird, so daß auch niedrigere Schwingungszustände aus der Potentialmulde entkommen. Zusätzlich ist noch die Möglichkeit des Tunnelns durch den adiabatischen Potentialberg gegeben, der jedoch nur einen geringen Beitrag der Dissoziation ausmacht und für die Deutung des Prozesses keine große Rolle spielt. Zavriyev *et al.* nannten diesen Prozess *bond softening*.

Die Kreuzungen höherer Ordnung, zum Beispiel zwischen $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$, bilden ebenfalls Öffnungen, die jedoch aufgrund der größeren Anzahl involvierter Photonen kleiner sind, d.h., daß zwischen den Zuständen eine schwächere Kopplung besteht. Dissoziiert das Molekül dennoch über eine solche Kreuzung, ist die freigesetzte kinetische Energie um die Zahl der zusätzlichen Photonen erhöht. Es wird klar, daß auf diese Weise verschiedene Dissoziationsenergien erzeugt werden

⁴eine holprige Übersetzung wäre etwa: *photonengekoppelte Zustände*

⁵adiabatisch ist hier nicht zu verwechseln mit dem aus der Thermodynamik bekannten Begriff

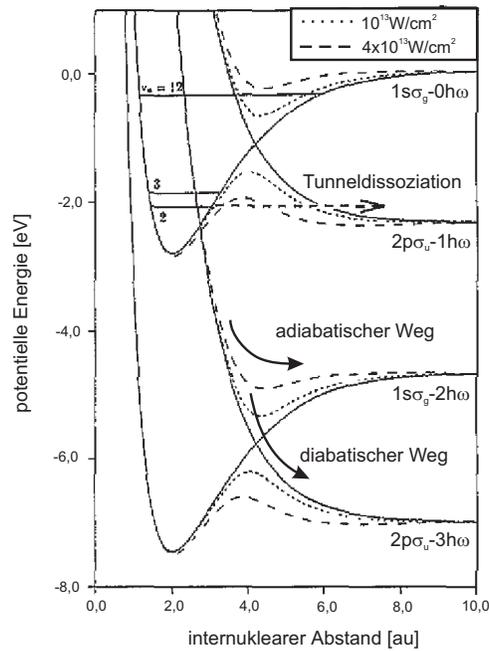


Abb. 2.7. *Dressed States* der $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ Potentialkurven von H_2^+ in 532nm Licht. Entnommen aus [38]

können. Deshalb macht es Sinn sich dem Problem systematisch zu nähern. Wir sprechen hier über die Dissoziation des H_2^+ Moleküls, d.h. es entsteht immer auch ein Proton, welches im Experiment nachgewiesen wird. Dieses Proton trägt ungefähr die halbe kinetische Energie der Dissoziation. Beim Übergang $1s\sigma_g(v) \rightarrow 2p\sigma_u - 1\hbar\omega$ (Weg 1) in Abb. 2.8) erhält das Proton die Energie

$$E_{Weg1} = (E_v + \hbar\omega - E_\infty)/2 \quad ,$$

wobei E_v die Energie im v -ten Schwingungszustands des Grundzustands $1s\sigma_g$ und E_∞ die Dissoziationsenergie des Grundzustands bedeuten. Für die direkte Dissoziation durch oben beschriebene 3γ Kreuzung bekommt das Proton die Energie

$$E_{Weg3} = (E_v + 3\hbar\omega - E_\infty)/2 = E_{Weg1} + \hbar\omega$$

vermittelt (Weg 3). In einer weiteren Möglichkeit kann das Molekül nach anfänglicher Dissoziation durch die 3γ -Kreuzung in einem weiteren adiabatischen Übergang $2p\sigma_u - 3\hbar\omega \rightarrow 1p\sigma_g - 2\hbar\omega$ auf den 2-Photonen gekoppelten Grundzustand springen und von dort mit der Energie $1/2\hbar\omega$ dissoziieren (Weg 2). Anschaulich entspricht dieser Prozess der Dissoziation durch Absorption dreier Photonen mit anschließender Reemission eines Photons.

Es sollte also im Energiespektrum der Protonen eine Anzahl von Peaks im Abstand $1/2\hbar\omega$ zu beobachten sein. Die Beobachtungen von Zavriyev *et al.* sind seitdem experimentell mehrfach bestätigt worden [89, 94, 95, 66, 90]. Weitere theoretische Arbeiten [37, 46, 57] sorgten für die allgemein anerkannte Interpretation des Prozesses. In Analogie zur *above threshold ionisation* in Atomen (siehe Abs. 2.1.1) wurde für diesen Mechanismus der Begriff *above threshold dissociation* (ATD) geprägt.

2.2.2 Lichtinduzierte Stabilisierung

Bleibt man in dem Bild der *dressed states*, liegt die Vermutung nicht fern, daß in adiabatischen Potentialmulden möglicherweise Populationen stabilisiert werden

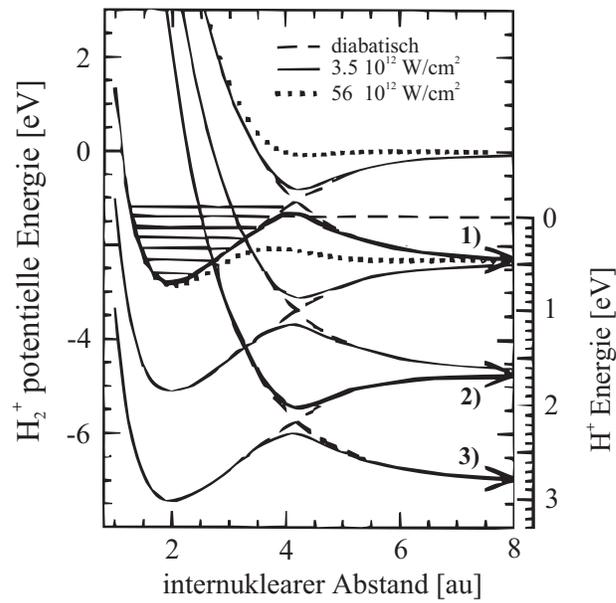


Abb. 2.8. Floquetrechnungen von H_2^+ in 532nm Licht. Es sind nur die beiden niedrigsten Potentialkurven berücksichtigt. Auf der rechten Seite ist die kinetische Energie der Dissoziationsfragmente aufgetragen. Das Molekül kann auf verschiedenen Wegen dissoziieren, die sich in der freigesetzten kinetischen Energie um $1/2\hbar\omega$ unterscheiden. Entnommen aus [101].

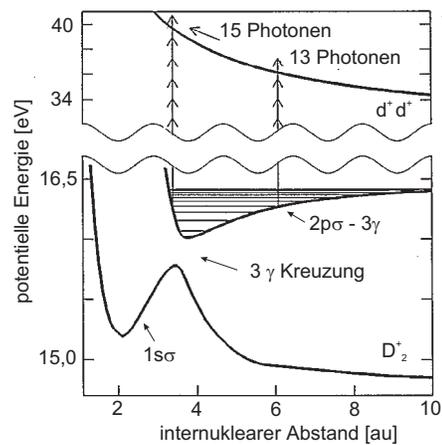


Abb. 2.9. Lichtinduzierte Stabilisierung des D_2^+ Ions im $I = 9 \cdot 10^{13}\text{W/cm}^2$, $\lambda = 769\text{nm}$ Laserfeld. Adiabatische Passage höher angeregter Schwingungszustände ermöglicht den Wechsel ins deformierte $2p\sigma_u$ Potential, in dessen Potentialmulde das Molekül gefangen ist. Entnommen aus [102].

können [37]. Nimmt man zum Beispiel den schon oben diskutierten Übergang $1s\sigma_g \rightarrow 2p\sigma_u - 1\hbar\omega$, so bildet die obere adiabatische Potentialkurve eine Potentialmulde, die tief genug ist, ein bis zwei Schwingungsniveaus zu halten (Abb. 2.9).

In einer Untersuchung an H_2^+ kamen Zavriyev *et al.* 1993 [102] zu der Auffassung, eine solche Stabilisierung beobachtet zu haben. Die Energiespektren enthielten Protonen mit Energien bis zu $5eV$. Zavriyev *et al.* argumentierten, daß Elektronen in Schwingungszuständen über der 3γ Kreuzung in einem adiabatischen Übergang in das $2p\sigma_u - 3\hbar\omega$ Potential wechseln und dort in der adiabatischen Potentialmulde stabilisiert werden. Von dort aus sollte das Elektron, so die Argumentation, mittels MPI ionisiert werden, mit dem Resultat, daß sich plötzlich zwei nackte Protonen in einer Entfernung von ca. $3a_0$ gegenüberstehen und in der folgenden Coulombexplosion eine hohe kinetische Energie erhalten.

Im Prinzip wurde dieses Modell durch anschließende theoretische Arbeiten mittels direkter numerischer Integration der eindimensionalen Schrödingergleichung [4] bestätigt. Aubanel *et al.* [3] brachten jedoch gegen die Stabilisierung an der 3γ Kreuzung den Einwand hervor, daß eine durch die hohen Intensitäten hervorgerufene starke Rotationsanregung die Stabilisierung sofort zerstören würde. Somit wäre nur eine Stabilisierung in der Potentialmulde an der 1γ Kreuzung möglich.

Nachfolgende experimentelle Arbeiten verfehlten es jedoch, weitere Beweise für die lichtinduzierte Stabilisierung zu geben. Stattdessen wurden die experimentellen Befunde anhand anderer Mechanismen, insbesondere der dissoziativen Ionisation, erklärt [43, 94].

Erst neuere Untersuchungen weisen wieder in Richtung lichtinduzierter Stabilisierung [88, 32, 79].

2.2.3 Dissoziative Ionisation

Zu Beginn der Hochfeld-Untersuchungen an Molekülen wurde das Fehlen eines wichtigen Prozesses festgestellt, der von den Atomen her bekannt war: die Multiphotonmehrfachionisation (MPMI). Die auf solche Weise gebildeten Ionen sollten kinetische Energien aufweisen, die der Coulombexplosion vom Gleichgewichtsabstand des neutralen Moleküls entsprachen. Solche Energien konnten jedoch nicht beobachtet werden, was damit begründet wurde, daß die zur Doppelionisation benötigte Photonenzahl zu groß sei, so daß die Dissoziation der dominierende Mechanismus sei.

Anfang der Neunziger mehrten sich die Hinweise auf einen Ionisationsmechanismus, der erst bei größeren internuklearen Abständen, als dem Gleichgewichtsabstand zum Tragen kommt [18, 86, 23, 102, 47]⁶. Man beobachtete am Beispiel des Wasserstoffs eine energetisch breite Verteilung von Protonen, die einer Ionisation des molekularen Ions über eine Reihe internuklearer Abstände entsprach. Erklärungsansätze für dieses Phänomen teilten sich auf in zwei Lager: Auf der einen Seite wurde eine lichtinduzierte Stabilisierung in diesem Abstand vermutet, die das molekulare Ion vor weiterer Dissoziation bewahren und bis zur Multiphotonionisation stabilisieren sollte [102, 81, 62]. Auf der anderen Seite wurde mit dem auf Moleküle erweiterten Tunnelionisationsmodell argumentiert, daß bei einem bestimmten internuklearen Abstand die Ionisationswahrscheinlichkeit erhöht ist. Das dissoziierende Molekül würde demzufolge beim Passieren dieser Region tunnelionisiert [13]. Quantenmechanische Rechnungen unter Verwendung des exakten Dreiteilchen Hamiltonoperators für H_2^+ [14] wiesen auf die Existenz der lichtinduzierten adiabatischen Potentialmulden hin, machten aber gleichzeitig die Einschränkung, daß Vibrationszustände, die in solchen Potentialen stabilisiert werden könnten, gleich-

⁶Eine Review der Arbeiten zur dissoziativen Ionisation bis 1993, sowie der Technik des Kovarianz - Mappings findet sich in [47].

zeitig eine hohe Ionisationswahrscheinlichkeit aus dem Grundzustand hätten und folglich höhere kinetische Energien besäßen.

Weitere Rechnungen [82, 103, 57, 91, 24] ergaben schließlich, daß die Tunnelionisationswahrscheinlichkeit in einem bestimmten Bereich internuklearer Abstände außerordentlich erhöht ist, dadurch das Tunnelionisationsmodell unterstützend. Im besonderen ist hierbei die Arbeit von Zuo und Bandrauk [103] zu nennen, welche die erste numerische Lösung der dreidimensionalen, zeitabhängigen Schrödingergleichung des H_2^+ Moleküls in kurzen, intensiven Laserpulsen zum Inhalt hatte. Zuo und Bandrauk prägten in dieser Arbeit den Begriff *charge resonance enhanced ionization* (CREI) für den Mechanismus der dissoziativen Ionisation. Ladungsresonant (*charge resonant*) werden Paare von Zuständen genannt, bei denen für große internukleare Abstände die Ladungsverteilung zwischen beiden Zuständen und die Zustandsenergien praktisch gleich sind. In anderen Worten sind ladungsresonante Zustände für große internukleare Abstände degeneriert. Aus dieser Definition ergibt sich, daß die beiden tiefsten Zustände des H_2^+ Moleküls, nämlich $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$, ein solches Paar ladungsresonanter Zustände bilden [103]. An die Vorhersagen anschließende experimentelle Untersuchungen [35, 44, 94, 66] bestätigten im wesentlichen das Modell der dissoziativen Ionisation.

Im Tunnelionisationsmodell kann die Erhöhung der Ionisationswahrscheinlichkeit bei großen Abständen überzeugend erläutert werden. Abb. 2.10a) zeigt den eindimensionalen Potentialverlauf des Wasserstoffmolekülions H_2^+ in verschiedenen internuklearen Abständen. Bei geringen Abständen kann sich das elektronische Wellenpaket ungehindert zwischen beiden Protonen ausbreiten. Mit zunehmendem Abstand erhöht sich die internukleare Potentialschwelle, bis das Elektron nur noch durch Tunneln das andere Proton erreichen kann. In Abb. 2.10b) ist demgegenüber ein konstantes elektrisches Feld überlagert. Im Gleichgewichtsabstand ist die Situation mit der atomaren vergleichbar (siehe Abs. 2.1.2). Das Elektron kann mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit durch die äußere Barriere tunneln und ionisieren. Mit bei der Dissoziation zunehmenden internuklearen Abstand wird das Elektron an einem Proton lokalisiert. Gleichzeitig sind die elektronischen Zustände zueinander verschoben, sodaß Tunneln durch die innermolekulare Barriere unterbunden wird. Andernfalls würde sich die gesamte Population in der unteren Potentialmulde sammeln. Generell gilt für jedes Paar ladungsresonanter Zustände, daß die Degeneration der Zustände aufgehoben wird und einer der Zustände im Feld E nach oben, der andere nach unten verschoben ist. Bei großen internuklearen Abständen r entspricht diese Verschiebung $Er/2$ [103]. Gesichert wird dies durch den schnellen, nichtadiabatischen Anstieg der Intensität in Femtosekundenpulsen. Befindet sich das Elektron nun im unteren Potentialtopf entspricht sein Ionisationsverhalten ungefähr dem von atomarem Wasserstoff. Ist es jedoch am oberen Potentialtopf lokalisiert, braucht es nur durch die innere Barriere zu tunneln, um zu ionisieren. Das wird dadurch begünstigt, daß an der inneren Barriere neben dem externen Feld auch das untere Proton "zieht". In der Tat ist es möglich, daß die innere Barriere unter die Ionisationsschwelle des oberen Elektrons gezogen werden kann, somit eine praktisch ungehinderte Ionisation ermöglichend.

Bei Gibson *et al.* [34] findet sich ein numerisches Verfahren, um Tunnelionisation aus beliebigen eindimensionalen Potentialtöpfen zu berechnen. Vor kurzem wurde erstmalig das neutrale Wasserstoffmolekül H_2 auf dissoziative Ionisation hin untersucht [75]. Saenz fand, daß auch in H_2 eine Dissoziation mit anschließender verstärkter Ionisation bei bestimmten großen internuklearen Abständen ($\sim 6au$) möglich ist. Jedoch ist die experimentelle Beobachtbarkeit stark eingeschränkt, da die direkte MPI bekanntermaßen dominiert. In neueren experimentellen Arbeiten von Williams *et al.* [99] und Sändig *et al.* [79] mit in Ionenquellen erzeugtem H_2^+ wurden starke Abweichungen in den Energiespektren der Protonen von den Experimenten an H_2 beobachtet, was auf eine bislang unbekannt Rolle des neutralen

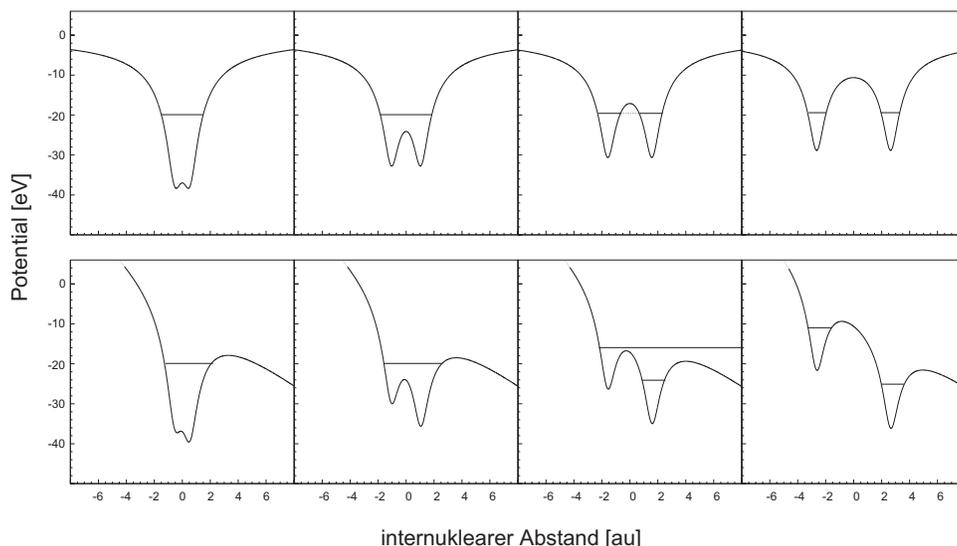


Abb. 2.10. Darstellung des 1D Potentials von H_2^+ bei verschiedenen internuklearen Abständen. In der unteren Reihe ist ein konstantes E-Feld überlagert, daß einer Intensität von $10^{14} W/cm^2$ entspricht. Weitere Erläuterungen siehe Text.

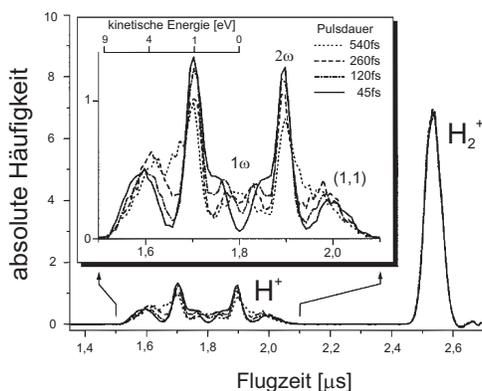


Abb. 2.11. Typische Flugzeitspektren von H_2 bei einer Intensität von ungefähr $1,5 \cdot 10^{14} W/cm^2$ und verschiedenen Pulslängen. 1ω bezeichnet die Dissoziation durch die 1γ Kreuzung. Der Peak bei 2ω entspricht der Dissoziation durch die 3γ Kreuzung mit anschließender Emission eines Photons. Der äußerste Peak (1,1) stammt von der dissoziativen Ionisation (CREI). Entnommen aus [32].

Moleküls in der laserinduzierten Fragmentierung weist.

2.2.4 Orientierungseffekte

Bis Ende der Neunziger wurde in experimentellen Studien im wesentlichen Flugzeitspektroskopie, mangels anderer Techniken, eingesetzt. Das heißt, es wurde nur eine Impulskomponente beobachtet und zwar praktisch ausschließlich entlang der Laserpolarisation. Daß trotz dieses beschränkten Ausschnittes solch detailreiche und aussagekräftige Spektren wie in Abb. 2.11 gewonnen wurden, liegt in der Anisotropie der Laser-Molekülwechselwirkung begründet. Man kann sich leicht überlegen, daß eine unabhängig von der Laserpolarisation in alle Raumrichtungen gleichmäßige

Dissoziation im Flugzeitspektrum keinen deutlichen Peak, sondern eine breite Verteilung produzieren würde. Deshalb ist die Ursache der Ausrichtung der Fragmente entlang der Polarisationsachse von höchstem Interesse.

Bis heute ist es nicht abschließend geklärt, ob die Dissoziation nur solche Moleküle betrifft, die ohnehin schon ausgerichtet sind, oder ob die Moleküle im Verlauf der Dissoziation aktiv gedreht werden [33, 11]. In letzterem Fall kann es nur eine vom Laserfeld auf das Molekül ausgeübte Kraft geben, wenn das Molekül ein Dipolmoment besitzt. Offenbar muß hier eine von Fall zu Fall verschiedene Beurteilung vorgenommen werden. Das neutrale Wasserstoffmolekül besitzt kein Dipolmoment und kann in diesem Bild somit kein Drehmoment durch das Laserfeld erfahren. Das Iodmolekül I_2 besitzt zwar aufgrund seiner großen Elektronenhülle ein ausgeprägtes Dipolmoment, jedoch ist aufgrund der relativ großen Masse das Trägheitsmoment recht groß, was wiederum die aktive Ausrichtung des Moleküls in kurzen Pulsen unwahrscheinlich macht [67, 11]. Im Chlor Cl_2 mit einem deutlich geringeren Trägheitsmoment ($\theta_{Cl_2} \approx 30\% \theta_{I_2}$) dagegen ist eine aktive Orientierung beobachtet worden [11].

Aber auch das Wasserstoffmolekülion H_2^+ besitzt ein induziertes Dipolmoment. Dabei hängt die Erzeugung des Dipolmomentes eng mit der lichtinduzierten Dissoziation zusammen. Im Tunnelbild betrachtet folgt das Elektron adiabatisch den Schwingungen des externen Laserfeldes $E(t) = E_0 \cos \omega t$, um dabei je nach Phase des Laserfeldes mehr bei dem einen oder anderen Proton zu verweilen. Gemittelt über die Laserperiode ergibt sich so eine Kraft, die das Molekül auseinander zieht. Gleichzeitig wird durch die "Lokalisierung" je nach Laserphase ein Dipolmoment $\mu(r) = er/2$ erzeugt, daß mit zunehmendem internuklearen Abstand r anwächst [24]. Das Laserfeld übt auf diesen Dipol ein Drehmoment $\mu \times E(t)$ aus, welches eine Orientierung des Moleküls bewirkt. Ab einem gewissen internuklearen Abstand bleibt allerdings, wie wir zuvor gesehen haben, das Elektron aufgrund der ansteigenden innermolekularen Barriere bei einem Proton lokalisiert. Ab diesem Zeitpunkt mittelt sich das Drehmoment auf die Molekülachse wieder zu Null. Befindet sich das H_2^+ zum Zeitpunkt der Entstehung im Laserfeld in beliebiger Orientierung, wird das Dipolmoment der Projektion des internuklearen Abstandes auf die Polarisationsachse entsprechend geringer sein, als bei paralleler Ausrichtung.

Wie man sieht, benötigt das oben angeführte Modell der Dissoziation keine aktive Ausrichtung der Molekülachse, was nicht heißt, daß dieser Prozess nicht stattfindet, bzw. unbeobachtbar ist. Insbesondere sind die möglichen Anwendungen einer laserinduzierten Ausrichtung von Interesse. So sind Möglichkeiten wie Rotationskühlung [54], räumliches Einfangen polarisierbarer Moleküle [33] bis hin zu dem Vorschlag einer optischen Zentrifuge [48], auf der Basis zirkular polarisierten Lichts, angedacht worden. Numico *et al.* sagten in einer Arbeit von 1999 Fragmente in der Ebene senkrecht zur Polarisation voraus [59]. Bis heute wurde meines Wissens noch kein Experiment zur Überprüfung dieser Vorhersage durchgeführt. Gerade auf diesem Gebiet gibt es sicherlich noch eine Menge aufregender Dinge zu lernen.

Bislang sind noch keine schlüssigen Beweise auf einen Ionisationsmechanismus gefunden worden, welcher dem von der Laser-Atomphysik bekannten *Recollision* Prozess entspräche. In jüngerer Zeit gab es jedoch vereinzelt Hinweise auf die mögliche Existenz molekularer *Recollisions* [26]. In der vorliegenden Arbeit wird die Vermutung aufgestellt, bei einem der beobachteten Prozesse handele es sich um *Recollision*.

Kapitel 3

Das Experiment

Let's push on with this experiment!

C. Lewis Cocke

Im folgenden sollen die einzelnen Komponenten des Experiments vorgestellt und deren Funktionsweise skizziert werden. Das Experiment, als eines der ersten, welches die COLTRIMS Methode auf die Probleme der Laser-Atomphysik anwendete, stieß in beiden Gebieten auf Neuland vor. Die COLTRIMS Methode war zur Untersuchung von Stoßprozessen in der klassischen Atomphysik, sprich der Stoßphysik im sub MeV Bereich entwickelt worden. Für diese Experimente genügten Vakua im $10^{-8}mBar$ Bereich. In diesem Experiment jedoch war mit einem Mal ein 100fach besseres Vakuum nötig! Das stellte höhere Anforderungen an die Pumpleistung, aber auch an die gesamte Apparatur: Kunststoffdichtungen mußten durch Kupferdichtungen ersetzt werden, das gesamte Innenleben der Apparatur mußte a) am besten keinen Kunststoff enthalten, b) äußerst sauber sein und c) temperaturbeständig bis deutlich über $100^{\circ}C$ sein. Im Gegenzug führten wir eine Multihit-Koinzidenz Messung in die Laser-Atomphysik ein, die es ermöglichen sollte, in zuvor nicht dagewesener Weise die Wechselwirkung starker elektromagnetischer Felder mit Atomen zu untersuchen.

3.1 Das Vakuumsystem

Eine Skizze des Vakuumsystems kann in Abb. 3.1 gefunden werden. Die verwendete Kammer muß, wie oben angedeutet, ultrahochvakuum(UHV)-tauglich sein ($p < 10^{-8}mbar$). Der Grund dafür liegt in der enormen Intensität des fokussierten Laserlichtes, sodaß die im Fokus herrschenden elektromagnetischen Felder die Ionisationswahrscheinlichkeit bis nahe eins treiben. Im Idealfall sollte das Vakuum solchermaßen sein, daß sich im zeitlichen Mittel gerade ein einziges Molekül im Volumen des Laserfokus befindet und dieses Molekül mit hoher Wahrscheinlichkeit dem Targetgas entstammt. Um dieser Anforderung gerecht zu werden, wurden, neben einem Pumpsystem mit entsprechender Pumpleistung, folgende ins Detail gehende Maßnahmen ergriffen. Die üblichen Viton-Dichtungsringe wurden durch Kupferdichtungen ersetzt. Es wurde große Sorgfalt auf äußerste Sauberkeit in der Kammer verwendet. Dazu wurde die Kammer sowie alle inneren Komponenten im Ultraschallbad gereinigt und anschließend mit Ethanol gewaschen. Auf diese Weise sollte verhindert werden, daß Verunreinigungen wie Fingerabdrücke oder Maschinenöl bei dem angestrebten niedrigen Druck verdampfen. Kunststoffteile wurden durch Keramikausführungen ersetzt, Kabel mit üblicher Plastikisolierung gegen solche mit UHV kompatibler *Kapton*-Isolierung ausgetauscht. Das geschah auch hier

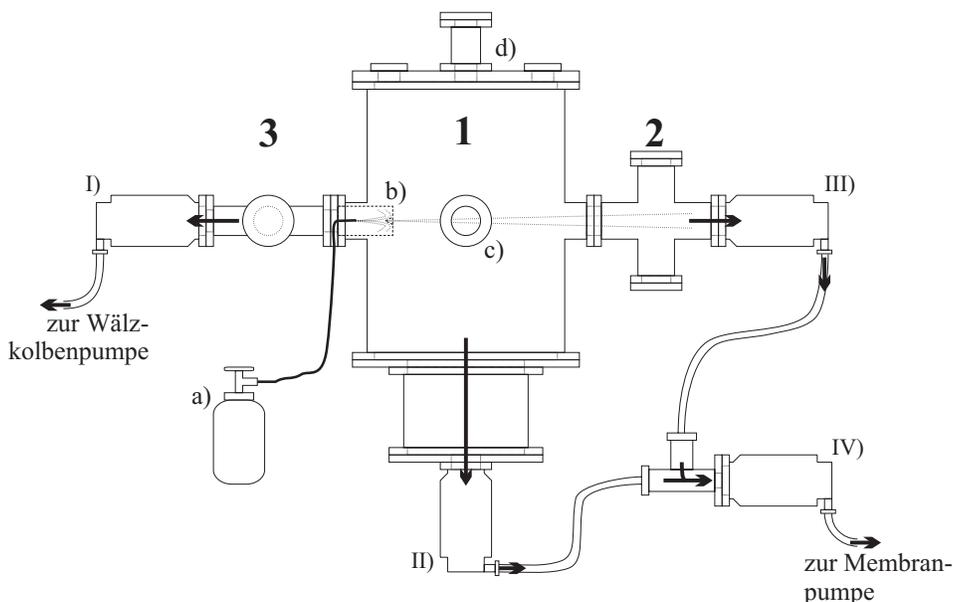


Abb. 3.1. Schematischer Aufbau des Vakuumsystems: 1 - Hauptkammer, 2 - Jetdump, 3 - Jetbereich, a) Druckflasche, b) Jetdüse mit Gasjet, c) Sichtfenster auf Interaktionszone, d) Kammerdeckel mit Kabeldurchführungen, I)-IV) Turbomolekularpumpen. Der Jetbereich und die Hauptkammer sind miteinander über einen nicht eingezeichneten, verschließbaren Belüftungsbypass verbunden.

mit dem Hintergedanken, daß das im Kunststoff enthaltene Lösungsmittel und Wasser später sonst einen störenden Einfluß auf das Vakuum ausüben könnte. Hinzukam natürlich die Hitzebeständigkeit, die zum Beispiel bei Nylonschrauben nicht gegeben ist. Die Kammer sollte nach Verschließen und dem Beginn des Pumpens erhitzt werden, um das an allen Oberflächen adsorbierte Wasser zu lösen und damit ein schnelleres Auspumpen zu ermöglichen. Deshalb spricht man bei diesem Vorgang vom Ausheizen. Die Ausheiztemperatur betrug in allen Fällen ca. 110°C . Dies ist vergleichsweise niedrig, ist es doch nicht unüblich bis 250°C zu heizen. Da wir jedoch beim Aufbau des Spektrometers nicht auf Lötzinn verzichten konnten und die Detektoren sehr delikat sind, mußte die niedrigere Temperatur genügen. Wie sich herausstellen sollte, war schon diese Temperatur für die Delayline-Detektoren eine extreme Belastung, die einen Detektor unbrauchbar machte. Die Ausheizdauer betrug am Ende des Experiments aus Zeitgründen nur noch zwölf Stunden, wobei wir wahrscheinlich das thermische Gleichgewicht in dieser Zeit erreichten, denn es war kein merklicher Unterschied im Enddruck zu vorrausgegangenen 24h Ausheizperioden zu bemerken. Das mit diesem System erreichte Vakuum betrug $4 \cdot 10^{-10} \text{ mBar}$.

3.2 Das Target

Der Gegenstand der vorliegenden Untersuchung war molekulares Deuterium D_2 . Die Wahl fiel auf Deuterium, da die entstehenden Deuteronen im Flugzeitspektrum von den Protonen der Restgase wie Wasser und Öl separiert sind. Im Laufe des Versuches wurden Messungen, sowohl an dem gebündelten Gasstrahl, als auch am diffusen Gastarget, vorgenommen. Letzteres wurde durch Flutung der Kammer mit Deuteriumgas um zwei Größenordnungen über den Minimaldruck von $1 \cdot 10^{-9} \text{ mBar}$ bewerkstelligt. Der Gasstrahl aus dem in Abb. 3.1 eingezeichneten Jetsystem war

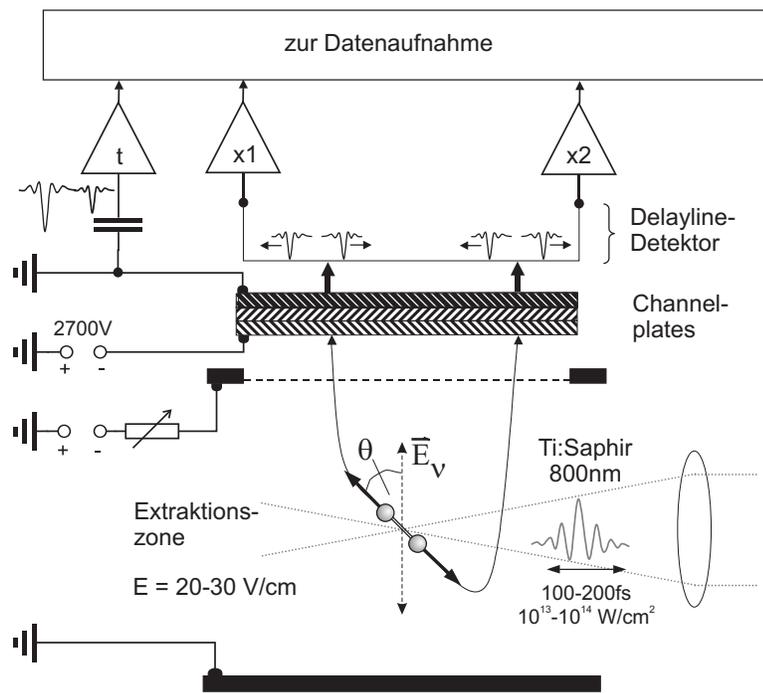


Abb. 3.2. Das Messprinzip - schematisch

mangels Vorkühlung des Gases kein Überschalljet, besaß jedoch im Fokus eine ungefähr 1.000fach größere Dichte als das Restgas und die durch adiabatische Expansion erzielte Kühlung bewirkte gegenüber dem diffusen Target eine um den Faktor 2 bessere Auflösung in den Impulsen.

3.3 Das Spektrometer

Das Spektrometer dient dem Zweck, die drei Impulskomponenten von Ionen, die im Laserfokus entstehen, festzustellen. Das Design ist darauf ausgerichtet, bei vorgegebener maximaler kinetischer Energie die vorhandene Detektorfläche bestmöglich auszunutzen. Sollten sowohl Ionen als auch Elektronen gemessen werden, bestimmt dies als weiteres Optimierungskriterium das Design des Spektrometers wesentlich. In unserem Fall verwendeten wir ein Spektrometer ohne Driftstrecke, mithin lag also die gesamte Flugstrecke eines Ions im felderfüllten Raum. Die Bedeutung der Driftstrecke liegt darin, die Impulskomponenten entlang des elektrischen Feldes zu fokussieren. Dadurch kann eine Verbesserung der Energieauflösung im Bereich $< 1\text{eV}$ erreicht werden. Da bei einer Coulombexplosion die zu erwartenden Energien deutlich über 1eV liegen und damit die Impulse der Fragmente entsprechend groß sind, ist eine Driftstrecke nicht notwendig. Ein maßstabsgetreues Schema des Spektrometers ist in Abb. 3.3 dargestellt.

Ursprünglich war geplant, sowohl die Deuteronen, als auch die Elektronen zu messen. Zu diesem Zweck waren an beiden Seiten des Spektrometers Detektoren verschiedener Größe angebracht. Die unterschiedliche Größe der Detektoren ergab sich einzig aus der Verfügbarkeit derselben. Das Design des Spektrometers betrifft nun die Aufteilung der Flugstrecke und die Extraktionsfeldstärke. Dazu ist es angebracht sich die Zwangsbedingungen hinzuschreiben

1. (max. auszunutzende) Detektorradien: $2,5\text{cm}$ und 4cm

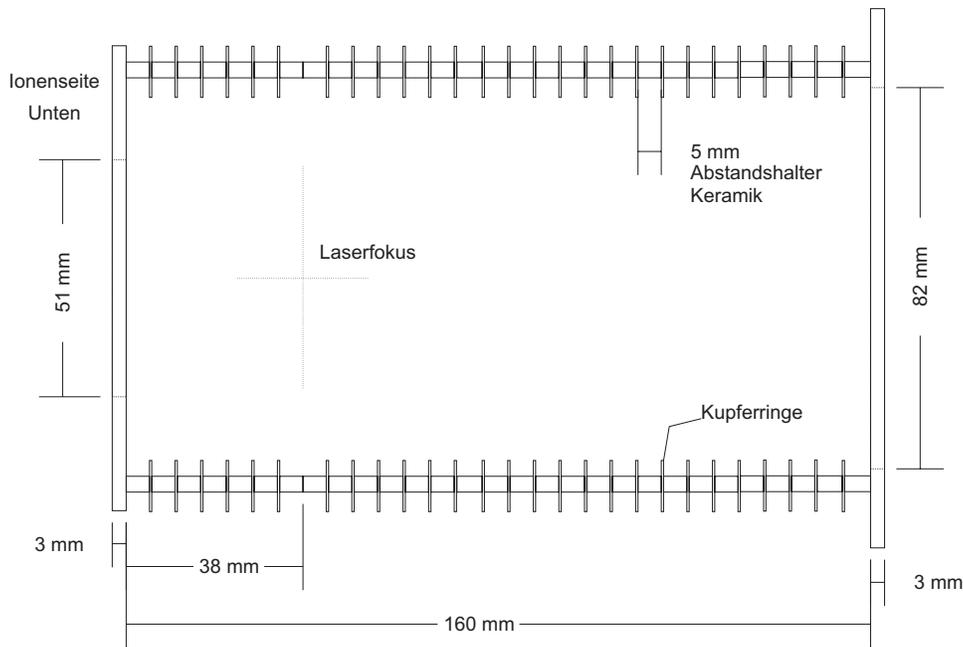


Abb. 3.3. Das Spektrometer - Schnitt. Die Detektorflächen sind auf beiden Seiten des Spektrometers geringfügig größer als die Öffnung in den Endplatten. Um Linseneffekte des Extraktionsfeldes zu verringern, ist das Spektrometer auf beiden Seiten durch engmaschige Metallgitter abgeschlossen.

2. Maximal abzubildende kinetische Energie der Fragmente: Deuteronen $8eV$, Elektronen $10eV$
3. Gesamtlänge des Spektrometers: $\sim 15cm$
4. Flugzeitseparation von Deuteronen und Protonen des Restgases

Schließlich sollte es möglich sein, bei Ausfall eines Detektors die vorhandene Geometrie mittels eines geeignet zu wählenden Extraktionsfeldes so zu nutzen, daß die Zwangsbedingungen 1.-4. wieder erfüllt sind. Die Geometrie des Problems ist in Abb. 3.5 skizziert. Es ist nun zunächst die Frage zu beantworten, was die maximale Auslenkung senkrecht zur Spektrometerachse in Abhängigkeit von den drei Parametern (Feldstärke, kinetische Energie, Entfernung vom Detektor) ist.

Außer von den drei genannten Größen hängt die Auslenkung des Fragments von dem Polarwinkel θ ab, unter dem das Fragment in Bezug auf die Spektrometerachse emittiert worden ist. Die einfache Bewegungsgleichung des schrägen Wurfs lautet

$$r(t) = -\frac{a}{2}t^2 + v_0 \cos \theta t + l_0 \quad .$$

Man kann diese Gleichung nach der Flugzeit auflösen und die resultierende quadratische Gleichung lösen, um die Flugzeit in Abhängigkeit vom Emissionswinkel θ auszudrücken

$$t(\theta) = \frac{v_0 \cos \theta + \sqrt{(v_0 \cos \theta)^2 + 2a l_0}}{a} \quad .$$

Mit diesem Ergebnis kann die Entfernung des Teilchens von der Spektrometerachse berechnet werden

$$\begin{aligned} r(\theta) &= v_0 \cdot \sin \theta \cdot t(\theta) \\ &= \frac{v_0^2}{a} \sin \theta \cos \theta + \frac{v_0 \sin \theta}{a} \cdot \sqrt{(v_0 \cos \theta)^2 + 2a l_0} \quad , \end{aligned} \quad (3.1)$$

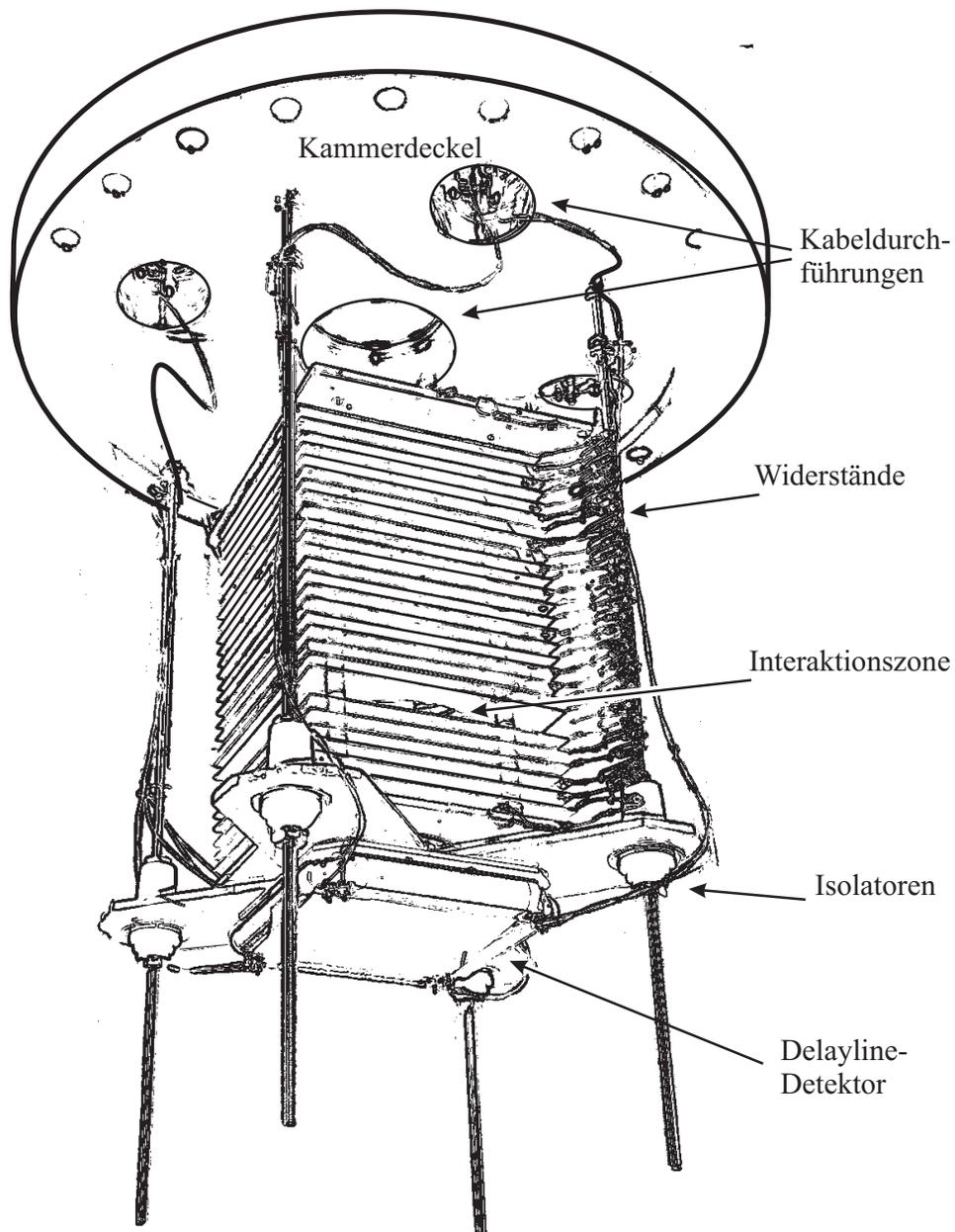


Abb. 3.4. Das Spektrometer mit Detektor hängend an den Deckel der Vakuumkammer montiert.

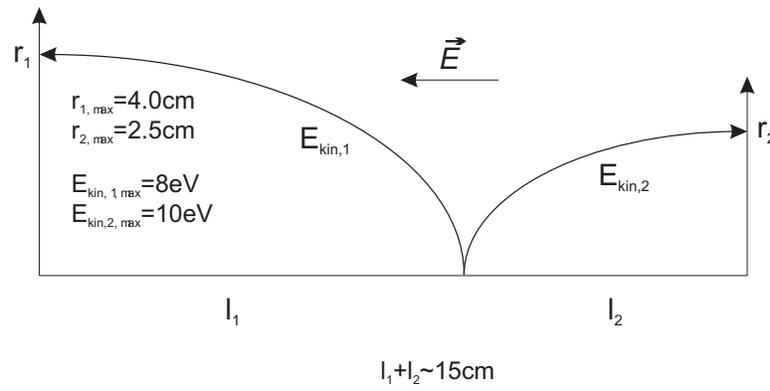


Abb. 3.5. Skizze zur Veranschaulichung der Randbedingungen denen das Spektrometer genügen mußte.

mit

$$a = \frac{e}{m} E v_0 = \sqrt{\frac{2E_{kin}}{m}} .$$

Die maximale Auslenkung des Teilchens kann nun durch Ableitung dieser Gleichung und Nullsetzen gewonnen werden.

$$\frac{dr(\theta)}{d\theta} = \frac{v_0^2}{a} (1 - 2 \sin^2 \theta) + \frac{v_0}{a} \cos \theta \sqrt{(v_0 \cos \theta)^2 + 2a l_0} - \frac{v_0^2}{a} \frac{\sin^2 \theta \cos \theta}{\sqrt{(v_0 \cos \theta)^2 + 2a l_0}} = 0 \quad (3.2)$$

Das Lösen dieser Gleichung gestaltet sich zumindest sehr schwierig, so daß die Gleichung 3.1 iterativ mittels eines Computerprogramms gelöst wurde.

Es muß (unter den Bedingungen 1 und 2) eine Feldstärke für das Extraktionsfeld gefunden werden, so daß die Summe der Extraktionsstrecken $l_1 + l_2$ ungefähr die vorgegebenen 15cm ergibt. Das Ergebnis dieser Überlegungen schlägt sich im Design des Spektrometers, wie in Abb. 3.3 dargestellt, nieder.

3.4 Der Detektor

Das verwendete Detektorsystem sollte es ermöglichen, sowohl die Ankunftszeit als auch den Auftreffort zu messen. Um das zu bewerkstelligen, ist der Detektor aus zwei Komponenten zusammengesetzt. Das Multichannelplate mißt die Ankunftszeit des auftreffenden Deuterons und verstärkt dessen Signal für den Delayline-Detektor, welcher dann die Position des Auftreffortes mißt.

3.4.1 Das Multichannelplate

Ein Multichannelplate ist, grob vereinfacht gesprochen, eine dünne Glasplatte von ca. 1mm Dicke, die von ca. 10^5 Kanälen (den *channels*) pro Quadratzentimeter mit dem Durchmesser von 1/40mm [80] unter einem Winkel zur Plattennormalen durchsetzt ist (siehe Abb. 3.6). Die Innenseiten der Kanäle sind mit einem hochohmigen Material beschichtet, daß eine Austrittsarbeit von einigen Elektronenvolt besitzt. Die Oberfläche des Channelplate ist metallisch beschichtet (z.B. einer CrNi Legierung), so daß zwischen Vorder- und Rückseite des Channelplates eine hohe Spannung von ungefähr 900 Volt ($E = 1800\text{V/mm}$) angelegt werden kann. Das Auftreffen von energetischen Ionen oder Elektronen in den Kanälen setzt Elektronen frei, die zur Rückseite des Channelplates hin beschleunigt werden. Die

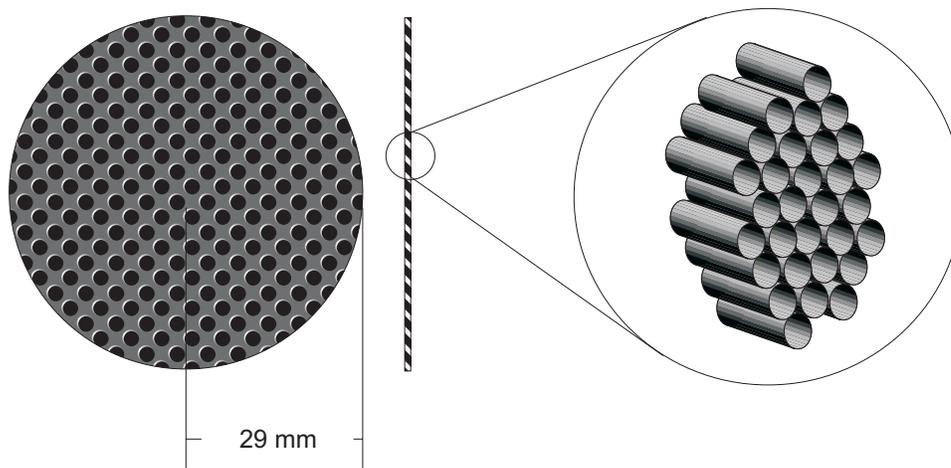


Abb. 3.6. Das Multichannelplate wie im Versuch verwendet. Die Dicke der Scheibe liegt bei ca. 0.5-1mm.

Anschrägung der Kanäle bewirkt nun vielfache Streuungen des Primärelektrons an der Kanalwand, bei denen die im Beschleunigungsfeld erreichte Energie zu einem Teil abgegeben wird und zur Freisetzung weiterer Elektronen führt. Damit wird eine Lawine gestartet, welche für die Verstärkung von $10^5 - 10^7$ verantwortlich ist. Man kann mehrere Channelplates durch einfaches Aufeinanderlegen hintereinanderschalten und so die Verstärkung noch einmal potenzieren. Allerdings ist schon bei der Verwendung von drei Channelplates die Sättigung der Verstärkung erreicht. In unserem Fall haben wir uns einer solchen dreifachen Verstärkung bedient. Bei der Verwendung mehrerer Channelplates sollte darauf geachtet werden, daß sich die Ausrichtung der Kanäle der einzelnen Channelplates kompensiert. Die Ausrichtung der Kanäle kann durch Halten der Channelplates gegen eine helle Lichtquelle festgestellt werden.

Die Effizienz der Verstärkung hängt in erster Linie von dem Anteil der Kanalöffnungen an der Gesamtfläche des Channelplates ab. Sie liegt üblicherweise bei ungefähr 60%. Weiterhin bestimmt die sogenannte Quanteneffizienz, die Effizienz der Auslösung des Primärelektrons im Kanal durch das einfallende Teilchen, die Gesamteffizienz des Channelplates. Die Quanteneffizienz ist eine Funktion der Geschwindigkeit und der Teilchenart [85]. Das unvermeidbare Rauschen eines solchen Verstärkers rührt von der Hintergrundstrahlung und radioaktiven Zerfällen im Material her. Durch die verwendete Koinzidenzmessung ist dies jedoch in der späteren Datenanalyse kein Problem.

Die Elektronenlawine bewirkt, daß die Hochspannung zwischen Vorder- und Rückseite kurzfristig einbricht. Dieses Signal wird kapazitiv ausgekoppelt und gibt also den Zeitpunkt des Auftreffens des Teilchens an. Zwei hintereinander eintreffende Teilchen bewirken dann zwei zeitlich getrennte Einbrüche der Beschleunigungsspannung, die allerdings von der Elektronik nur aufgelöst werden können, wenn sie mindestens 15ns zeitlichen Abstand besitzen.

3.4.2 Der Delayline-Detektor

Der Delayline-Detektor funktioniert nach einem einleuchtenden Prinzip (siehe dazu Abb. 3.7): Ein langer positiv geladener Draht wird an einer beliebigen Stelle zu einem bestimmten Zeitpunkt von einem Elektron getroffen. Dieser lokale Spannungseinbruch breitet sich in beide Richtungen aus und kann an den Drahtenden detektiert werden. Voraussetzung der Auftreffzeitpunkt des Elektrons ist bekannt,

können respektive dazu die Zeitpunkte der Signale an den Drahtenden gemessen werden. Die Summe dieser Zeitsignale ist konstant und unabhängig vom Auftreffort des Elektrons: Sie entspricht gerade der Länge des Drahtes (dividiert durch die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Signale) zuzüglich einem für alle Messungen gleichen Offset. Die Differenz dagegen gibt gerade den absoluten Auftreffort des Elektrons, und zwar von der Mitte des Drahtes gemessen, an. Somit kann also im Prinzip der eindimensionale Auftreffort eines Elektrons bestimmt werden. Wie in Abb. 3.7 zu sehen ist, gibt es bei der technischen Umsetzung des Konzeptes noch einige erwähnenswerte Feinheiten. Um eine Dispersion der Signale zu verringern wird statt einem Draht ein Drähtepaar verwendet, welches eine Lecherleitung bildet. Dabei ist einer der beiden Drähte stärker positiv geladen (Signal) als der andere (Referenz), so daß das einfallende Elektron bevorzugt an einem der Drähte absorbiert wird. Die Signale werden über einen Kondensator von der hohen Gleichspannung abgekoppelt und schließlich wird die Spannungsdifferenz zwischen Signal- und Referenzdraht in einem Differenzverstärker amplifiziert, um für die weitere elektronische Verarbeitung brauchbar zu sein.

Im Prinzip könnte man nun mit Hilfe eines einzigen Doppeldrahtes eine zweidimensionale Position auf einer, sagen wir rechteckigen Fläche, messen. Dazu stelle man sich die Doppelleitung gleichmäßig um eine Seite eines rechteckigen Stücks Keramik gewickelt vor. Der Auftreffort auf dem Drahtpaar, der durch die Zeitdifferenz der Signale an beiden Enden festgelegt wird, ist entlang der Drähte exakt und kontinuierlich bestimmt, und ist entlang der Wicklungsachse (also senkrecht zum Draht) diskretisiert in die Anzahl der Wicklungen pro cm . Mit dem Wissen über die Seitenlänge einer Wicklung und deren Anzahl ließe sich so der Auftreffort bestimmen. In der Praxis nun wird nur die letztere diskrete Ortsmessung verwendet und für die zweite Raumrichtung ein zweiter Doppeldraht senkrecht zum ersten gewickelt, so daß beide Drahtebenen durch einen Abstand von ca. $1mm$ getrennt sind. Da das Channelplate nicht nur ein einzelnes Elektron, sondern gleich eine ganze Elektronenwolke liefert, die sich über mehrere Wicklungen ausdehnt, kann über eine Schwerpunktbildung der Wellenzüge im Differenzverstärker eine Ortsauflösung erreicht werden, die die Auflösung, welche durch den Wicklungsabstand bedingt ist, übertrifft. Der Abstand zwischen den Wicklungen des Doppeldrahtes beträgt ungefähr $1,5mm$, während durch Schwerpunktbildung eine Auflösung von bis zu $0,1mm$ erreicht wird. Weiterhin ist durch die Elektronenwolke gewährleistet, daß beide Drahtebenen das Signal detektieren können. Die Signale werden an den Enden der Doppelleitung jeweils über eine *twisted pair* Leitung aus der Kammer geführt. Weitere Einzelheiten zum Delaylinedetektor und insbesondere dessen Multihitfähigkeit werden in den Arbeiten von Jagutzki und Nüttgens [45, 60] diskutiert.

3.5 zur Signalverarbeitung

Die Signalverarbeitung dient dem wichtigen Ziel, die Zeitsignale der Detektoren in digitale Form zu bringen, so daß sie mit einem Rechner weiterverarbeitet werden können. Diese Aufgabe übernimmt üblicherweise ein TDC (*time to digital converter*). Wir verwendeten einen *multi hit*-fähigen TDC, welcher es ermöglicht, bis zu 16 Treffer pro Laserpuls abzuspeichern. Der TDC verlangt wiederum Eingangssignale normierter Form, sogenannte NIM (*Nuclear Instrumentation Method*) Signale. Der TDC ist in ein CAMAC (*Computer Automated Measurement And Control*) System eingebettet, welches die Daten sammelt und in Paketen direkt an den Rechner übermittelt. Die Umwandlung der Zeitsignale bis zur Ebene des TDC wird im folgenden erläutert (siehe dazu Abb. 3.8).

Das Signal der Photodiode "Powermeter" wird zweifach verstärkt und in einem

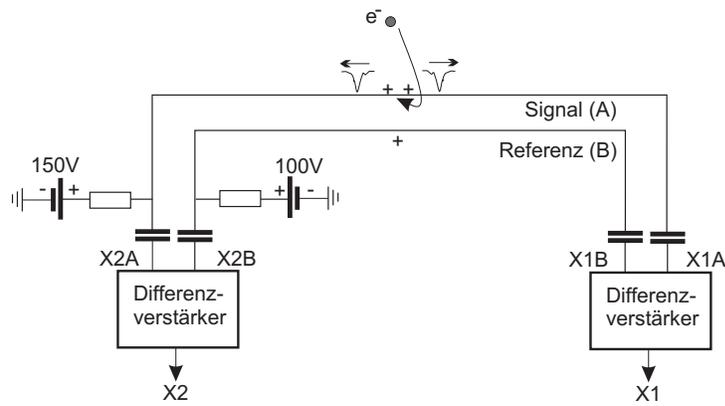


Abb. 3.7. Funktionsprinzip des Delayline-Detektors.

Linear Gate & Stretcher gedehnt, bevor es in einen Eingang des ADC (*Analog to Digital Converter*) gegeben wird. Die Photodiode "Pulsmarker" liefert ebenfalls einen TTL Puls, der zeitlich mit dem Laserpuls in fester Beziehung steht. Ein *Gate & Delay Generator* korreliert mit der ansteigenden Flanke des Inputsignals einen verzögerten NIM Puls (*delayed marker*), so daß die Zeitinformation des Pulsmarkers erhalten bleibt. Das Signal kann nun im TDC weiterverarbeitet werden. Die durch den Laserpuls erzeugten Ionen werden durch das Extraktionsfeld auf den Detektor hin beschleunigt. Der beim Auftreffen eines Ions auf das Channelplate subsequent ausgelöste Spannungsabfall wird kapazitiv ausgekoppelt und differenzvorverstärkt. Da die Verstärkung des Differenzvorverstärkers nicht genügte, wurde noch ein schneller Vorverstärker verwendet, bevor das Signal in einen *Constant Fraction* Diskriminator gegeben wurde. Dieser Diskriminator löst einen NIM Puls aus, wenn ein bestimmter Bruchteil (*constant fraction*) des Eingangssignales erreicht ist. Damit wird unabhängig von der Pulshöhe immer an der selben Stelle des Pulses ein NIM Signal gestartet und somit ist die Zeitinformation des Eingangssignals im NIM Signal enthalten. Ganz ähnlich verläuft die Verarbeitung der Signale des Delayline-Detektors. Die Zeitsignale der vier Drahtenden (siehe 3.7) werden ausgekoppelt und vorverstärkt, bevor sie im *Constant Fraction* Diskriminator in NIM Standard Signale umgewandelt werden. Die Differenz zwischen den Signalen der Photodiode Pulsmarker und dem Channelplate ergibt die Flugzeit der Fragmente, bis auf eine für alle Ereignisse gleiche Konstante. Mittels eines TAC (*Time to Amplitude Converter*) kann diese Differenz elektronisch dargestellt werden. Der TAC wandelt die Zeitdifferenz zwischen dem Eintreffen des Pulsmarker-Pulses und des Channelplate-Pulses in einen Spannungspuls. Der TPHC (*Time to Pulse Height Converter*) Ausgang kann mit einem Vielkanalanalysator (*Multi Channel Analyser*) verbunden werden und das Flugzeitspektrum direkt darstellen. Damit besitzt man ein schnelles Diagnosemittel. Ein *Gate & Delay Generator* erzeugt mit dem Signal des SCA (*Single Channel Analyzer*) Ausgangs ein Gate für den *Strobe* Eingang des ADC. Während der Dauer des *Strobe*-Pulses müssen alle anderen Signale für den ADC eingetroffen sein. Ein verzögertes NIM Signal aus dem *Gate & Delay Generator* schließlich markiert das Ende des Ereignisses und beendet die Datenaufnahme für diesen Laserpuls. Die Verzögerung ist so eingestellt, daß neben den schnellen D^+ - auch die langsamen D_2^+ -Ionen aufgezeichnet werden.

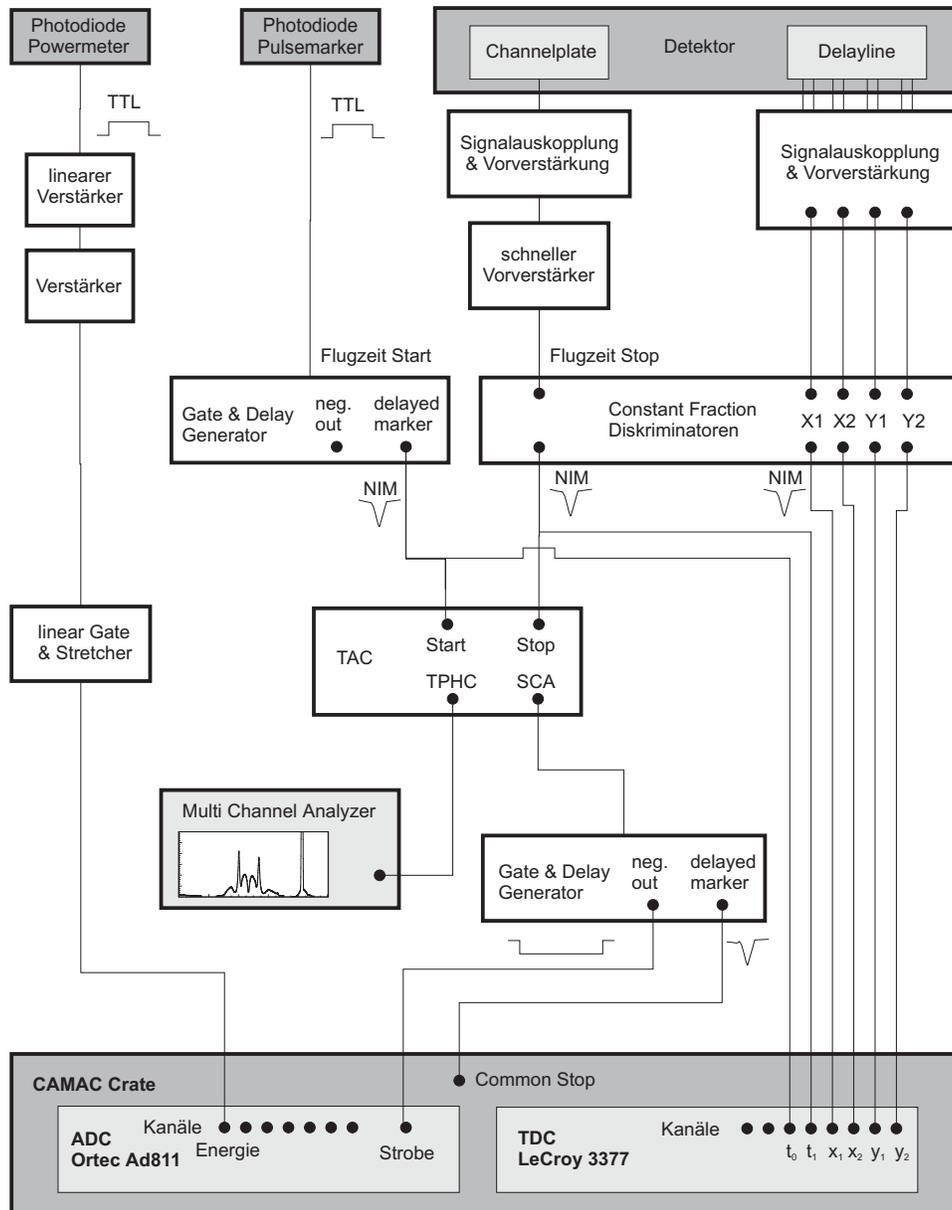


Abb. 3.8. Schaltung der Signalverarbeitung

3.6 Die Optik

Die Strahlführung wird in Abb. 3.9 gezeigt. Die Photodiode Pulsmarker lieferte das Zeitsignal für jeden Laserpuls und war somit die Voraussetzung für die Flugzeitmessung. Von der Photodiode Powermeter wurde die Energie eines jeden Laserpulses mitgeschrieben. Mittels eines einfachen Linsensystems konnte der Laserstrahl um einen Faktor 3 im Durchmesser aufgeweitet werden und lieferte so eine neunfach höhere Intensität im Fokus, wie anhand von Gleichung 3.8 nachvollzogen werden kann. Die letzte Linse vor der Kammer war so montiert, daß sie über Mikrometerschrauben in allen drei Raumrichtungen verschoben werden konnte. Auf diese Weise wurde die Feinjustierung des Laserfokus auf den Gasstrahl bewerkstelligt.

3.7 Der Laser

Eine ausführliche Behandlung des Titan-Saphir-Lasers würde den Rahmen sprengen und ist zudem an anderer Stelle in aller Ausführlichkeit an verschiedenen Stellen nachzulesen [8, 5, 20, 22, 71, 69]. Ich möchte hier nur eine grobe Skizze der Funktionsweise geben, sowie auf einige Aspekte näher eingehen, die für das Experiment von Bedeutung waren.

3.7.1 Das Funktionsprinzip

Die Erzeugung der verwendeten ultrakurzen, hochenergetischen Pulse geschieht in zwei Schritten. Im ersten Schritt wird durch Kerr-Linsen-Modenkopplung der Primärpuls im Femtosekundenbereich und einer Energie von einigen Nanojoule erzeugt. Dazu wird ein mit Titan dotierter Saphirkristall (Al_2O_3) mit einem Dauerstrichlaser gepumpt. Durch spontanes Zerfallen der angeregten Zustände existieren viele phasengekoppelte longitudinale Moden gleichzeitig im Resonator. Winzige Störungen, wie etwa die Vibration eines Spiegels, bewirken, daß sich die Moden zufällig an bestimmten Stellen konstruktiv überlagern und dort größere Intensitäten erzeugen. Aufgrund des nichtlinearen Brechungsindex' des Saphirs

$$n(\omega, I) = n_1(\omega) + n_2(\omega)I \quad , \quad (3.3)$$

wobei für den Saphir Al_2O_3

$$n_2 \approx 3 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$$

ist [20], werden die Teile des Lichtfeldes mit höherer Intensität stärker gebrochen. Ist die Kavität so justiert, daß gerade fokussierte Pulse optimal umlaufen können, dann wird nach kurzer Zeit die gesamte Energie des Resonators in einer Folge von kurzen, intensiven Pulsen konzentriert sein.

Im zweiten Schritt wird der Puls auf Energien im Millijoulebereich verstärkt. Der Mechanismus, der es erlaubt eine millionenfache Verstärkung des Pulses zu erreichen, ohne das Verstärkermedium zu zerstören, heißt *chirped pulse*-Verstärkung und kann in drei Stufen eingeteilt werden (siehe Abb. 3.11). Der Primärpuls wird zunächst dispersiv verbreitert. Der so gestreckte Puls ist an der ansteigenden Flanke zu größeren Wellenlängen und entsprechend an der abfallenden Flanke zu kleineren Wellenlängen hin verschoben (der *chirp*). Somit ist die Maximalintensität im Puls verringert und er kann in der Gesamtenergie verstärkt werden. Das geschieht durch mehrfaches Passieren eines gepumpten weiteren Ti:Saphir Kristalls. Anschließend wird die Dispersion wieder aufgehoben und der Puls komprimiert. Das erreicht man durch zwei parallel so angeordnete Gitter, daß der Weg für lange Wellenlängen größer und für kurze Wellenlänge kleiner wird.

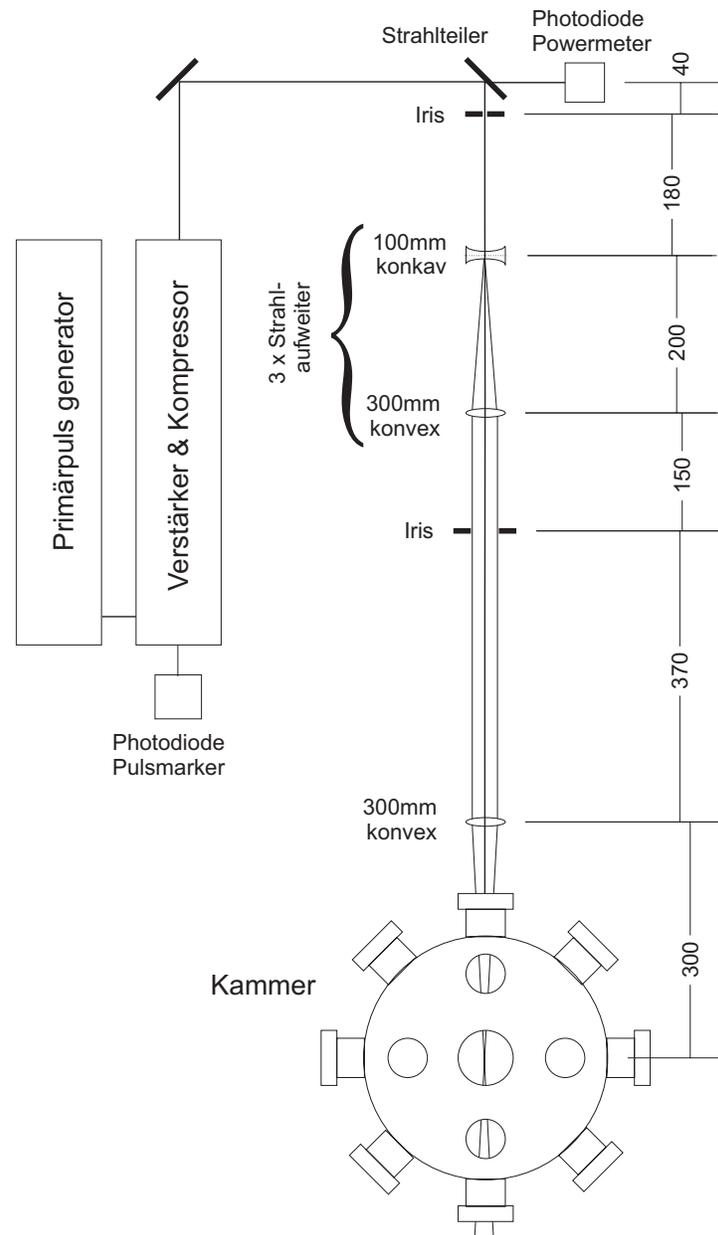


Abb. 3.9. Der optische Aufbau des Systems. Die Aufweitungsoptik diente einer Steigerung der erzielbaren Maximalintensität und wurde nur in einem Teil der Messung verwendet.

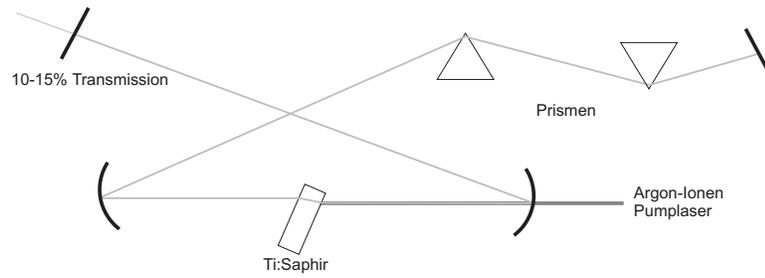


Abb. 3.10. Prinzipieller Aufbau der Kavität zur Erzeugung des Primärpulses. Das Prismenpaar kompensiert die Dispersion des Titan-Saphir Kristalls.

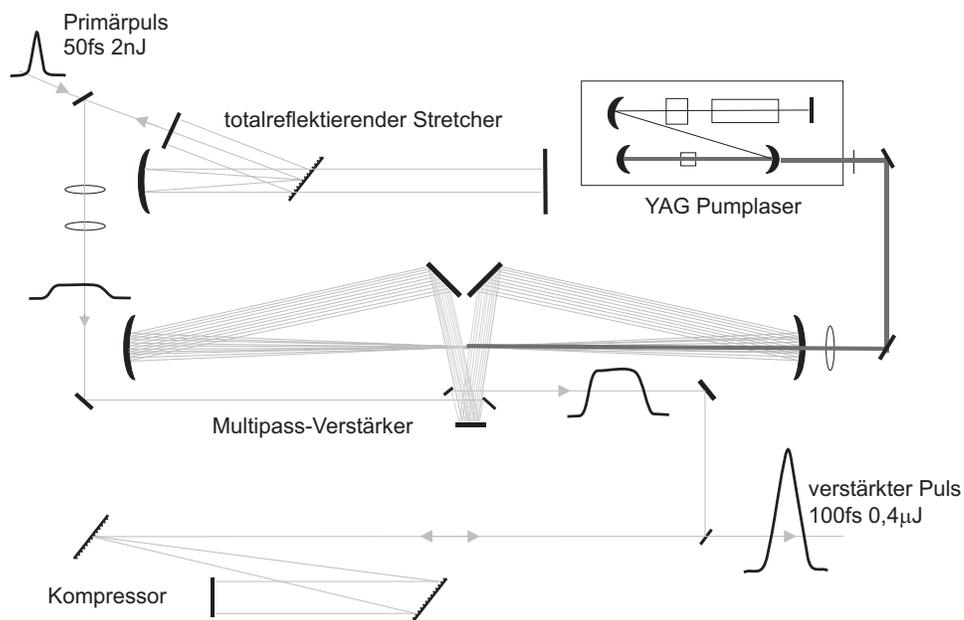


Abb. 3.11. Chirped Pulsamplifikation. Ein kurzer niederenergetischer Puls wird für die Verstärkung verbreitert, damit hohe Spitzenintensitäten, die den Verstärkerkristall beschädigen könnten, verhindert werden. Eine anschließende Kompression verringert die Pulsbreite und erhöht die Spitzenintensität um ein Vielfaches.

3.7.2 Der Fokus

Von entscheidender Bedeutung für das Experiment ist das Wissen, welche Intensität im Fokus herrschte. Dazu wenden wir uns Abb. 3.12 zu. Wir haben es bei Pulsen im Femtosenkundenbereich mit sogenannten Gaußschen Strahlen zu tun. Bei diesen Strahlen ist die Intensität gaußförmig über den Strahlquerschnitt verteilt. Es existiert also keine scharfe Intensitätsbegrenzung und man definiert daher den Strahldurchmesser als den Abstand vom Strahlmittelpunkt, bei dem die Maximalintensität auf den $1/e^2$ -ten Teil abgefallen ist. Die Intensitätsverteilung des Gaußschen Strahles ist nun gegeben durch

$$I(r, z) = \frac{2E}{\tau\pi w(z)^2} \cdot e^{-2\frac{r^2}{w(z)^2}} \quad (3.4)$$

mit

- r dem Abstand vom Strahlzentrum,
- z der Entfernung vom Brennpunkt,
- E der Energie des Pulses,
- τ der Pulsdauer und
- $w(z)$ dem Strahlradius.

Für Gaußsche Strahlen ist der Radius des Strahls im Fokus w_0 (w für *waist*) durch

$$w_0 = \frac{2\lambda}{\pi} \frac{f}{d_{strahl}} \quad (3.5)$$

gegeben. λ steht hier für die Wellenlänge des Laserlichts und f gibt die Brennweite der verwendeten Linse an. Ganz allgemein kann der Strahlradius $w(z)$ in Abhängigkeit von der Entfernung zum Brennpunkt ausgedrückt werden:

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \frac{z}{z_R}} \quad (3.6)$$

Hierbei ist

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} \quad (3.7)$$

die Raleigh-Länge, bei der der Strahlquerschnitt doppelt so groß wie im Fokus ist. Die im Fokus auftretende Maximalintensität $I_{max} = I(0, 0)$ ist mit dieser Vorarbeit sofort abzulesen und berechnet sich zu

$$I_{max} = \frac{\pi E \cdot d_{strahl}^2}{2 \tau \lambda^2 f^2} \quad (3.8)$$

Mit Hilfe der Raleigh-Länge kann ein zylinderförmiges Volumen berechnet werden, welches häufig als fokales Volumen bezeichnet wird und für einige Abschätzungen von Interesse ist. Am Rande des fokalen Volumens ist die Intensität auf die Hälfte des Maximalwertes abgefallen. In den Meßgrößen ausgedrückt ist das Volumen

$$\begin{aligned} V_{foc} &= 2\pi w_0^2 \cdot 2z_R \\ &= \frac{64}{\pi^2} \lambda^3 \left(\frac{f}{d_{strahl}} \right)^4 \end{aligned} \quad (3.9)$$

3.7.3 Die Stabilität

Die Pulsenergie wurde mittels eines Strahlteilers und dahinter aufgestellter Photodiode für jeden Puls gemessen. Von Zeit zu Zeit wurde eine Eichung der Photodiode durchgeführt. Dazu wurde in den Strahlengang hinter dem Strahlteiler auf der der

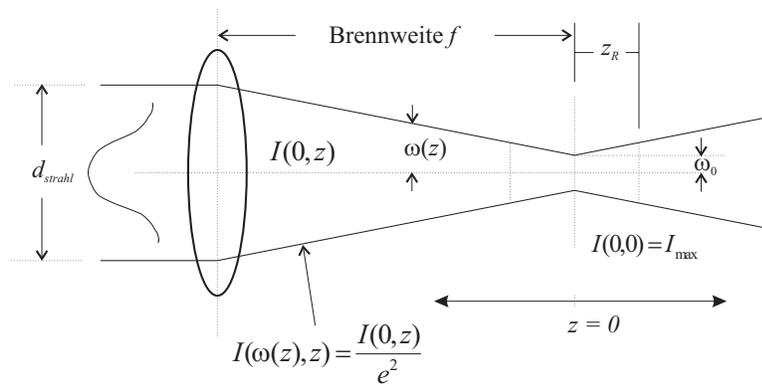


Abb. 3.12. Bestimmung der Intensität eines Gaußschen Strahls im Fokus. z_R bezeichnet die Rayleigh-Länge.

Kammer zugewandten Seite ein Leistungsmeter gebracht, von dessen Leistungsanzeige im mW -Bereich aufgrund der $1kHz$ Wiederholfrequenz des Lasers direkt die Pulsenergie in μJ ablesbar war. Die Energie des einzelnen Pulses schwankt selbstverständlich um einen Mittelwert und ist keine starre Größe für jeden Puls. Die Stabilität des Systems bezieht sich auf die Breite der Verteilung der Pulsenergien für eine bestimmte Anordnung. Damit läßt sich die Qualität der Laserabstimmung beurteilen. Zum Teil konnten sehr schöne Gaußverteilungen der Pulsenergien beobachtet werden, allerdings ist für einen anderen Teil der Messung, nämlich der $100fs$ Pulsdomäne, eine Art Doppelstruktur in der Energieverteilung zu erkennen (Abb. 3.13). Der Grund dafür war ein fehlerhafter *Q-Switch* im YAG Pumplaser, der während des Experiments leider nicht ausgetauscht werden konnte.

Der *Q-Switch* dient zweierlei Aufgabe: Zum einen soll der YAG Output verstärkt werden, zum anderen soll der Pumpluls mit Ankunft des Primärpulses synchronisiert werden.

Der *Q-Switch* führt in die Kavität des YAG Lasers eine zeitlich periodische Absorption ein. Die Kavität wird zwischen hohem Q-Faktor (geringer Absorption) und niedrigem Q-Faktor (großer Absorption) geschaltet, was den Namen des *Q-Switch* erklärt. Während der großen Absorption wird in das Lasermedium (hier: der YAG Kristall) weiterhin Energie gepumpt, die erst mit dem Umschalten auf geringe Absorption extrahiert werden kann. Im kontinuierlichen Betrieb wird aus dem Lasermedium durch induzierte Emission ständig Energie extrahiert, und die ausgekoppelte Strahlung erreicht daher nicht die Intensität, wie es beim *Q-Switch* gesteuerten Laser der Fall ist. Auf diese Weise werden Pulse im Bereich von $10ns$ bis $100 ns$ erzeugt. Zu schnelles Schalten resultiert in Pulsen geringerer Energie [69, 15].

Um die maximale Verstärkung des Primärpulses zu erhalten, muß die größtmögliche Energie im Ti:Saphir Kristall beim Eintreffen des Primärpulses gespeichert sein. Es ist also notwendig, die Ankunft von YAG Pumpluls und Ti:Saphir Primärpuls zu synchronisieren.

Damit wird klar: Ein defekter *Q-Switch* hat eine schwankende und suboptimale Verstärkung zur Folge. Dementsprechend ist die Unsicherheit der Spitzenintensität für diese Messungen außerordentlich groß. Da auch der Strahldurchmesser wegen der Wellenlänge von $800nm$ nur unzulänglich genau festgestellt werden konnte, wird zur Eichung der tatsächlichen Intensität später das Verhältnis der Ionisationsraten herangezogen.

Messung	f	d_{strahl}	E	τ	Intensität
a)	40cm	8mm	$130\mu J \pm 20\%$	200fs	$6,4 \cdot 10^{13} W/cm^2 \pm 28\%$
b)	30cm	7mm	$130\mu J \pm 40\%$	100fs	$1,7 \cdot 10^{14} W/cm^2 \pm 45\%$
c)	30cm	21mm	$85\mu J \pm 40\%$	100fs	$1,0 \cdot 10^{15} W/cm^2 \pm 45\%$

Tab. 3.1. Spitzenintensitäten aus den Laserparametern nach Gl. 3.8 berechnet. Für den Strahldurchmesser d_{strahl} wurde ein Fehler von 10% angenommen. Die resultierende Unsicherheit der Spitzenintensität wurde mittels Fehlerfortpflanzung berechnet und stammt hauptsächlich aus der Unschärfe der Pulsenergie (FWHM).

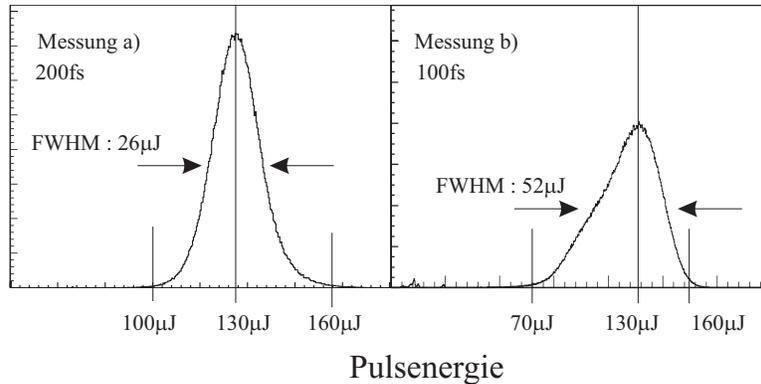


Abb. 3.13. Beispiele für die Verteilung der Energie pro Puls.

3.7.4 Spezifikationen

Bei dem verwendeten Lasersystem handelte es sich um ein Titan-Saphir-System, welches Lichtpulse von ungefähr $0,4mJ$ bei einer Wiederholfrequenz von $1000Hz$ liefert. Die zentrale Wellenlänge des Laser liegt bei $800nm$ mit einer Bandbreite von $\sim 20nm$. Wir verwendeten Pulse mit einer Dauer von $100fs$ und $200fs$.

Der primäre Oszillator wird mit einem Dauerstrich (im Engl.: cw für *continuous wave*) Argon-Ionen Laser gepumpt, und generiert $\sim 2nJ$, $50fs$ Pulse mit einer Rate von $125MHz$. Aus der $125MHz$ Pulsfolge werden mit $1kHz$ Pulse selektiert, die mittels *chirped pulse*-Verstärkung (siehe Abb. 3.11) amplifiziert werden. Ein total-reflektierender *stretcher* verlängert den Puls auf ungefähr $200ps$, bevor er durch mehrfaches Passieren eines weiteren Titan-Saphir Kristalls auf eine totale Energie von $0,4mJ$ verstärkt wird. Der Verstärker Kristall wird mit einem gepulsten, frequenzverdoppelten 6 Watt YAG-Laser gepumpt. Schließlich wird der Puls wieder in einem Kompressor auf bis zu $50fs$ komprimiert.

Kapitel 4

Datenanalyse

*Ein Experiment wirft Licht auf das Wesen der Dinge,
sofern nicht der Experimentator selbst im Wege steht.*

Die gemessenen Größen sind allesamt Zeiten. Für jeden Laserpuls werden mehrere Teilchen detektiert, für die jeweils zwei die Flugzeit bestimmende Signale (von Pulsmarker und Channelplate) und vier Zeiten (vom Delayline-Detektor), die die Position auf der Detektoroberfläche bestimmen, mitgeschrieben werden. Die vorrangige Aufgabe ist es nun, diese drei Datenpunkte mit dem Wissen über das Spektrometer in einen Punkt im Impulsraum zu übersetzen. Dieser Plan läßt sich in folgende Teilaufgaben zerlegen:

1. Kalibrierung des Flugzeitspektrums
2. Kalibrierung des Ortsspektrums
3. Aufstellen und Lösen der Bewegungsgleichungen
4. Aufbereitung der Daten

4.1 Kalibrierung des Flugzeitspektrums

Die Flugzeit ist die Zeit, die ein Ion vom Zeitpunkt seines Entstehens im Laserfokus benötigt, um zum Detektor (hier: das Channelplate) zu gelangen. Ein typisches Flugzeitspektrum ist in Abb. 4.1 dargestellt. Auf der horizontalen Achse ist die Zeit aufgetragen, die zwischen dem Laserpuls und dem am Channelplate detektierten Ion verstrichen ist. Auf der vertikalen Achse ist die Häufigkeit dieser Flugzeit dargestellt. Nun wird das Signal des Laserpulses an einer beliebigen Stelle in der Pulserzeugung ausgekoppelt und über ein langes Kabel in die Datenaufnahmeelektronik geleitet. Dieses Zeitsignal ist also vom Zeitpunkt der Ionisation im Laserfokus um einen konstanten Wert verschoben. Die Aufgabe ist es, diese Verschiebung festzustellen. Man bedient sich dazu der verschiedenen Peaks im Spektrum. Man kann leicht bestimmen, daß der große Peak dem D_2^+ Molekülion und die kleinere Doppelpeakstruktur den D^+ Ionen aus dissoziierenden oder coulombexplodierenden Deuteriummolekülen zuzuordnen ist. Es gibt nun zwei Möglichkeiten das Flugzeitspektrum zu kalibrieren. Zum einen läßt sich die Flugzeit eines aus der Ruhe startenden D_2^+ (bei der Ionisation im Fokus erfährt das molekulare Ion praktische keinen Anfangsimpuls – deshalb auch der einfache Flugzeitpeak!) mit der Extraktionsspannung und der Entfernung des Fokus' vom Detektor bestimmen. Die Güte der so gewonnenen Kalibrierung kann anhand des Mittelpunktes der Doppelpeakstruktur überprüft werden,

da jener der Flugzeit des Schwerpunkts des Moleküls entspricht, welcher auch keinen nennenswerten Impuls im Laserfeld erhält. Es stellte sich heraus, daß die auf diese Weise gewonnenen Zeitkonstanten nicht miteinander verträglich waren. Wir nehmen an, daß in erster Linie die Entfernung des Fokus' zum Detektor nicht genau genug bekannt war. Zum Glück kann jedoch mit den beiden Referenzpunkten das Spektrum unabhängig von den Spektrometervorgaben geeicht werden. Die Flugzeiten von aus der Ruhe startenden Teilchen verhalten sich nämlich proportional zur Quadratwurzel der inversen Beschleunigung a , die wiederum dem Verhältnis von Ladung q zur Masse m des Teilchens proportional ist. Kurz

$$t \propto \sqrt{\frac{1}{a}} \propto \sqrt{\frac{m}{q}} \quad . \quad (4.1)$$

Das Flugzeitspektrum ist also eine lineare Funktion der Wurzel aus dem Masse-Ladungsverhältnis, so daß mit zwei gegebenen Punkten die Geradengleichung

$$t = \text{const} \cdot \sqrt{\frac{m}{q}} + t_0 \quad (4.2)$$

des Spektrums bestimmt werden kann. Die Flugzeit t_0 für $m = 0$ entspricht dem Absolutglied und damit dem Zeitpunkt der Ionisation. const ist die Steigung der Geradengleichung und das Verhältnis

$$\text{const} = \sqrt{\frac{2z_0}{E}} \quad , \quad (4.3)$$

mit dem Startort z_0 und dem Extraktionsfeld E . Da jedoch z_0 nur unzureichend genau bekannt ist, wird const anhand zweier Meßpunkte mit bekanntem m/q Verhältnis bestimmt. In dem Beispiel in Abb. 4.1 ist

$$\text{const} = \frac{t_{D_2^+} - t_{D^+}}{2 - \sqrt{2}} \sqrt{\frac{e}{m_p}} = 626,5 \text{ ns} \sqrt{\frac{e}{m_p}}$$

(mit der Protonenmasse m_p) und damit bestimmt sich der Zeitpunkt der Ionisation zu

$$t_0 = t_{D_2^+} - \text{const} \cdot 2 \sqrt{\frac{m_p}{e}} = 192 \text{ ns} \quad .$$

Die Eichung muß bei jeder Veränderung der Versuchsparameter erneut durchgeführt werden. Mittels Gl. 4.3 kann die tatsächliche Flugstrecke z_0 bestimmt werden, denn der relative Fehler im Extraktionsfeld E ist mit ca. 1% vergleichsweise gering. Man erhält so für das Beispiel einen Startort $z_0 = 4,17 \text{ cm}$.

4.2 Kalibrierung des Ortsspektrums

Für die Ortseichung muß ebenfalls ein Nullpunkt bestimmt werden. Der Nullpunkt ist als die senkrechte Projektion des Startpunktes, mithin die Projektion des Laserfokus', auf die Detektorfläche definiert. Bei der Bestimmung dieses Punktes sind wieder die molekularen Ionen D_2^+ von großer Hilfe. Sie starten relativ zueinander praktisch ohne Anfangsimpuls¹ und "fallen" (im doppelten Sinne) geradewegs auf den Detektor. Man kann eine Bedingung in der Flugzeit setzen, so daß im Positionsbild des Detektors nur die D_2^+ Ionen dargestellt werden (Da sie eine enorme Häufigkeit haben, ist das allerdings nicht unbedingt nötig.). Das Zentrum der größten

¹ beim diffusen Target, trägt die thermische Bewegung zum Anfangsimpuls bei; beim Jettarget, besitzen alle Teilchen einen großen Impuls, sind jedoch relativ zueinander sehr langsam, so daß die Jetgeschwindigkeit als Konstante einfach abgezogen wird.

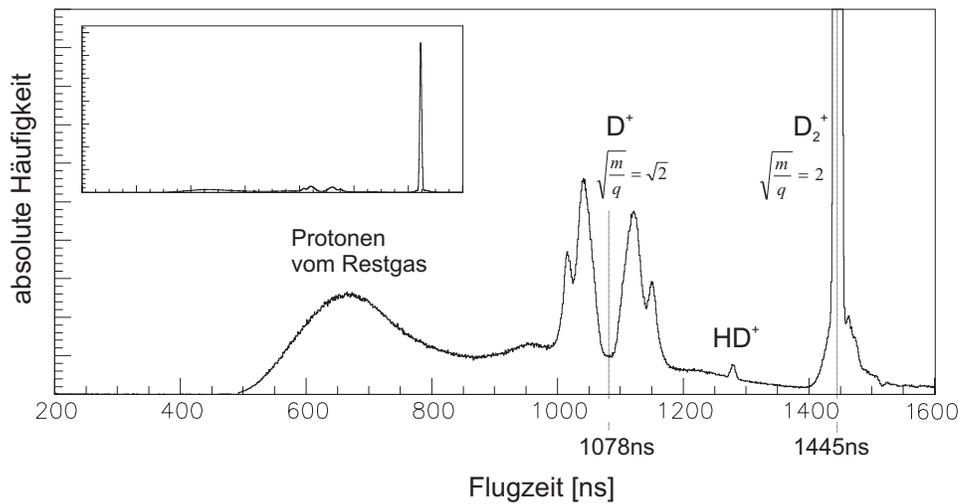


Abb. 4.1. Ein Flugzeitspektrum, unkalibriert.

Intensität entspricht dann dem Nullpunkt der Position. Soweit sind jedoch die Positionsangaben noch in Nanosekunden angegeben. Die Konversion in Millimeter geschieht durch Vergleichen des Detektorabbildes mit dessen realen Dimensionen. Verzerrungen können durch die Elektronik auftreten, halten sich aber üblicherweise in Grenzen. Trotzdem werden für beide Raumrichtungen separate Skalierungsfaktoren (Einheit: mm/ns) bestimmt. Diese Skalierung braucht für einen gegebenen Aufbau nur ein Mal durchgeführt zu werden.

4.3 Aufstellen und Lösen der Bewegungsgleichungen

Um die Verbindung zwischen der Orts- und Flugzeitinformation auf der einen Seite und dem Startimpuls des Ions im Laserfokus auf der anderen Seite herzustellen, ist es sinnvoll, sich noch einmal das Spektrometer herzunehmen und ein Koordinatensystem festzulegen (siehe Abb. 4.2). Anhand der Informationen über das Spektrometer kann man sich die Bewegungsgleichungen leicht herleiten. Aufgrund der einfachen Geometrie des Spektrometers ist das Problem dem klassischen schiefen Wurf äquivalent. Da das Extraktionsfeld in Richtung der z-Achse wirkt, kann man also die z-Komponente der Bewegungsgleichungen separat behandeln. Die Bewegungsgleichungen für alle drei Komponenten lauten

$$x(t) = \frac{p_{x0}}{m} t \quad (4.4)$$

$$y(t) = \frac{p_{y0}}{m} t \quad (4.5)$$

$$z(t) = -\frac{a}{2} t^2 + \frac{p_{z0}}{m} t + z_0 \quad (4.6)$$

mit der Beschleunigung

$$a = \frac{q}{m} E \quad (4.7)$$

definiert durch die Feldstärke im Spektrometer. Zum Zeitpunkt t_1 ist das Ion auf den Detektor aufgetroffen, d.h. es gilt

$$\begin{aligned} x(t_1) &= x_1 = \frac{p_{x0}}{m} t_1 \\ y(t_1) &= y_1 = \frac{p_{y0}}{m} t_1 \\ z(t_1) &= 0 = -\frac{a}{2} t_1^2 + \frac{p_{z0}}{m} t_1 + z_0 \quad . \end{aligned}$$

Diese Gleichungen können nach den Impulskomponenten aufgelöst werden und man erhält

$$\begin{aligned} p_{x0} &= m \frac{x_1}{t_1} \\ p_{y0} &= m \frac{y_1}{t_1} \\ p_{z0} &= m \left(\frac{a}{2} t_1 - \frac{z_0}{t_1} \right) \quad . \end{aligned}$$

Damit wäre die Berechnung des Startimpulses des Ions abgeschlossen, denn auf der rechten Seite der Gleichungen stehen nur bekannte Größen. Wie sich herausstellte, gab es jedoch ein Problem mit dem Startort z_0 . Was ist also, wenn der Startort z_0 unbekannt ist? Glücklicherweise läßt sich der Startort in unserem Fall durch Verwendung der Flugzeit des Schwerpunkts des $D^+ D^+$ -Systems, bzw. eines aus der Ruhe startenden D^+ eliminieren. Wie oben festgestellt wurde, entspricht die Mitte der Doppelpeakstruktur im Flugzeitspektrum gerade der Flugzeit t_{CM} von diesem Schwerpunkt. Der Startort z_0 läßt sich nun durch t_{CM} ausdrücken

$$z_0 = \frac{a}{2} t_{CM}^2 \quad . \quad (4.8)$$

Setzt man Gleichung 4.8 und 4.7 in die Bewegungsgleichungen ein, erhält man für die Impulskomponenten

$$p_{x0} = m \frac{x_1}{t_1} \quad (4.9)$$

$$p_{y0} = m \frac{y_1}{t_1} \quad (4.10)$$

$$p_{z0} = \frac{qE}{2t_1} (t_1^2 - t_{CM}^2) \quad . \quad (4.11)$$

In dieser Schreibweise erhält man eine positive z-Komponente für vom Detektor wegfliegende Teilchen. Für die weitere Auswertung und die Darstellung macht es Sinn anstelle der SI-Einheiten atomare Einheiten zu verwenden. Die Impulskomponenten müssen einfach dazu mit einem Eichungsfaktor multipliziert werden. Diese drei Impulskomponenten werden in der folgenden Auswertung die Grundsteine für alle weiteren, aussagekräftigeren Größen sein.

4.4 Aufbereitung der Daten

Im ersten Schritt der Datenverarbeitung wurden die Daten der einzelnen Signale für die weitere Analyse selektiert und in Impulse nach Gleichung 4.11 umgerechnet. Zur Auswahl der Datenpunkte wurden an die einzelnen Komponenten die folgenden Bedingungen gestellt:

1. Die Flugzeit eines Treffers muß in einem geeignet gewählten Fenster um die Doppelpeakstruktur liegen.

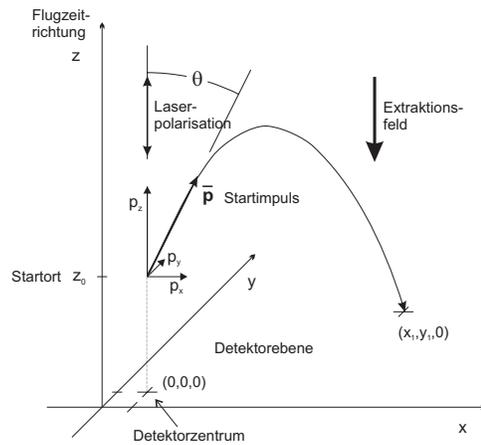


Abb. 4.2. Das Koordinatensystem.

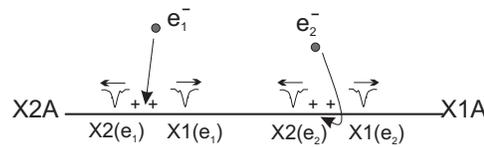


Abb. 4.3. Die Positionssignale X1 und X2 zweier kurz nacheinander eintreffender Teilchen können vertauscht sein. Die resultierende falsche Zeitsumme führt zum Ignorieren der beiden Treffer in der weiteren Datenanalyse.

- Die Zeitsumme der jeweils zu einer Richtung gehörenden Positionszeitsignale muß ungefähr die dem Detektor entsprechende Konstante ergeben.

Die erste Bedingung stellt zu einem gewissen Grad sicher, daß es sich bei den aussortierten Daten mit hoher Wahrscheinlichkeit um D^+ -Ionen handelt (siehe Abb. 4.1). Durch die Wahl des Flugzeitfensters wird direkt die in z-Richtung beobachtbare Fragmentenergie beeinflusst. Die zweite Bedingung vereinfacht vor allem die weitere Analyse. Durch sie wird eine gute Positionsinformation garantiert. Allerdings werden aufgrund dessen die Treffer ignoriert, deren Positionssignale mit denen von einem vorhergehenden oder nachfolgenden Treffer überlagert wurden (siehe Abb. 4.3). Auf eine mögliche, doch aufwendige und unergiebigere Rekonstruktion der vermischten Treffersignale wurde verzichtet.

4.5 Ableitung der Darstellungen

Die Flugzeit ist die am einfachsten einzusehende Meßgröße (siehe Abb. 4.1 auf Seite 43). Sie ist auch die einzige direkt am Oszilloskop oder Vielkanalanalysator ablesbare Größe, die keine weitere Datenaufbereitung benötigt. Bis vor kurzem war die Flugzeitspektroskopie auch das bevorzugte und aussagekräftigste experimentelle Mittel zur Untersuchung von Molekülen in intensiven Laserfeldern. Es mutet auf den ersten Blick überraschend an, wieviel Information über die ablaufenden physikalischen Vorgänge gewonnen werden konnte, stellt die Flugzeit doch gerade mal eine von drei Impulskomponenten dar! Wie jedoch weiter oben schon erläutert wurde, zeichnet die Polarisation des Laserlichtes eine Richtung in der Ionisationsdynamik aus. Die Ausrichtung der ionisierten Fragmente entlang der Polarisation ist die Grundvoraussetzung, um in der Energiefreisetzung verschiedene Prozesse

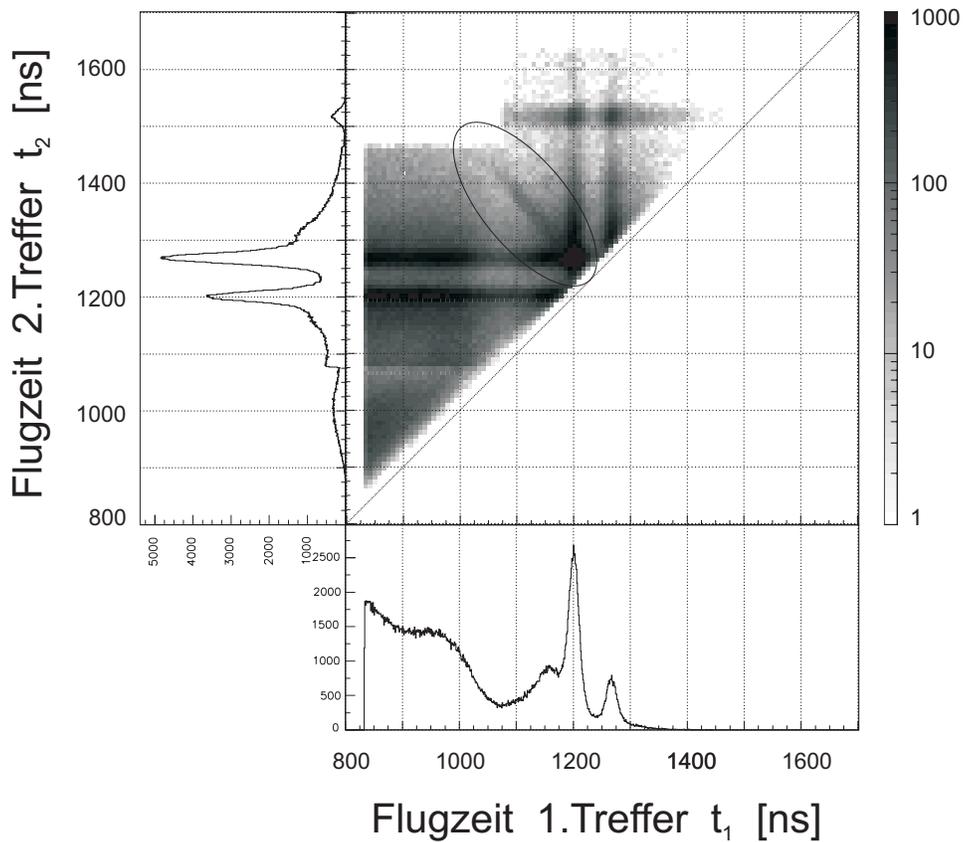


Abb. 4.4. Um die Korrelation zwischen zwei Ionen deutlich zu machen, werden die Flugzeiten gegeneinander aufgetragen. Ionen die aus einer Coulombexplosion stammen, liegen auf einer 45° Linie negativer Steigung. In einem schmalen Band um die eingezeichnete Diagonale sind keine Ereignisse zu beobachten, da hier die zeitliche Auflösungsfähigkeit (Totzeit) der Elektronik mit ca. 15 ns eine Grenze für die Doppeltrefferdetektion setzt.

entlang einer Achse – der Flugzeitachse – beobachten zu können. Die Detektion isotroper Ionisationsprozesse gestaltet sich mit den Mitteln der Flugzeitspektroskopie zumindest sehr schwierig.

Wir haben also aus den vielen Ionen, die pro Laserpuls entstanden, zwei Treffer ausgewählt, sodaß deren Zeitkomponente in einem Fenster um die Flugzeit eines Deuterons ohne Startimpuls liegt und die Positionssignale eine einfache Ortsbestimmung zulassen. Der erste Schritt, nach möglichen Korrelationen zwischen den beiden Teilchen zu suchen, besteht darin, die Flugzeiten der beiden Treffer gegeneinander aufzutragen. Fragmente einer Coulombexplosion sind in der Flugzeit in erster Näherung miteinander linear korreliert. Folglich liegen im Spektrum die Flugzeiten zweier Teilchen, die von einer Coulombexplosion herrühren, auf einer Geraden mit negativer Steigung. Das gilt wohlgermerkt nur in erster Näherung und wird durch die Extraktionsspannung beeinflusst.

Mit den Impulskomponenten der Deuteronen läßt sich nach

$$E_1 + E_2 = \frac{\vec{p}_1^2 + \vec{p}_2^2}{2m_D} \quad (4.12)$$

die in der Coulombexplosion freigesetzte kinetische Energie ermitteln. Das Energiespektrum ist allerdings ohne weitere Konditionen nicht sehr aussagekräftig. Das

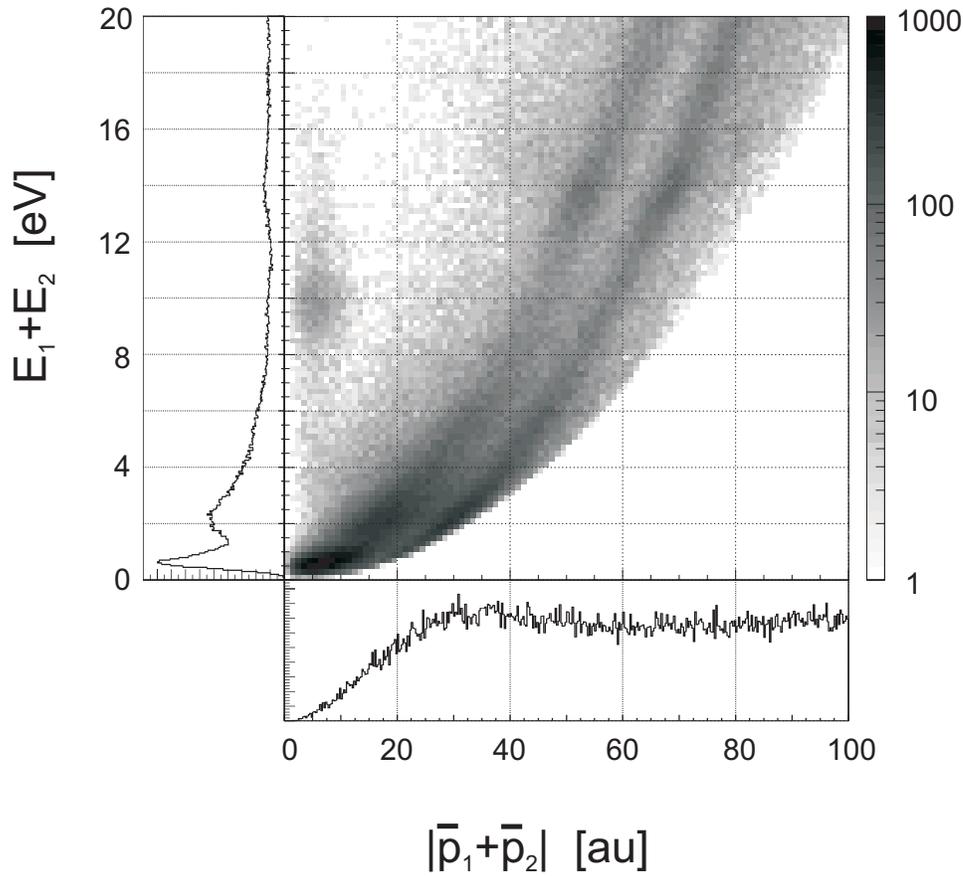


Abb. 4.5. Getrenntes Studium des Energie- und Schwerpunktsimpulsspektrums offenbart nicht viel. Erst die Kombination beider Spektren separiert die Coulombexplosionen (hier die Ansammlung bei 10eV). Die breite parabelförmige Verteilung ist Ionen zuzuordnen, die von verschiedenen Molekülen stammen.

ändert sich, wenn man den aus den Einzelimpulsen der beiden Teilchen nach

$$\vec{p}_{CM} = \vec{p}_1 + \vec{p}_2 \quad (4.13)$$

gebildeten Schwerpunktsimpuls der Energie gegenüberstellt. Die so gebildeten Schwerpunktsimpuls-Gesamtenergie Diagramme bilden den Grundpfeiler der Identifikation von Coulombexplosionen.

Interessant ist nun die Winkelverteilung der Fragmente insbesondere mit Rückblick auf die in zahlreichen anderen Arbeiten festgestellte Anisotropie der Ionisation. Wir können aufgrund der Vollständigkeit der gemessenen Größen die Ausrichtung der molekularen Achse vor der Explosion bestimmen. Durch die Polarisierung des Lasers wird eine Richtung in der Symmetrie des Systems herausgestellt. Deshalb ist die einzig sinnvolle Parametrisierung der Molekülachse durch den Polarwinkel zur Polarisationsrichtung vorgegeben. Liegt die Polarisierung entlang der z -Achse, berechnet sich der Winkel einfach nach

$$\cos \theta = \frac{\vec{p}_z}{\vec{p}} \quad (4.14)$$

Für die grafische Darstellung ist der Kosinus des Winkels die dem Problem angemessene Größe. Die Impulse der Coulombexplosion einer bestimmten Energie müssen

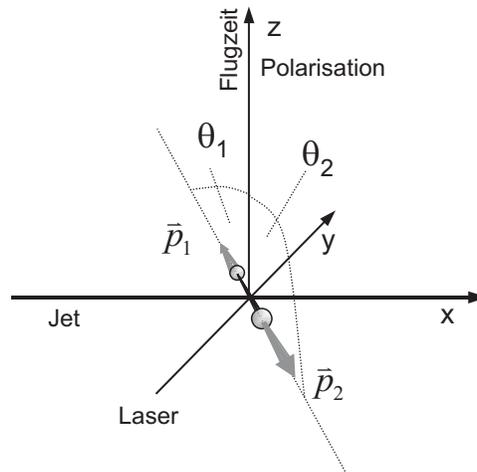


Abb. 4.6. Koordinatensystem zur Verdeutlichung des Winkels θ zwischen Impulsvektor und Polarisationsachse.

auf einer Kugeloberfläche liegen. Der Kosinus des Polarwinkels einer ausgezeichneten Kugelachse teilt die Kugeloberfläche in Ringe gleicher Fläche. Eine isotrope Verteilung, d.h. gleichmäßige Verteilung auf einer Kugeloberfläche, wird in der Darstellung des Kosinus' eine ebene Verteilung, die leicht zu identifizieren ist.

In Abb. 4.7 ist die Winkelverteilung der einzelnen Fragmente in Bezug auf die z -Achse für Ereignisse dargestellt, die einen Schwerpunktimпульs $|\vec{p}_1 + \vec{p}_2| < 15au$ vorweisen können. Hierbei ist für jedes Deuteron der Winkel θ , wie in Abb. 4.6 definiert, dargestellt.

Die Lücke bei $-0,25 < \cos \theta < 0,25$ ist die Repräsentation der Totzeit der Elektronik in der Winkelverteilung: $\cos \theta \sim 0$ gilt für Teilchen, die ungefähr senkrecht zur Polarisationsachse emittiert werden. In echten Coulombexplosionen kommen beide Teilchen in diesem Fall ungefähr zur gleichen Zeit am Channelplate an, können nicht mehr von der Elektronik unterschieden werden und fallen so aus der Datenanalyse heraus.

Mit der Bedingung auf den Schwerpunktimпульs $|\vec{p}_1 + \vec{p}_2| < 15au$ wird sichergestellt, daß die Ionen entgegengesetzte Impulse haben und der Großteil der zufälligen Koinzidenzen ausgeblendet wird. Im Spektrum bewirkt diese Bedingung, daß die Treffer eines Ereignisses ungefähr symmetrisch zur 0 ($\theta = 90^\circ$) liegen. Für kleine Energien ($< 2eV$) bedeutet die Bedingung auf den Schwerpunktimпульs nicht mehr zwingend, daß die Ionenimpulse ungefähr entgegengesetzt sind. Das heißt, in der Winkelverteilung müssen die zwei Teilchen nicht mehr symmetrisch zur 0 liegen und können so das "Totzeitloch" füllen.

Die in Abb. 4.5 bei $10eV$ auftretende Struktur weist offenbar eine isotrope Verteilung auf.

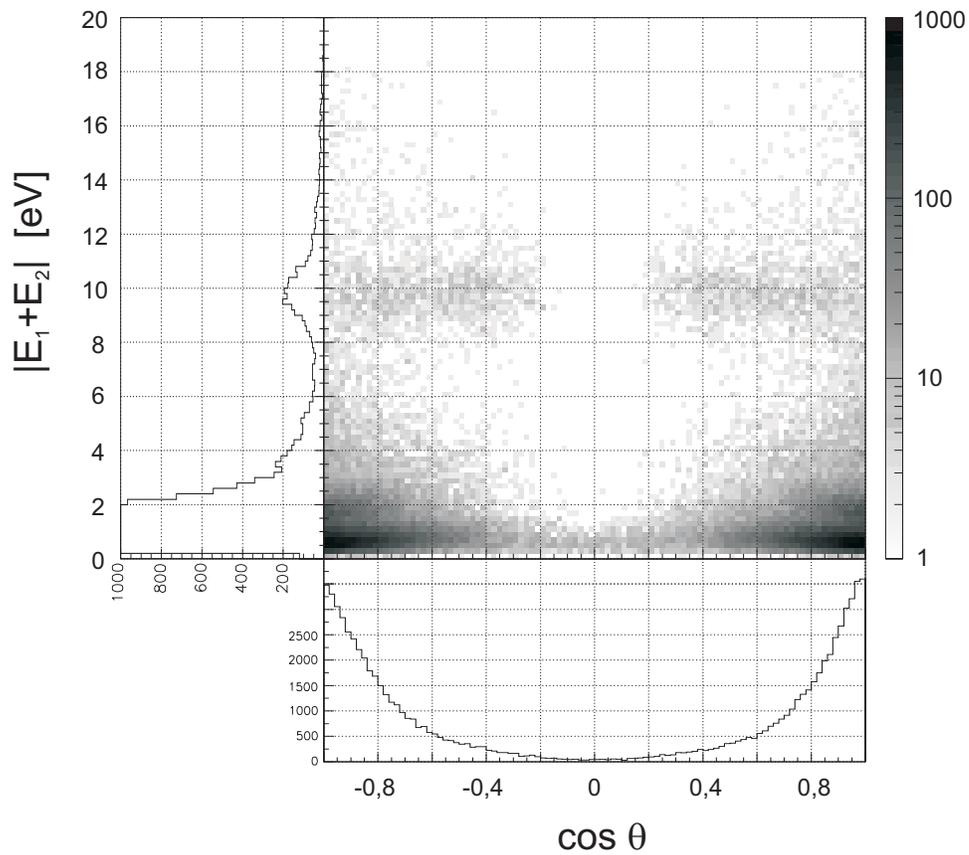


Abb. 4.7. Emissionswinkel $\cos\theta_1$ und $\cos\theta_2$ der beiden einzelnen Deuteronen für Ereignisse aus Abb. 4.5 mit $|\vec{p}_1 + \vec{p}_2| < 15 a.u.$. Die elektronische Totzeit manifestiert sich durch ein Loch in der Winkelverteilung um $\cos\theta \sim 0$.

Kapitel 5

Die Messung

Nur das Unerklärliche ist das wirklich Interessante.

Im folgenden werden die Daten von drei Messungen ohne weitere Diskussion präsentiert. Die Parameter der drei Messungen lassen sich in einer Tabelle übersichtlich darstellen

Messung	Feld E	Flugstrecke z_0	Pulslänge τ	Intensität I
a)	$29V/cm$	$10,6cm$	$200fs$	$6,4 \cdot 10^{13}W/cm^2 \pm 28\%$
b)	$21,25V/cm$	$4,2cm$	$100fs$	$1,7 \cdot 10^{14}W/cm^2 \pm 45\%$
c)	$21,9V/cm$	$3,4cm$	$100fs$	$1,0 \cdot 10^{15}W/cm^2 \pm 45\%$

Messung a) wurde mit einem modifizierten Spektrometer im Vergleich zu den anderen beiden Messungen durchgeführt. Die Flugstrecken sind nach Abschnitt 4.1 aus der Flugzeitkalibrierung berechnet.

Die folgenden Graphiken mit den Bezeichnungen a), b) und c) sind den entsprechenden Messungen zuzuordnen.

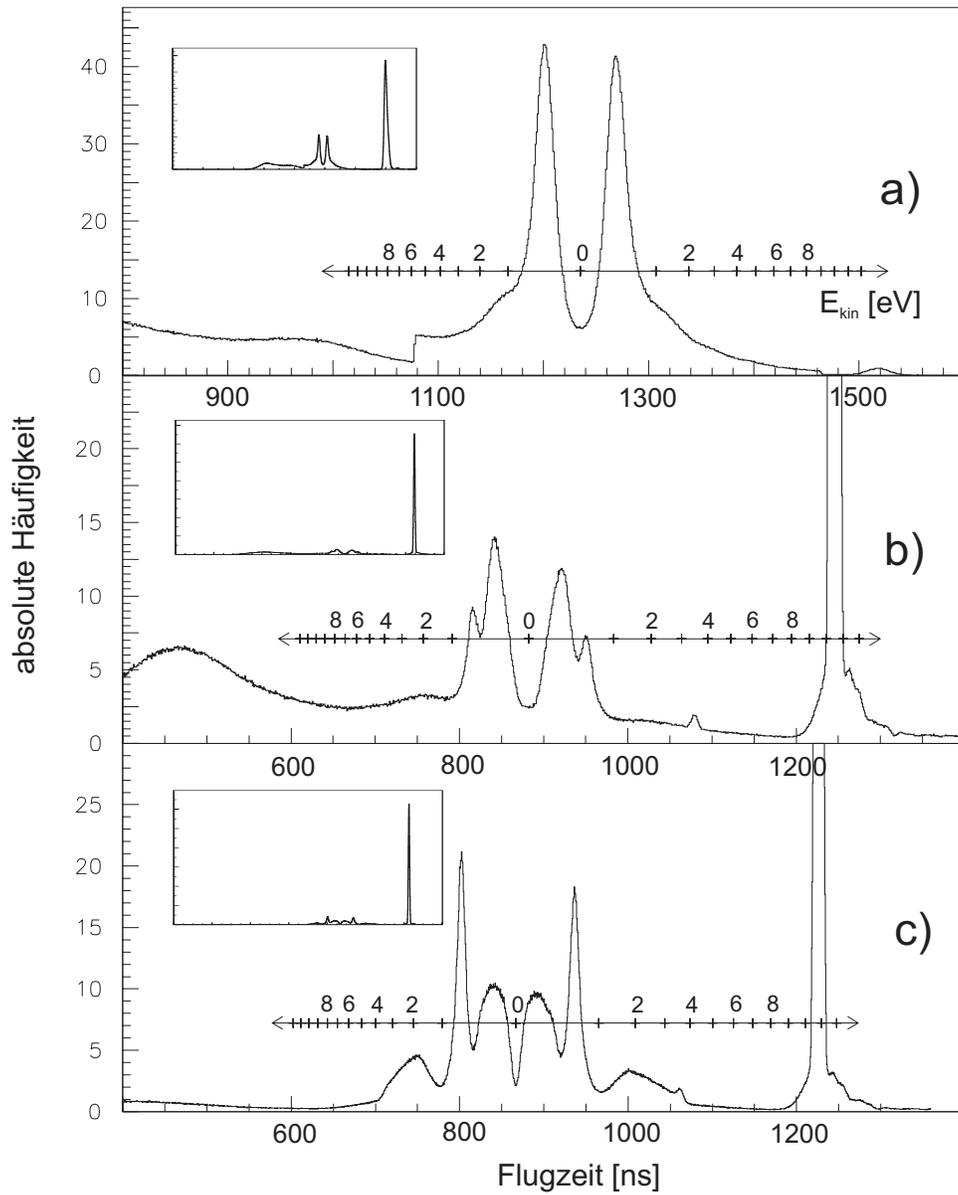


Abb. 5.1. Die Flugzeiten aller aufgezeichneten Ionen der drei Messungen a), b) und c). Multihit-fähige Elektronik ermöglichte die Aufzeichnung aller Ionen die im Laserpuls erzeugt wurden. Für jedes Ion gilt damit nur die direkte Detektionseffizienz des Systems. Die Insets zeigen das vollständige Flugzeitspektrum mit dem dominanten D_2^+ Peak.

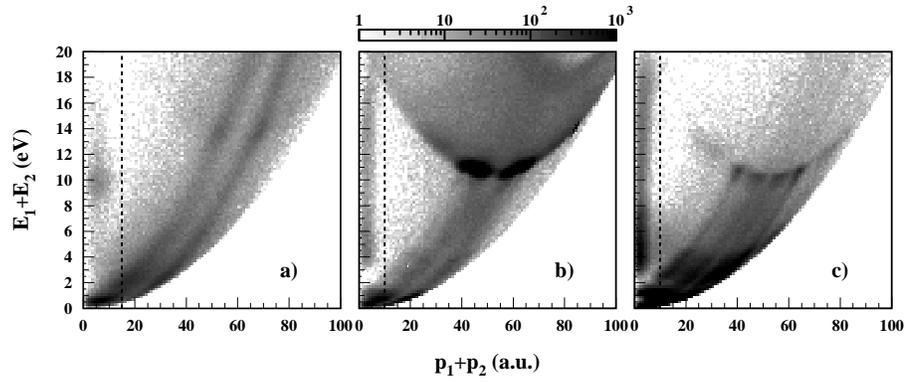


Abb. 5.2. Schwerpunktimpuls gegen totale freigesetzte kinetische Energie. Die Strukturen bei kleinen Schwerpunktimpulsen sind wahrscheinlich Coulombexplosionen zuzuordnen.

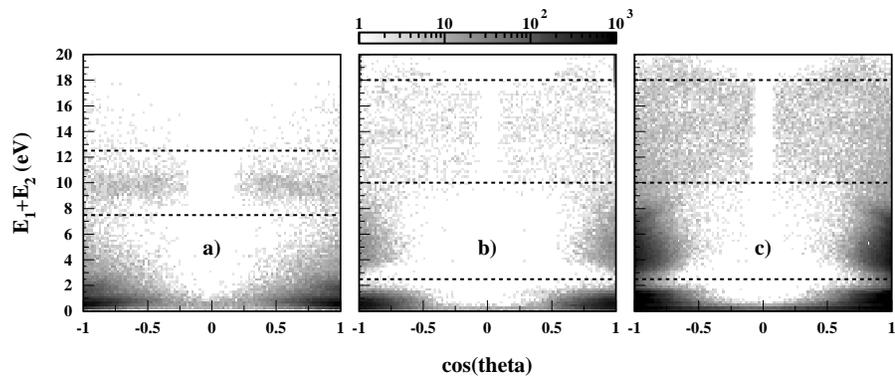


Abb. 5.3. Emissionswinkel zur Polarisationsachse gegen die totale freigesetzte kinetische Energie. Die Winkelverteilungen der Strukturen aus Abb. 5.2. Deutlich ist eine Zweiteilung der Coulombexplosionen in b) und c) erkennbar.

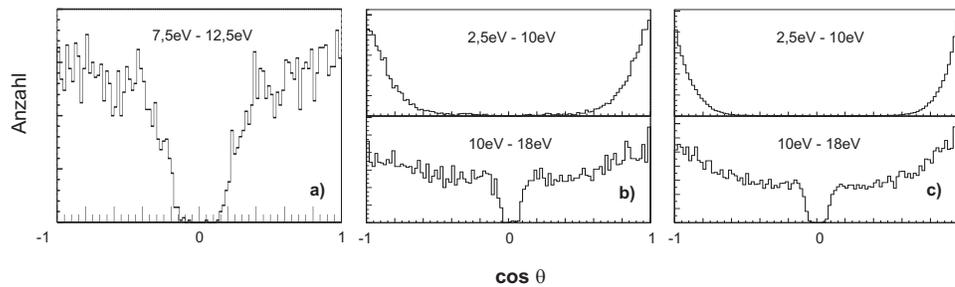


Abb. 5.4. Projektion von Schnitten der Abb. 5.3. Ebene Verteilungen weisen gleichmäßig im Raum verteilte Ereignisse aus.

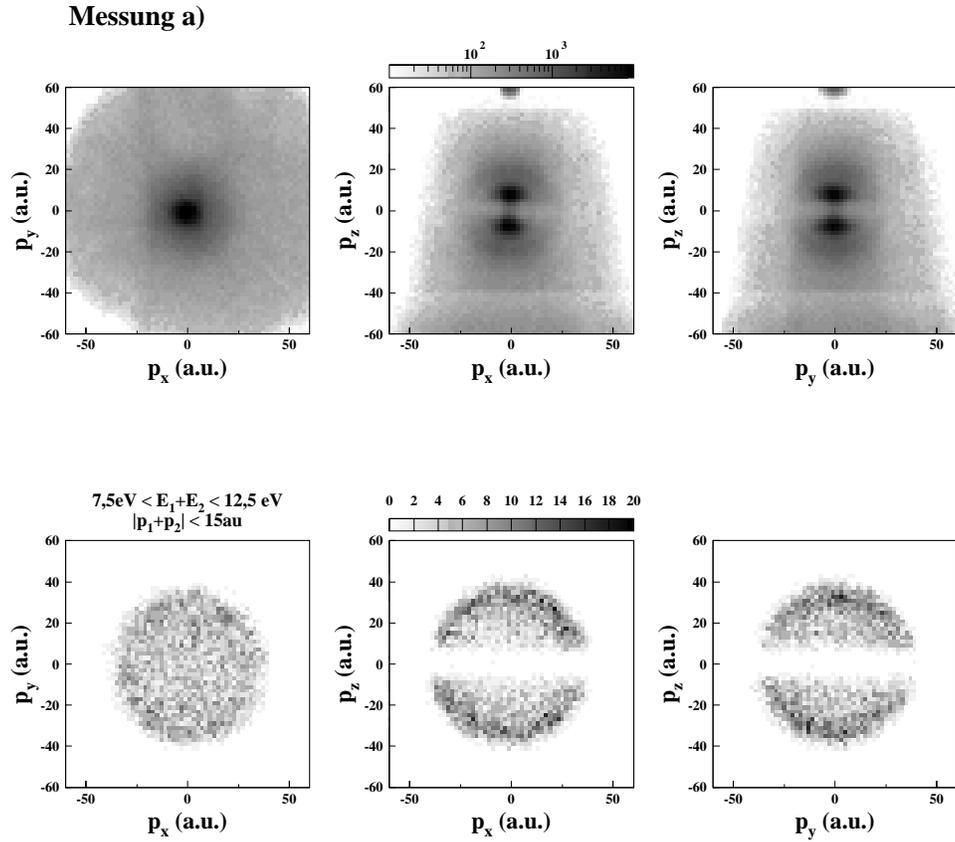


Abb. 5.5. Projektionen der Impulsraumes der Messung a) (200fs , $0,64 \cdot 10^{14}\text{W/cm}^2$). Die obere Reihe enthält alle Ereignisse mit zwei Treffern im Flugzeitfenster. Die untere Reihe nur solche, bei denen die Energiesumme $E_1 + E_2$ der beiden Treffer zwischen $7,5\text{eV}$ und $12,5\text{eV}$ liegt, außerdem wird für den Schwerpunktimpuls $|\vec{p}_1 + \vec{p}_2| < 15\text{au}$ verlangt. Die Lücke in p_z Richtung in der unteren Reihe stammt von der elektronischen Totzeit.

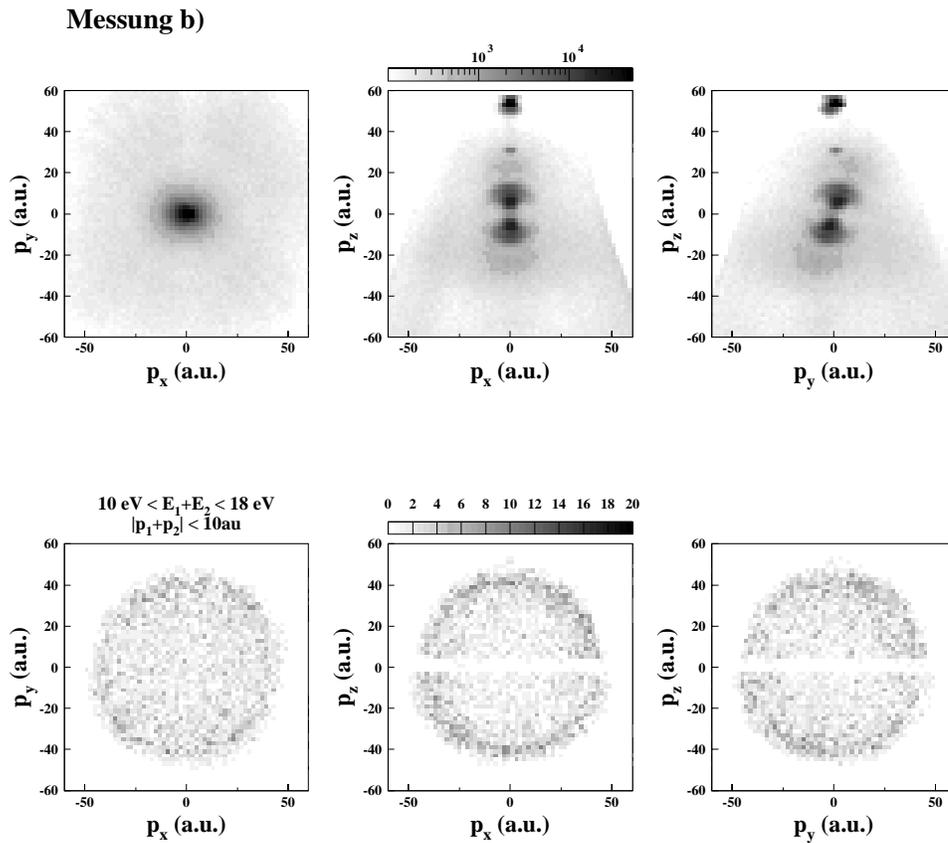


Abb. 5.6. Projektionen der Impulsraumes der Messung b) (100 fs , $1,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Die obere Reihe enthält alle Ereignisse mit zwei Treffern im Flugzeitfenster. Die untere Reihe nur solche, bei denen die Energiesumme $E_1 + E_2$ der beiden Treffer zwischen 10 eV und 18 eV liegt, außerdem wird für den Schwerpunktimpuls $|\vec{p}_1 + \vec{p}_2| < 10 \text{ au}$ verlangt. Die Lücke in p_z Richtung in der unteren Reihe stammt von der elektronischen Totzeit. Sie ist gegenüber Messung a) (Abb. 5.5) reduziert, was auf eine bessere Abstimmung der Elektronik zurückzuführen ist. Deutlich ist zu sehen, daß die Laserpolarisation nicht parallel zur Spektrometerachse z ausgerichtet ist.

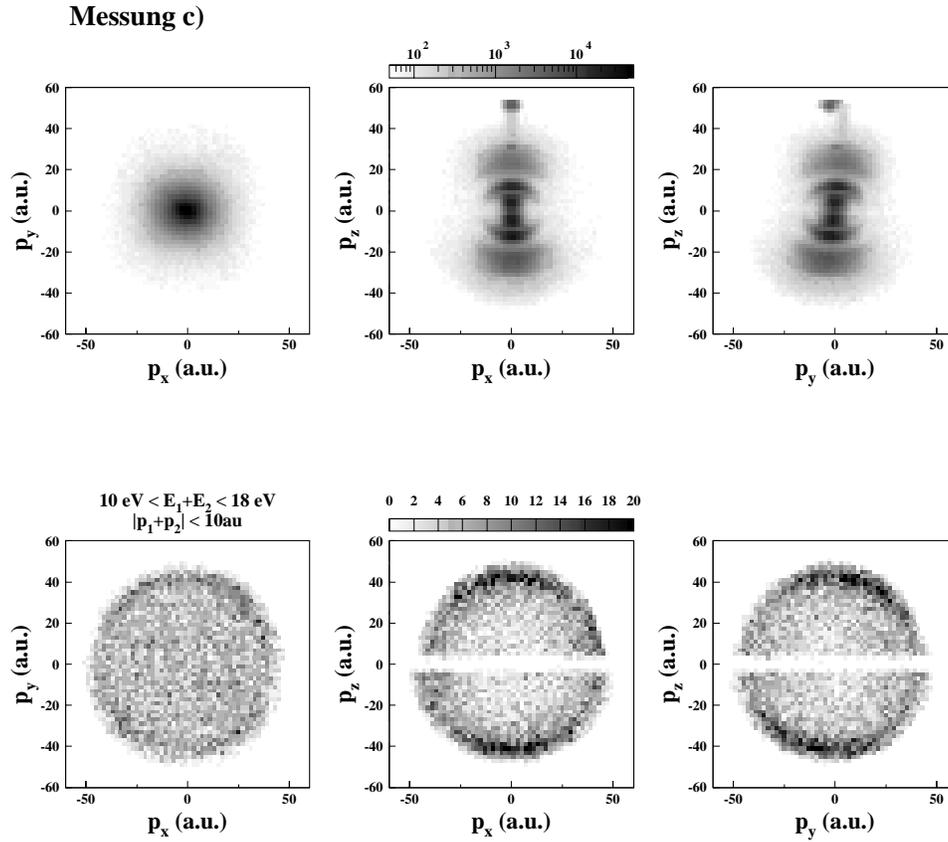


Abb. 5.7. Projektionen der Impulsraumes der Messung c) (100 fs , $2, 1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$). Die obere Reihe enthält alle Ereignisse mit zwei Treffern im Flugzeitfenster. Die untere Reihe nur solche, bei denen die Energiesumme $E_1 + E_2$ der beiden Treffer zwischen 10 eV und 18 eV liegt, außerdem wird für den Schwerpunktimпульs $|\vec{p}_1 + \vec{p}_2| < 10 \text{ au}$ verlangt. Die Lücke in p_z Richtung in der unteren Reihe stammt von der elektronischen Totzeit. Sie ist gegenüber Messung a) (Abb. 5.5) reduziert, was auf eine bessere Abstimmung der Elektronik zurückzuführen ist.

Kapitel 6

Diskussion

*Meist bedeutet Verständnis die Reduktion auf Bekanntes.
Manchmal bewirkt die Gewöhnung an das Unbekannte
ein Gefühl des Verstehens.*

6.1 Aussagekraft der Daten

6.1.1 Detektionseffizienz

Es wurde keine Messung der Detektionseffizienz für das verwendete Detektorsystem (Gitter-Channelplate-Delayline) durchgeführt. Untersuchungen von Czasch [19] an einem ähnlichen System ergab eine Effizienz von 39%. Da bei unserem Experiment vielmehr das Verhältnis der verschiedenen Ionisationskanäle zur Einfachionisation von Bedeutung ist, als absolute Ionisationswahrscheinlichkeiten, ist die Detektionseffizienz nicht von Bedeutung. Man kann noch den Einfluß der unterschiedlichen Detektionseffizienz für die verschiedenen Teilchen [85] auf die relativen Ionisationsraten berücksichtigen, mithin also den Einfluss der Pulshöhen auf die Detektionseffizienz für das Zeitsignal am Channelplate. In unserem Fall geht es ausschließlich um die Detektionseffizienz von D^+ und D_2^+ . Der Faktor 2 im Ladungs - Masse Verhältnis q/m bedingt eine doppelte Auftreffgeschwindigkeit für das Deuteron im Vergleich zum molekularen Ion. Da jedoch die Channelplates im Sättigungsbereich betrieben wurden und das Zeitsignal am hinteren Channelplate, wo die Ladungslawine ihre Maximalstärke erreicht, abgegriffen wurde, sollte der Einfluß der Detektionseffizienz auf die Teilchensorte gering sein. Um dennoch den Einfluß dieser Unsicherheit zu berücksichtigen, folgen wir Spielberger [85] und Schmidt [80], die für $375eV - 750eV$ pro Nukleon eine Unsicherheit von 10% angaben. Zum Vergleich: In unserem System erhalten die Ionen Energien von $750eV$ und $1500eV$ pro Nukleon für D_2^+ und D^+ , respektive. Wir können also mit einiger Plausibilität eine Unsicherheit von $< 10\%$ für das Verhältnis der Nachweiswahrscheinlichkeiten von Deuteronen D^+ zu molekularen Ionen D_2^+ annehmen.

6.1.2 Meßgenauigkeit

Die Unsicherheit bei der Bestimmung der Flugzeit, wie des Auftreffortes, führt zu einem Fehler in der Impulsbestimmung. Im folgenden sollen die Fehlerquellen und ihre Fortpflanzung diskutiert werden.

Flugzeit

Die Flugzeitkalibrierung liefert den Zeitpunkt t_0 der Ionisation durch den Laserpuls. Das Flugzeitspektrum muß um diesen Wert t_0 verschoben werden, um die

tatsächlichen Flugzeiten ablesen zu können. Wie im Abschnitt 4.1 dargelegt, ist die Kalibrierung anhand der Flugzeitpeaks zweier Teilchensorten der Kalibrierung unter Verwendung der Flugstrecke und Extraktionsspannung vorzuziehen. Demzufolge ergibt sich der Fehler in der Bestimmung des Ionisationszeitpunktes aus der Genauigkeit mit der die Flugzeiten des aus der Ruhe startenden Ions bestimmt werden können. Beim molekularen Ion ist das kein Problem, da außer dem vernachlässigbaren Rückstoß durch das Photoelektron kein Impuls auf das D_2^+ übertragen wird und der resultierende scharfe Peak die recht genaue Bestimmung der Flugzeit zuläßt ($\Delta t_{D_2^+} \sim 1ns$). Dagegen gibt es praktisch keine Deuteronen D^+ , die ohne Anfangsimpuls entstehen. Hier muß die Mitte der Doppelpeakstruktur bestimmt werden. Der Fehler hierbei liegt bei $3ns$. Nach Abschnitt 4.1 berechnet sich t_0 durch

$$t_0 = t_{D_2^+} \left(1 - \frac{2}{2 - \sqrt{2}}\right) + t_{D^+} \left(\frac{2}{2 - \sqrt{2}}\right) \quad . \quad (6.1)$$

Für die Unsicherheit in der Bestimmung von t_0 folgt somit ein Fehler von

$$\Delta t_0 = \sqrt{\left(1 - \frac{2}{2 - \sqrt{2}} \Delta t_{D_2^+}\right)^2 + \left(\frac{2}{2 - \sqrt{2}} \Delta t_{D^+}\right)^2} \quad . \quad (6.2)$$

Am Beispiel der Messung b) erhält man einen Wert für den Fehler der Flugzeit Eichung

$$\Delta t_0 \approx 11ns \quad , \quad (6.3)$$

der auch für die anderen Messungen herangezogen werden kann. Dieser Fehler haftet damit auch allen Flugzeiten an, die zur Berechnung des Impulses des Teilchens herangezogen werden. An dieser Abschätzung wird deutlich, daß die Auflösung des TDC von $0,5ns$ vernachlässigbar gegenüber dem Kalibrierungsfehler ist.

Position

In die Bestimmung des Auftreffortes gehen zwei Größen ein. Das ist zum einen der Nullpunkt (x_0, y_0) des Detektors, also der Ort, an dem die Teilchen auftreffen, wenn sie keinen Anfangsimpuls besitzen. Zum anderen müssen die Skalierungsfaktoren $c_{mm/ns}$, die die Zeitsignale des Detektors in Millimeter übersetzen, berücksichtigt werden. Die zur Berechnung des Impulses des Teilchens benötigte Position x_{mm} in x-Richtung ergibt sich aus dem Auftreffort x_{ns} durch folgende einfache Beziehung

$$x_{mm} = c_{mm/ns} (x_{ns} - x_{0,ns}) \quad ,$$

wobei die Indizes mm und ns für die Einheiten stehen. Folglich ist

$$\begin{aligned} \Delta x_{mm} &= \sqrt{\left(x_{mm} \frac{\Delta c_{mm/ns}}{c_{mm/ns}}\right)^2 + (c_{mm/ns} \Delta x_{0,ns})^2} \quad (6.4) \\ \frac{\Delta x_{mm}}{x_{mm}} &= \sqrt{\left(\frac{\Delta c_{mm/ns}}{c_{mm/ns}}\right)^2 + \left(\frac{\Delta x_{0,ns}}{x_{ns} - x_{0,ns}}\right)^2} \quad . \end{aligned}$$

Der Skalierungsfaktor kann auf ungefähr 2% genau bestimmt werden. Wie man sieht, geht in den relativen Fehler der Position der Abstand vom Nullpunkt mit ein. Der Nullpunkt wird wiederum anhand des D_2^+ Peaks bestimmt. Die Genauigkeit $\Delta x_{0,ns}$ hierfür beträgt etwa $2ns$ was bei dem verwendeten Detektor ($c_{mm/ns} = 0,55mm/ns$) ungefähr $1mm$ entspricht. Für kleine Abstände divergiert also der relative, jedoch nicht der absolute Fehler. Auch hier haben wir wieder den Fall, das die technisch mögliche Auflösung bei weitem nicht erreicht wird. Der Delaylinedetektor bietet eine Auflösung von $0,1mm$, die in unserem Fall durch die Maschenweite des Gitters am Spektrometerende auf $0,25mm$ herabgesetzt wird, was aber aufgrund der Unsicherheit in der Nullpunktsbestimmung nicht realisiert werden kann.

Impuls

Mit Position und Flugzeit lassen sich nun die Vektorkomponenten des Anfangsimpulses berechnen. In Abschnitt 4.3 sind die Gleichungen hergeleitet worden

$$\begin{aligned} p_x &= m \frac{x}{t} \\ p_y &= m \frac{y}{t} \\ p_z &= \frac{qE}{2t} (t^2 - t_{CM}^2) \quad . \end{aligned}$$

Für die Fehler in den einzelnen Impulskomponenten ergibt sich so

$$\begin{aligned} \Delta p_x &= \sqrt{\left(\frac{m}{t} \Delta x\right)^2 + \left(\frac{mx}{t^2} \Delta t\right)^2} \\ \Delta p_y &= \sqrt{\left(\frac{m}{t} \Delta y\right)^2 + \left(\frac{my}{t^2} \Delta t\right)^2} \\ \Delta p_z &= \frac{qE}{2} \Delta t \sqrt{\left(1 + \frac{t_{CM}^2}{t^2}\right)^2 + \left(\frac{2t_{CM}}{t}\right)^2} \quad . \end{aligned}$$

Damit erhält man die Unsicherheit des Absolutbetrages des Impulses

$$\begin{aligned} \Delta |\vec{p}| &= \sqrt{\Delta p_x^2 + \Delta p_y^2 + \Delta p_z^2} \\ &= \sqrt{\left(\frac{m}{t}\right)^2 \Delta r^2 + \left[\left(\frac{m}{t^2}\right)^2 r^2 + \left(\frac{qE}{2}\right)^2 \left(1 + 6\frac{t_{CM}^2}{t^2} + \frac{t_{CM}^4}{t^4}\right)\right] \Delta t^2} \end{aligned}$$

mit den Substitutionen $r^2 = x^2 + y^2$ und $\Delta r^2 = \Delta x^2 + \Delta y^2$. Man kann nun eine mittlere Flugzeit $t = t_{CM}$ für alle Fragmente annehmen, wodurch sich die obige Gleichung weiter vereinfacht zu

$$\Delta |\vec{p}| = \sqrt{\left(\frac{m}{t_{CM}}\right)^2 \Delta r^2 + \left(\frac{m^2}{t_{CM}^4} r^2 + \left(\frac{qE}{2}\right)^2\right) \Delta t_{CM}^2} \quad . \quad (6.5)$$

Ist der Anfangsimpuls des Deuterons planparallel zum Detektor ist die Positionsunschärfe am geringsten, jedoch hat die Zeitunschärfe in diesem Fall ein Maximum. Umgekehrt ist bei senkrechter Ausrichtung des Anfangsimpulses jetzt die Distanz zum Nullpunkt auf dem Detektor minimal und damit die Unsicherheit der Positionsbestimmung am größten, während der zeitliche Abstand maximal ist. Um ein Gefühl für die auftretenden Ungenauigkeiten zu bekommen, betrachten wir jetzt Deuteronen mit einem Anfangsimpuls, der in einem Winkel von 45° zur Spektrometerachse zeigt. Dabei berechnen wir den Fehler nach Gl. 6.5 für eine Reihe kinetischer Energien pro Deuteron, wie sie im Experiment typischerweise auftreten. Der Einfachheit halber verlangen wir $p_y = 0$ und folglich $p_x = p_r = p/\sqrt{2}$.

$E_{kin} [eV]$	$p \left[\frac{10^{-23} kg m}{s} \right]$	$r [mm]$	Δr	Δp	ΔE	$\frac{\Delta r}{r}$	$\frac{\Delta p}{p}$	$\frac{\Delta E_{kin}}{E_{kin}}$
1,25	3,65	6,8	1,001	0,42	0,29	14,7%	11,5%	23,2%
2,50	5,17	9,6	1,018	0,428	0,41	10,6%	8,3%	16,4%
5,00	7,31	13,6	1,036	0,436	0,60	7,6%	5,9%	12,0%
10,0	10,32	19,2	1,07	0,45	0,87	5,6%	4,4%	8,7%

Auch hier wurde wieder die Messung b) beispielhaft bemüht: die Flugzeit des Schwerpunkts $t_{CM} = 880ns$. Die Unsicherheit der kinetischen Energie berechnet sich einfach nach der Gaußschen Fehlerfortpflanzung zu

$$\Delta E_{kin} = \frac{p \Delta p}{2m_p} \quad (6.6)$$

Diese Tabelle soll im weiteren als Anhaltspunkt für die Unsicherheiten in der Bestimmung von Impuls und kinetischen Energie dienen.

6.1.3 Maxwell - Boltzman Verteilung

Rückblickend stellt man fest, daß als primärer Indikator für Coulombexplosionen das Vorhandensein von im Schwerpunktimпульs-kinetische Energie Bild (siehe Abb. 4.5 auf S. 47) separierten Ereignissen mit einem Schwerpunktimпульs von nicht mehr als 15, bzw. 10 atomaren Einheiten herangezogen wurde. Ist diese Annahme richtig, dann sollte der Schwerpunktimпульs dieser Ereignisse einer Maxwell-Boltzmann Verteilung gehorchen. Allerdings gilt diese Folgerung nicht in aller Strenge auch für Moleküle, die aus dem Gasjet stammen. Ein Teil des Experimentes wurde ohne Jet und nur mit dem über ein Flutungsventil eingelassenen Deuteriumgas durchgeführt (Messung a)). Man mag noch den Einwand hervorbringen, daß die mit bis zu 20eV [70] emittierten Photoelektronen Impuls auf den Schwerpunkt der beiden Deuteronen übertragen können, jedoch zeigt eine einfache Abschätzung, daß der Einfluß der Photoelektronen vernachlässigbar gegen die thermische Bewegung der Deuteronen bei Raumtemperatur bleibt. Die Maxwell-Boltzmann Verteilung gibt die Geschwindigkeits- bzw. Impulsverteilung der Moleküle eines Gases. Sie lautet für ein Gas einer bestimmten Temperatur allgemein

$$N \frac{dN}{dp} = const \cdot \frac{4}{\sqrt{\pi}} \cdot \frac{p^2}{\bar{p}^3} \cdot e^{-\frac{p^2}{\bar{p}^2}} \quad (6.7)$$

mit

$$\bar{p} = \sqrt{2mE_0} \quad (6.8)$$

$$E_0 = \frac{f}{2} \cdot k_B T \quad (6.9)$$

und

- k_B der Boltzmannkonstante $1,38 \cdot 10^{23} J/K$,
- T der Temperatur,
- f der Anzahl der Freiheitsgrade ($f = 5$ im diatomaren Molekül),
- m der Molekülmasse ($m_{D_2} = 4amu$) und
- $const$ einem Fitparameter.

In Abb. 6.1 haben wir nun den Schwerpunktimпульs für die vermuteten Coulombexplosionen aufgetragen und eine Maxwell-Boltzmann Verteilung angepaßt. Anhand von Abb. 6.1a) sieht man eindrucksvoll eine Übereinstimmung zwischen der theoretischen Verteilung einer Temperatur von $300K$ und der gemessenen Verteilung, bei der das diffuse Gastarget ungefähr Zimmertemperatur hatte. Die Anpassung ergibt für die anderen beiden Messungen (Abb. 6.1b) und c)) eine Gastemperatur von $100K$ und $90K$, was auf der einen Seite nicht allzu abwegig klingt, da der Jet keine Überschallexpansion erfahren hatte, andererseits muß die Übereinstimmung der theoretischen Verteilung mit der gemessenen in diesen Fällen mit Vorsicht betrachtet werden, da im Überschalljet eine der drei Impulskomponenten wesentlich kühler ist als die beiden anderen und also keine echte Maxwell-Boltzmann Verteilung vorliegt.

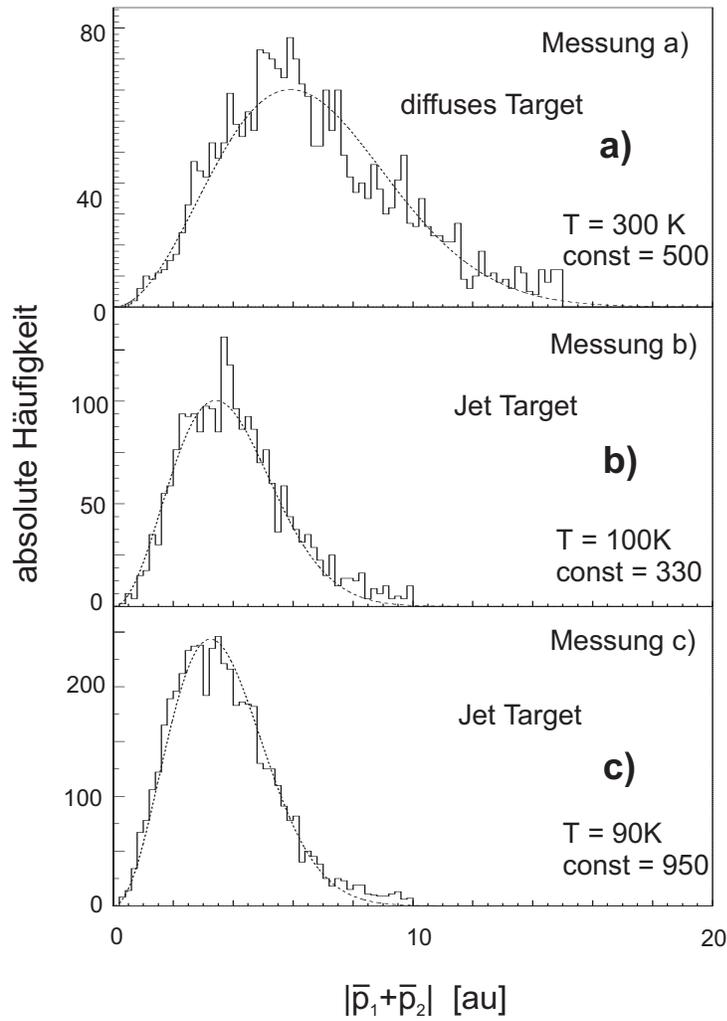
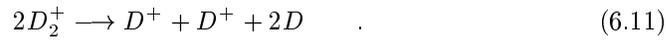
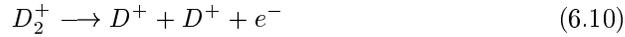


Abb. 6.1. Die Verteilung der Schwerpunktimpulse der coulombexplodierenden Moleküle sollte einer Maxwell-Boltzmann Verteilung gehorchen. Nach Gleichung 6.7 wurden Fits durchgeführt und die Parameter für jede Verteilung angegeben.

6.1.4 Zufallskoinzidenzen

Ein weiterer Punkt, den es bei der Überprüfung der Echtheit der vermuteten Coulombexplosionen zu bedenken gilt, ist die Möglichkeit, aufgrund der hohen Dissoziationsrate im Gefolge der Einfachionisation, Zufallskoinzidenzen von Deuteronen aus zwei Dissoziationen zu messen. Es wäre also ein Wettstreit der folgenden beiden Reaktionen denkbar:



Man kann sich schon durch einfache Überlegungen plausibel machen, daß Zufallskoinzidenzen aus dem Prozess 6.11 gleichmäßig über das gesamte Spektrum des Schwerpunktpulses verteilt sein müßten, und die endgültige Bestätigung dieser Überlegung liefern aus dem Datensatz des Experiments künstlich erzeugte Zufallskoinzidenzen. Bei der Messung wurden für jeden Laserpuls (Ereignis) zwei Teilchen (Treffer) selektiert und gespeichert. Um Zufallskoinzidenzen künstlich zu erzeugen, wird der Datensatz einer Messung so umgeordnet, daß das zweite Teilchen zu einem Laserpuls ursprünglich aus dem nachfolgenden Laserpuls stammt. Damit werden alle objektiv echten Korrelationen vernichtet und nur künstliche erzeugt. Das Ergebnis dieser Entkorrelierung der Daten kann den ursprünglichen Daten zum direkten Vergleich zur Seite gestellt werden. In Abb. 6.2 kann man deutlich sehen, daß die als Coulombexplosionen interpretierten Strukturen in den Zufallsdaten vollkommen fehlen. Anhand der beiden letzten Abschnitte kann also mit Sicherheit geschlußfolgert werden, daß gut vom Untergrund separierbare Coulombexplosionen der Deuteriummoleküle beobachtet wurden.

6.1.5 Raumladungseffekte

Die Multihitfähigkeit des TDC ermöglicht es, bis zu 16 Ionen, die im Laserpuls erzeugt werden, zu detektieren. Man kann somit feststellen, wieviele Ionen pro Laserpuls erzeugt wurden. Interessant ist diese Fragestellung in Bezug auf die mögliche Auswirkung von Raumladungseffekten auf die Impulse der Ionen. In Abb. 6.3 ist für die drei Messungen die Anzahl der Ionen pro Laserpuls dargestellt. Wie man sieht, werden zum Teil bis zu 10 Ionen pro Puls erzeugt. Wir wollen nun den wechselseitigen Einfluß dieser Ionen im Fokus abschätzen. Dazu berechnen wir die Dimensionen des fokalen Volumens mit den Gleichungen 3.5, 3.7 und 3.9

Messung	w_0	z_R	Volumen
a)	25 μm	2,5 mm	$2,0 \cdot 10^{-5} cm^3$
b)	22 μm	1,9 mm	$1,2 \cdot 10^{-5} cm^3$
c)	7 μm	0,19 mm	$1,2 \cdot 10^{-7} cm^3$

Da wir Wasserstoff als Target verwendeten, können wir annehmen, daß jedes Ion nur eine Elementarladung besitzt. Mit einer oberen Dichte von sechs Elementarladungen pro Puls sind in jedem Fall mindestens 75% der Ereignisse berücksichtigt. Nehmen wir der Einfachheit halber an, daß fünf dieser Ladungen in einem Ion versammelt sind, so ist das Potential, das eine Probeladung in dem Abstand $r = 10 \mu m$ erfährt, durch

$$V = e \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{5e}{r} = 0,72 meV$$

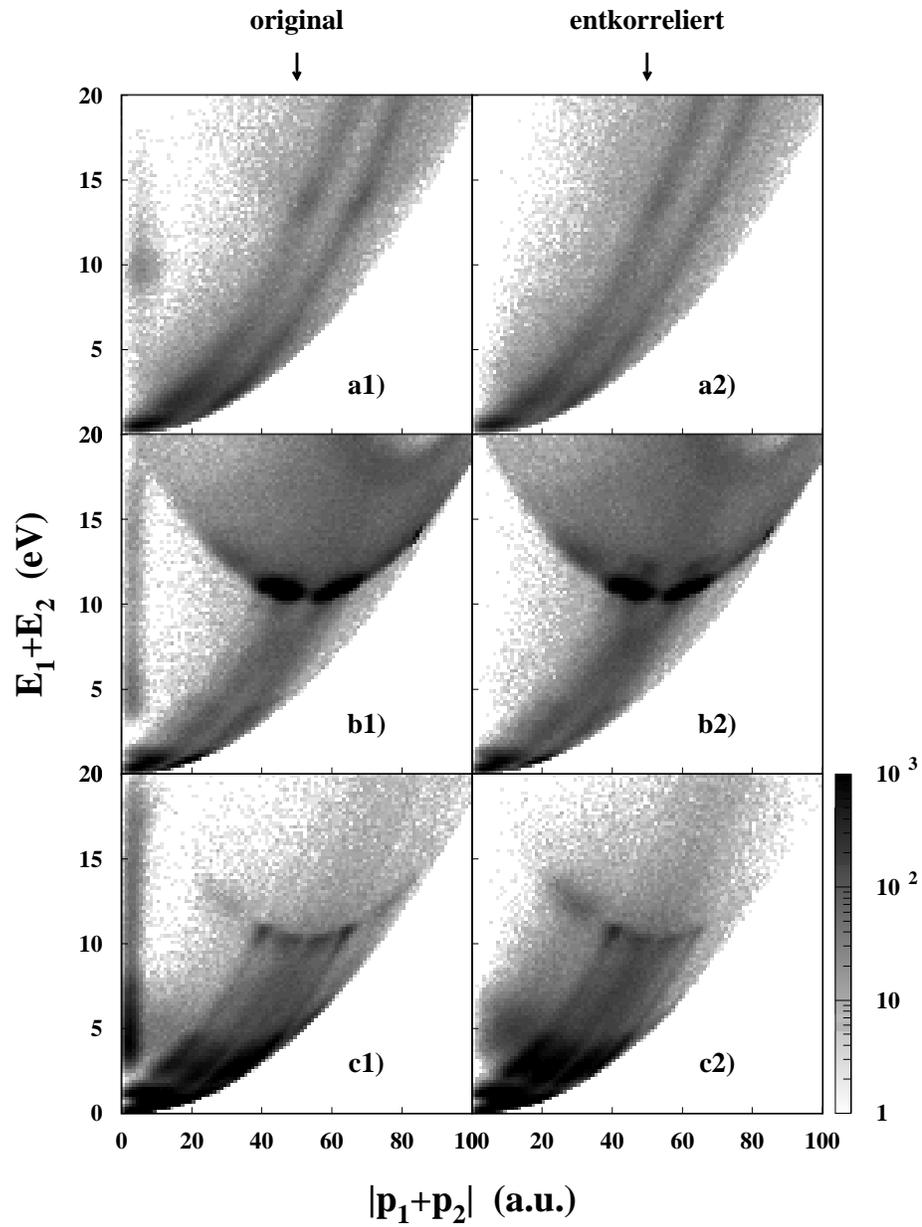


Abb. 6.2. Um auszuschließen, daß es sich bei den als Coulombexplosionen interpretierten Strukturen um zufällige Korrelationen handelt, wurden die Daten entkorreliert. Im Ergebnis sind die fraglichen Strukturen verschwunden.

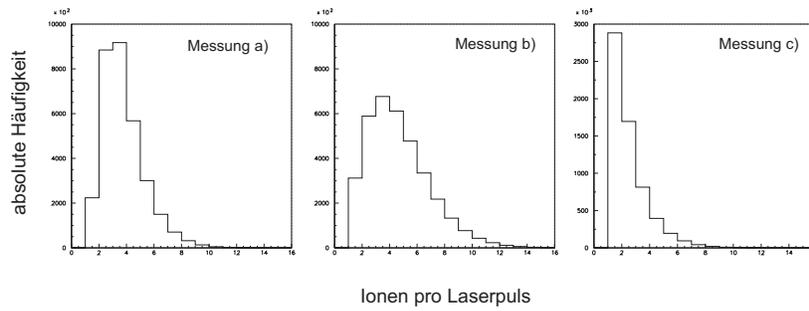


Abb. 6.3. Anzahl der Ionen pro Laserpuls für die drei Messungen. Die Verteilungen können recht gut durch eine Poissonverteilung beschrieben werden. Das geringste fokale Volumen in Messung c) hat eine deutliche Reduktion der Ionenanzahl pro Puls zur Folge.

gegeben. Verglichen mit den kinetischen Energien der Coulombexplosionen ($> 8eV$) und der dissoziativen Ionisation ($> 2,5eV$) sind das absolut vernachlässigbare Beiträge. Der Schwerpunktimpuls $|\vec{p}_1 + \vec{p}_2|$ mit maximal $15au$, bzw. $10au$ für Messung a), bzw. Messung b) und Messung c) respektive, entspricht einer kinetischen Energie von höchstens $15meV$ bzw. $7meV$. Hier kann die Wechselwirkung der Ionen im Fokus zu einer merklichen Verbreiterung der thermischen Verteilung der Schwerpunktimpulse führen. Daß die Verteilung im Fall der Messung a) dennoch so gut durch eine Maxwell-Boltzmann Verteilung angenähert wird, zeigt, daß die Abschätzung sehr großzügig angelegt war und die wechselseitige Abstoßung der Ionen im Fokus als deutlich geringer angesehen werden muß.

6.2 Interpretation der Daten

Offensichtlich kann man die bislang präsentierten Daten in zwei Gruppen trennen: Auf der einen Seite ist die Messung a) mit einer relativ langen Pulsdauer und vor allem der niedrigsten Intensität zu nennen, welcher auf der anderen Seite die Messungen b) und c) bei kürzeren und deutlich intensiveren Laserpulsen gegenüberstehen. Die Spektren legen nahe, daß es sich zumindest um zwei drastisch verschiedene Ausprägungen eines Doppelionisationsprozesses, wenn nicht gar zwei gänzlich verschiedene Mechanismen handelt. Im folgenden sollen diese beiden Gruppen getrennt weiterbehandelt werden.

6.2.1 Messung a)

Die bei diesen Versuchparametern beobachteten Coulombexplosionen deuten auf einen zuvor unbeobachteten Prozess in der Doppelionisation hin. Dieser Prozess läßt sich wie folgt charakterisieren:

1. Die freigesetzte kinetische Energie der Deuteronen beträgt $9,8eV$ mit einer Breite von ca. $2eV$ auf halber Höhe.
2. Die Winkelverteilung der coulombexplodierenden Deuteronen ist praktisch isotrop.
3. Die Ionisationswahrscheinlichkeit für diesen Prozess ist verschwindend gering mit einer Ausbeute von $0,5 - 5,0 \cdot 10^{-3}$ Doppelionisationen pro erzeugtem D_2^+ Ion.

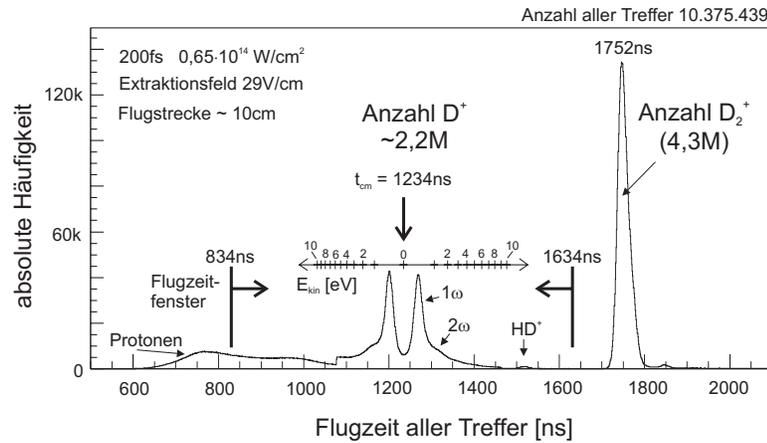


Abb. 6.4. Multihit-Flugzeitspektrum der Messung a). 800nm , 200fs Pulse und einer Intensität von $(6,4 \pm 1,8)10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$. 1ω und 2ω bezeichnen die Dissoziationskanäle durch die 1 Photonen Kreuzung, bzw. die 3 Photonen Kreuzung mit anschließender Reemission eines Photons (siehe Abs. 2.2.1).

Die Unsicherheit in Punkt 3 ist recht groß, da die D_2^+ Ionen in dieser Messung nicht vollständig erfaßt werden konnten. Im Flugzeitspektrum in Abb. 6.4 kann der linke Rand eines durch die Elektronik gesetzten Flugzeitfensters als Stufe bei 1075ns ausgemacht werden. Die Verschaltung bewirkte, daß die Ionen aus einem Laserpuls nur dann aufgezeichnet wurden, wenn mindestens eines in der Umgebung des D^+ Doppelpeaks eintraf. Daß dadurch kein nennenswerter Schnitt von Coulombexplosionen mit Energien größer 12eV erzeugt wurde, haben wir mit der Simulation eines solchen Flugzeitfensters in diesem Datensatz und anderen Datensätzen überprüft. Die sehr geringe Häufigkeit der Doppelionisation gewährleistete vermutlich, daß gleichzeitig mit einer Coulombexplosion fast immer eine Dissoziation eines anderen molekularen Ions stattfand, welches die Aufzeichnung des Ereignisses sicherte. Somit schneidet das elektronische Flugzeitfenster die sichtbare Stufe praktisch nur in die Protonenverteilung. Die breite Protonenverteilung im Spektrum ist einer Kontamination durch Pumpenöl zuzuordnen. Die Anzahl der D_2^+ Ionen ist also nicht aussagekräftig und deshalb in Klammern gesetzt. Um dennoch eine Aussage über die relative Häufigkeit der Doppelionisation machen zu können, mußte eine Abschätzung zu Hilfe genommen werden: Die Anzahl der Coulombexplosionen (2600; siehe Abb. 6.5) relativ zur Zahl der Dissoziationen (2,2M; siehe Abb. 6.4, der Protonenuntergrund ist in diesem Wert berücksichtigt) beträgt ungefähr $1,2 \cdot 10^{-3}$. Notizen im Logbuch lassen auf ein Verhältnis der Deuteronenrate zur Rate der D_2^+ von 0,22 schließen. Aus diesen beiden Verhältnissen ergibt sich eine relative Häufigkeit der Coulombexplosionen zur Einfachionisation von $2,6 \cdot 10^{-4}$.

Das wesentliche Merkmal dieser Coulombexplosion ist nun die Isotropie, die vollkommene Unabhängigkeit der emittierten Deuteronen von der Laserpolarisation. Kann man sich einen Mechanismus vorstellen, der eine Doppelionisation mit der oben aufgeführten Charakteristik zur Folge hat? Die Streuung des im Laserfeld zurückkehrenden ersten Photoelektrons am molekularen D_2^+ Ion mit Stoßionisation des zweiten Elektrons, wäre ein solcher in Frage kommender Mechanismus. Allerdings ist die ponderomotive Energie U_p des rückstreuenden Elektrons

$$U_p = 9,33 \cdot I_{14} \lambda_{\mu\text{m}}^2 \quad (6.12)$$

bei einer Intensität von $0,64 \cdot 10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$ und der Wellenlänge von 800nm mit ungefähr $3,8\text{eV}$ weit unter der benötigten Doppelionisationsenergie von 29eV , so-

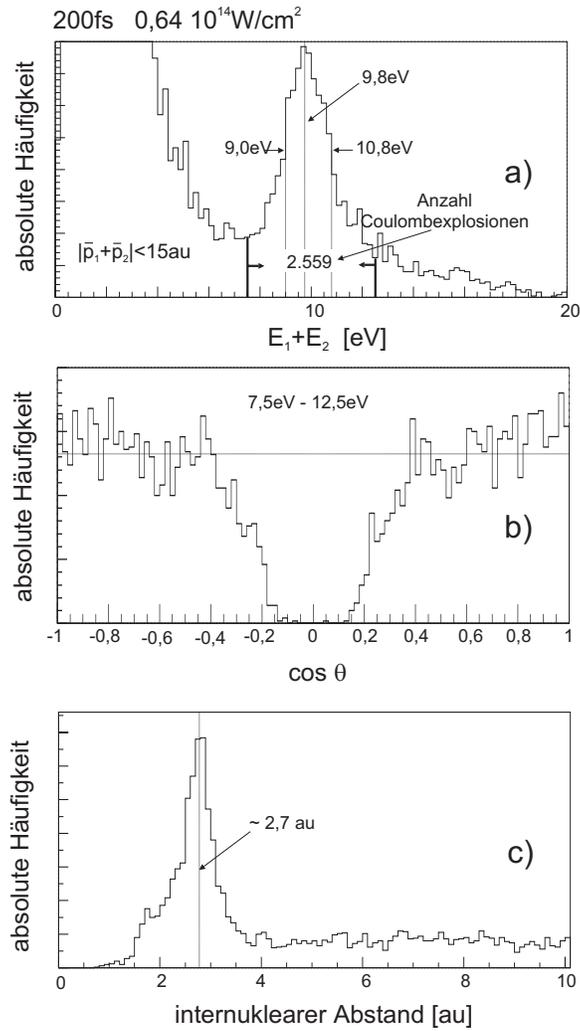


Abb. 6.5. In a) ist die freigesetzte kinetische Energie für Ereignisse mit einem Schwerpunktimpuls von weniger als 15 au dargestellt. Die Winkelverteilung der Ereignisse im 10 eV Peak in b) ist offensichtlich isotrop. c) zeigt den internuklearen Abstand aus der Coulombexplosionsenergie in a) berechnet.

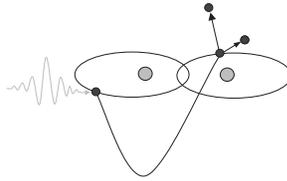


Abb. 6.6. Doppelionisation durch *Recollision* im D_2 Molekül.

daß die Stoßionisation durch Rückstreuung sicherlich ausgeschlossen werden kann. Nichtsdestotrotz bleibt die Möglichkeit, daß das rückkehrende Elektron in einen angeregten Zustand eingefangen wird und dann die Doppelionisation im folgenden Schritt sehr schnell ablaufen kann. Hierbei muß man dann die im Moment unbeantwortet bleibende Frage stellen, ob ein solcher Mechanismus die beobachtete Explosionsenergie ergeben kann.

Eine andere Möglichkeit, den beobachteten Prozess zu erklären, ist, einfach eine zweite Multiphotonionisation aus dem Grundzustand $1s\sigma$ des molekularen D_2^+ Ions anzunehmen. Anhand des Keldysh-Parameters

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} \quad (6.13)$$

mit

$$I_p = 15,4eV \quad \text{und} \quad U_p = 3,8eV$$

kann abgeschätzt werden, daß aufgrund der relativ niedrigen Intensität die erste Ionisation eine Multiphotonionisation ($\gamma = 1,4 > 1$) ist. Insbesondere ist die ansteigende Flanke des $200fs$ Pulses im Vergleich zur Schwingungsdauer recht lang und damit ist die ponderomotive Energie die meiste Zeit noch geringer als $3,8eV$. Bei der Photonenenergie von $1,5eV$ entspräche der Übergang vom Grundzustand des neutralen Moleküls zum $1s\sigma_g$ Zustand des Ions einer 10 - Photonen Absorption. Durch diese "schnelle" erste Ionisation wird das Wellenpaket des D_2 Moleküls in einem Frank-Condon-Übergang auf den Grundzustand des molekularen D_2^+ Ions projiziert und verschiedene Schwingungszustände bevölkert. Das molekulare Ion schwingt nun um den Gleichgewichtsabstand. Klassisch betrachtet ist die kinetische Energie des Moleküls an den Wendepunkten nahe Null. Mit anderen Worten hält sich das Molekül die meiste Zeit in den Wendepunkten der Schwingung auf. Im ersten angeregten Schwingungszustand $v = 1$ liegen die Wendepunkte bei $1,6au$ bzw. $2,7au$, für den inneren bzw. äußeren Wendepunkt. Die zum D_2^+ Ion gehörende Coulombexplosionskurve fällt gerade in diesen kurzen Abständen sehr steil ab, so daß die zur zweiten Ionisation benötigte Energie am äußeren Wendepunkt wesentlich geringer ausfällt. Man erhält also eine erhöhte Ionisationswahrscheinlichkeit für den äußeren Wendepunkt. Eine senkrechte Projektion von diesem Wendepunkt bei $2,7au$ internuklearem Abstand auf die Coulombkurve benötigt 17 Photonen ($25eV$) und setzt in der anschließenden Coulombexplosion eine kinetische Energie von gerade $10eV$ frei! Da das molekulare Ion in diesem Bild vom Grundzustand aus in einem Multiphotonübergang ionisiert werden würde, liegt die Erklärung für die beobachtete Anisotropie auf der Hand. Zum einen ist ein Multiphotonübergang unabhängig von der Ausrichtung der Molekülachse zur Laserpolarisation. Zum anderen ist das molekulare Dipolmoment im Grundzustand wahrscheinlich so gering, daß eine aktive Ausrichtung Molekülachse im Laserfeld nicht bewirkt wird. Vorhandene Modelle des Ionisationsprozesses von D_2^+ beschreiben eine Dissoziation entlang der Polarisationsachse mit anschließender Ionisation (siehe Abs. 2.2.3). Dann ist eine Ausrichtung der Fragmente entlang der Polarisation offensichtlich. Im vorgeschlagenen Mechanismus der beobachteten Coulombexplosionen jedoch hat die Dissoziation

θ	$R = 3au$	$R = 7au$	$R = 9,5au$
0°	0,00688	4,8	2,3
10°	0,00838	4,7	2,2
20°	0,00935	3,5	2,1
30°	0,00780	2,3	1,7
40°	0,00683	1,2	1,3
45°	0,00702	0,76	1,0
50°	0,00725	0,49	1,0
60°	0,00981	0,19	0,78
70°	0,00990	0,14	0,38
80°	0,00998	0,14	0,23
90°	0,0122	0,10	0,20

Tab. 6.1. Ionisationsraten $\Gamma[10^{13}Hz]$ für 2D H_2^+ für verschiedene internukleare Abstände R und Orientierungen θ zur Laserpolarisation bei $I = 8 \cdot 10^{13}W/cm^2$, $\lambda = 1064nm$. Tabelle aus [6] entnommen.

noch nicht begonnen, womit der für die Ausrichtung der Fragmente verantwortliche Mechanismus fehlt.

Neben der freigesetzten Energie und der Winkelverteilung sollte der Mechanismus auch eine Ionisationsrate vorhersagen, die in Übereinstimmung mit der tatsächlich beobachteten ist. Dazu wird das Verhältnis aus Coulombexplosionsrate und der Erzeugungrate von D_2^+ gebildet. Zweidimensionale Rechnungen des D_2^+ Moleküls von Bandrauk und Ruel [6] ergaben eine Ionisationsrate von $7 \cdot 10^{10}Hz$ bei einem internuklearem Abstand von $3au$ und Bedingungen, die ähnlich den unseren sind (siehe Tab. 6.1). Die Rechnungen zeigen weiterhin nur eine schwache Abhängigkeit der Ionisationsrate von der Orientierung des Moleküls. Eine Pulslänge von $200fs$ würde folglich eine relative Ionisationswahrscheinlichkeit von $1,4 \cdot 10^{-2}$ implizieren, die zwar etwas größer als die im Experiment beobachtete Wahrscheinlichkeit von 10^{-3} ist, jedoch unter Berücksichtigung der großen Unsicherheit in beiden Werten vorsichtig als Übereinstimmung mit dem Experiment gewertet werden kann.

Andererseits ergaben vor kurzem von Chelkowski [12] durchgeführte Rechnungen (mit $\lambda = 780nm$) Ionisationsraten von $4 \cdot 10^6Hz$ ($0,65 \cdot 10^{14}W/cm^2$) und $9 \cdot 10^8Hz$ ($1 \cdot 10^{14}W/cm^2$) bei einem internuklearen Abstand von $2,7au$ und $3au$, respektive. Die Ergebnisse sind auch durch neue Floquet-Rechnungen von Saalman [72] bestätigt worden. Die resultierende Ionisationswahrscheinlichkeit ($8 \cdot 10^{-7}$ bzw. $1,4 \cdot 10^{-4}$) weicht dann von dem beobachteten Wert in drastischer Weise ab, die nicht mehr erklärbar ist. Auf der Grundlage dieser Erkenntnisse muß der diskutierte Mechanismus wohl vorerst verworfen werden.

6.2.2 Messung b) und c)

Zunächst wenden wir uns wieder den Flugzeitspektren (Abb. 6.7) zu. In diesen Messungen wurde kein elektronisches Flugzeitfenster gesetzt und so sind die Verhältnisse zwischen den einzelnen Ionisationskanälen direkt aus dem Flugzeitspektrum abzulesen. Das in den Abbildungen markierte Flugzeitfenster wurde in der weiteren Datenanalyse gesetzt und beeinflußt nicht das Flugzeitspektrum selbst. Nimmt man Abb. 6.4 hinzu, ist in den Spektren die Verschiebung der Dissoziationskanäle vom 1ω zum 2ω Kanal mit ansteigender Intensität sehr schön zu beobachten. Der Abstand zwischen dem 1ω und 2ω Peak sollte Abs. 2.2.1 folgend etwa die halbe Photonenenergie $E_{800nm}/2 \sim 0,75eV$ betragen. Der Abstand wird hier auf $0,5eV$

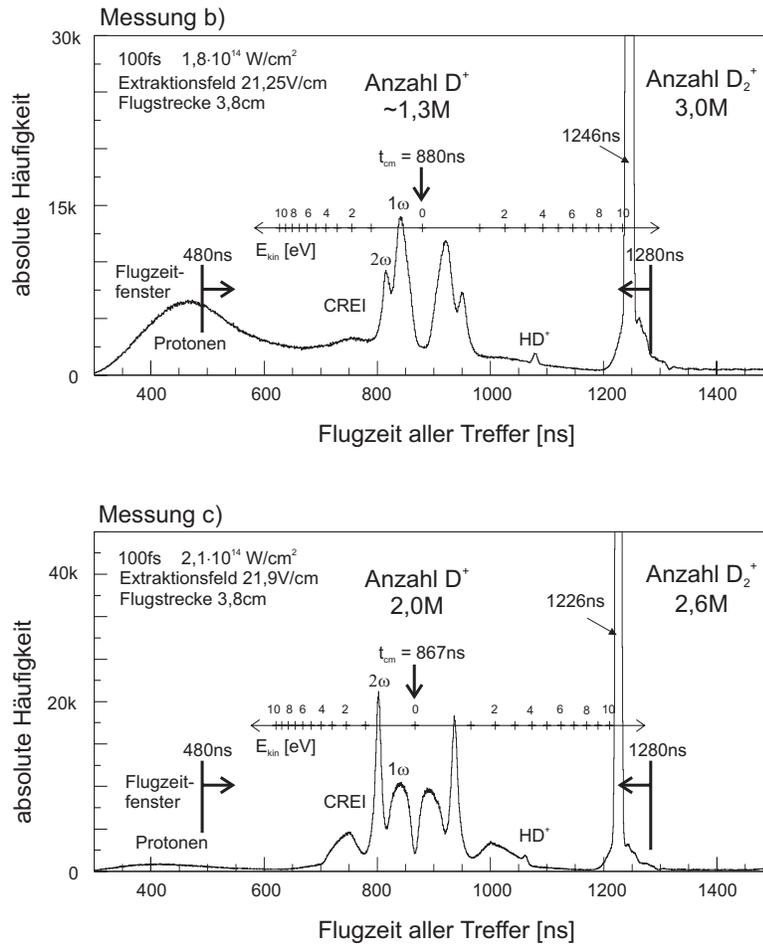


Abb. 6.7. Flugzeitspektren. 800nm, 100fs Pulse. Oben: Messung b) $1,8 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, Unten: Messung c) $2,1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. 1ω und 2ω bezeichnen die Dissoziationskanäle durch die 1 Photonen Kreuzung, bzw. die 3 Photonen Kreuzung mit anschließender Reemission eines Photons (siehe Abs. 2.2.1).

geschätzt, was ein Hinweis darauf ist, daß die Polarisation nicht genau parallel zur Spektrometerachse war. Die Energieberechnung aus allen drei Impulskomponenten bestätigt den Abstand von $0,75eV$.

Bei höheren Energien findet man insbesondere in Messung c) den ebenfalls bekannten breiten Hügel der *charge resonance enhanced ionization* (CREI). Dieser Mechanismus der Doppelionisation beginnt erst ab Intensitäten größer $10^{14}W/cm^2$ einen nennenswerten Beitrag zu liefern. Im Flugzeitspektrum der Messung c) kann man außerdem noch einen deutlich vom Untergrund trennbaren "Schwanz" von Deuteronen beobachten, die Energien bis zu $10eV$ besitzen. Auf diese schwache Struktur werden wir unsere Aufmerksamkeit konzentrieren.

In Anbetracht des enormen Fehlers bei der Intensitätsbestimmung macht es Sinn, die Laserintensität anhand der relativen Ionisationsraten zu überprüfen. Hierbei wird das Verhältnis von Deuteronen zu den molekularen Ionen gebildet. Aus Abb. 6.7 kann man die Verhältnisse beider Messungen ablesen

$$\text{Messung b)} \quad \frac{n_{D^+}}{n_{D_2^+}} \sim 43\%$$

$$\text{Messung c)} \quad \frac{n_{D^+}}{n_{D_2^+}} \sim 77\% \quad .$$

Beim Vergleich dieser Verhältnisse mit anderen Arbeiten muß auf eine möglichst gute Übereinstimmung der Versuchsparameter, speziell der Pulslänge und der Laserfrequenz, geachtet werden. Die Pulslänge hat dabei in erster Linie Einfluß auf das Verhältnis von Dissoziation zur Doppelionisation. In Abb. 6.8 sind die absoluten Ionisationsraten dargestellt, wie sie von Walsh *et al.* [94] unter vergleichbaren Versuchsbedingungen ($\lambda = 800nm$, $\tau = 150fs$) gemessen wurden. Im Fall der Messung c) weicht die so bestimmte Intensität drastisch von der berechneten Intensität ab und kann auch nicht innerhalb der angegebenen großen Fehler zur Übereinstimmung gebracht werden.

	Intensität aus	
	Ratenvergleich	Laserparametern
Messung b)	$(1,8 \pm 0,1)10^{14}W/cm^2$	$(1,7 \pm 0,77) \cdot 10^{14}W/cm^2$
Messung c)	$(2,1 \pm 0,1)10^{14}W/cm^2$	$(10 \pm 4,5) \cdot 10^{14}W/cm^2$

Der Vergleich mit weiteren Arbeiten [89, 66, 99] legt nahe, daß der Fehler in den berechneten Intensitäten zumindest bei Messung c) noch beträchtlich größer als angenommen ist. Die Ursache hierfür ist nicht mehr ausfindig zu machen. Deshalb werden wir die aus dem Ratenvergleich gewonnenen Intensitäten im weiteren als maßgeblich behandeln.

Anhand der neu bestimmten Intensitäten kann das ponderomotive Potential U_p und der Keldysh Parameter γ ($I_p \approx 29eV$) berechnet werden.

	U_p	$3,17U_p$	γ
Messung b)	$(10,7 \pm 0,6)eV$	$(33,9 \pm 1,8)eV$	$1,16 \pm 0,02$
Messung c)	$(12,5 \pm 0,6)eV$	$(39,6 \pm 1,8)eV$	$1,07 \pm 0,01$

In beiden Messungen ist γ nahe bei 1, daß heißt in einem Intensitätsregime, in dem sowohl Multiphotonionisation als auch Tunnelionisation möglich ist. Mit anderen Worten ist die Intensität gerade in dem Bereich, in dem störungstheoretische Ansätze der Multiphotonabsorption schon versagen und quasiklassische Tunnelmodelle noch nicht voll greifen.

Als nächstes betrachten wir die Coulombexplosionen etwas näher. Aus den Impulsen der einzelnen Teilchen kann die kinetische Energie berechnet werden. In Abb. 6.9 sind die Spektren der bei der Coulombexplosion gesamten freigesetzten Energie dargestellt. Hierbei ist wieder für den Schwerpunkimpuls eine obere Grenze von $10au$ gesetzt worden (siehe Abb. 5.2), so daß die zufälligen Koinzidenzen aus

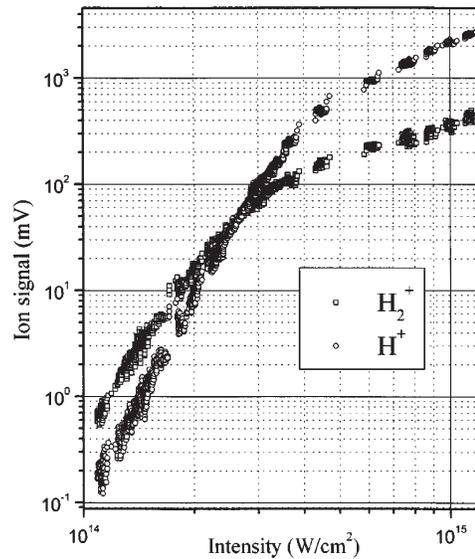


Abb. 6.8. Abhängigkeit der H^+ und H_2^+ Raten von der Intensität in einem 800nm , 150fs Laserpuls. Aus [95] entnommen.

dem Energiespektrum entfernt werden. Eine Aufteilung des Doppelionisationspektrums in zwei Energiebereiche liegt auf der Hand. Im Bereich niedriger kinetischer Energien von ca. $2,5\text{eV}$ bis 10eV kann *charge resonance enhanced ionization* als der dominierende Prozess ausgemacht werden. Vergleiche der Lage, Form und Winkelabhängigkeit dieser Struktur mit der Literatur bestätigen diese Interpretation. Der Bereich höherer Energien entspricht dem "Schwanz" aus Abb. 6.7 und weist die folgenden Merkmale auf

1. Explosionsenergien von 10eV - 18eV
2. Isotrope Winkelverteilung
3. Geringe Ionisationsrate von 1% (Messung b) bzw. $4,4\%$ (Messung c) relativ zur Rate der erzeugten D_2^+ Ionen.

Die freigesetzten Energien von 10eV - 18eV entsprechen bei senkrechter Projektion des molekularen Ions H_2^+ auf die Coulombexplosionskurve einem internuklearem Abstand von $1,5\text{au} = 0,8\text{\AA}$ bis $2,7\text{au} = 1,4\text{\AA}$ (siehe Abb. 6.10). Die ersten drei Schwingungszustände im $1s\sigma$ Grundzustands des D_2^+ Moleküls besitzen folgende Wendepunkte [83]:

v	r_{min}	r_{max}
0	$1,7\text{au}$	$2,4\text{au}$
1	$1,6\text{au}$	$2,7\text{au}$
2	$1,4\text{au}$	$2,9\text{au}$

Damit läge die Vermutung nahe, daß wir es hier ebenfalls (wie bei Messung a)) mit einer Multiphotonionisation (MPI) aus den unteren Schwingungszuständen des H_2^+ Grundzustands zu tun haben. Allerdings steigt aufgrund des schnell abfallenden Coulombpotentials die Anzahl benötigter Photonen bei kleinen internuklearen Abständen stark an. Während die MPI von einem internuklearen Abstand von $2,7\text{au}$ noch 17 Photonen benötigt (25eV), sind es bei einem Abstand von $1,5\text{au}$ schon 22 Photonen ($I_p \sim 37\text{eV}$). Wenn man bedenkt, daß die MPI ein stark nichtlinearer

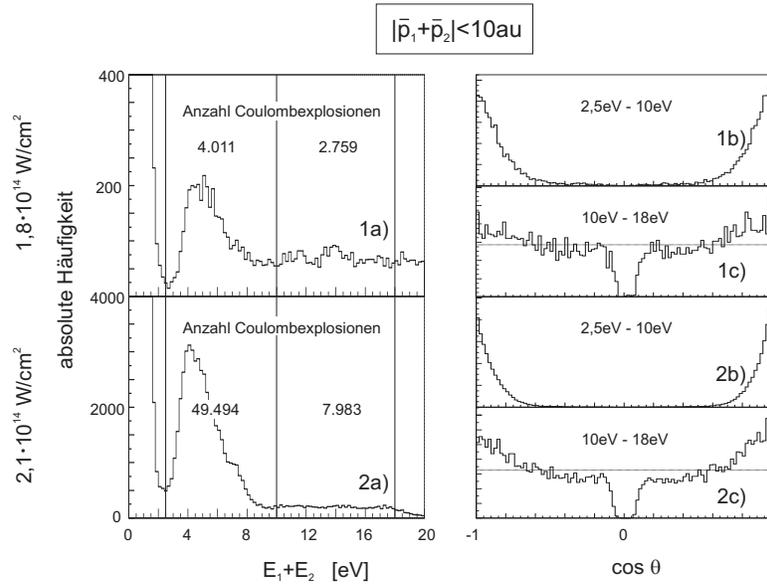


Abb. 6.9. In 1a) und 2a) ist die freigesetzte kinetische Energie für Ereignisse mit einem Schwerpunktpuls von weniger als $10au$ für die beiden Versuchsparameter dargestellt. Die Winkelverteilung von Schnitten im Energiespektrum b) $2,5eV - 10eV$ und c) $10eV - 18eV$ zeigt deutlich die Berechtigung der Zweiteilung des Energiespektrums.

Prozess ist, dessen Wahrscheinlichkeit Γ_n mit der Anzahl n der Photonen nach

$$\Gamma_n \sim I^n \quad (6.14)$$

skaliert, dann ist eine starke Bevorzugung der größeren internuklearen Abstände zu erwarten. Eine Ionisationsrate, die unabhängig vom internuklearen Abstand ist, kann somit nicht im MPI Bild erklärt werden.

Auf anderen Seite steht noch die Ionisation durch *Recollision* als in Frage kommender Prozess der näheren Untersuchung zur Verfügung. Die höheren Intensitäten in diesen Messungen haben ein größeres ponderomotives Potential zur Folge, als es in Messung a) der Fall war. Zwar reicht auch jetzt die ponderomotive Energie eines Elektrons nicht aus, um die mindestens nötigen $25eV$ Ionisationsenergie aufzubringen, jedoch kann das Elektron in Verbindung mit der Driftgeschwindigkeit die maximale Energie von $3,17U_p$ erhalten, die im Fall der Messung c) groß genug ist, um auch molekulare Ionen in einem Abstand von $1,5au$ zu ionisieren.

Die Isotropie kann in diesem Bild noch überzeugender erklärt werden. Wie oben erläutert, besitzt das neutrale Molekül praktisch kein Dipolmoment, das eine Ausrichtung entlang der Polarisationsachse bewirken könnte. Erst das molekulare Ion dissoziiert entlang der Polarisierung. Das zurückkehrende Elektron ionisiert das molekulare Ion jedoch spätestens nach einer halben Periode – eine Zeitspanne, die bei weitem nicht ausreicht, um eine Dissoziation einzuleiten –, so daß die Molekülachse nicht ausgerichtet worden sein kann.

Ein weiteres Argument, das hier für den *Recollision*-Mechanismus spricht, sind Beobachtungen von Sakai *et al.*, die die Energieverteilungen bei linear und zirkular polarisiertem Laserlicht verglichen (siehe Abb. 6.11). Den Überlegungen zum quasiklassischen *Recollision*-Modell folgend, gelangt das Elektron in zirkular polarisiertem Licht einmal ionisiert nicht mehr zum Ion zurück. Folglich müßten alle durch *Recollision* induzierten Ionisationen aus dem Spektrum verschwinden.

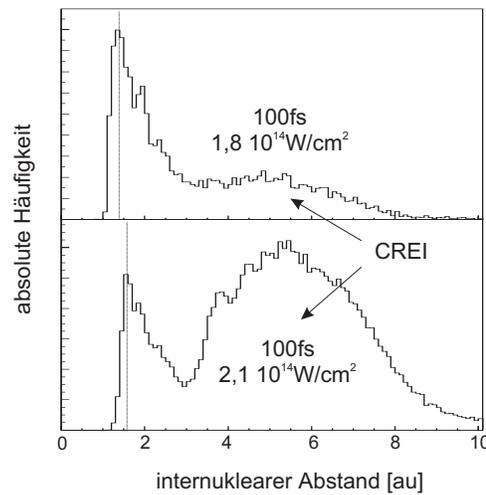


Abb. 6.10. Internuklearer Abstand aus der Coulombexplosionsenergie in Abb. 6.9 berechnet.

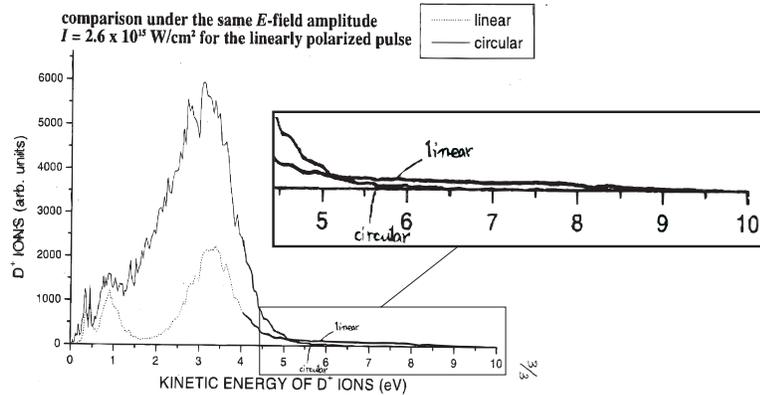


Abb. 6.11. Energieverteilungen von Deuteronen in 800nm , 20fs Pulsen. Verglichen werden die Verteilungen für linear und zirkular polarisiertem Licht. Dabei ist die Intensität des zirkular polarisierten Pulses so angepaßt, daß die gleiche Feldstärke wie im linear polarisierten Puls erzielt wird. Aus [76] entnommen.

Sakai *et al.* beobachteten im Energiespektrum von Deuteriummolekülen, die linear polarisierten, 20fs Pulsen von 800nm Wellenlänge einer Intensität von $2,6 \cdot 10^{15}\text{W}/\text{cm}^2$ ausgesetzt waren, eine lange, flache Verteilung von Deuteronen, die Energien bis ca. 9eV aufwiesen. In Form und Intensität gleicht diese Verteilung dem Hochenergie - “Schwanz” der Coulombexplosionen wie wir sie in Messung b) und c) beobachteten (vgl. mit Abb. 6.9).

Um einen Vergleich zwischen linear und zirkular polarisiertem Licht zu ermöglichen, wurde die Intensität für jede Polarisation so eingestellt, daß die Feldstärke von zirkular und linear polarisierten Lichtes ungefähr gleich war. Bei Verwendung des zirkular polarisierten Lichtes nun verschwand der Hochenergie “Schwanz”.

Zusammenfassend können wir feststellen, daß einiges dafür spricht, daß die hochenergetischen Coulombexplosionen der Messungen b) und c) aus einem *Recollision*-Prozess stammen. Da *Recollision* innerhalb einer halben Laserperiode ($800\text{nm} : 1,33\text{fs}$) stattfindet, hätten wir also einen Prozess beobachtet, der in einem hundertstel der Pulsdauer stattfindet!

Kapitel 7

Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Doppelionisation von Deuteriummolekülen in linear polarisierten, kurzen und intensiven Laserpulsen experimentell untersucht. Insbesondere wurden die Impulse der in der Ionisation entstandenen Deuteriumkerne untersucht. Daraus wurden Energiespektren und Winkelverteilungen der Molekülachse abgeleitet. Drei Messungen des Experiments wurden vorgestellt mit den folgenden Parametern:

Messung	τ	I
a)	200fs	$(0,64 \pm 0,18)10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$
b)	100fs	$(1,8 \pm 0,5)10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$
c)	100fs	$(2,1 \pm 0,5)10^{14}\text{W}/\text{cm}^2$

Es wurden zwei Doppelionisationskanäle identifiziert, die zuvor nicht beobachtet, bzw. beachtet wurden.

In Messung a) beobachteten wir eine isotrope Coulombexplosion mit einer recht schmalen Energieverteilung um 10eV gesamter freigesetzter Energie. Vieles spricht dafür, daß es sich hierbei um eine direkte Multiphoton Ionisation aus dem Grundzustand des molekularen Ions D_2^+ handelt. Dieser Prozess ist zuvor nicht beobachtet worden. Die Wahrscheinlichkeit für den Prozess im Vergleich zur Einfachionisation des neutralen Moleküls entspricht ungefähr $\sim 0,01\%$. Theoretische Rechnungen für den Prozess geben eine Wahrscheinlichkeit an, die zwei bis drei Größenordnungen darunter liegt. Diese Diskrepanz konnte nicht geklärt und bleibt späteren Untersuchungen vorbehalten.

In Messung b) und c) beobachteten wir eine im Energiespektrum breite Verteilung von Coulombexplosionen, die ebenfalls eine isotrope Winkelverteilung aufweisen. Auf der Grundlage der breiten Energieverteilung und der Isotropie wurde die Vermutung aufgestellt, daß es sich bei dem in Frage kommenden Ionisationsmechanismus um den sogenannten *Recollision*-Prozess handelt. Gestützt wird diese Interpretation durch bislang unveröffentlichte Beobachtungen von Sakai *et al.*. Bislang wurde der *Recollision*-Prozess experimentell nur an Atomen nachgewiesen. Die relative Wahrscheinlichkeit für den Prozess beträgt in Messung b) $\sim 1\%$ und in Messung c) $\sim 4,4\%$.

Literaturverzeichnis

- [1] S.W. Allendorf und A. Szöke, *Phys. Rev. A* **44** (1991), 518.
- [2] M.V. Ammosov, N.B. Delone, und V.P. Krainov, *Sov. Phys. JETP* **64** (1986), 1191.
- [3] E.E. Aubanel, A. Conjusteau, und A.D. Bandrauk, *Phys. Rev. A* **48** (1993), R4011.
- [4] E.E. Aubanel, J.-M. Gauthier, und A.D. Bandrauk, *Phys. Rev. A* **48** (1993), 2145.
- [5] S. Backus, C.G. Durfee, M.M. Murnane, und H.C. Kapteyn, *Rev. Sci. Instrum.* **69** (1998), 1207.
- [6] A.D. Bandrauk und J. Ruel, *Phys. Rev. A* **59** (1999), 2153.
- [7] A. Becker und F.H.M. Faisal, *Phys. Rev. Lett.* **59** (2000), 3456.
- [8] T. Brabec und F. Krausz, *Rev. Mod. Phys.* **72** (2000), 545.
- [9] P.H. Bucksbaum, A. Zavriyev, H.G. Muller, und D.W. Schumacher, *Phys. Rev. Lett.* **64** (1990), 1883.
- [10] K. Burnett, V.C. Reed, und P.L. Knight, *J. Phys. B* **26** (1993), 561.
- [11] P.B. Corkum Ch. Ellert, *Phys. Rev. A* **59** (1999), R3170.
- [12] S. Chelkowski, *private Kommunikation* (2000).
- [13] S. Chelkowski und G.N. Gibson, *Phys. Rev. A* **52** (1995), R3417.
- [14] S. Chelkowski, T. Zuo, O. Atabek, und A.D. Bandrauk, *Phys. Rev. A* **52** (1995), 2977.
- [15] H.W. Chong, *private Kommunikation* (2000).
- [16] P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **71** (1993), 1994.
- [17] P.B. Corkum, N.H. Burnett, und F. Brunel, *Phys. Rev. Lett.* **62** (1989), 1259.
- [18] C. Cornaggia, J. Lavancier, D. Normand, J. Morellec, P. Agostini, J.P. Chambaret, und A. Antonetti, *Phys. Rev. A* **44** (1991), 4499.
- [19] A. Czasch, Master's thesis, J.W.Goethe Universität, Frankfurt/Main, 1999.
- [20] W. Demtröder, *Laserspektroskopie*, Springer-Verlag, New York, 2000.
- [21] M.J. DeWitt und R.J. Levis, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998), 5101.
- [22] J.-C. Diels und W. Rudolph, *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*, Academic Press, 1995.
- [23] P. Dietrich und P.B. Corkum, *J. Chem. Phys.* **97** (1992), 3187.
- [24] P. Dietrich, M.Y. Ivanov, F.A. Ilkov, und P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **77** (1996), 4150.
- [25] T. Ditmire, T. Donnelly, R.W. Falcone, und M.D. Perry, *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995), 3122.
- [26] D. Dundas, J.F. McCann, J.S. Parker, und K.T. Taylor, *J. Phys. B* **33** (2000), 3621.
- [27] A. McPherson et al, *Nature* **370** (1994), 631.
- [28] S.G. Preston et al., *Phys. Rev. A* **53** (1996), R31.
- [29] F.H.M. Faisal, *J. Phys. B* **6** (1973), L89.
- [30] ———, *Theory of Multiphoton Processes*, Plenum, New York, 1987.

- [31] D.N. Fittinghof, P.R. Bolton, B. Chang, und K.C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **69** (1992), 2642.
- [32] L.J. Frasinski, J.H. Posthumus, J. Plumridge, K. Codling, P.F. Taday, und A.J. Langley, *Phys. Rev. Lett.* **83** (1999), 3625.
- [33] B. Friedrich und D. Herschbach, *Phys. Rev. Lett.* **74** (1995), 3625.
- [34] G.N. Gibson, G. Dunne, und K.J. Bergquist, *Phys. Rev. Lett.* **81** (1998), 2663.
- [35] G.N. Gibson, M. Li, C. Guo, und J. Neira, *Phys. Rev. Lett.* **79** (1997), 2022.
- [36] A. Giusti-Suzor, X. He, O. Atabek, und F.H. Mies, *Phys. Rev. Lett.* **64** (1990), 515.
- [37] A. Giusti-Suzor und F.H. Mies, *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992), 3869.
- [38] A. Giusti-Suzor, F.H. Mies, L.F. DiMauro, E. Charron, und B. Yang, *J. Phys. B* **28** (1995), 309.
- [39] M. Göppert-Mayer, *Ann. d. Physik* **9** (1931), 273.
- [40] S. Guerin, F. Monti, J.-M. Dupont, und H.R. Jauslin, *J. Phys. A* **30** (1997), 7193.
- [41] H. Hou, S.J. Gulding, C.T. Rettner, A.M. Wodtke, und D.J. Auerbach, *Science* **277** (1997), 80.
- [42] V. Hughes und L. Grabner, *Phys. Rev.* **79** (1950), 314.
- [43] F.A. Ilkov, S. Turgeon, T.D.G. Walsh, und S.L. Chin, *Chem. Phys. Lett.* **247** (1995), 1.
- [44] W. Sandner J. Ludwig, H. Rottke, *Phys. Rev. A* **56** (1997), 2168.
- [45] O. Jagutzki, Ph.D. thesis, J.W.Goethe Universität, Frankfurt/Main, 1994.
- [46] G. Jolicard und O. Atabek, *Phys. Rev. A* **46** (1992), 5845.
- [47] L.J. Frasinski K. Codling, *J. Phys. B* **26** (1993), 783.
- [48] J. Karczarek, J. Wright, P.B. Corkum, und M. Ivanov, *Phys. Rev. Lett.* **82** (1999), 3420.
- [49] L.V. Keldysh, *Soviet Physics JETP* **20** (1965), 1307.
- [50] H.A. Kramers und W. Heisenberg, *Zeits. f. Phys.* **31** (1925), 681.
- [51] P. Lambropoulos, *Adv. At. Mol. Phys.* **12** (1976), 87.
- [52] J.J. Larsen, N.J. Moerkbak, J. Olesen, N. Bierre, M. Machholm, S.R. Keiding, und H. Stapelfeldt, *J. Chem. Phys.* **109** (1998), 8857.
- [53] J.J. Larsen, H. Sakai, C.P. Safvan, I. Wendt-Larsen, und H. Stapelfeldt, *J. Chem. Phys.* **111** (1999), 7774.
- [54] ———, *J. Chem. Phys.* **111** (1999), 7774.
- [55] L.A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, und J. Thebault, *Phys. Rev. A* **15** (1977), 1604.
- [56] P.L. Knight M. Protopapas, C.H. Keitel, *Rep. Prog. Phys.* **60** (1997), 389.
- [57] Z. Mulyukov, M. Pont, und R. Shakeshaft, *Phys. Rev. A* **54** (1996), 4299.
- [58] B. Nordén, *1999 Nobel Prize in Chemistry*, Press Release, 1999.
- [59] R. Numico, A. Keller, und O. Atabek, *Phys. Rev. A* **60** (1999), 406.
- [60] S. Nüttgens, Master's thesis, J.W.Goethe Universität, Frankfurt/Main, 1994.
- [61] M.D. Perry und G. Mourou, *Science* **264** (1994), 917.
- [62] J.H. Posthumus, L.J. Frasinski, A.J. Giles, und K. Codling, *J. Phys. B* **28** (1995), L349.
- [63] J.H. Posthumus, A.J. Giles, M.R. Thomson, und K. Codling, *J. Phys. B* **29** (1996), 5811.
- [64] J.H. Posthumus, A.J. Giles, M.R. Thomson, W. Shaikh, A.J. Langley, L.J. Frasinski, und K. Codling, *J. Phys. B* **29** (1996), L525.

- [65] J.H. Posthumus, J. Plumridge, L.J. Frasinski, K. Codling, A.J. Langley, und P.F. Taday, *J. Phys. B* **31** (1998), L985.
- [66] J.H. Posthumus, J. Plumridge, P.F. Taday, J.H. Sanderson, A.J. Langley, K. Codling, und W.A. Bryan, *J. Phys. B* **32** (1999), L93.
- [67] J.H. Posthumus, J. Plumridge, M.K. Thomas, K. Codling, L.J. Frasinski, A.J. Langley, und P.F. Taday, *J. Phys. B* **31** (1998), L553.
- [68] H.R. Reiss, *Phys. Rev. A* **22** (1980), 1786.
- [69] W. M. Robertson, *Optoelectronic Techniques for Microwave and Millimeter-Wave Engineering*, Arttech House, Inc., Norwood, MA, 1995.
- [70] H. Rottke, J. Ludwig, und W. Sandner, *Phys. Rev. A* **54** (1996), 2224.
- [71] C. Rulliere, *Femtosecond Laser Pulses. Principles and Experiments*, Springer Verlag, New York, 1998.
- [72] U. Saalman, *private Kommunikation* (2000).
- [73] K. Sacha und B. Eckhardt, *Los Alamos National Laboratory e-print physics/0010031* (2000).
- [74] ———, *Phys. Rev. A* **63** (2001), 043414.
- [75] A. Saenz, *Phys. Rev. A* **61** (2000), 051402.
- [76] H. Sakai, *private Kommunikation* (2000).
- [77] H. Sakai, A. Tarasevitch, J. Danilov, H. Stapelfeldt, R.W. Yip, C. Ellert, E. Constant, und P.B. Corkum, *Phys. Rev. A* **57** (1998), 2794.
- [78] J.H. Sanderson, A. El-Zein, W.A. Bryan, W.R. Newell, A.J. Langley, und P.F. Taday, *Phys. Rev. A* **59** (1999), R2567.
- [79] K. Sändig, H. Figger, und T.W. Hänsch, *Phys. Rev. Lett.* **85** (2000), 4876.
- [80] L. Schmidt, Ph.D. thesis, J.W.Goethe Universität, Frankfurt/Main, 2000.
- [81] M. Schmidt, D. Normand, und C. Cornaggia, *Phys. Rev. Lett.* **50** (1994), 5037.
- [82] T. Seideman, M.Y. Ivanov, und P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **75** (1995), 2819.
- [83] T.E. Sharp, *Atomic Data* **2** (1971), 119.
- [84] B.W. Shore und P.L. Knight, *J. Phys. B* **24** (1987), 325.
- [85] L. Spielberger, Ph.D. thesis, J.W.Goethe Universität, Frankfurt/Main, 1996.
- [86] D.T. Strickland, Y. Beaudoin, P. Dietrich, und P.B. Corkum, *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992), 2755.
- [87] A. Talebpour, S. Larochele, und S.L. Chin, *J. Phys. B* **30** (1997), L245.
- [88] ———, *J. Phys. B* **31** (1998), L49.
- [89] M.R. Thompson, M.K. Thomas, P.F. Taday, J.H. Posthumus, A.J. Langley, L.J. Frasinski, und K. Codling, *J. Phys. B* **30** (1997), 5755.
- [90] C. Trump, H. Rottke, und W. Sandner, *Phys. Rev. A* **59** (1999), 2858.
- [91] D.M. Villeneuve, M.Y. Ivanov, und P.B. Corkum, *Phys. Rev. A* **54** (1996), 736.
- [92] D.M. Volkov, *Z. Phys.* **94** (1934), 250.
- [93] B. Walker, B. Sheehy, L.F. DiMauro, P. Agostini, K.J. Schafer, und K.C. Kulander, *Phys. Rev. Lett.* **73** (1994), 1227.
- [94] T.D.G. Walsh, F.A. Ilkov, und S.L. Chin, *J. Phys. B* **30** (1997), 2167.
- [95] T.D.G. Walsh, F.A. Ilkov, S.L. Chin, F. Châteauneuf, T.T. Nguyen-Dang, S. Chelkowski, A.D. Bandrauk, und O. Atabek, *Phys. Rev. A* **58** (1998), 3922.
- [96] T. Weber, H. Giessen, M. Weckenbrock, G. Urbasch, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, M. Vollmer, und R. Dörner, *Nature* **405** (2000), 658.
- [97] T. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, L. Spielberger, O. Jagutzki, V. Mergel, F. Afaneh, G. Urbasch, M. Vollmer, H. Giessen, und R. Dörner, *J. Phys. B* **33** (2000), L127.

- [98] ———, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000), 443.
- [99] I.D. Williams, P. McKenna, B. Srigengan, I.M.G. Johnston, W.A. Bryan, J.H. Sanderson, A. El-Zein, T.R.J. Goodworth, W.R. Newell, P.F. Taday, und A.J. Langley, *J. Phys. B* **33** (2000), 2743.
- [100] R.N. Zare, *Science* **279** (1998), 1875.
- [101] A. Zavriyev, P.H. Bucksbaum, H.G. Muller, und D.W. Schumacher, *Phys. Rev. A* **42** (1990), 5500.
- [102] A. Zavriyev, P.H. Bucksbaum, J. Squier, und F. Salane, *Phys. Rev. Lett.* **70** (1993), 1077.
- [103] T. Zuo und A.D. Bandrauk, *Phys. Rev. A* **52** (1995), R2511.
- [104] J. Zweiback, R. A. Smith, T. E. Cowan, G. Hays, K. B. Wharton, V. P. Yanovsky, und T. Ditmire, *Phys. Rev. Lett.* **84** (2000), 2634.

Das Ende.