

---

# Untersuchung der Ionisation von $H_2^+$ -Ionen in starken Laserfeldern

Dissertation  
zur Erlangung des Doktorgrades  
der Naturwissenschaften

vorgelegt beim Fachbereich Physik  
der Johann Wolfgang Goethe-Universität  
in Frankfurt am Main

von  
**Matthias Odenweller**  
aus Bad Homburg v.d.H.

Frankfurt 2010

(D30)

---

vom Fachbereich Physik der  
Johann Wolfgang Goethe-Universität als Dissertation angenommen.

Dekan: Prof. Dr. D.-H. Rischke

Gutachter: Prof. Dr. R. Dörner, Prof. Dr. H. Schmidt-Böcking

Datum der Disputation:

Widmung  
für Kristina



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung und Motivation</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Physikalische Grundlagen</b>	<b>5</b>
2.1	Theoretische Beschreibungen von Molekülen . . . . .	5
2.1.1	Born-Oppenheimer-Näherung . . . . .	6
2.1.2	Franck-Condon Übergänge . . . . .	10
2.1.3	Das Wasserstoffmolekülion . . . . .	12
2.2	Laser . . . . .	18
2.2.1	Das Ponderomotive Potential . . . . .	19
2.2.2	Keldysh-Parameter . . . . .	20
2.2.3	Ionisationswahrscheinlichkeit . . . . .	23
2.2.4	Wechselwirkung des Lasers mit diatomaren Molekülen . . . . .	25
2.2.4.1	Dressed States . . . . .	27
2.2.4.2	Dissoziation . . . . .	29
2.2.4.3	Ionisation . . . . .	32
2.3	Bisherige experimentelle Arbeiten zu diesem Thema . . . . .	38
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>45</b>
3.1	Detektorsystem . . . . .	47
3.1.1	Elektronenverstärkung . . . . .	47
3.1.2	Delayline-Anode . . . . .	50
3.1.3	Signalauskopplung . . . . .	51
3.1.4	Elektronische Datenauswertungssysteme . . . . .	53
3.2	Erzeugung der $H_2^+$ -Ionen . . . . .	56
3.3	Differentielle Pumpstufe . . . . .	60
3.4	Experimentierkammer . . . . .	64

3.5	Lasersystem . . . . .	68
3.6	Driftstrecke . . . . .	74
3.7	Das Elektronenspektrometer . . . . .	75
3.7.1	Untergrundunterdrückung . . . . .	76
3.7.2	Bestimmung der Strahleigenschaften . . . . .	79
3.8	Experimentelle Durchführung . . . . .	84
3.8.1	Einstellung des Experiments . . . . .	84
3.8.2	Datenanalyse . . . . .	89
3.8.2.1	Berechnung der Projektilimpulse . . . . .	89
3.8.2.2	Berechnung der Elektronimpulse . . . . .	90
3.8.2.3	Impulseichung bei zirkularer Polarisierung . . . . .	92
3.8.2.4	Wahl geeigneter Einschränkungen . . . . .	93
3.8.3	Auflösungen . . . . .	95
<b>4</b>	<b>Ergebnisse und Interpretation</b>	<b>99</b>
4.1	Lineare Polarisierung . . . . .	99
4.2	Zirkulare Polarisierung . . . . .	115
<b>5</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>133</b>
5.1	Zusammenfassung . . . . .	133
5.2	Ausblick . . . . .	135
<b>A</b>	<b>Potentialbelegungen</b>	<b>137</b>
<b>B</b>	<b>Einheiten und Konstanten</b>	<b>141</b>
	<b>Literatur</b>	<b>145</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>157</b>
	<b>Lebenslauf</b>	<b>161</b>

# 1. Einleitung und Motivation

*Wenn die Menschen nur über das sprächen, was sie begreifen, dann würde es sehr still auf der Welt sein. (Albert Einstein)*

Trotz diesem durchaus wahren Zitat von Albert Einstein liegt es in der Natur des Menschen, ein immer tieferes Begreifen und Verstehen der uns umgebenden Welt zu erlangen. Schon das Wort "Begreifen" deutet explizit an, dass die Erfahrung und das Beobachten wesentliche Bestandteile für die Forschung darstellen. Viele Anekdoten berichten von solchen allgemeinen Beobachtungen, die einen tiefen Einblick in verschiedenste Bereiche physikalischer Zusammenhänge liefern. So ist die Entdeckung des Auftriebs auf Archimedes überlaufendes Badewasser zurückzuführen und Isaac Newton wurde durch einen vom Baum fallenden Apfel zu seiner Gravitationstheorie inspiriert. Dies führt zu der Feststellung, dass eine möglichst genaue Beobachtung eine essentielle Grundlage für die Untersuchung der Naturgesetze, bzw. der Physik, ist. Im makroskopischen Bereich ist dieses "Beobachten" in der Regel mit einer optischen Analyse von Orten und der relativen Lage einzelner Teile zueinander gleichzusetzen. Im Bereich der Atomphysik sind die zu untersuchenden Teilchen allerdings zu klein, um sie direkt beobachten zu können. Außerdem ist die Masse der beteiligten Teilchen so gering, dass selbst eine vermeintlich neutrale (optische) Beobachtung des Systems einen erheblichen Einfluss gemäß der Heisenbergschen Unschärferelation  $\Delta x \Delta p_x \geq h$  [1] auf dieses ausübt. Dies führt im Schluss dazu, dass die Beobachtung der Ortsverteilung, insbesondere der Elektronen innerhalb eines Atoms oder Moleküls, in keinem Fall möglich ist. Daher ist man bei der Erforschung atomarer und molekularer Systeme auf andere Methoden als eine ortsbezogene Beobachtung angewiesen. Atomphysikalische Experimente bedienen sich daher stets einer Reaktion, deren Produkte eine Messung zulassen. Dies kann die Aussendung von Photonen oder Elektronen sowie bei Molekülen eine Fragmentation selbiger sein. Je nach

verwendetem Detektor und experimentellem Aufbau können nun die Rate, die Energie oder im besten Fall die Impulse der emittierten Teilchen nachgewiesen werden. Gerade im letzten Fall bietet sich die Möglichkeit, den Aufbau des Moleküls im Impulsraum zu vermessen, der sich im Gegensatz zum Ortsraum durch die Reaktion auf makroskopische Dimensionen projizieren lässt und damit eine aussagekräftige Messung ermöglicht. Ein möglichst umfassendes Wissen kann nun durch Variation sowohl des zu untersuchenden Systems als auch der zur Reaktion führenden Störung erfolgen. Neben einzelnen Photonen, wie sie beispielsweise von Synchrotrons erzeugt werden, bilden auch Ionen und Laser eine Quelle für solche Störungen.

Die Verwendung von Laserpulsen ist dabei die jüngste Methode, hat sich aber bei der Untersuchung atomarer und molekularer Systeme mittlerweile einen festen Platz gesichert. So wird der duale Charakter des Lichtes gerade bei kurzen Laserpulsen besonders deutlich, da es sowohl zu diskreten Strukturen in der Energie [2], [3] als auch zu vom elektrischen Feld bestimmten Prozessen wie Tunnelionisation [4], [5] kommt. Damit wird bereits klar, dass auch Laserfelder an sich einen vielschichtigen Einfluss auf Atome und Moleküle ausüben. Durch die Beteiligung einer größeren Anzahl von Photonen bzw. den Einfluss eines sich zeitlich verändernden Feldes sind die Mechanismen, die eine Ionisation hervorrufen, naturgemäß weniger klar definiert als beispielsweise bei der Absorption eines einzelnen Photons bekannter Energie und Polarisation. Insbesondere die Untersuchung zeitlicher Abläufe während eines Prozesses ist durch die Entwicklung immer kürzerer Laserpulse sowie die Möglichkeit, zwei Laserpulse in einem definierten zeitlichen Abstand zu generieren, von erheblichem Interesse. Laser besitzen somit eine Vielzahl von variablen Parametern wie Wellenlänge, Intensität, Pulsdauer, Polarisation, Form der Einhüllenden, ggf. dem Zeitversatz zwischen zwei Pulsen usw. und bieten daher Ansatzpunkte für die Untersuchung sehr unterschiedlicher Prozesse. Der im Rahmen dieses Experimentes verwendete Laser besitzt eine Pulslänge von ca. 40 fs bei einer Wellenlänge von 780 nm und einer Intensität von  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  bei linearer Polarisation und  $2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  bei zirkularer Polarisation.

Bei den Reaktionen kommt es in der Regel zu einer Reihe sich überlagernder und untereinander beeinflussender Effekte. Je komplizierter das untersuchte System dabei ist, um so komplizierter werden auch die beobachteten Effekte. Aus experimenteller Sicht können allerdings nur die Endzustände bestimmt werden, sodass es immer schwieriger wird, tatsächlich die Ursache für die Beobachtungen zu finden. Allgemein gilt, dass das Verständnis aller komplizierten Systeme, bis hin zu Biomolekülen, nur dann als gesichert betrachtet werden kann, wenn alle beitragenden Prozesse und Mechanismen im Einzelnen verstanden sind. Damit man diese einzelnen Prozesse untersuchen kann, gilt es, in der Hauptsache alle konkurrierenden Effekte so gut wie möglich auszuschließen. Dies führt auf die Notwendigkeit zurück, gerade einfa-



---

che Systeme zu untersuchen und dort möglichst isoliert eine bestimmte Reaktion zu vermessen und schließlich zu verstehen. In diesem Sinne besitzen solch einfache Systeme gerade wegen ihrer eingeschränkten Möglichkeiten einen hohen Reiz und eine erhebliche Relevanz, wie es auch am Beispiel des Wasserstoffatoms deutlich wird, dass als Prototyp eines Atoms nicht nur historisch, sondern auch heute noch eine herausragende Rolle spielt.

Im Hinblick auf die Einschränkung der möglichen Wechselwirkungen wurde deshalb im Rahmen dieser Arbeit das einzige Molekül untersucht, das keine Elektron-Elektron-Wechselwirkung aufweist, da es lediglich ein einziges Elektron besitzt: Das Wasserstoffmolekülion  $H_2^+$ , das analog zum Wasserstoffatom als der Molekül-Prototyp charakterisiert werden kann.

Die bisherige Forschung bezüglich dieses Molekülions in Verbindung mit starken Laserpulsen beschränkt sich im Wesentlichen auf die Untersuchung der Ionisierungswahrscheinlichkeiten, des Energie-Spektrums der Kerne sowie Eigenschaften der Vibrationswellenfunktionen. Dabei verwenden lediglich die Arbeitsgruppen um Ben-Itzhak [6], [7], [8] und Hänsch [9], [10], [11] [12] ein ionisches Target, dass in einer Ionenquelle erzeugt wird. Die alternative Erzeugung des  $H_2^+$ -Ions mittels des Lasers aus neutralen Wasserstoffmolekülen, wie beispielsweise von Gibson [13] und Staudte [14] verwendet, bietet einen weiteren Zugang zur Untersuchung dieses Molekülions. Das von Staudte durchgeführte Experiment konnte bislang als einziges die Elektronendynamik der Reaktion  $H_2^+ \rightarrow H^+ + H^+ + e^-$  vermessen. Allerdings entstehen durch die vorausgehende Erzeugung des  $H_2^+$ -Ions insgesamt zwei Elektronen, die nicht direkt voneinander getrennt gemessen werden können. Eine Unterscheidung ist nur über eine nicht eindeutige Subtraktion der Spektren möglich. Außerdem kann bei keinem Experiment, das die  $H_2^+$ -Ionen mit dem gleichen Laserpuls erzeugt der Einfluss einer Elektron-Elektron-Wechselwirkung auf die Reaktion völlig ausgeschlossen werden.

Somit gab es bislang keine experimentelle Arbeit, die die direkte Ionisation mit kurzen Laserpulsen an diesem System misst und dabei nicht nur die Eigenschaften der Kerne, sondern auch der Elektronen untersucht! Dies ist vor allem auf vom Laser produzierte Elektronen durch Ionisation des Restgases zurückzuführen, die von den aus dem Target stammenden Elektronen zunächst nicht unterscheidbar sind. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein Experiment vorgestellt, das diese Lücke schließt. Besonders im Hinblick auf das Ausschließen einer Elektron-Elektron-Wechselwirkung werden die  $H_2^+$ -Ionen mit einer Ionenquelle erzeugt, sodass der erste Ionisationsschritt  $H_2 \rightarrow H_2^+ + e^-$  räumlich und zeitlich deutlich von der eigentlichen Reaktion getrennt statt findet. Die Trennung der Restgaselektronen von den aus dem Target stammenden erfolgt durch Ausnutzung der Geschwindigkeit der  $H_2^+$ -Ionen.

Außerdem werden erste Messergebnisse für die Verteilung der Endimpulse der Elek-

tronen bezüglich der Verbindungsachse der Kerne präsentiert. Die Untersuchungen erfolgen in einem COLTRIMS (**CO**ld **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy)-ähnlichen Versuchsaufbau, sodass ein kinematisch vollständiges Experiment durchgeführt werden kann. Das bedeutet, dass alle Impulskomponenten beider Protonen sowie des Elektrons über den vollen Raumwinkel von  $4\pi$  gemessen werden.

## 2. Physikalische Grundlagen

Innerhalb der letzten Jahre haben sich ultrakurze Laserpulse als ein mächtiges Werkzeug in der Atom- und Molekülphysik erwiesen. Durch die Verwendung sehr kurzer Pulse enormer Intensität eröffneten sich dabei eine Fülle neuer Effekte und Möglichkeiten. Im Rahmen dieser Arbeit wird das erste Experiment vorgestellt, das mit Hilfe solcher Laserpulse das einfachste Molekül, das  $H_2^+$ , ionisiert und dabei außer den entstehenden Kernfragmenten auch die Impulse der Elektronen misst. Im Wesentlichen gliedert sich dieses Kapitel daher in zwei Sektionen:

Zunächst wird ein Überblick über die relevanten theoretischen Beschreibungen und Näherungen bei Molekülen gegeben. Dies wird durch eine detaillierte Beschreibung der Parameter für das Wasserstoffmolekülion ergänzt. Sodann schließt sich eine Einheit über Laserfelder an. In diesem Kontext werden auch Dissoziations- und Ionisationsmechanismen von Molekülen unter Einfluss eines Laserfeldes erläutert.

### 2.1 Theoretische Beschreibungen von Molekülen

Schließen sich zwei oder mehr Atome zu einer neuen Einheit zusammen, so bezeichnet man diese Einheit als ein *Molekül*. Dieser Zusammenschluss führt zur Ausbildung neuer Eigenschaften sowie einer Vielzahl neuer Effekte. Während die Anzahl unterschiedlicher Atome mit 118, inklusive der künstlich erzeugten, sehr überschaubar ist, gibt es eine nahezu unüberschaubare Anzahl unterschiedlicher Moleküle. Vor allem die unterschiedlichen chemischen Eigenschaften der Moleküle führen somit zur Vielfalt unserer Welt, bis hin zur Ausbildung von komplexen Biomolekülen. Das Hauptmerkmal dieser chemischen Eigenschaften, beruht auf den zu Grunde liegenden Veränderungen der Bindungs- und Reaktionsfähigkeit, die ihrerseits direkt mit der Konfiguration und Dynamik der Elektronenhülle zusammenhängen. Daher besitzen Moleküle auch gerade aus physikalischer Sicht einen erheblichen

Reiz. Allerdings ist die Beschreibung von Molekülen gegenüber der Beschreibung von Atomen deutlich komplizierter und muss im Allgemeinen auf Näherungen und Modelle zurückgreifen. Als einfachsten Molekültyp lassen sich diatomare, homonukleare Moleküle benennen, also Systeme, die aus genau zwei gleichartigen Atomen aufgebaut sind. Im Vergleich zu Atomen, besitzen diese eine ausgezeichnete Achse, nämlich die Verbindungsachse zwischen den Kernen. Dies ermöglicht die Ausbildung linearer Schwingungen der Kerne entlang dieser Achse sowie Rotationsfreiheitsgrade. Dies und das schlichte Vorhandensein mehrerer Kerne hat zur Folge, dass sich sowohl die Elektronwellenfunktionen als auch die Gesamtwellenfunktionen gegenüber atomaren Systemen deutlich verändern. Da dies im Normalfall nicht mehr analytisch behandelbar ist, muss auf Näherungen und Abschätzungen zurückgegriffen werden, die eine Beschreibung solcher Systeme sowie deren Dynamik und stattfindende Prozesse zulässt (vgl. [15]).

### 2.1.1 Born-Oppenheimer-Näherung

Die Born-Oppenheimer-Näherung stellt eine weit verbreitete Näherung bei der Lösung der Schrödinger-Gleichung für Moleküle dar. Von besonderer Bedeutung ist, dass sich die Elektronen sehr viel schneller bewegen, als die um ein Vielfaches schwereren Kerne. Dies bedeutet, dass sich die Elektronen während der langsamen Kernbewegung, annähernd so verhalten, als bewegten sich die Kerne gar nicht. Daraus resultieren Lösungen der Schrödinger-Gleichung für die Elektronwellenfunktionen bei festen Kernabständen. Die dazugehörigen von den Kernkoordinaten abhängenden Energieeigenwerte können dann als Potential in die Schrödinger-Gleichung für die Kernbewegung eingesetzt werden.

Allgemein lässt sich die zeitunabhängige Schrödinger-Gleichung für Moleküle wie folgt notieren:

$$\left( -\sum_i \frac{\hbar^2}{2 \cdot M_i} \Delta_i - \sum_j \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_e} \Delta_j + V(\vec{R}_i, \vec{r}_j) \right) \psi(\vec{R}_i, \vec{r}_j) = \varepsilon \psi(\vec{R}_i, \vec{r}_j) \quad (2.1)$$

Hierbei repräsentieren  $M_i$  und  $R_i$  die Massen bzw. Koordinaten der Kerne und  $r_j$  die Koordinaten der Elektronen. Die beiden Summen stellen daher die kinetischen Energien aller Teilchen dar. Das Potential  $V(R_i, r_j)$  hängt naturgemäß von allen Koordinaten der beteiligten Teilchen ab. Im Falle des  $H_2^+$  Ions ergibt sich aus 2.1:

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2} \left( \frac{\Delta_1}{m_p} + \frac{\Delta_2}{m_p} + \frac{\Delta_e}{m_e} \right) + V(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) \right) \psi(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) = \varepsilon \psi(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) \quad (2.2)$$

Das Potential enthält die Coulombwechselwirkung aller Teilchen:

$$V(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) = \frac{e^2}{4 \cdot \pi \cdot \epsilon_0} \cdot \left( \frac{1}{|\vec{R}_2 - \vec{R}_1|} - \frac{1}{|\vec{r}_e - \vec{R}_1|} - \frac{1}{|\vec{r}_e - \vec{R}_2|} \right) \quad (2.3)$$

Nun setzt man die Gesamtwellenfunktion  $\psi(R_1, R_2, r_e)$  als ein Produkt einer Wellenfunktion des Elektrons (bzw. der Elektronen bei Mehrelektronensystemen)  $u(R_1, R_2, r_e)$  und einer Wellenfunktion der Kerne  $w(R_1, R_2)$  an.

$$\psi(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) = u(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) \cdot w(\vec{R}_1, \vec{R}_2) \quad (2.4)$$

Setzt man dies in 2.2 ein, so ergibt sich:

$$\begin{aligned} & u \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_2 \right) w + \\ & w \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_2 \right) u + \\ & \quad u \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_e} \Delta_e \right) w + \\ & \quad w \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_e} \Delta_e \right) u + \\ & -\frac{2 \cdot \hbar^2}{2 \cdot m_p} (\nabla_1 u) \nabla_1 w - \frac{2 \cdot \hbar^2}{2 \cdot m_p} (\nabla_2 u) \nabla_2 w + \\ & \quad V u w = \varepsilon u w \end{aligned} \quad (2.5)$$

In dieser Form sind zunächst alle Terme, die sich aus der Produktregel der Differentialrechnung ergeben, dargestellt. Der dritte Term verschwindet jedoch, da  $w$  nicht von den Elektronenkoordinaten abhängt. Anhand dieser Formel wird im Folgenden das Prinzip der Born-Oppenheimer-Näherung erläutert:

Die Elektronen haben im Vergleich zu den Kernen eine sehr geringe Masse, was dazu führt, dass sie sich viel schneller auf jegliche Änderungen einstellen. Insbesondere kann man so weit gehen zu sagen, dass sich die Kerne im Vergleich zu den Elektronen in Ruhe befinden. Legt man dies zu Grunde, so kann man davon ausgehen, dass die Wellenfunktion  $u$  der Elektronen zwar von den Koordinaten der Kerne abhängt, jedoch nicht von deren Bewegung. In diesem Sinne werden die Kernkoordinaten also als Parameter verstanden, jedoch nicht mehr als Variablen. Damit verschwindet auch der zweite und der fünfte Term. Durch Umstellung lässt sich Gl. 2.5 dann in folgende Form bringen:

$$\begin{aligned}
u \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_2 \right) w + \\
w \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_e + V \right) u \approx \varepsilon u w
\end{aligned} \tag{2.6}$$

Aus dem zweiten Term kann man eine Schrödinger-Gleichung definieren, in der nur der elektronische Teil berücksichtigt wird. Die Hamilton-Funktion entspricht dann der eines Elektrons, das sich im Potential zweier Kerne mit festen Koordinaten  $\vec{R}_1$  und  $\vec{R}_2$  befindet:

$$\left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_e} \Delta_e + V(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) \right) u(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) = E(\vec{R}_1, \vec{R}_2) u(\vec{R}_1, \vec{R}_2, \vec{r}_e) \tag{2.7}$$

Da die Kernkoordinaten als Parameter in die Gleichung eingehen, hängen auch die Energieeigenwerte von diesen ab. An dieser Stelle sei bemerkt, dass man durch eine Koordinatentransformation  $\vec{r}^j = \vec{r} + \vec{R}_1$  leicht zeigen kann, dass das Potential selbst nur noch vom Abstand  $R$  der beiden Kerne abhängt, weshalb auch die Energieeigenwerte der Elektronwellenfunktion nur vom internuklearen Abstand abhängen. Die Energieeigenwerte der elektronischen Wellenfunktion sind als *Potentialkurven* sehr gebräuchlich. Potentialkurven von  $H_2^+$  finden sich zum Beispiel unter [16] (Abb. 2.2). Setzt man nun die Eigenwertgleichung in 2.6 ein ergibt sich:

$$u \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_2 \right) w + w E(\vec{R}_1, \vec{R}_2) u \approx \varepsilon u w \tag{2.8}$$

Da alle Operatoren, die auf  $u$  wirken, Multiplikationsoperatoren sind, kann die Gleichung auch als

$$\begin{aligned}
u \cdot \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_2 + E(\vec{R}_1, \vec{R}_2) \right) w \approx u \cdot (\varepsilon w) \\
\Rightarrow \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_2 + E(\vec{R}_1, \vec{R}_2) \right) w \approx \varepsilon w
\end{aligned} \tag{2.9}$$

geschrieben werden. Unter der Voraussetzung, dass die ausgeführten Näherungen gerechtfertigt sind, entsprechen die Energieeigenwerte  $\varepsilon$  der Gesamtwellenfunktion etwa denjenigen, die sich aus der Schrödinger-Gleichung der Kerne ergeben, wenn

als Potential die von  $\vec{R}_1$  und  $\vec{R}_2$  abhängenden Energieeigenwerte der Elektronwellenfunktion angesetzt werden.

Um zu zeigen, dass die Näherung tatsächlich gerechtfertigt ist, muss nun ein kritischer Blick auf die Terme in Gl. 2.5 geworfen werden, die bei der Näherung vernachlässigt wurden: Der Term:  $u \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_e} \Delta_e \right) w$  ist, wie bereits erwähnt, tatsächlich 0, da die definierte Kernwellenfunktion  $w$  nicht von  $\vec{r}_e$  abhängt. Es verbleiben also der Term  $w \left( -\frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2 \cdot m_p} \Delta_2 \right) u$  sowie die beiden Mischterme  $-\frac{2 \cdot \hbar^2}{2 \cdot m_p} (\nabla_1 u) \nabla_1 w$  und  $-\frac{2 \cdot \hbar^2}{2 \cdot m_p} (\nabla_2 u) \nabla_2 w$ :

Die absolute Größe dieser Terme spielt dabei nur eine zweitrangige Rolle. Vielmehr kommt es auf einen Vergleich mit den anderen Termen an. Um den Zusammenhang deutlich zu machen, kann man auf eine Näherung in Form einer linearen Kombination atomarer Orbitale oder LCAO (für *Linear Combination of Atomic Orbitals*) zurückgreifen. Diese geht davon aus, dass sich die Gesamtwellenfunktion der Elektronen in einem diatomaren Molekül als Superposition der atomaren Elektronwellenfunktionen darstellen lässt:

$$u = \phi_l(\vec{r} - \vec{R}_l) \pm \phi_r(\vec{r} - \vec{R}_r) \quad (2.10)$$

Dabei repräsentieren  $\phi_l$  bzw.  $\phi_r$  die Wellenfunktion der Elektronen an den jeweiligen Kernen. Aus Konventionsgründen wurde die nummerierte Indizierung hier durch eine Rechts-Links-Indizierung ersetzt, da dies bei der Aufspaltung in atomare Orbitale gebräuchlicher ist. Die Addition führt dabei zu einem symmetrischen, geraden Zustand, die Subtraktion zu einem antisymmetrischen, ungeraden Zustand.

$$\begin{aligned} u_g &= \phi_l + \phi_r \\ u_u &= \phi_l - \phi_r \end{aligned} \quad (2.11)$$

Dies entspricht einer stark vereinfachten Form der Molekülorbitale. An dieser Stelle ist allerdings eine genauere Betrachtung nicht notwendig. Deshalb wurde aus Übersichtsgründen auf eine solche verzichtet. Eine etwas bessere Darstellung, bei der auch die Normierung berücksichtigt wird, findet sich in Kapitel 2.2.4.3. Da die Wellenfunktionen von den Relativorten zu den entsprechenden Kernen abhängen, haben der Laplace-Operator der entsprechenden Kernkoordinate und der Laplace-Operator der Elektronenkoordinate die gleiche Abhängigkeit. Auch für die Anwendung des  $\nabla$ - Operators ergibt sich eine ähnliche Situation. Hier sind lediglich die Vorzei-

chen entgegengesetzt. Exemplarisch soll im Folgenden von einem geraden Zustand ausgegangen werden. Es gilt:

$$\begin{aligned}\nabla_l u_g &= \nabla_l \phi_l = -\nabla_e \phi_l \\ \nabla_r u_g &= \nabla_r \phi_r = -\nabla_e \phi_r\end{aligned}\tag{2.12}$$

und

$$\begin{aligned}\Delta_l u_g &= \Delta_l \phi_l = \Delta_e \phi_l \\ \Delta_r u_g &= \Delta_r \phi_r = \Delta_e \phi_r\end{aligned}\tag{2.13}$$

Damit lässt sich zeigen:

$$\begin{aligned}(\Delta_l + \Delta_r)u_g &= \Delta_l u_g + \Delta_r u_g = \Delta_l \phi_l + \Delta_r \phi_r \\ &= \Delta_e(\phi_l + \phi_r) = \Delta_e u_g\end{aligned}\tag{2.14}$$

Schließlich kann auf diese Weise ein Zusammenhang zwischen dem Term der Elektronenbewegung  $\left(-\frac{\hbar^2}{2m_e}\Delta_e\right)u$  und dem als Störterm vernachlässigten  $\left(-\frac{\hbar^2}{2m_p}\Delta_1 - \frac{\hbar^2}{2m_p}\Delta_2\right)u$  in Gl. 2.5 hergestellt werden: Durch die sehr viel größere Masse der Kerne ist der Störterm eben um diesen Faktor  $\frac{m_p}{m_e} = 1836$  kleiner. Für den antisymmetrischen Zustand ergibt sich das Gleiche. An dieser Stelle sei nochmals darauf hingewiesen, dass für diese Abschätzung eine weitere Näherung, nämlich die LCAO, benutzt wurde. Diese hat allerdings für nicht zu kleine Kernabstände nur vergleichsweise geringe Abweichungen von den exakten Wellenfunktionen. Auch bei den Mischtermen findet sich die  $\frac{1}{m_p}$ -Abhängigkeit, so dass man auch hier die Vernachlässigung zunächst als gerechtfertigt ansehen kann. (vgl. hierzu auch [17])

### 2.1.2 Franck-Condon Übergänge

Wie bereits im vorigen Kapitel erwähnt, bewegen sich die Elektronen innerhalb eines Moleküls sehr viel schneller als die Kerne. Schon die Born-Oppenheimer-Näherung ging davon aus, dass sich die Elektronen in guter Näherung instantan auf Veränderungen der Kernkoordinaten einstellen. Das Franck-Condon-Prinzip benutzt nun den Umkehrschluss, dass sich nämlich der Kernabstand und die Geschwindigkeit der Kerne während einer elektronischen Anregung nahezu gar nicht verändern [18], [17]. Da die x-Achse der Potentialkurven direkt den Kernabstand angibt, bedeutet dies in der Folge, dass Übergänge im Bild der Potentialkurven überwiegend senkrecht verlaufen. Von besonderer Bedeutung ist dies für die Vibrationszustände der Kern-



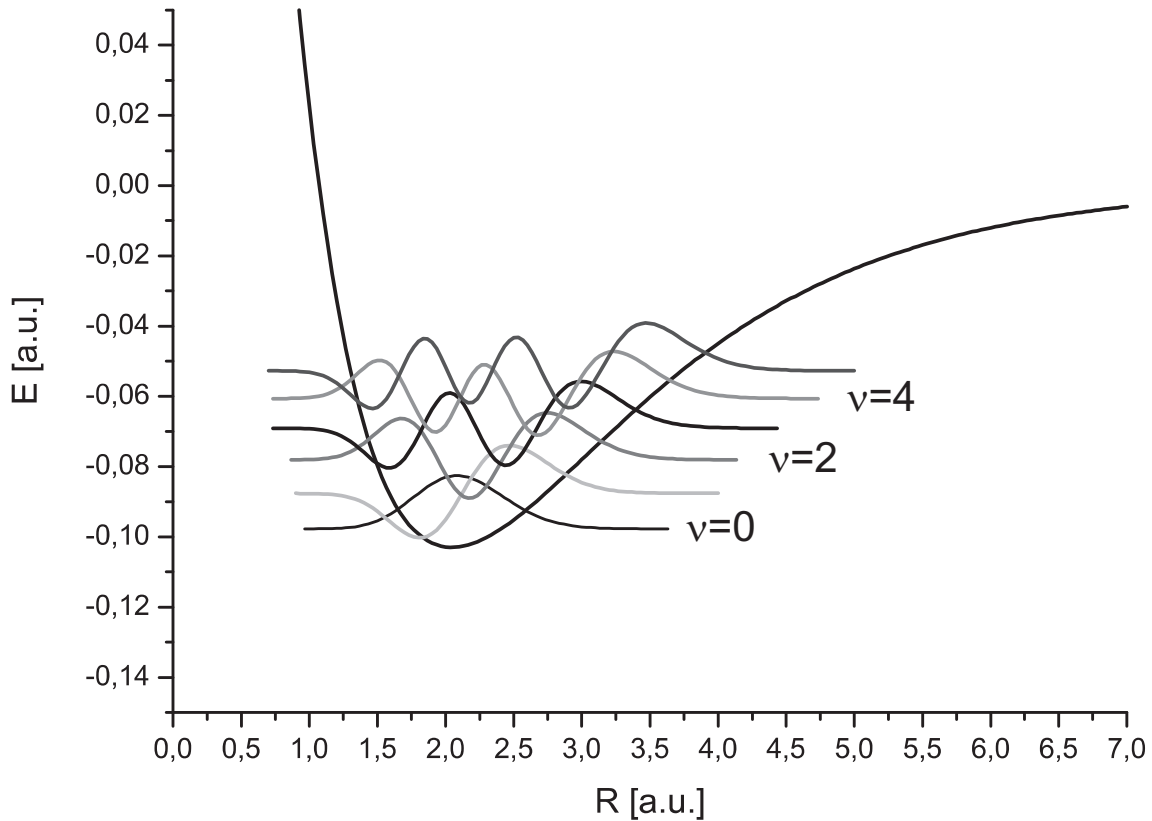


Abbildung 2.1: Vibrationswellenfunktionen im  $1s\sigma_g$ -Zustand des  $H_2^+$ -Ions

wellenfunktion  $w$ . Befindet sich das Molekül in der Born-Oppenheimer-Näherung im Anfangszustand  $\psi_1 = u_1 \cdot w_{1,\nu_1}$  mit dem elektronischen Zustand  $u_1$  und dem vibronischen Zustand  $w_{1,\nu}$  und findet eine Anregung in einen anderen elektronischen Zustand  $u_2$  statt, so werden im Allgemeinen eine ganze Reihe von vibronischen Zuständen  $w_{2,\nu'}$  besetzt. Die Besetzungswahrscheinlichkeit ergibt sich aus dem Quadrat des Überlappintegrals der Anfangskernwellenfunktion mit den verschiedenen Endwellenfunktionen (vgl. [15], [19]).

$$\theta_{\nu\nu'2} = \left| \int w_{1,\nu}(R)w_{2,\nu'}(R)dR \right|^2 \quad (2.15)$$

Abhängig von den gewählten Endwellenfunktionen liefert das Integral unterschiedliche Werte, die sich in eine Besetzungswahrscheinlichkeit umsetzen lassen. Die  $\theta_{\nu\nu'2}$  werden auch als Franck-Condon-Faktoren bezeichnet und geben direkt die Übergangswahrscheinlichkeit an. Anschaulich heißt dies, dass sich bei einem elektronischen Übergang die Kernbewegung zunächst möglichst wenig ändert, also werden Vibrationswellenfunktionen ausgewählt, die der ursprünglichen Wellenfunktion möglichst ähnlich sind, also das größte Überlappintegral haben.

Eine einfache Abschätzung des am wahrscheinlichsten besetzten Vibrationszustandes kann man erhalten, indem man im Potentialschema eine senkrechte Verbindung des Maximums des Anfangszustands zur Potentialkurve des neuen elektronischen Zustands herstellt. Die Vibrationslevel, die ihren Umkehrpunkt in der Nähe dieses Schnittpunkts haben, besitzen für gewöhnlich auch das größte Überlappintegral und damit auch die höchste Besetzungswahrscheinlichkeit.

Eine analoge Betrachtung lässt sich nun auch für Übergänge in Kontinuumszustände formulieren. In diesem Fall hängt allerdings die Endwellenfunktion vom Potential der Kontinuumszustände ab:  $w_2(E, R)$  ([19]). Damit ergibt sich:

$$\theta_{\nu E} = \left| \int w_{1,\nu'}(R)w_2(E, R)dR \right|^2 \quad (2.16)$$

Das Franck-Condon-Prinzip bietet auf diese Weise auch eine einfache und anschauliche Interpretationshilfe der Energiespektren der Kerne: Geht man auch in Fällen, in denen Kontinuumszustände erreicht werden, von einem senkrechten Übergang aus, so spiegelt die Energie der Fragmente den internuklearen Abstand zum Zeitpunkt der Anregung wider. Diese Annahme wird daher als *Reflection Approximation* bezeichnet [19], [20]. Insbesondere innerhalb eines Coulombpotentials zweier Protonen nimmt der Zusammenhang zwischen kinetischer Endenergie und dem Abstand zum Ionisationszeitpunkt unter Verwendung von atomaren Einheiten (siehe Anhang B) den sehr einfachen Zusammenhang  $KER = \frac{1}{R}$  an, wobei  $KER$  (*Kinetic Energy Release*) die kinetische Energie der Kerne im Schwerpunktsystem bezeichnet.

Naturgemäß muss die Summe aller Franck-Condon-Faktoren für einen Übergang aus dem Anfangszustand  $w_{1,\nu}(R)$  1 sein:

$$\sum_{\nu'} \theta_{\nu\nu'} + \int \theta_{\nu E} dE = 1 \quad (2.17)$$

### 2.1.3 Das Wasserstoffmolekülion

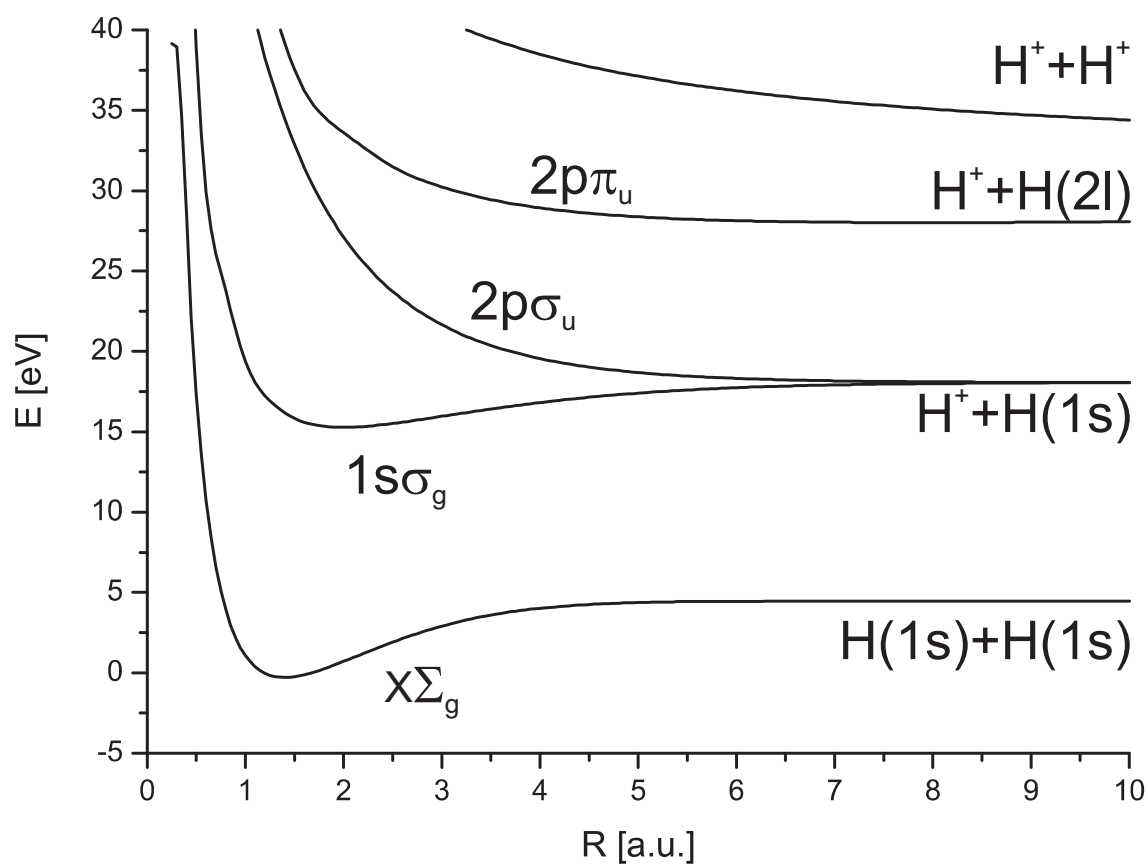
Das Wasserstoffmolekülion  $H_2^+$  stellt mit zwei Protonen und einem einzigen Elektron das einfachste Molekül dar. Von besonderer Bedeutung sind dabei folgende Tatsachen:

- Da es nur ein einziges Elektron in dem Molekül gibt, existiert keine Elektron-Elektron-Wechselwirkung.
- Das  $H_2^+$  besitzt nur einen gebundenen elektronischen Zustand, den Grundzustand  $1s\sigma_g$ .

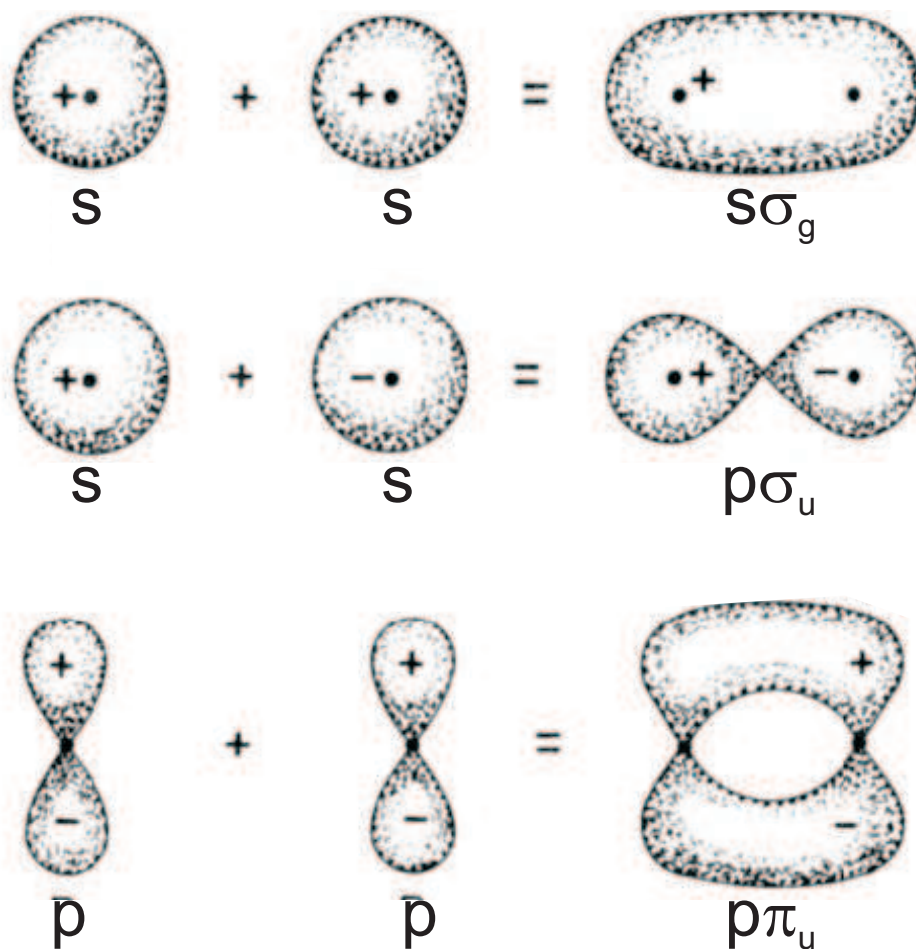
- Der erste angeregte elektronische Zustand  $2p\sigma_u$  ist mit dem Grundzustand stark dipol-gekoppelt. Bei einem Abstand der beiden Kerne von etwa 4,7 a.u. beträgt der Energieunterschied der beiden Zustände 1,6 eV, was der Photonenenergie für eine Wellenlänge von 780nm entspricht.
- Der nächst höhere elektronische Zustand ist energetisch sehr gut getrennt ( $>9$  eV), sodass Übergänge zu diesem sehr unwahrscheinlich sind.

Eine hilfreiche grafische Darstellung bei der Betrachtung zweiatomiger Moleküle sind die bereits in Kapitel 2.1.1 erwähnten Potentialkurven der elektronischen Wellenfunktionen. Für das Wasserstoffmolekül und seine Ionen finden sich diese von Sharp in [16] aufgelistet. In Abb. 2.2 sind die relevanten Daten dargestellt. Neben dem Grundzustand des neutralen Wasserstoffs  $x\Sigma_g$  sind der Grundzustand des  $H_2^+$   $1s\sigma_g$ , der erste angeregte elektronische Zustand  $2p\sigma_u$  sowie der nächst höhere  $2p\pi_u$  dargestellt. Die zu den drei dargestellten Zuständen des Moleküliens gehörenden Elektron-Orbitale sowie deren Entsprechungen für den Grenzfall separierter Atome sind in Abb. 2.3 zu sehen. In dieser Darstellung ist auch zu erkennen, dass der  $1s\sigma_g$ -Grundzustand und der  $2p\sigma_u$ -Zustand für den Grenzfall separierter Atome die gleiche Elektronenverteilung aufweisen, weshalb diese beiden Zustände auch dasselbe Dissoziationslimit besitzen.

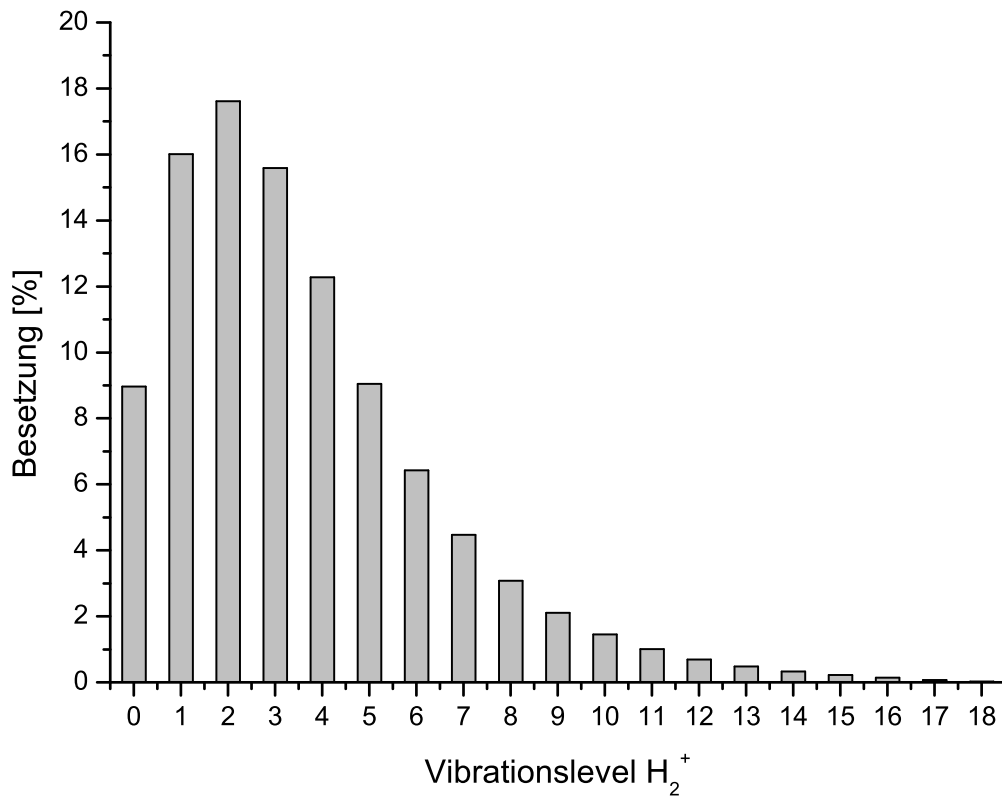
Das Potentialminimum des Ions ist gegenüber dem des neutralen Wasserstoffmoleküls zu größeren Kernabständen verschoben. Legt man einen Franck-Condon-Übergang aus dem Grundzustand des  $H_2$  zu Grunde, folgt eine Besetzung der Vibrationsniveaus des  $H_2^+$ -Ions, wie sie in Tabelle 2.1 bzw. Abb. 2.4 dargestellt ist. Die Vibrationslevel des  $1s\sigma_g$ -Zustands besetzen dabei Energien, wie sie aus Tab. 2.1 zu entnehmen sind. Gewichtet man die Vibrationswellenfunktionen mit den entsprechenden Franck-Condon-Faktoren kann eine Abstandsverteilung für den elektronischen Grundzustand des  $H_2^+$ -Ions gewonnen werden (Abb. 2.5). Projeziert man diese Verteilung auf das Coulomb-Potential des vollständig ionisierten Moleküls, erhält man die KER-Verteilung, für den Fall einer vom internuklearen Abstand unabhängigen Ionisationswahrscheinlichkeit (Abb. 2.6).



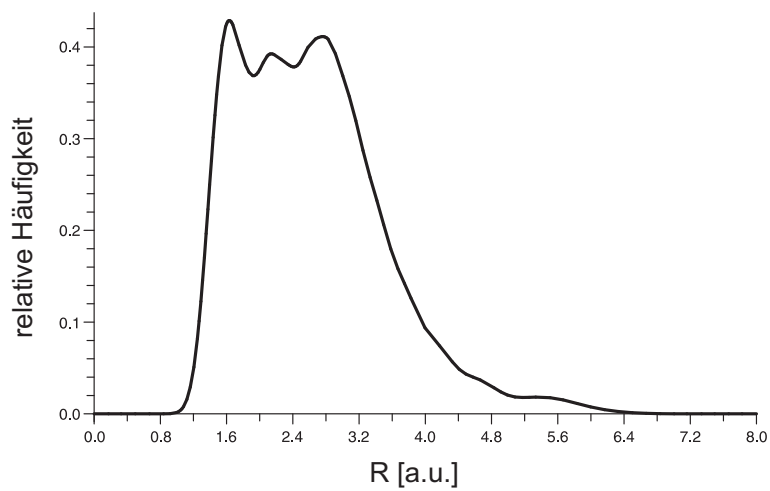
**Abbildung 2.2:** Potentialkurven für den elektronischen Grundzustand des neutralen  $H_2$  Moleküls und für die energetisch tiefsten elektronischen Zustände des  $H_2^+$ -Moleküls.



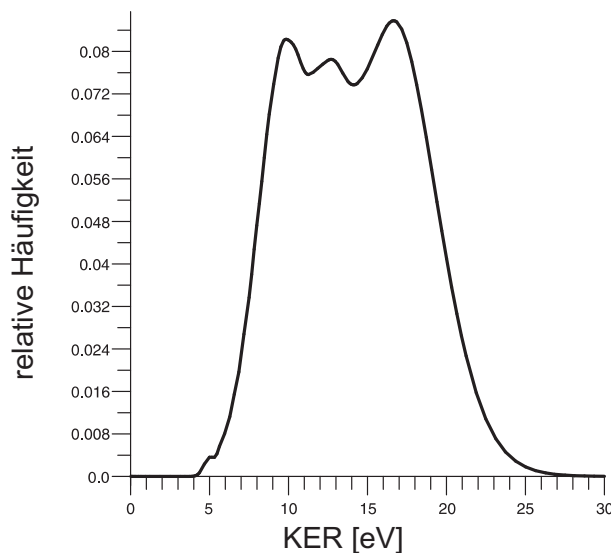
**Abbildung 2.3:** Schematische Darstellung der Orbitale des elektronischen Grundzustands  $1s\sigma_g$  sowie des ersten angeregten  $2p\sigma_u$  und des  $2p\pi_u$  Zustands. des  $H_2^+$ -Ions. Links sind die korrespondierenden atomaren Orbitale dargestellt, aus denen die Molekülorbitale entstehen. (aus [21])



**Abbildung 2.4:** Besetzung der Vibrationsniveaus des  $1\sigma_g$ -Zustands aus dem Vibrations-Grundzustand des  $x \sum_g$ -Zustands des neutralen Wasserstoffmoleküls, wie in Tab. 2.1 gelistet.



**Abbildung 2.5:** Abstandsverteilung für den  $1\sigma_g$ -Zustand des Wasserstoffmoleküls bei einem Franck-Condon-Übergang aus dem Grundzustand des neutralen Wasserstoffmoleküls.



**Abbildung 2.6:** KER-Verteilung, wie sie aus der Abstandsverteilung in Abb. 2.5 bei abstandsunabhängiger Ionisationswahrscheinlichkeit folgen würde.

Vibrationslevel	$\theta_{0\nu^2}$ [22]	Energie [eV] [23]	Internuklearer Abstand des äußeren Umkehrpunktes [a.u.]
$\nu = 0$	0,087088	-2,64628	2,35
$\nu = 1$	0,115556		
$\nu = 2$	0,17113	-2,11875	2,95
$\nu = 3$	0,15147		
$\nu = 4$	0,11930	-1,65228	3,45
$\nu = 5$	0,08793		
$\nu = 6$	0,06240	-1,24361	4,00
$\nu = 7$	0,04338		
$\nu = 8$	0,02986	-0,890709	4,55
$\nu = 9$	0,02051		
$\nu = 10$	0,01410	-0,592871	5,15
$\nu = 11$	0,00973		
$\nu = 12$	0,00674	-0,350985	5,90
$\nu = 13$	0,00466		
$\nu = 14$	0,00321	-0,167931	6,9
$\nu = 15$	0,00215		
$\nu = 16$	0,00135	-0,004914	
$\nu = 17$	0,00070		
$\nu = 18$	0,00018	-0,0018	
$\nu = \infty$	0	0	$\infty$

**Tabelle 2.1:** Eigenschaften der Vibrationszustände des  $1s\sigma_g$ -Zustandes des  $H_2^+$ -Ions. Die Franck-Condon-Faktoren  $\theta_{0\nu^2}$  in der zweiten Spalte geben die Besetzungswahrscheinlichkeit bei einem Franck-Condon-Übergang  $H_2(x \sum_g, \nu = 0) \rightarrow H_2^+(1s\sigma_g, \nu)$  an (vgl. 2.4).

## 2.2 Laser

Laser haben spätestens seit Markteinführung der CD-Player in vielen Bereichen des alltäglichen Lebens Einzug gehalten. Ausschlaggebend für diesen Durchbruch sind die herausragenden optischen Eigenschaften gegenüber anderen Lichtquellen. So verfügt das Laserlicht über eine große räumliche und zeitliche Kohärenz, sodass eine feste Phasenbeziehung über einen großen Bereich des Photonenfeldes zu finden ist. Das Licht ist für nicht zu kurze Laserpulse monochromatisch und verlässt den Laser in Form eines parallelen Strahlenbündels, das sehr hohe Lichtintensitäten erreichen kann. Jede dieser spezifischen Eigenschaften spielt bei den verschiedenen Anwendungen eine Rolle. Laser finden sich als Referenzwerkzeuge in der Baubranche, messen Entfernungen sowie Geschwindigkeiten, werden zum Schweißen und Bohren benutzt, dienen in Form von Laserpointern als "Zeigestock", bilden in der Medizin ein wichtiges chirurgisches Werkzeug, sind aus der Datenverarbeitung nicht mehr wegzudenken und finden sich auch in Form von Lasershows als reine Unterhaltungsinstrumente.

Auch für die Forschung ist der Laser ein wichtiges Werkzeug, dessen Bedeutung gerade in jüngster Zeit durch die Entwicklung zunehmend kürzerer Pulse immer mehr zunimmt. Abgesehen von den nicht-linearen Effekten, die sich bei der Wechselwirkung eines äußerst dichten Photonenfeldes mit Materie ergeben, werden zeitabhängige Beobachtungen sehr schnell ablaufender Prozesse, z.B. im atomaren Bereich, zunehmend möglich. Der Laser stellt damit eine wertvolle Methode zur Untersuchung elementarer Prozesse dar. Durch die besonderen Eigenschaften des Laserlichtes bilden solche Versuche zu anderen mit Synchrotronstrahlung oder Teilchenkollisionen durchgeführten Experimenten eine wichtige Ergänzung.

Das Wort Laser bildet die Abkürzung für *Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation* also Lichtverstärkung durch induzierte (oder stimulierte) Strahlungsemission. Grundlegend ist damit für das Vorhandensein von Laserstrahlung die so genannte stimulierte Emission, wie sie in zwei identischen Veröffentlichungen 1916 und 1917 von Einstein erstmalig postuliert wurde [24]. Besitzt ein Atom (oder Molekül) zwei Zustände  $Z_n$  und  $Z_m$ , mit der Energiedifferenz  $E_{Z_m} - E_{Z_n} = E$ , so kann ein Photon mit entsprechender Frequenz  $E = h \cdot \nu$  einen Übergang zwischen diesen Zuständen veranlassen. Im Fall der Photoabsorption  $Z_n + h \cdot \nu \rightarrow Z_m$  überträgt das Photon sowohl Energie als auch Impuls auf das atomare System. Aus Symmetriegründen folgt nun, dass, wenn ein solches Photon einen Übergang von  $Z_m$  nach  $Z_n$  induziert, der Impulsübertrag auf das System genau entgegengesetzt zu dem der Photoabsorption ist. Dies führt zu einer Emission eines Photons, das neben der gleichen Energie auch die gleiche Phasenbeziehung wie das einfallende Photon aufweist. Um diese stimulierte Emission nutzen zu können, ist es jedoch erforderlich, dass sich mehr Atome im Zustand  $Z_m$  als im energetisch tiefer gelegenen Zustand  $Z_n$  befin-



den, da es anderenfalls zu mehr Absorptionsprozessen als zu stimulierter Emission kommt. Da jedoch naturgemäß physikalische Systeme im Normalfall einen Zustand niedrigster Energie einnehmen, bezeichnet man die häufigere Besetzung des energetisch höheren gegenüber des niedrigeren Zustands als *Besetzungsinversion*. Um diese zu gewährleisten, muss dem System Energie zugeführt werden, die nicht aus dem zu verstärkenden Photonenfeld herrührt. Dieser Vorgang wird auch als *Pumpen* bezeichnet.

Der erste experimentelle Nachweis der stimulierten Emission konnte von Rudolf Ladenburg 1928 [25] erbracht werden. 1954 gelang der Gruppe um Charles H. Townes die Herstellung des ersten Masers, der Licht im Mikrowellenbereich emittierte [26], [27]. 1958 konnten Charles H. Townes und Arthur L. Schawlow theoretisch zeigen, dass Maser auch im optischen Bereich möglich sind. 1960 schließlich veröffentlichte Maiman [28] die erfolgreiche Fertigstellung des ersten Lasers im optischen Bereich.

Bezeichnend für Wechselwirkungsprozesse des Laserfeldes mit atomaren Systemen ist der Einfluss, den das Potential des Laserfeldes auf den Zustand des Systems und auf ggf. emittierte Elektronen ausübt. Gerade bei solch intensiver Strahlung rückt die Dualität des Welle-Teilchen-Charakters des Lichts in einen neuen Blickwinkel. Während aus dem äußeren Photoeffekt folgt, dass Lichtquanten nur dann von atomaren Systemen absorbiert werden können, wenn die Energie **eines** Photons der notwendigen Energie für den Übergang entspricht, bzw. wenn die Photonenenergie größer ist als die Auslösearbeit, können im Widerspruch dazu durch die hohe Photondichte innerhalb eines Laserfeldes auch mehrere Photonen an dasselbe Elektron koppeln. Je nach Intensität und Wellenlänge des Lichts kann die Beschreibung dieser Prozesse sogar in dem für atomare Systeme normalerweise inadäquaten Bild mit Licht als elektromagnetischer Welle erfolgen. In diesem Kapitel sollen nun die wichtigsten Eigenschaften des Laserlichtes sowie dessen Einfluss auf atomare und molekulare Systeme erläutert werden.

### 2.2.1 Das Ponderomotive Potential

Als Ponderomotives Potential, im Folgenden mit  $U_p$  abgekürzt, bezeichnet man die mittlere kinetische Energie von Elektronen, die sich im Laserfeld bewegen. Das elektrische Feld des Lasers sei entlang der x-Achse polarisiert:

$$E(t) = E_0 \cdot \sin(\omega \cdot t) \cdot \vec{e}_x \quad (2.18)$$

$\omega = \frac{2\pi}{T}$  bezeichnet hierin die Kreisfrequenz der Laserstrahlung. Dieses Feld übt eine Kraft auf Elektronen aus, die zu einer Beschleunigung führt:

$$a(t) = \frac{E_0 \cdot e}{m_e} \cdot \sin(\omega \cdot t) \cdot \vec{e}_x \quad (2.19)$$

Durch Integration ergibt sich daraus die Geschwindigkeit und dem entsprechend auch die kinetische Energie  $E_{kin} = \frac{1}{2}mv^2$ . Da  $U_p$  als die mittlere kinetische Energie definiert ist, folgt:

$$\begin{aligned} U_{p,lin} &= \left\langle \frac{1}{2} \cdot m_e \cdot v^2 \right\rangle = \frac{1}{T} \int_0^T \frac{1}{2} \cdot m_e \cdot v^2 dt \\ &= \frac{1}{2} \cdot m_e \cdot \left( \frac{e \cdot E_0}{m_e \cdot \omega} \right)^2 \cdot \frac{1}{T} \int_0^T (\cos^2(\omega \cdot t)) dt = \frac{e^2 \cdot E_0^2}{4 \cdot m_e \cdot \omega^2} \end{aligned} \quad (2.20)$$

Über den Zusammenhang

$$I_{lin} = \frac{1}{2} \cdot c_0 \cdot \epsilon \cdot E^2 \quad (2.21)$$

und unter Einberechnung der Konstanten lässt sich das Ponderomotive Potential auch schreiben als:

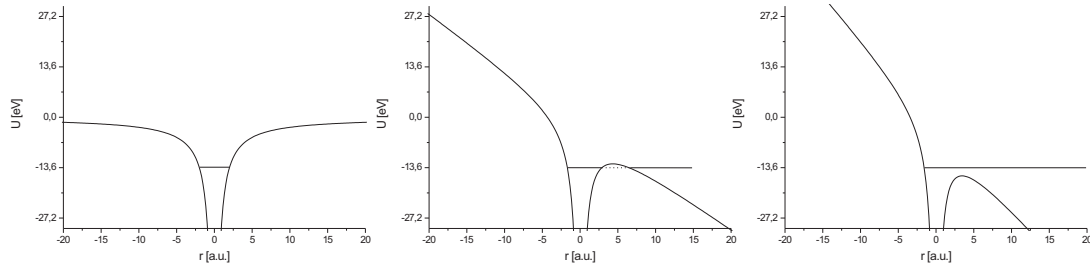
$$U_p[eV] = 9,33729 \cdot I[10^{14} \frac{W}{cm^2}] \cdot (\lambda[\mu m])^2 \quad (2.22)$$

Die Bedeutung des Ponderomotiven Potentials lässt sich in zwei Bereiche unterteilen. Zum einen gibt es die mittlere Energie eines bereits ionisierten Elektrons an. Zum anderen beschreibt es auch den Einfluss, den das Laserfeld auf gebundene Elektronen ausübt. So werden die Energieeigenwerte von Rydberg-Zuständen um etwa diese Energie angehoben. Obwohl der Einfluss auf energetisch niedrigere Zustände recht gering ist, bedeutet die Anhebung der Rhydberg-Zustände dennoch eine Anhebung der Ionisationsschwelle ?? Dies führt zum sogenannten *Channel-closing* .

### 2.2.2 Keldysh-Parameter

Setzt man ein Atom einem starken Laserfeld aus, so ergibt sich das für die Elektronen resultierende Potential aus einer Überlagerung des Coulomb-Potentials des Kerns und dem zeitabhängigen Potential des Lasers:

$$\begin{aligned} U_{Kern} &= -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{q_{Kern}}{r} \\ U_{Laser} &= E(t) \cdot r \\ U_{ges} &= U_{Kern} + U_{Laser} = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \cdot \frac{q_{Kern}}{r} + E(t) \cdot r \end{aligned} \quad (2.23)$$



**Abbildung 2.7:** Potential eines Wasserstoffatoms im Laserpotential. a) ohne Laser b)  $I = 1 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  - Tunnelionisation c)  $I = 2,5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  - Over-Barrier-Ionisation

Durch diese Überlagerung wird das Coulomb-Potential der Kerne auf der einen Seite angehoben und auf der anderen abgesenkt, sodass dort eine Potentialbarriere endlicher Breite entsteht. Dies ist in Abb. 2.7 verdeutlicht. Da sich die Wellenfunktion gebundener Elektronen auch in die Potentialbarriere erstreckt, ergibt sich bei dem kombinierten Kern-Laser-Potential ein Überlapp mit dem Kontinuum. Die Größe dieses Überlapps hängt direkt von der Höhe und der Breite der Barriere und damit unmittelbar vom Ionisationspotential  $I_p$  und der Feldstärke  $E$  des Lasers ab. Aus diesem Überlapp kann nun eine "Tunnelzeit" ermittelt werden. Bei genügend hoher Feldstärke kann die Potentialbarriere so weit abgesenkt werden, dass sich das Elektron in keinem gebundenen Zustand mehr befindet. In diesem Fall spricht man von *Over-Barrier-Ionisation*.

In einem semi-klassischen Bild kann die "Tunnelzeit" für ein Elektron im kombinierten Potential von Kern und Laser beschrieben werden als [29]:

$$\tau = \frac{\sqrt{2 \cdot I_p \cdot m_e}}{e \cdot E} \quad (2.24)$$

Der Kehrwert dieser Zeit gibt die Tunnelfrequenz (vgl.[29]):

$$\omega_t = \frac{e \cdot E}{\sqrt{2 \cdot I_p \cdot m_e}} \quad (2.25)$$

Diese Gleichung geht von einer Barriere der Länge  $l = \frac{I_p}{e \cdot E}$  aus, was eine grobe Näherung darstellt, da das Coulomb-Potential vernachlässigt wird. Zudem wird das elektrische Feld als konstant angenommen, was trivialerweise bei einem Laserfeld nicht zutreffend ist. Deshalb gewinnt dieser Ausdruck erst dann an praktischer Relevanz, wenn man ihn in Beziehung zur Kreisfrequenz  $\omega_{Laser}$  des Lasers setzt. Das Verhältnis dieser beiden Frequenzen heißt Keldysh-Parameter  $\gamma$ .

$$\gamma = \frac{\omega_{Laser}}{\omega_t} \quad (2.26)$$

Intensität [ $10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ]	$R = 2 \text{ a.u.}$	$R = 6 \text{ a.u.}$	$R = 12 \text{ a.u.}$
0,35	2,7	2,1	1,9
1	1,6	1,2	1,2

**Tabelle 2.2:** Keldysh-Parameter für den elektronischen Grundzustand von  $H_2^+$  bei  $\lambda = 800 \text{ nm}$  [30].

Ist die Kreisfrequenz des Lasers gegenüber der Tunnelfrequenz sehr klein, also  $\gamma \ll 1$ , so ist das Laserfeld in Bezug auf Tunneleffekte nahezu statisch und 2.24 und 2.25 bilden eine gute Näherung. In der Konsequenz ist der Ionisationsprozess in guter Näherung als Tunnelionisation beschreibbar. Im umgekehrten Fall:  $\gamma \gg 1$  ist das Tunnelbild nicht wirklich anwendbar, da sich die Richtung des Laserfeldes umkehrt, bevor das Elektron durch die Potentialbarriere tunneln kann. Schreibt man  $\omega_{Laser}$  aus einer Umformung von Gl. 2.20 wie folgt

$$\omega_{Laser} = \sqrt{\frac{e^2 \cdot E^2}{4 \cdot m_e \cdot U_p}} \quad (2.27)$$

und ersetzt man in Gl. 2.26 den Ausdruck aus Gl. 2.25 und 2.27, ergibt sich:

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2 \cdot U_p}} \quad (2.28)$$

Der Keldysh-Parameter  $\gamma$  stellt damit auch einen Zusammenhang zwischen der potentiellen Energie des gebundenen Elektrons mit Ionisationspotential  $I_p$  und dem lasergenerierten Potential  $U_p$  dar. Er liefert damit eine wichtige Kenngröße, welche Beschreibung für das Gesamtsystem Atom im Laserfeld am praktikabelsten ist: Während für  $\gamma \gg 1$  das Ionisationspotential dominiert und damit das Laserfeld als Störung des Atompotentials aufgefasst werden kann, ist für  $\gamma \ll 1$  das Laserpotential dominant. Es wird deutlich, dass diese Unterscheidung zugleich auch den Übergang zwischen einer Beschreibung in einem Multi-Photonen-Bild, in dem das Laserfeld in Form einer Störungsrechnung behandelt werden kann hin zu einem Bild mit Atom im elektrischen Feld des Lasers und damit einem Tunnelbild darstellt. In Tabelle 2.2 sind einige Werte für den Keldysh-Parameter bei  $H_2^+$  nach [30] aufgelistet. Demnach findet der Übergang zum Tunnelregime etwa bei einer Intensität von  $I = 1 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  statt.

### 2.2.3 Ionisationswahrscheinlichkeit

Um quantitative Aussagen über das Verhalten unter dem Einfluss starker Laserfelder beschreiben zu können, ist es notwendig, möglichst genaue Aussagen über die jeweiligen Ionisationsraten zu erhalten. Grundsätzlich ergeben sich allerdings im Multiphotonen- und im Tunnelregime unterschiedliche Zusammenhänge.

Im Falle einer Multiphotonenionisation ergibt sich die Ionisationsrate zu [31], [4]:

$$w_{\text{Multiphoton}} = \alpha_n \cdot E^{2n} \quad (2.29)$$

Hierin ist  $E$  die Amplitude des elektrischen Feldes und  $n$  die Anzahl absorbiertener Photonen.  $\alpha_n$  ist ein von der Photonenzahl abhängiger Proportionalitätsfaktor. Bei höheren Intensitäten, wie sie im Rahmen dieses Experimentes benutzt wurden, ist das Tunnelbild zutreffender. Eine Formulierung für die Tunnelwahrscheinlichkeit und damit die Ionisationsrate für ein atomares System unter dem Einfluss eines Laserfeldes liefert die nach Ammosov, Delone und Krainov benannte ADK-Theorie. Danach ergibt sich für die Ionisationsrate aus einem Wasserstoffatom in einem  $s$ -Zustand unter Einfluss linear polarisierter Laserstrahlung die so genannte ADK-Formel (vgl. [32], [4]):

$$w_{\text{ADK},\text{lin}} = \sqrt{\frac{3 \cdot n^* \cdot E}{\pi \cdot Z^3}} \cdot \frac{E \cdot D^2}{8 \cdot \pi \cdot Z} \cdot \exp\left(-\frac{2 \cdot Z^3}{3 \cdot n^{*3} \cdot E}\right) \quad (2.30)$$

$E$  bezeichnet die Feldamplitude des Laserfeldes und  $Z$  die Ladung nach der Ionisation.  $n^*$  ist definiert als

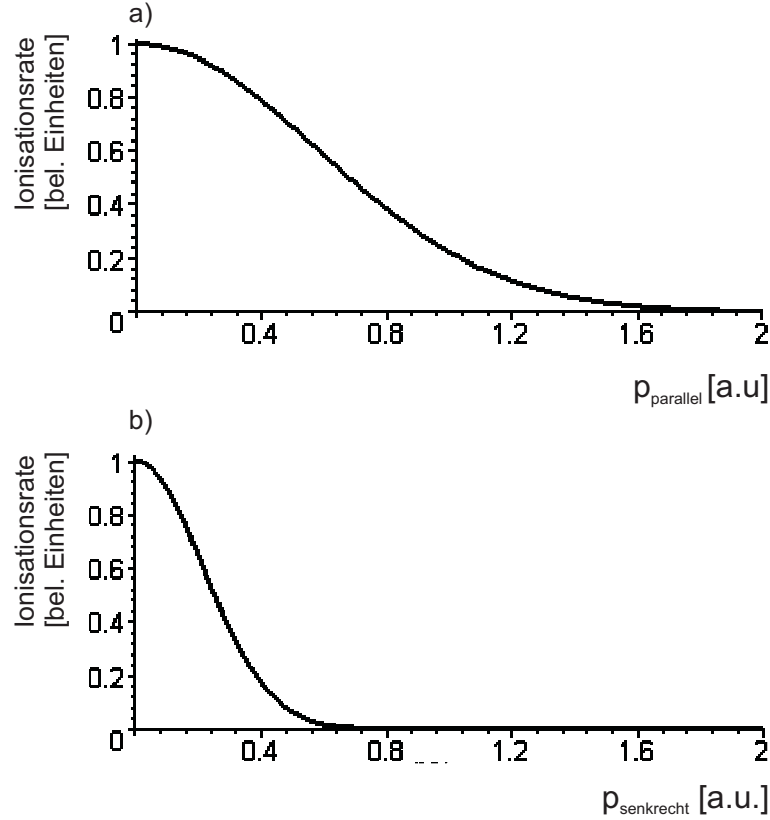
$$n^* = \frac{Z}{\sqrt{2 \cdot I_p}} \quad (2.31)$$

und  $D$  bildet eine Abkürzung für:

$$D = \left(\frac{4 \cdot e \cdot Z^3}{E \cdot n^{*4}}\right)^{n^*} \quad (2.32)$$

Geht man von einer Anfangsimpulsverteilung der Elektronen und einer Beschleunigung der emittierten Elektronen im elektrischen Feld des Lasers aus (vgl. Kapitel 4), kann eine Ionisationsrate in Abhängigkeit von den Impulskomponenten der Elektronen parallel und senkrecht zur Polarisationsrichtung formuliert werden [33]:

$$w(p_{\parallel}) = w(0) \cdot \exp\left(-\frac{p_{\parallel} \cdot \gamma^3}{3 \cdot \omega}\right) \quad (2.33)$$



**Abbildung 2.8:** Ionisationsraten für lineare Laserpolarisation der Intensität  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  für Impulse in a) Richtung der Polarisation und b) in senkrechter Richtung (nach [33]).

Darin bezeichnet  $p_{||}$  die Impulskomponente des Elektrons in Polarisationsrichtung,  $\gamma$  den Keldysh-Parameter 2.26,  $\omega$  die Kreisfrequenz des Lasers und  $w(0)$  einen Normierungsfaktor. Für Impulse senkrecht zur Laserpolarisation ergibt sich dagegen:

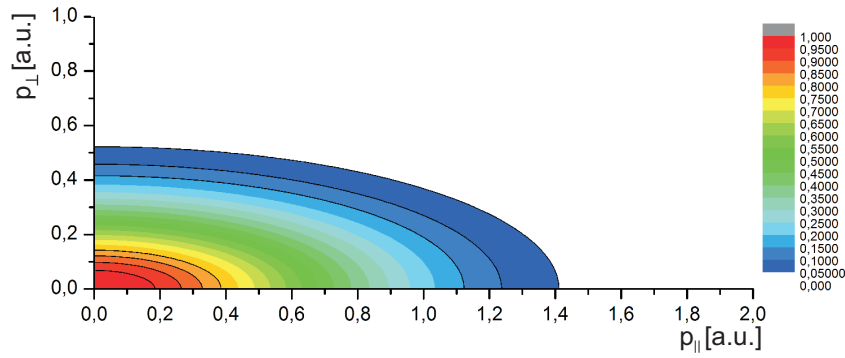
$$w(p_{\perp}) = w(0) \cdot \exp\left(-\frac{\sqrt{2 \cdot I_p} \cdot p_{\perp}^2}{E}\right) \quad (2.34)$$

mit dem Ionisationspotential  $I_p$ , und der Feldamplitude des Lichts  $E$ . Die resultierenden Verteilungen für ein Ionisationspotential von 28 eV und einer Laserintensität von  $I = 6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  sind in Abb. 2.8 dargestellt.

Schließlich kann daraus eine von beiden Impulskomponenten abhängige Ionisationsrate definiert werden:

$$w_{lin}(p_{||}, p_{\perp}) = w(0) \cdot \exp\left(-\frac{p_{||}^2 \cdot \omega^2 \cdot (2 \cdot I_p)^{\frac{3}{2}}}{3 \cdot E^3} - \frac{p_{\perp}^2 \cdot (2 \cdot I_p)^{\frac{1}{2}}}{E}\right) \quad (2.35)$$

Diese ist in Abb. 2.9 zu sehen.



**Abbildung 2.9:** Impulsabhängige Ionisationsraten nach Gl. 2.35 für lineare Laserpolarisation der Intensität  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ .

Für zirkulare Polarisation schließlich ergibt sich die Gleichung für die Gesamtionsationswahrscheinlichkeit:

$$w_{AKD} = \frac{E \cdot D^2}{8 \cdot \pi \cdot Z} \cdot \exp\left(-\frac{2 \cdot Z^3}{3 \cdot n^{*3} \cdot E}\right) \quad (2.36)$$

Dieser fehlt im Vergleich zu ihrer Entsprechung bei linearer Polarisation (Gl. 2.30) lediglich der erste Faktor. Ein größerer Unterschied lässt sich dagegen für die Abhängigkeit von den Elektronimpulsen finden [33]:

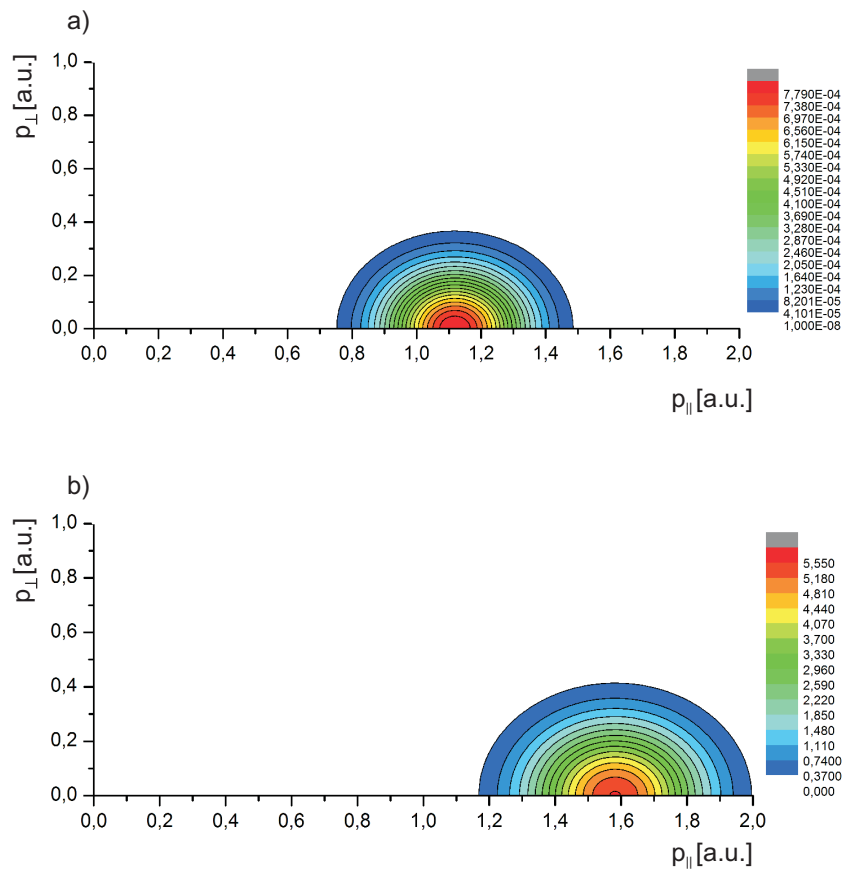
$$w_{zir}(p_{||}, p_{\perp}) = w(0) \cdot \exp\left(-\frac{2}{3 \cdot E} \cdot \left[2 \cdot I_p + p_{\perp}^2 + \left(p_{||} - \frac{E}{\omega}\right)^2\right]^{\frac{3}{2}}\right) \quad (2.37)$$

Eine Abbildung der so erhaltenen Impulsverteilungen für Intensitäten von  $3 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  und  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  sind in Abb. 2.10 dargestellt.

Es ist zu erkennen, dass die Verteilung in paralleler Richtung nun nicht mehr bei 0 ihr Maximum hat, sondern vielmehr an einem zum elektrischen Feld proportionalen Impuls. Einer doppelten Intensität entspricht daher ein  $\sqrt{2}$  größerer Impuls, wie in Abb. 2.10 zu erkennen ist.

## 2.2.4 Wechselwirkung des Lasers mit diatomaren Molekülen

Im Gegensatz zu Atomen weisen Moleküle einige zusätzliche Eigenschaften auf. Zum einen sind die Energieeigenwerte der Wellenfunktion mit dem Vorhandensein mehrerer Kerne von deren Relativkoordinaten abhängig. Wie bereits in Kapitel 2.1.1 erwähnt wurde, sind im Falle des diatomaren Wasserstoffs die Energieeigenwerte maßgeblich abhängig vom internuklearen Abstand  $R$  der Kerne. Trivialerweise ist auch die Existenz von Vibrations- und Rotationszuständen auf Moleküle beschränkt.



**Abbildung 2.10:** Impulsabhängige Ionisationsraten nach Gl. 2.37 für zirkuläre Laserpolarisation der Intensität a)  $I = 3 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  und b)  $I = 6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$



Außerdem kann bei diatomaren Molekülen eine ausgezeichnete Achse definiert werden. Damit geht aber unmittelbar einher, dass nun auch die Ausrichtung zwischen dieser Achse und dem elektrischen Feldvektor des Lasers eine Rolle spielen kann. Dies alles führt zu zusätzlichen Effekten bei Wechselwirkungen von Laser und Molekülen, beispielsweise die Ausrichtung der Moleküle durch den Laser [34], Bond-Softening [35] und Bond-Hardening [36], Above-Threshold-Dissociation (ATD) [37], Charge-Resonanz-Enhanced-Ionization (CREI) [38], um nur einige zu nennen. Im Folgenden sollen diejenigen Prozesse und notwendigen Formalismen erklärt werden, die für diese Arbeit eine Rolle spielen.

#### 2.2.4.1 Dressed States

Wie bereits in Kapitel 2.2.2 deutlich wurde, nimmt das Laserfeld einen deutlichen Einfluss auf die Struktur des Potentials. Es ist daher direkt ersichtlich, dass eine Beschreibung der Zustände des Systems diesen Einfluss berücksichtigen muss. Potentialkurven, wie sie in Kapitel 2.1.1 eingeführt und in Abb. 2.2 dargestellt wurden, sind daher keine adäquate Beschreibung der Zustände im Laserfeld. Um das Verhalten des Gesamtsystems inklusive Laserfeld theoretisch beschreiben zu können, benötigt man einen Formalismus, der es gestattet, die Eigenwertgleichung für die Wellenfunktion zu lösen. Dabei ergibt sich allerdings das Problem, dass durch die hohe Intensität des Laserfelds das Potential und damit auch der Hamilton Operator explizit zeitabhängig werden. Um trotzdem eine Aussage über die Zustände bzw. die Energieeigenwerte treffen zu können, kann mittels des *Floquet-Theorems* dieses zeitabhängige System durch eine Summe zeitunabhängiger Zustände ausgedrückt werden. Diese resultierenden Zustände werden als *Dressed States* bezeichnet. Zur Vereinfachung werden bei der Behandlung atomare Einheiten verwendet ( $\hbar = 1$ ). Essentiell für die Anwendung des Floquet-Theorems ist die Periodizität der Störung, was bei nicht zu kurzen Pulsen eine vertretbare Näherung darstellt. Die Schrödinger-Gleichung besitzt allgemein die Form:

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi\rangle = H |\Psi\rangle \quad (2.38)$$

mit dem Hamilton-Operator:

$$H(\vec{r}, t) = H_0(\vec{r}) + V(\vec{r}, t) \quad (2.39)$$

Dabei stellt  $H_0 = T + V_0(\vec{r})$  den Hamilton-Operator des ungestörten Systems einschließlich der zeitunabhängigen Potentiale,  $V(\vec{r}, t)$  die periodische Störung durch das Laserpotential dar [39], [40]:

$$V(\vec{r}, t + \tau) = V(\vec{r}, t) \quad (2.40)$$

Die Periodizität der Störung erlaubt es, die Wellenfunktionen nach dem Floquet-Theorem als

$$|\Psi(\vec{r}, t)\rangle = e^{-i\epsilon t} \cdot |\phi(\vec{r}, t)\rangle \quad (2.41)$$

zu schreiben. Der Parameter  $\epsilon$  wird Quasienergie genannt, sodass man  $\Psi$  auch als Quasienergiezustandsfunktion [39] bezeichnet. Die Funktion  $|\phi(\vec{r}, t)\rangle$  weist die gleiche Periodizität wie das Laserpotential auf:

$$|\phi(\vec{r}, t + \tau)\rangle = |\phi(\vec{r}, t)\rangle \quad (2.42)$$

Dies eröffnet die Möglichkeit,  $|\phi\rangle$  und damit auch  $|\Psi\rangle$  in einer Fourier-Reihe zu entwickeln [41], [39]:

$$|\Psi(\vec{r}, t)\rangle = e^{-i\epsilon t} \cdot \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-in\omega t} |\phi_n(\vec{r})\rangle \quad (2.43)$$

Zieht man den ersten Faktor in 2.43 in die Summe, ergibt sich:

$$|\Psi(\vec{r}, t)\rangle = \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-i(\epsilon+n\omega)t} |\phi_n(\vec{r})\rangle \quad (2.44)$$

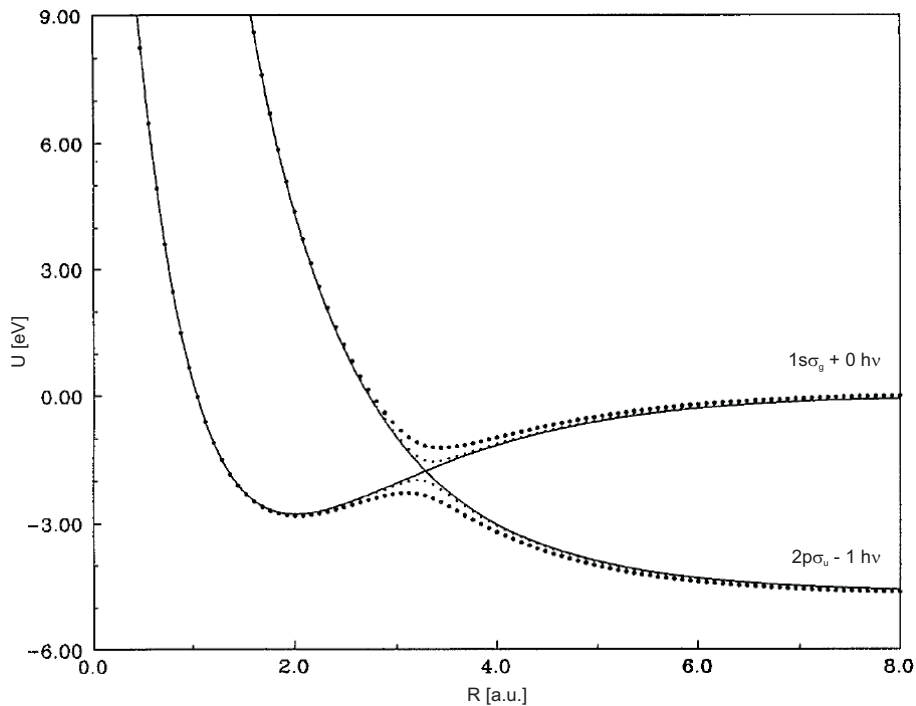
Diese Gleichung kann nun in die Schrödinger-Gleichung 2.38 eingesetzt werden und liefert ein System aus gekoppelten Eigenwertgleichungen:

$$i \frac{\partial}{\partial t} |\Psi(\vec{r}, t)\rangle = \sum_{n=-\infty}^{\infty} (\epsilon + n\omega) e^{-i(\epsilon+n\omega)t} |\phi_n\rangle = \sum_{n=-\infty}^{\infty} H e^{-i(\epsilon+n\omega)t} |\phi_n\rangle \quad (2.45)$$

Damit gilt für jedes  $n$ :

$$(\epsilon + n\omega) |\phi_n\rangle = H |\phi_n\rangle \quad (2.46)$$

Anstelle eines zeitabhängigen Zustands tritt damit eine Reihe zeitunabhängiger Zustände, die sich jeweils um ganzzahlige Vielfache der Photonenenergie unterscheiden. Im Wesentlichen entsprechen die entstehenden Potentialkurven einer Schar verschobener Born-Oppenheimer-Potentiale [42]. Betrachtet man den  $1s\sigma_g$ -Grundzustand und den ersten angeregten  $2p\sigma_u$ -Zustand des  $H_2^+$ , so entstehen durch die Verschiebung sich kreuzende diabatische Potentialkurven [43]. In der Nähe dieser Kreuzungen findet nun insbesondere eine Kopplung der Zustände statt, sodass sich die entsprechenden Potentialkurven an diesen Stellen abstoßen und es zu adiabatischen, intensitätsabhängigen vermiedenen Kreuzungen kommt, wie in Abb. 2.11 dargestellt ist.



**Abbildung 2.11:** Intensitätsabhängige vermiedene Kreuzungen im Bereich der Ein-Photon-Resonanz des  $1s\sigma_g$ - und  $2p\sigma_u$ -Zustands von  $H_2^+$ . – Diabatische Kurve,  $\dots$  adiabatische Kurven bei  $7 \cdot 10^{12} \frac{W}{cm^2}$  und bei  $1,4 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ . [40]

Die Lücke zwischen den entstehenden adiabatischen Potentialverläufen wächst dabei mit zunehmender Laserintensität [44].

Eine Kopplung zum energetisch erheblich höher liegenden  $2p\pi_u$ -Zustand ist theoretisch möglich, aber erheblich unwahrscheinlicher. In den theoretischen Beschreibungen findet deshalb für gewöhnlich eine ausschließliche Betrachtung der  $1s\sigma_g$  und  $2p\sigma_u$ -Zustände statt. Bisher wurde kein Nachweis für einen senkrechten Übergang zum  $2p\pi_u$ -Zustand bei der Verwendung von Wellenlängen im 780nm Bereich gefunden. Bei kürzeren Wellenlängen (400 nm), finden allerdings auch solche Übergänge statt [45], [46], [47].

Weitere Einzelheiten zur Methode der *Dressed States* finden sich in [48], [49], [50], [40], [39], [51], [52] eine Anwendung auf das  $H_2^+$ -Ion in [53], [54].

#### 2.2.4.2 Dissoziation

Als Dissoziation wird der Zerfall bzw. die Aufspaltung von Molekülen bezeichnet. Hierbei ist zunächst gleichgültig über welche Reaktion diese Aufspaltung erfolgt. Im Hinblick auf Wasserstoffmolekülonen ist es jedoch üblich, nur solche Zerfälle als Dissoziation zu bezeichnen, bei denen die Aufspaltung nicht über eine Ionisation des

Molekülions, sondern über eine Anregung hervorgerufen wird. Im weiteren Verlauf wird daher der von der Ionisation hervorgerufene Zerfallsmechanismus



auf Grund der reinen Coulomb-Abstoßung als *Coulomb-Explosion* bezeichnet, während der Begriff "Dissoziation" den Reaktionen



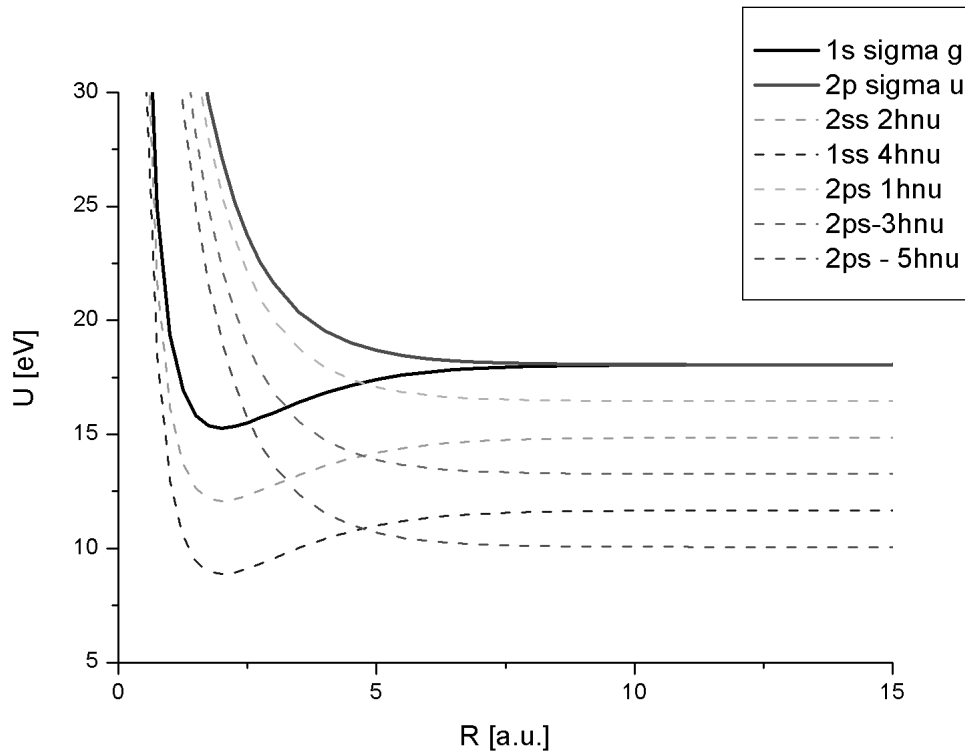
vorbehalten wird.

Durch die starke Kopplung zwischen dem elektronischen Grundzustand des  $H_2^+$ -Ions und dem ersten angeregten Zustand kommt es schon bei vergleichsweise niedrigen Laser-Intensitäten zu einer Anregung. Da der angeregte  $2p\sigma_u$ -Zustand ein repulsiver Zustand ist, resultiert daraus eine Dissoziation des Molekülions. Da andererseits die notwendige Intensität für die Ionisation recht hoch ist, kommt es während der ansteigenden Flanke des Laserpulses fast zwangsläufig zu einem teilweisen Dissoziationsprozess. Gerade beim Wasserstoff sind diese Prozesse durch die geringe Kernmasse so schnell, dass sie auch innerhalb des Laserpulses einen nennenswerten Einfluss haben. Aus diesem Grund hat auch der Dissoziationsprozess im Rahmen dieser Arbeit eine erhebliche Relevanz und soll kurz umrissen werden. Für eine weitere Behandlung der Dissoziationsprozesse im Rahmen dieses Versuches siehe [55]. In Abb. 2.12 ist eine Auswahl diabatischer *Dressed States* der Born-Oppenheimer-Potentialkurven für den  $1s\sigma_g$ - und den  $2p\sigma_u$ -Zustand des Wasserstoffmolekülions dargestellt. Da jede Absorption von Photonen mit einem Wechsel der Parität verbunden ist, können bei jedem Übergang zwischen der  $1s\sigma_g$ - und der  $2p\sigma_u$ -Kurve immer nur jeweils eine ungerade Anzahl an Photonen absorbiert oder emittiert werden. Die Paritätserhaltung hat weiter unmittelbar zur Folge, dass bei einer Netto-Absorption von geradzahigen Photonen die Dissoziation im Endzustand immer entlang einer  $1s\sigma_g$ -Kurve verläuft. Ebenso führt eine Netto-Absorption von ungeradzahigen Photonen immer zu einem ungeraden Endzustand.

Mit dem Auftauchen der vermiedenen Kreuzungen bei steigender Laserintensität und den resultierenden adiabatischen Potentialkurven (Abb. 2.13) kommt es zu einer Reihe verschiedener Dissoziationsmechanismen:

### **Bond-Softening (BS):**

Die diabatischen Kurven des  $1s\sigma_g$ - und des  $2p\sigma_u - 1h\nu$ -Zustands kreuzen sich bei



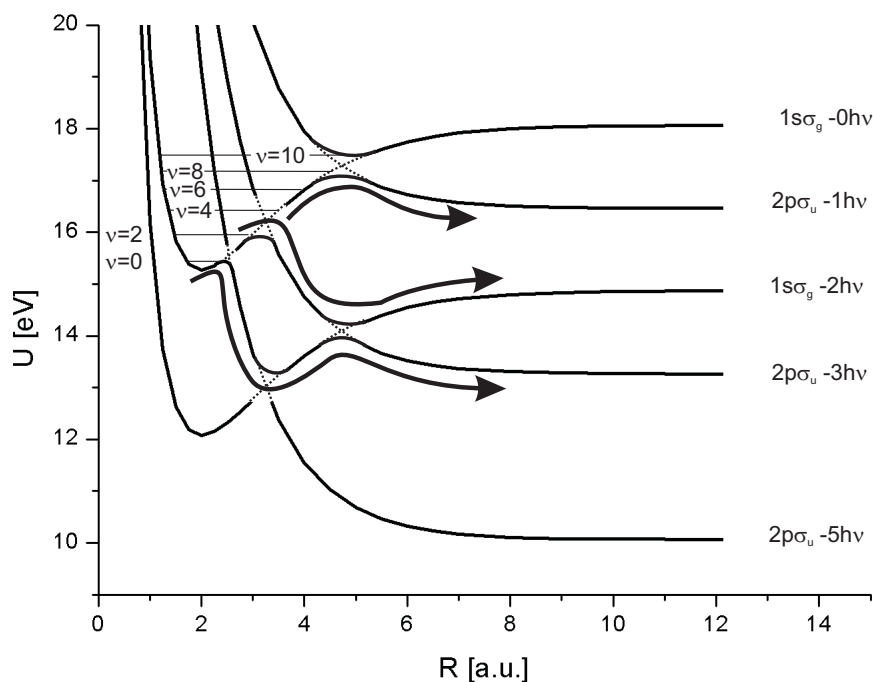
**Abbildung 2.12:** Dressed-States der diabatischen Born-Oppenheimer-Potentialkurven. Erläuterungen siehe Text.

einem Abstand von etwa 4,7 a.u.. Dieser Kreuzungspunkt entspricht damit der Ein-Photonen-Resonanz der beiden Zustände. Betrachtet man die Vibrationsniveaus der Wellenfunktionen so befinden sich alle Zustände mit  $\nu \geq 9$  oberhalb dieser Kreuzung. Dies führt dazu, dass diese Zustände im adiabatischen Potentialverlauf nicht mehr gebunden sind und direkt entlang der adiabatischen Kurve dissoziieren. Mit steigender Laserintensität sinkt die Potentialbarriere ab, sodass nach und nach auch niedrigere Vibrationsniveaus zu einer direkten Dissoziation führen können.

Da somit durch das Laserfeld ursprünglich gebundene Zustände nicht mehr gebunden sind, wird dieser Effekt als *Bond-Softening* oder kurz BS bezeichnet [35].

#### **Above-Threshold-Dissociation (ATD):**

*Above-Threshold-Dissociation*, kurz ATD, sind Prozesse, die für die Dissoziation mehr Photonen als notwendig einbeziehen [56]. Im vorliegenden Fall sind dies sämtliche Dissoziationsprozesse, die mehr als ein Photon voraussetzen [57], [58]. Der grundsätzliche Mechanismus entspricht jedoch dem des BS. Auch hier folgt das System den adiabatischen Kurvenverläufen der *Dressed States*. Durch die Paritätserhaltung kommen jedoch nicht alle möglichen Wege in Betracht. So gibt es beispielsweise keinen Übergang vom  $1s\sigma_g$  zum  $2p\sigma_u - 2h\nu$ . Vielmehr ist es somit notwendig, über einen Zwischenschritt zunächst drei Photonen zu absorbieren und dann ein Photon



**Abbildung 2.13:** Dressed-States der adiabatischen Born-Oppenheimer-Potentialkurven. Erläuterungen siehe Text.

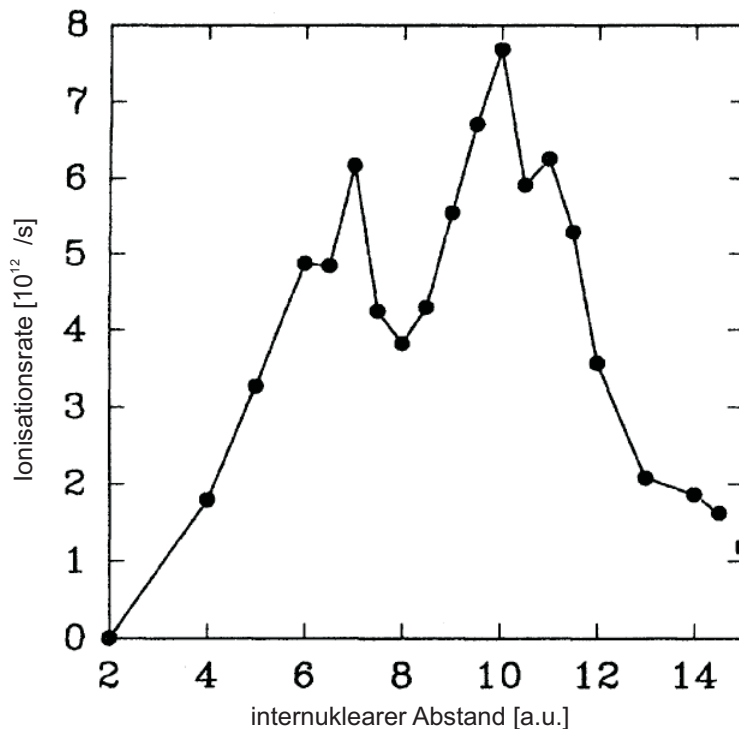
wieder zu reemittieren (vgl. Abb. 2.13). Dies führt zu einer vergleichsweise geringen Rate an ATD-Prozessen, da bereits der Netto-Zwei-Photonenprozess im ersten Schritt eine Absorption von drei Photonen voraussetzt, die Netto-Drei-Photonen Absorption fünf Photonen usw. [37]. Da anschaulicherweise die Wahrscheinlichkeit für Prozesse höherer Ordnung zunehmend geringer wird, treten ATD-Prozesse bei der Verwendung von 780 nm Laserstrahlung zunächst in den Hintergrund.

### Bond-Hardening (BH):

Während BS einen Prozess beschreibt, bei dem die Bindungsfähigkeit des  $1s\sigma_g$ -Zustands durch den Einfluss des Laserfeldes gelockert wird, gilt für den  $2p\sigma_u$ -Zustand gegenteiliges: Betrachtet man die adiabatischen Kurven des Ein-Photonen-Übergangs, so fällt auf, dass die obere adiabatische Kurve nun ein Potentialminimum aufweist, das tief genug ist, um gebundene Vibrationszustände zuzulassen [36], [59]. Da auf diese Weise eine Bindung des eigentlich repulsiven Zustands erreicht wird, bezeichnet man diesen Prozess als *Bond-Hardening* oder auch als *vibrational trapping* [60], [61].

#### 2.2.4.3 Ionisation

Bei atomaren Systemen hängt die Ionisationsrate im Tunnelregime vom Ionisationspotential und der Laserintensität ab. Das Ionisationspotential  $I_p$  von  $H_2^+$  liegt



**Abbildung 2.14:** Ionisationsrate des  $H_2^+$ -Ions in Abhängigkeit vom internuklearen Abstand bei einer Intensität von  $10^{14} \frac{W}{cm^2}$  und  $\lambda = 1064nm$ . Die erhöhte Ionisationsrate bei 6 und 10 a.u. wird dem Prozess des CREI zugeordnet. [38]

im Bereich des Gleichgewichtsabstandes ( $R = 2a.u.$ ) bei  $I_p = 30eV$  [62], [44] [63]. Auch bei allen anderen Kernabständen übersteigt das Ionisationspotential des Molekülions das von atomarem Wasserstoff ( $I_p = 13,6eV$ ). Geht man von einem zu atomaren Systemen analogen Mechanismus bei der Ionisation von Molekülen aus, wäre daher eine erheblich niedrigere Ionisationsrate des Molekülions zu erwarten. Es hat sich jedoch durch eine ganze Reihe von Untersuchungen [38], [64], [65], [66], [67], [68], [69] herausgestellt, dass die Ionisationsrate bei bestimmten kritischen Abständen stark ansteigt und diejenigen des Atoms sogar um eine Größenordnung übertreffen. Eine Darstellung der abstandsabhängigen Ionisationsrate ist in Abb. 2.14 zu finden. Dieses Phänomen der erhöhten Ionisationsrate wird als CREI (*Charge-Resonance-Enhanced-Ionization*) bezeichnet. Wie der Name bereits andeutet, ist für den CREI-Mechanismus das Vorhandensein eines Paares von resonanten Zuständen (*Charge-Resonance-States*) notwendig. Bezeichnend für solche Zustände ist die nahezu gleiche Ladungsverteilung bei großen Kernabständen [70]. Im Falle des Wasserstoffmolekülions trifft dies auf die beiden niedrigsten elektronischen Zustände zu. Dies wird besonders in der bereits erwähnten LCAO-Näherung deutlich. Hier kann der Grundzustand und der erste angeregte Zustand genähert werden durch [71]:

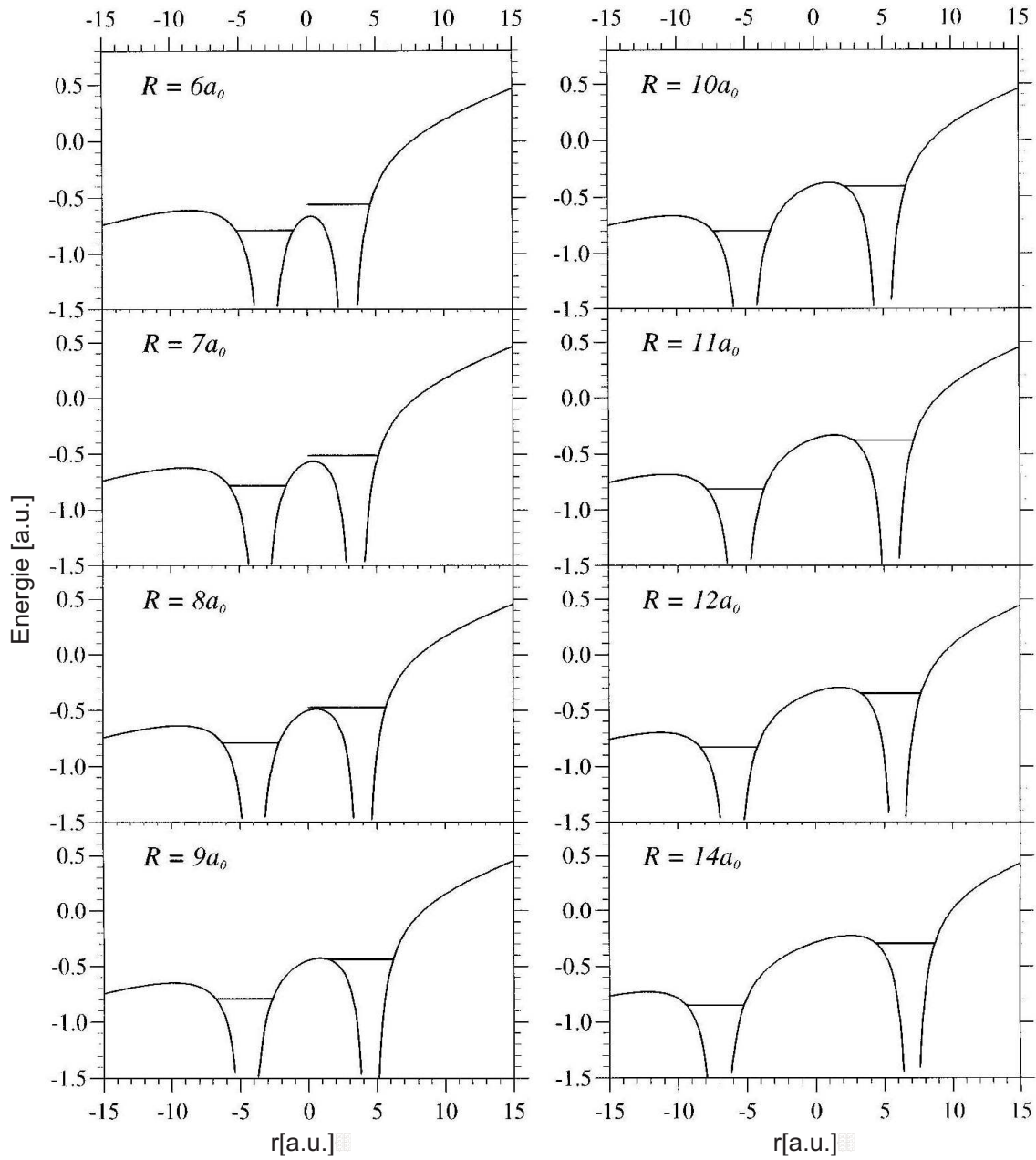
$$|1s\sigma_g\rangle \approx \frac{|1s_A\rangle + |1s_B\rangle}{\sqrt{2(1+S)}} \quad (2.49)$$

$$|2p\sigma_u\rangle \approx \frac{|1s_A\rangle - |1s_B\rangle}{\sqrt{2(1+S)}} \quad (2.50)$$

Hierin bezeichnet der Index A und B die beiden Wasserstoffatome und S das Überlappintegral der beiden atomaren Zustände. Trotz der bereits erwähnten Einschränkungen bei dieser Näherung liefert die LCAO eine anschauliche Vorstellung der resultierenden Molekülorbitale und kann bei qualitativen Betrachtungen daher hilfreich sein. In diesem konkreten Fall ist direkt ersichtlich, dass sich beide molekularen Zustände als eine Kombination derselben atomaren Zustände ergeben. Des Weiteren ist zu erkennen, dass für große Abstände das Überlappintegral beliebig klein wird und in der Konsequenz sich auch die beiden Zustände  $|1s_A\rangle$  und  $|1s_B\rangle$  kaum mehr beeinflussen. Bildet man das Absolutquadrat dieser molekularen Zustände, gehen damit beide Zustände zunehmend ineinander über und sind daher für große R auch energetisch nahezu gleich. Da sich bei einem Übergang zwischen diesen Zuständen die Projektion auf die internukleare Achse nicht ändert ( $|\Delta\Lambda| = 0$ ), nennt man einen solchen Übergang auch einen *parallelen Übergang* [71], [72]. Das Dipolmoment zwischen solchen Zuständen verhält sich für große R proportional zu  $\frac{R}{2}$ .

Der Prozess des CREI wird ersichtlich, wenn man den Einfluss des Laserfeldes auf das molekulare System betrachtet. In Abb. 2.15 findet sich das Potential des Wasserstoffmoleküls unter dem Einfluss des Laserfeldes der Intensität  $10^{14} \frac{W}{cm^2}$ , was einer elektrischen Feldstärke von  $E_0 = 0,0533 \text{ a.u.}$  entspricht. Die Richtung des elektrischen Feldes weist dabei entlang der internuklearen Achse. Mit zunehmendem Kernabstand steigt die innere Barriere an. Dies führt schließlich zu der Ausbildung einer Population im Bereich der oberen und der unteren Potentialmulde. Zugleich erfolgt allerdings eine Anhebung des Energieniveaus auf der einen bzw. eine Absenkung auf der anderen Seite. Dabei gehen die Zustände  $1s\sigma_g$  und  $2p\sigma_u$  in neue Zustände  $|g\rangle$  an der unteren und  $|u\rangle$  bei der oberen Potentialmulde über, die mehr und mehr den lokalisierten 1s Atomorbitalen entsprechen [70]. Die Energiedifferenz der beiden Populationen beträgt dabei etwa  $E_0 \cdot r$  [38], [74]. In dem Kernabstandsbereich von etwa 6 bis 10 a.u. ist der obere Zustand nicht mehr gebunden. Der *Charge-Resonance*-Charakter der Zustände sowie die sehr kurze Zeit bis zum Erreichen der maximalen Feldstärke führen nun dazu, dass der obere Zustand mit einer nicht zu kleinen Wahrscheinlichkeit bevölkert wird, sodass in diesem Fall eine sehr hohe Ionisationswahrscheinlichkeit die Folge ist. Bei noch größeren Kernabständen sinkt die Ionisationsrate wieder, da die Breite der inneren Barriere nun stetig zunimmt und so die Tunnelwahrscheinlichkeit sinkt. Für große Kernabstände geht dieses Bild in das zweier einzelner Wasserstoffatome im Laserfeld über. Grundsätzlich geht man bei dem CREI-Prozess immer davon aus, dass das Elektron aus dem "oberen" Zustand ionisiert. Die Ionisationsrate für den "unteren" Zustand ist im Bereich des CREI um bis zu zwei Größenordnungen niedriger, wie aus Tabelle 2.3





**Abbildung 2.15:** WasserstoffmolekÜlion parallel zum Laserfeld ( $I = 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ) bei verschiedenen Kernabständen. Der obere Zustand entspricht einem ungeraden  $|u\rangle$ , der untere einem geraden Zustand  $|g\rangle$ . (aus [73])

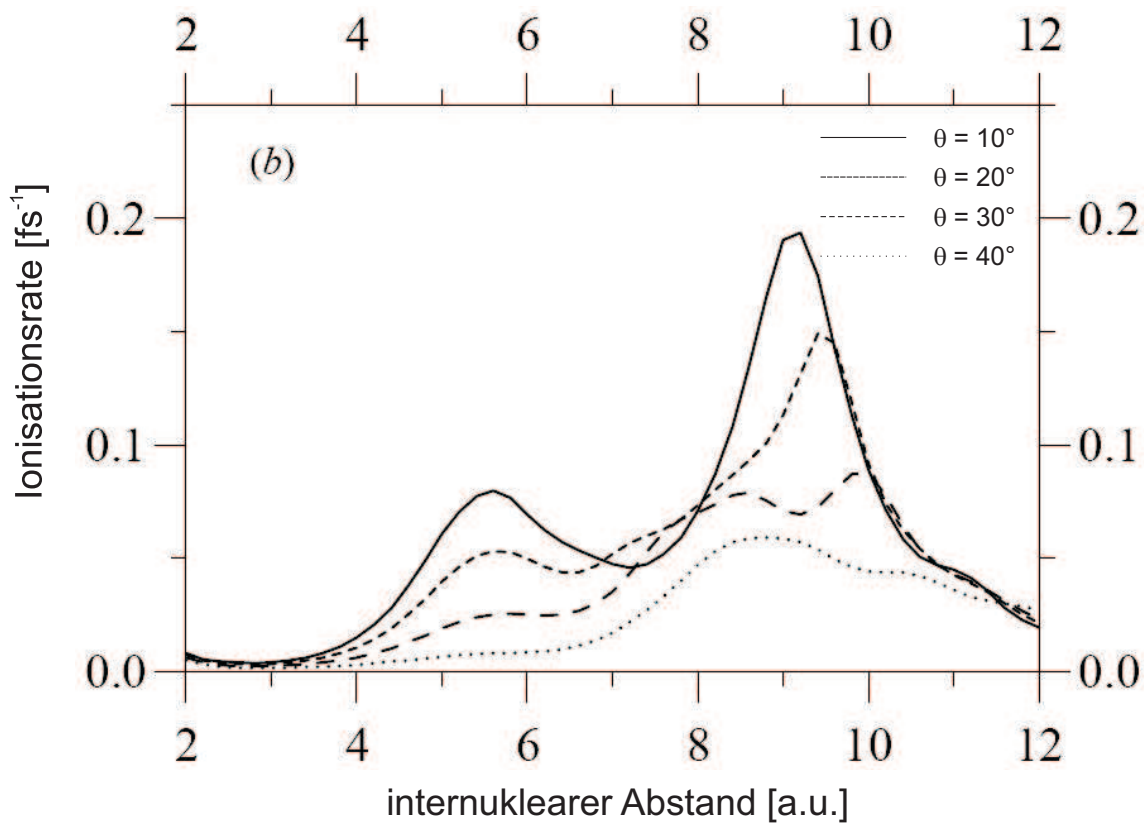
R [a.u.]	$I = 7,1 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$		$I = 1,26 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$	
	$ g \rangle$	$ u \rangle$	$ g \rangle$	$ u \rangle$
2		$0,71 \cdot 10^{-4}$		$0,88 \cdot 10^{-2}$
3		$0,26 \cdot 10^{-4}$	$0,19 \cdot 10^{-6}$	$0,56 \cdot 10^{-2}$
4	$0,22 \cdot 10^{-7}$	$0,11 \cdot 10^{-3}$	$0,14 \cdot 10^{-4}$	$0,18 \cdot 10^{-1}$
5	$0,4 \cdot 10^{-6}$	$0,89 \cdot 10^{-3}$	$0,10 \cdot 10^{-3}$	$0,47 \cdot 10^{-1}$
6	$0,19 \cdot 10^{-5}$	$0,45 \cdot 10^{-2}$	$0,29 \cdot 10^{-3}$	$0,39 \cdot 10^{-1}$
7	$0,52 \cdot 10^{-5}$	$0,64 \cdot 10^{-2}$	$0,55 \cdot 10^{-3}$	$0,28 \cdot 10^{-1}$
8	$0,1 \cdot 10^{-4}$	$0,37 \cdot 10^{-2}$	$0,91 \cdot 10^{-3}$	$0,78 \cdot 10^{-1}$
9	$0,17 \cdot 10^{-4}$	$0,35 \cdot 10^{-2}$	$0,12 \cdot 10^{-2}$	$0,96 \cdot 10^{-1}$
10	$0,26 \cdot 10^{-4}$	$0,11 \cdot 10^{-1}$	$0,15 \cdot 10^{-2}$	$0,44 \cdot 10^{-1}$
11	$0,33 \cdot 10^{-4}$	$0,95 \cdot 10^{-2}$	$0,21 \cdot 10^{-2}$	$0,24 \cdot 10^{-1}$
12	$0,39 \cdot 10^{-4}$	$0,42 \cdot 10^{-2}$	$0,21 \cdot 10^{-2}$	$0,20 \cdot 10^{-1}$
13	$0,54 \cdot 10^{-4}$	$0,19 \cdot 10^{-2}$	$0,21 \cdot 10^{-2}$	$0,17 \cdot 10^{-1}$

**Tabelle 2.3:** Ionisationsraten [ $fs^{-1}$ ] für den CREI Prozess. (aus [73])

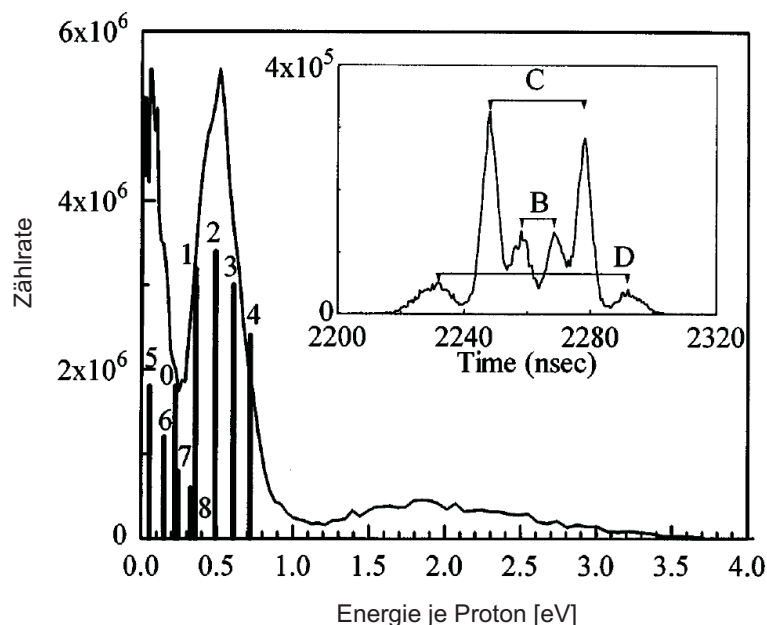
hervorgeht.

Erwartungsgemäß fällt die Ionisationswahrscheinlichkeit bei nicht paralleler Ausrichtung zwischen Laserfeld und Molekülachse recht schnell. Dies ist auch in Abb. 2.16 ersichtlich, in der die Ionisationsrate aus dem resultierenden  $|u \rangle$  Zustand für verschiedene Winkel dargestellt ist.

Für eine Ausrichtung des Laserfeldes senkrecht zur molekularen Achse nimmt das Potential schließlich wieder eine dem Atom entsprechende Form an, bei der nur noch eine effektive Potentialmulde auftritt. Da nun jedoch zwei Potentialmulden hintereinander liegen, findet die Ionisation in diesem Fall einem Atom mit höherer Kernladung entsprechend statt. Auch die Form der Molekülorbitale ist für die Ionisationswahrscheinlichkeit von entscheidender Bedeutung [76], [77],[62]. Es hat sich gezeigt, dass die Ionisationsrate direkt die Orbitalsymmetrie widerspiegelt [78], [5]. Der  $2p\sigma_u$ -Zustand hat in der Richtung senkrecht zur Molekülachse eine Knotenebene, sodass für diesen Zustand in dieser Richtung keine Elektronen emittiert werden können. Für eine Ionisation senkrecht zur internuklearen Achse muss sich daher das Ion entweder im elektronischen Grundzustand oder auf einem höher liegenden Orbital befinden. Während lange Zeit Übergänge zu solch höheren Zuständen mit Verweis auf die starke Kopplung zwischen  $1s\sigma_g$  und  $2p\sigma_u$  vernachlässigt wurden, konnten vor kurzer Zeit Hinweise für die Beteiligung höherer elektronischer Zustände gefunden werden [46], [45], [47], [79], die einen senkrechten Übergang ( $|\Delta\Lambda = 1|$ ) zum  $2p\pi_u$ -Zustand berücksichtigen. Mit der Population dieser Zustände besteht damit auch eine erhöhte Ionisationswahrscheinlichkeit, da das Ionisationspotential für den  $2p\pi_u$



**Abbildung 2.16:** Ionisationsrate für  $I = 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  bei verschiedenen Winkeln zwischen elektrischem Feld und molekularer Achse. (aus [75])



**Abbildung 2.17:** Energiespektrum fragmentierter Protonen aus Reaktionen des Lasers mit neutralen Wasserstoffmolekülen. Eingefügt: Flugzeitspektrum. Peaks B und C stammen aus dissoziativen Prozessen. D kann der Doppelionisation und damit einer Coulomb-Explosion zugeordnet werden. ([13])

Zustand bei  $R > 3,5$  kleiner als 10 eV ist. Betrachtet man die Form des entsprechenden Orbitals (Abb. 2.3), fällt weiterhin auf, dass dieser Zustand in Richtung der Molekülachse eine Knotenebene aufweist, sodass von diesem Zustand ausgehend eine Ionisation nicht in Richtung dieser Achse erfolgen kann, sondern entsprechend bevorzugt in der Ebene senkrecht zu dieser Achse.

## 2.3 Bisherige experimentelle Arbeiten zu diesem Thema

Obwohl das Wasserstoffmolekül eine erhebliche Relevanz für das Verständnis molekularer Systeme besitzt, gibt es dennoch nur wenige Experimente, die das spezifische Verhalten dieses Prototyps unter dem Einfluss von starken Laserfeldern untersuchen:

Ein Ansatz ist, die Flugzeit fragmentierender Protonen zu messen und darüber einen Aufschluss über die Energieverteilung der Fragmente in dieser Richtung zu erhalten. Dies wurde beispielsweise von Gibson et al. [13] umgesetzt, wie in Abb. 2.17 zu sehen ist. Bei diesem Experiment wurde ein 40 fs, 800 nm Laser in eine Vakuumkammer fokussiert. Die entstehenden Fragmente wurden extrahiert und in ein 0,5 m Flugzeit-Massenspektrometer beschleunigt. Es ist jedoch nicht möglich, in diesen Daten den Einfluss des ersten Ionisationsschrittes auszublenden. Des Weiteren kann keine Aus-

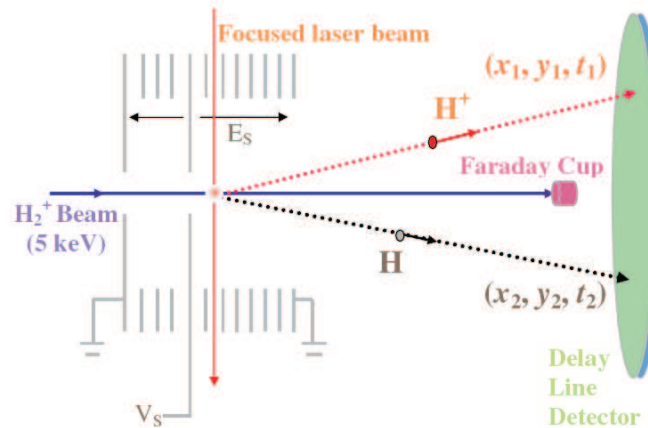


Abbildung 2.18: Der von Ben-Itzhak et al. verwendete schematische Aufbau. [6]

sage über Winkelabhängigkeiten der Protonen bezüglich der Polarisationsrichtung getroffen werden. Elektronen wurden nicht gemessen.

Die Gruppe um Ben-Itzhak verwendet einen Aufbau [6], [7], [8], bei dem langsame Wasserstoffmolekülen aus einer *Elektron-Zyklotron-Resonanz* Ionenquelle (EZR) von einem linear polarisierten Laser fragmentiert werden (vgl. Abb. 2.18). Durch ein elektrisches Feld in Flugrichtung können die entstehenden Protonen von den neutralen Fragmenten getrennt werden. Durch Messung der Flugzeiten und Auftrefforte auf einen Detektor ist es möglich, dreidimensionale Informationen über den Dissoziationsprozess zu erlangen, sodass es möglich ist, neben einer Energiemessung eine detaillierte Aussage über die resultierenden Winkelverteilungen der Kernfragmente zu treffen. In Abb. 2.19 sind die Energiespektren für zwei verschiedene Intensitäten dargestellt. Es ist gegenüber den Messungen von Gibson (Abb. 2.17) eine detailliertere Struktur zu erkennen. Abb. 2.20 zeigt weiterhin die Abhängigkeit des Kosinus des Zwischenwinkels von molekularer Achse und Polarisationsrichtung zum gemessenen KER, der aus dem Aufbruch stammenden kinetischen Energie der Kerne. In diesem Versuch wurde sich allerdings auch auf die Messung der Kernfragmente beschränkt, Elektronen können nicht gemessen werden.

Einen weiteren Zugang zur Fragmentation von Wasserstoffmolekülen liefert die Gruppe um Hänsch [9], [10], [11] [12]. Sie verwendet einen Aufbau gemäß Abb. 2.21. Wiederum wird ein Ionenstrahl mit linear polarisiertem Laserlicht gekreuzt. Die Ortsinformation des Aufbruchs wird über eine CCD-Kamera erfasst. Eine Flugzeitinformation ist dabei nicht einzeln vorhanden. Da der Aufbruch jedoch die Polarisationsrichtung des Lasers als Symmetrieachse besitzt, können alle Informationen durch Anwendung einer inversen Abel-Transformation aus dem Ortsbild ermittelt werden [81]. Mit dieser Technik kann der Dissoziationsmechanismus im Energiebereich der

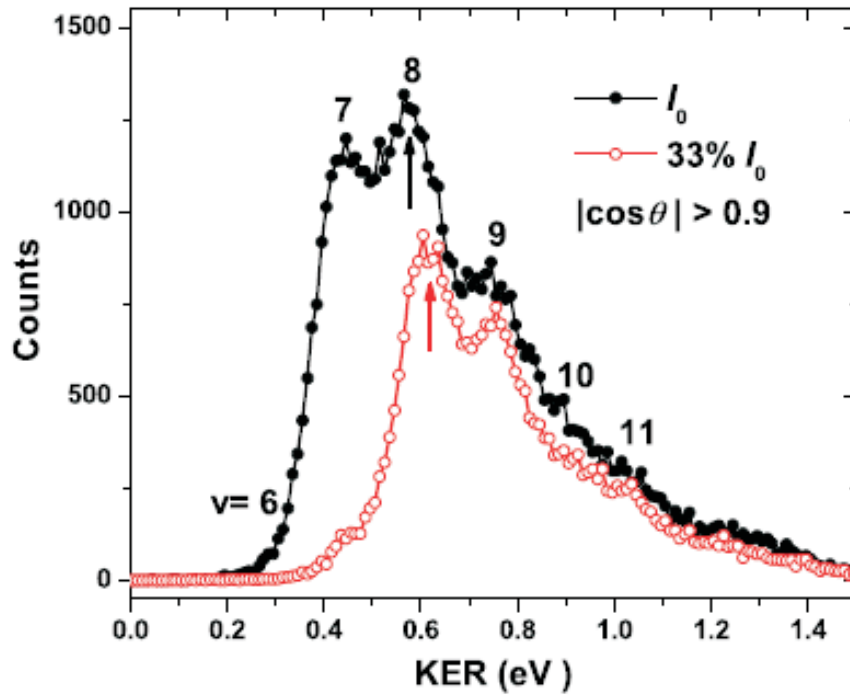


Abbildung 2.19: KER-Spektrum für die Dissoziation in einem engen Winkelbereich entlang der Polarisationsrichtung für  $I = 2,4 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  (schwarz) und für auf 33% reduzierte Intensität. [80]

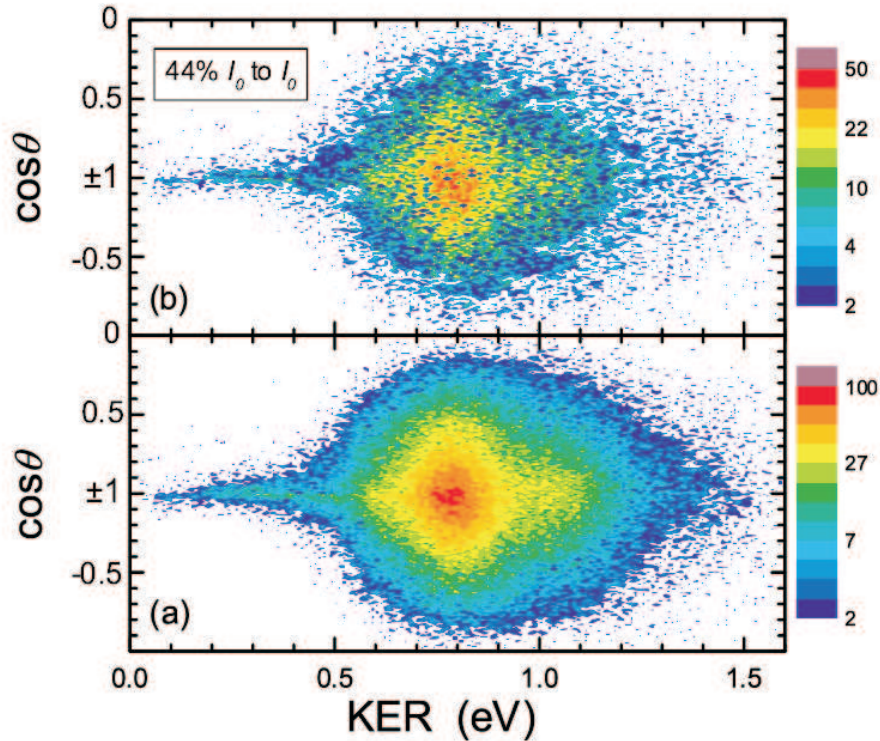


Abbildung 2.20: Zwischenwinkel von molekularer Achse und Polarisation in Abhängigkeit zum KER für einen 45 fs, 790 nm Laser der Intensität  $2,5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . a) Alle Ereignisse, b) Nur Ereignisse, bei denen die Intensität mindestens 44% der Peakintensität beträgt. [6]

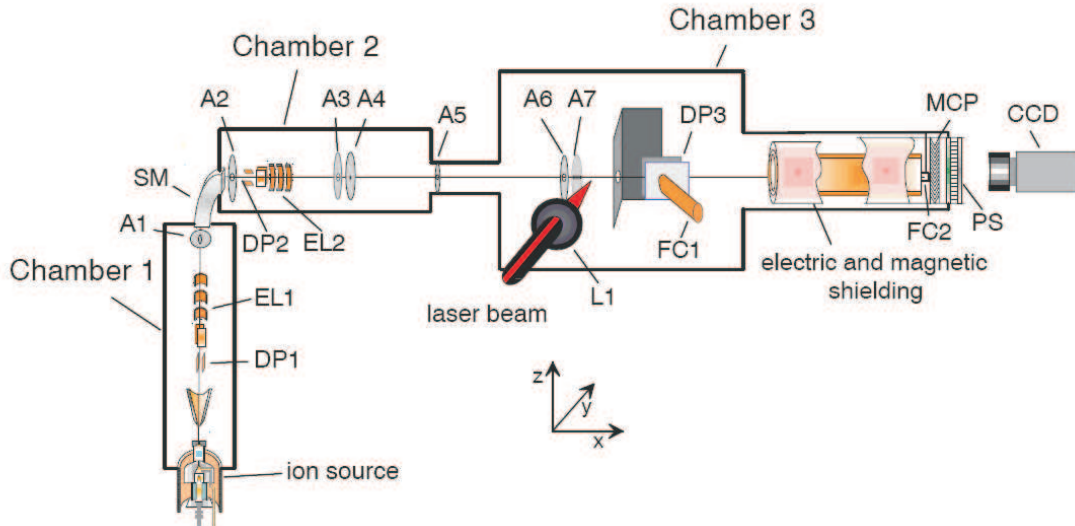


Abbildung 2.21: Von Pavicic verwendeter Aufbau. [81]

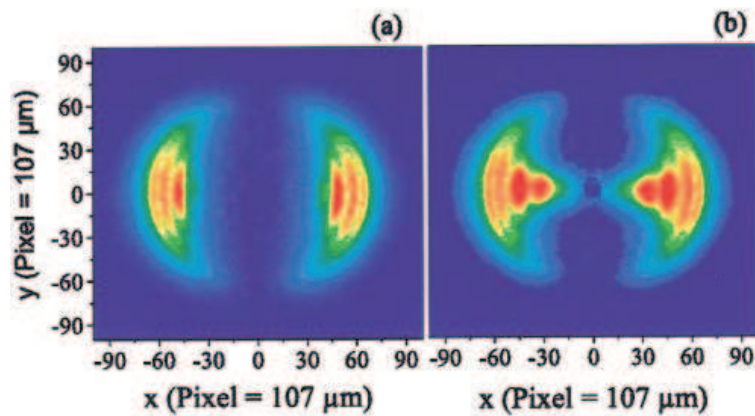
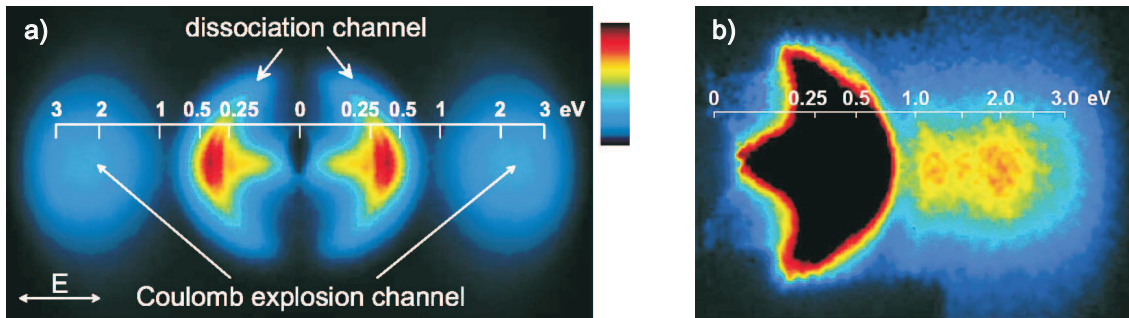


Abbildung 2.22: Zweidimensionale Impulsprojektion der neutralen Dissoziationsprodukte bei 785 nm für a)  $\tau = 575 fs$ ,  $I = 3,5 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$  und b)  $\tau = 135 fs$ ,  $I = 1,5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  [9].

Vibrationsniveaus des  $H_2^+$  aufgelöst werden, wie in Abb. 2.22 dargestellt ist. Auch Ionisationsprozesse lassen sich mit dieser Anordnung sehr genau vermessen. In Abb. 2.23 a) sind jenseits der Dissoziationsstruktur auch Prozesse der Ionisation zu sehen. Auf Grund der Verwendung der inversen Abel-Transformation und den damit zusammenhängenden Symmetriebedingungen an das System eignet sich dieser Versuch nur eingeschränkt für eine Messung mit zirkularer Polarisation. Eine Messung der Elektronen ist abermals nicht möglich.

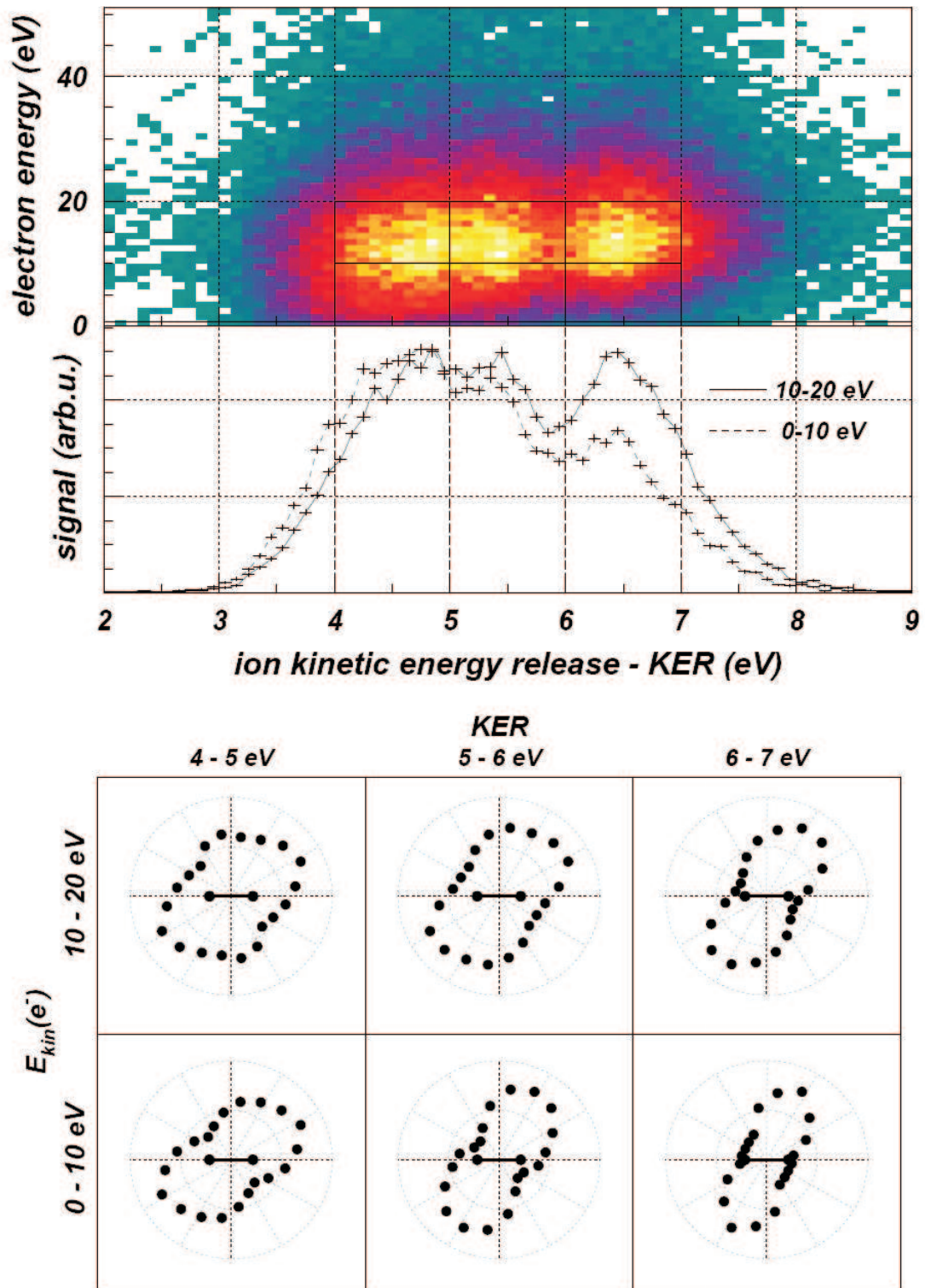
Schließlich konnte Staudte [14], [82] in einem COLTRIMS-Aufbau, bei dem der Laser in einen  $H_2$ -Gasjet fokussiert wurde, die Aufbruchmechanismen untersuchen. Bei diesem Aufbau wurden zusätzlich zu den Kernfragmenten auch die Impulse der Elektronen gemessen. Allerdings kann bei dieser Messung nicht direkt zwischen den



**Abbildung 2.23:** a) Impuls-Verteilung der Aufbruchsmechanismen von  $H_2^+$  bei  $I = 1 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ . b) Impulsverteilung von  $D_2^+$  bei  $\tau = 350 fs$ ,  $I = 1 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . [12]

beiden emittierten Elektronen unterschieden werden. Eine Unterscheidung kann lediglich durch einen Abzug der Spektren für aus dem ersten Ionisationsschritt stammende Elektronen erhalten werden. Dieses Verfahren ist jedoch nicht eindeutig. Des Weiteren haben Wasserstoffmolekülonen, die in einem Laserpuls erzeugt werden, von aus Ionenquellen stammenden Ionen abweichende Eigenschaften. Auch eine Elektron-Elektron-Wechselwirkung ist hier denkbar. In Abb. 2.24 sind sowohl die Abhängigkeiten von Elektronenergie und KER sowie entsprechende Polarplots der Winkelverteilung für einen zirkular polarisierten Laserpuls mit  $\tau = 40 fs$ ,  $\lambda = 800 nm$  und  $I \approx 6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  angegeben. Dieses Experiment stellt bisher die einzige weitere veröffentlichte Messung der Elektrondynamik für die Ionisation von  $H_2^+$  in starken Laserfeldern dar!





**Abbildung 2.24:** Im oberen Teil der Abbildung findet sich die energieabhängige Häufigkeitsverteilung des Ionisationsprozesses von  $H_2^+$  mit zirkular polarisierten Laserpulsen der Intensität  $I \approx 6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . Die Wasserstoffmolekülionen wurden im selben Laserpuls erzeugt und die Spektren durch einen Abzug der auf den ersten Reaktionsschritt zurückzuführenden Ereignisse erstellt. Im unteren Abschnitt sind Polardarstellungen des Zwischenwinkels von Elektronimpuls und molekularer Achse in der Polarisationsebene dargestellt. [14]

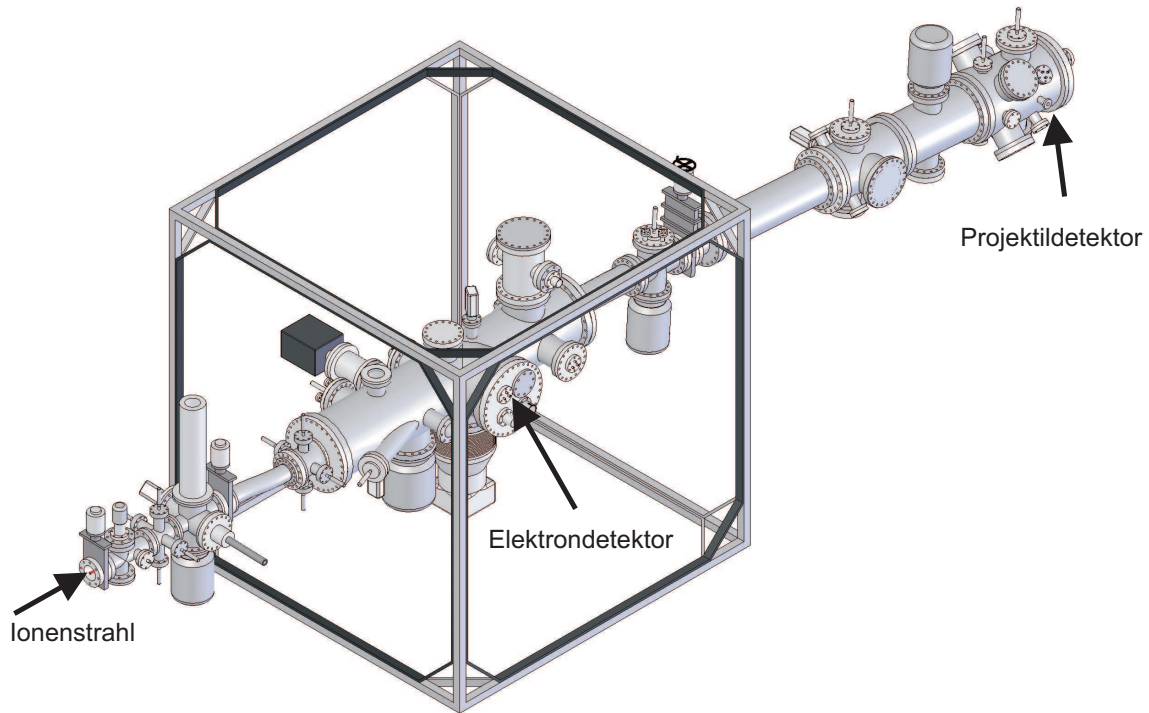


### 3. Experimenteller Aufbau

Innerhalb dieser Arbeit wurden erstmalig direkt die Elektronimpulse in Koinzidenz mit den Kernfragmenten für  $H_2^+$  unter Verwendung kurzer Laserpulse vermessen. Die verwendete Apparatur wurde im Rahmen dieser Arbeit speziell für die Messung von Wasserstoffmoleküllonen und deren Isotopen mit zirkularer Laserstrahlung entwickelt und aufgebaut. Bei der Konzeption wurden an die Apparatur vor allem zwei Anforderungen gestellt:

- Eine möglichst untergrundfreie Vermessung der Elektronimpulse sowie
- eine direkte Messung an  $H_2^+$ -Ionen, um Elektron-Elektron-Wechselwirkungen auszuschließen.

Die Bedingung, Ionen als Target zu benutzen, hat durch die Coulomb-Abstoßung einen erheblichen Einfluss auf die Targetdichte. Im Falle des hier vorgestellten Experiments hat das Target eine Dichte, die fünf Millionen Mal geringer ist als die eines typischen Gastargets! Dieser Sachverhalt verschärft die Frage der Untergrundunterdrückung noch zusätzlich. Ein Laserpuls genügend hoher Intensität ionisiert in der Fokusregion nicht nur Target-Ionen, sondern ebenso Bestandteile des Restgases. Daraus resultiert ein Elektronenuntergrund, der nicht aus dem Target stammt, aber trotzdem koinzident mit dem Laser ist. Bedenkt man, dass selbst bei sehr gutem Vakuum noch tausende Restgasteilchen innerhalb des Fokusbereiches vorhanden sind, erkennt man, dass in nahezu jedem Laserpuls Elektronen aus dem Restgas erzeugt werden, die zunächst ununterscheidbar von den Elektronen des Targets sind. Daher galt der Unterdrückung dieser falschen Koinzidenzen ein besonderes Augenmerk bei der Konzeption der Messapparatur. In diesem Kapitel sollen nun die verwendete Messapparatur sowie die für die Messungen benutzten Parameter, Geräte, Techniken und sonstigen Details vorgestellt werden.



**Abbildung 3.1:** Überblick über den Gesamtaufbau in isometrischer Ansicht. Detailliertere Darstellungen der einzelnen Teile finden sich ab Kapitel 3.3.

Die grundsätzliche Detektion sowohl der Elektronen als auch der Protonen ist an die renommierte COLTRIMS-Technik (**CO**ld **T**arget **R**ecoil **I**on **M**omentum **S**pectroscopy) angelehnt, bei der die Impulse aller Teilchen über den vollen Raumwinkel vermessen werden können. Damit ist es mit der hier vorgestellten Apparatur möglich, koinzidente Messungen der Elektronimpulse sowie der Impulse der Kernfragmente vorzunehmen. Das Detektionsprinzip beruht auf einer Orts- und Flugzeitmessung der Teilchen in einem wohlbekanntem Feld bei bekanntem Anfangsort. Die Orts-Zeitmessung lässt dann einen Rückschluss auf die in der Reaktion aufgenommenen Impulse zu.

Im Anschluss an die Anlage zur Ionenstrahlerzeugung sowie den zu dieser Anlage gehörenden Kanal schließen sich die spezifischen Aufbauten für das eigentliche Experiment an. Abb. 3.1 und Abb. 3.2 zeigen zunächst einen Überblick über die Teile des Experiments. Der Aufbau lässt sich in vier Teile gliedern:

1. Die *Differentielle Pumpstufe*, in der das vergleichsweise schlechte Vakuum im Bereich der Beschleunigeranlagen gegen das sehr gute Vakuum im Bereich des Experiments abgetrennt wird.

2. Die *Experimentierkammer* beinhaltet das Elektronenspektrometer, sowie die fokussierende Einheit für den Laser. Die Reaktionszone befindet sich damit ebenfalls in diesem Abschnitt.
3. Das *Lasersystem* (in Abb. 3.2 aus Übersichtsgründen nicht zu sehen) ist ein vom Ionenstrahl unabhängiger Teil des Experiments. Der Laser wird in einem eigenen Labor erzeugt und anschließend über eine 16,5 m lange Strahlführung zum Experiment geleitet.
4. Im Anschluss an die Ionisation der  $H_2^+$ -Ionen stoßen sich die verbleibenden Protonen gemäß der Coulomb-Kraft ab. Die Geschwindigkeit der Molekülionen behalten sie dabei nahezu bei. Um die molekulare Achse rekonstruieren zu können, müssen die Protonen jedoch einen gewissen Abstand voneinander gewinnen, was innerhalb der *Driftstrecke* stattfindet. Am Ende dieser Strecke befindet sich der Projektildetektor.

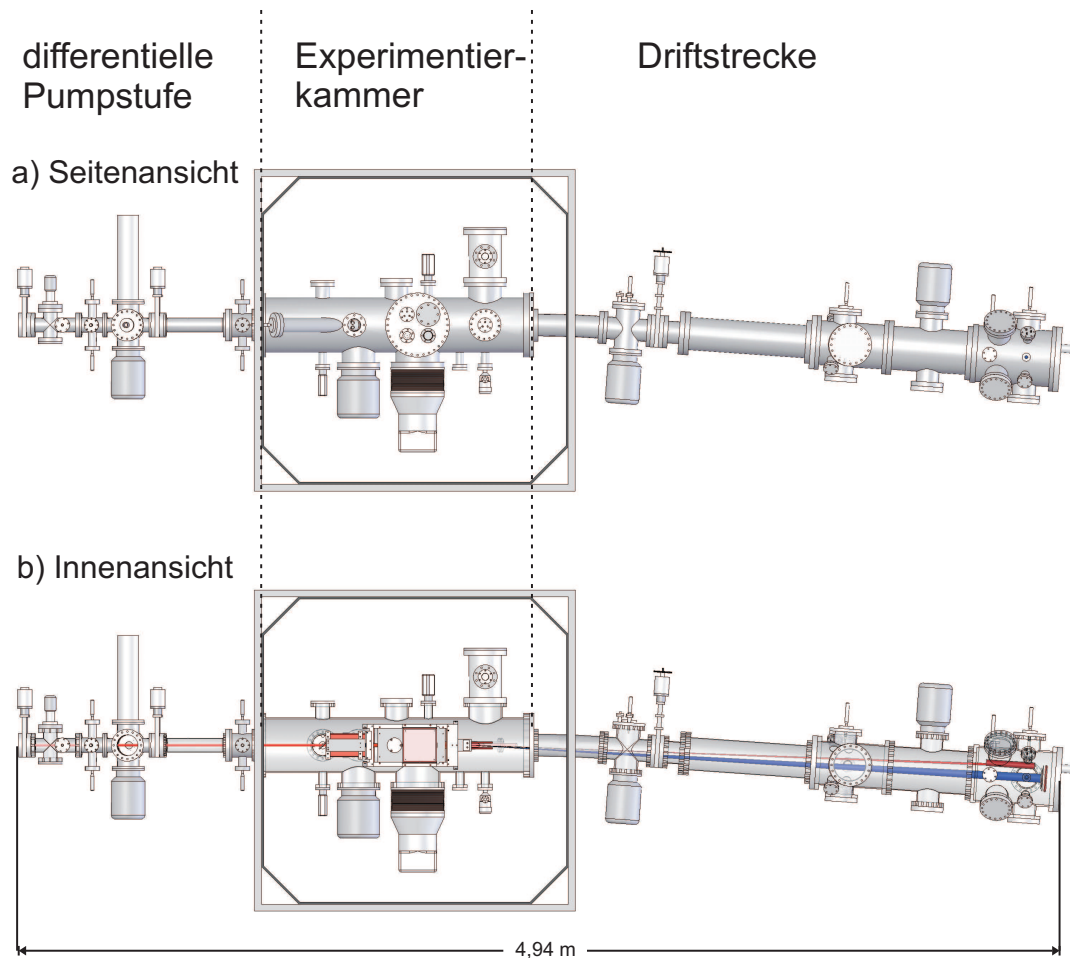
## 3.1 Detektorsystem

Die verwendeten Detektoren sind ortsauflösende Delayline-Detektoren der Firma RoentDek [83]. In Abb. 3.3 ist ein schematischer Aufbau dieser Detektoren dargestellt. Diese Detektoren bestehen im Wesentlichen aus einer ortssensitiven Sekundärelektronenverstärkung, die aus einem beliebigen einfallenden Teilchen ausreichender Energie eine Elektronenwolke produziert. Mittels einer darauf folgenden Delayline-Anode wird der Auftreffort ermittelt.

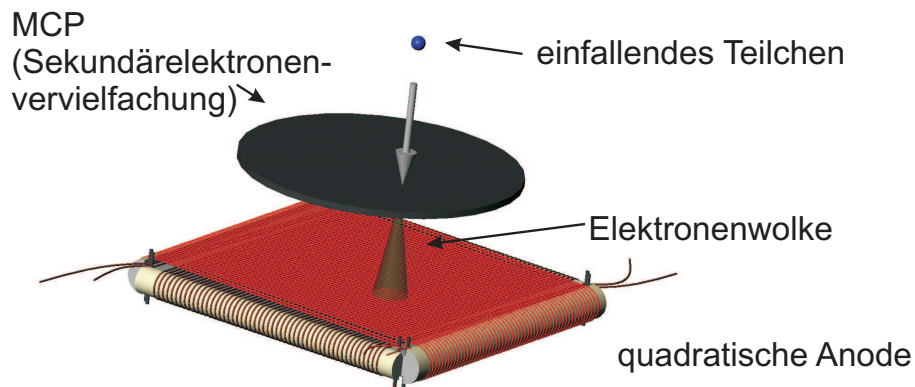
### 3.1.1 Elektronenverstärkung

Die Elektronenverstärkung erfolgt mittels eines *Multi-Channel-Plates* (im Folgenden mit MCP abgekürzt). Dies ist ein dünnes zylinderförmiges Plättchen, das aus einem Halbleitermaterial mit geringer Auslösearbeit für Elektronen besteht. Typischerweise haben diese Plättchen eine Dicke von 1,5 mm und Durchmesser im Bereich 20 mm bis 120 mm. In das Plättchen sind um etwa  $8^\circ$  geneigte Kanäle eingebracht, in denen die Sekundärelektronenvervielfachung stattfindet. Die Kanäle haben für gewöhnlich einen Durchmesser von  $25 \mu\text{m}$  und einen Mittelpunktabstand von  $32 \mu\text{m}$ . Daraus resultiert eine offene Fläche von etwa 50%. Abb. 3.4 zeigt den Prozess der Elektronenvervielfachung innerhalb eines Kanals des Multi-Channel-Plates.

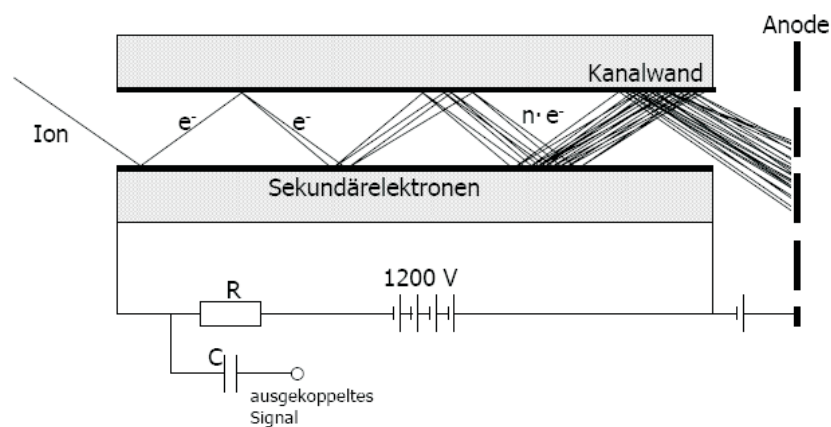
Damit eine Elektronenverstärkung stattfinden kann, wird eine Spannung über das MCP angelegt, die entstehende Elektronen beschleunigt. Trifft ein ionisierendes Teilchen in eine der Poren und in dieser auf die Kanalwand, werden dort Elektronen ausgelöst, die von der angelegten Spannung zur MCP-Rückseite beschleunigt werden. Innerhalb des gleichen Kanals treffen die beschleunigten Sekundärelektronen



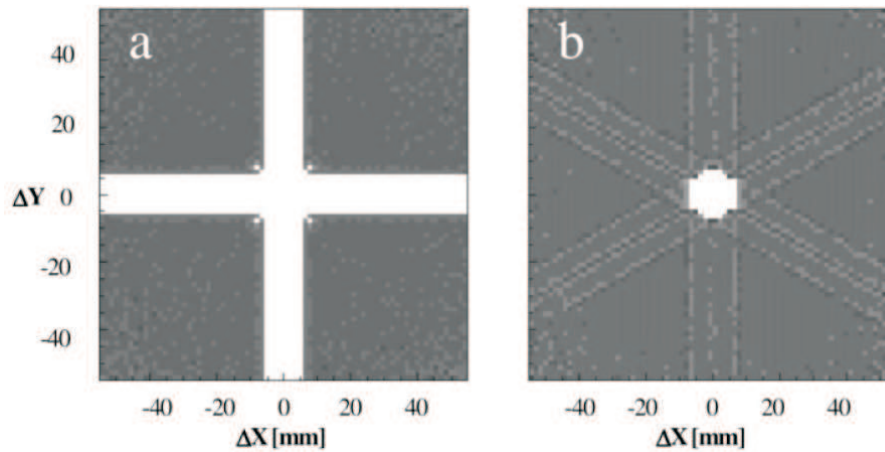
**Abbildung 3.2:** Gesamtaufbau. a) Seitenansicht b) Innenansicht: Teile des Experiments wurden entfernt oder mit Transparenteffekten versehen, um die innen liegenden Teile sichtbar zu machen. Auch die Trajektorie des Ionenstrahls ist zu sehen. Der Laser tritt auf der abgewandten Seite in die Experimentierkammer ein (vgl. Abb 3.15). Rot dargestellt:  $H_2^+$ . Blau:  $H^+$ .



**Abbildung 3.3:** Schematischer Aufbau eines Delayline-Detektors. Im oberen Abschnitt findet sich das Micro-Channel-Plate (MCP), das als Sekundärelektronenvervielfacher arbeitet. Einfallende Teilchen lösen so eine Elektronenwolke aus, die das MCP am gegenüberliegenden Ende verlässt. Diese trifft auf den eigentlichen Delayline-Detektor, der aus zwei (oder bei hexagonaler Bauform drei) Drahtebenen aufgebaut ist, die wiederum jeweils aus zwei Einzeldrähten, dem Signal- und dem Referenzdraht bestehen. Die Drähte sind durch Keramiken isoliert über eine Halteplatte, den *Holder*, gewickelt.



**Abbildung 3.4:** Funktionsprinzip der Sekundärelektronenvervielfachung innerhalb eines Kanals des MCPs. Die Signalauskopplung ist hier vereinfacht dargestellt. Eine genauere Betrachtung findet sich in Kapitel 3.1.3. (aus [84])



**Abbildung 3.5:** Monte-Carlo Simulation der toten Bereiche auf quadratischen Anoden (links) und Hexanoden (rechts). Eine eindeutige Zuordnung beider Teilchen ist nur innerhalb der dunklen Bereiche möglich. Die relative Auftreffzeit der beiden Teilchen beträgt in der Simulation 2,5 ns für die quadratische Anode und 0 ns für die Hexanode. (aus [85])

wieder auf die Kanalwand und erzeugen dort weitere Elektronen. Dieser Vorgang wiederholt sich einige Male, sodass eine erhebliche Anzahl Elektronen auf der Rückseite des MCPs emittiert wird. Für gewöhnlich werden zwei oder drei MCPs hintereinander zu einem so genannten *Stack* angeordnet. Um die Effizienz zu steigern und die Ortsinformation möglichst gut zu erhalten, werden die MCPs derart angeordnet, dass die Neigung der Poren jeweils entgegengesetzt zum vorherigen Plate ist. Im vorliegenden Versuch wurden je zwei MCPs pro Detektor benutzt, über die insgesamt eine Spannung von etwa 2000 V angelegt wurde. In Anhang A findet sich die Belegung aller im Experiment verwendeten Spannungen.

### 3.1.2 Delayline-Anode

Die Ortsmessung erfolgt über eine Laufzeitmessung entlang eines langen Drahts, der als Anode für die vom MCP erzeugten Elektronen wirkt. Dieser ist elektrisch isoliert um eine Halteplatte, den so genannten *Holder*, gewickelt. Der Draht selbst liegt auf positivem Potential. Die Elektronenwolke trifft nun auf einen Bereich dieses Drahts. Der entstehende Spannungspuls läuft von diesem Punkt aus in beide Richtungen. An den Drahtenden werden die Zeiten gemessen. Aus der Differenz dieser beiden Zeiten lässt sich so der Ursprung des Signals, also der Entstehungsort, ermitteln. Um die Signalqualität zu verbessern, ist parallel zu diesem Signaldraht ein Referenzdraht installiert, der auf einem etwas niedrigeren Potential liegt, sodass die Elektronenwolke hauptsächlich auf den Signaldraht trifft. Diese zwei Drähte bilden eine Lecherleitung, wobei sich im Referenzdraht eine Spiegelladung des Signals ausbildet. Die Ausdehnung der Elektronenwolke ist im Regelfall größer als der Wicklungsabstand des Drahts. Durch eine "Schwerpunktbildung" des Signals



kann der Ort jedoch mit einer Auflösung ermittelt werden, die erheblich genauer als der Wicklungsabstand ist. Um eine zweidimensionale Ortsinformation zu erhalten, werden mehrere Drahtwicklungen übereinander gelegt. Es gibt hierfür zwei Bauformen: Bei einer quadratischen Anode werden zwei dieser Wicklungen in einem  $90^\circ$  Winkel zueinander angebracht. Die Ortsinformation ist hierbei vollständig gegeben. Es kann allerdings zu Problemen kommen, wenn zwei oder mehr Signale in kurzer Zeit und nahe beieinander auf den Detektor treffen, während die vorigen noch nicht die Drahtenden erreicht haben. Es entsteht ein so genannter toter Bereich. Aus diesem Grunde besitzt die alternative hexagonale Bauform drei Drahtebenen, die jeweils um  $60^\circ$  zueinander gedreht sind. Diese Anordnung liefert für Einzelergebnisse redundante Informationen, die sich allerdings bei Mehrfachereignissen zur eindeutigen Zuordnung verwenden lassen. Durch diese Anordnung lässt sich der tote Bereich erheblich verringern, wie der Vergleich in Abb. 3.5 deutlich zeigt. Da bei einer Fragmentation des  $H_2^+$ -Ions in zwei Protonen die Möglichkeit bestehen soll, beide Teilchen zu messen, wird hierfür ein hexagonalen Detektor mit einem 80 mm MCP-Stack benutzt. Für den Elektrodendetektor ( $\emptyset = 120$  mm) genügt dahingegen eine quadratische Anode.

### 3.1.3 Signalauskopplung

Um die Zeitinformationen von MCP und Anoden auslesen zu können, müssen diese zunächst von der angelegten Hochspannung getrennt werden und im Falle der Anoden zu einem unipolaren Signal umgewandelt werden. Diese Signalauskopplung sowie die Hochspannungsversorgung sind für Anodensignale, MCPs und Holder in Abb. 3.6 zusammengefasst.

Außer der eigentlichen Signalauskopplung gilt es ferner, jede Form von Reflexion der Signale zu vermeiden. Dies gilt auch für den Holder, um den die Anodendrähte gewickelt sind. Dieser liefert zwar kein brauchbares Signal, es entstehen dort jedoch trotzdem hochfrequente Spannungspulse, die einen störenden Einfluss auf die übrigen Signale ausüben würden. Ein RC-Glied mit variablem Widerstand sorgt für eine Terminierung dieser Hochfrequenz durch eine Impedanzanpassung (siehe Abb. 3.6 c)).

Im Gegensatz zum Holder stellt das MCP eine wichtige Signalquelle dar, da dort durch die Sekundärelektronvervielfachung ein Spannungseinbruch vorliegt, der direkt als Signal genutzt werden kann. Dieser ist eine direkte Messgröße für die Auftreffzeit des Teilchens. Die Signalauskopplung findet wiederum über ein RC-Glied statt (Abb. 3.6 b)), das die hochfrequenten Signale von der Hochspannung trennt. Um eine Impedanzanpassung zu ermöglichen, ist ein Potentiometer in das RC-Glied integriert. Die Hochspannung wird durch einen weiteren Kondensator stabilisiert, sodass kleine Schwankungen der Spannungsversorgung keinen nennenswerten Einfluss auf die

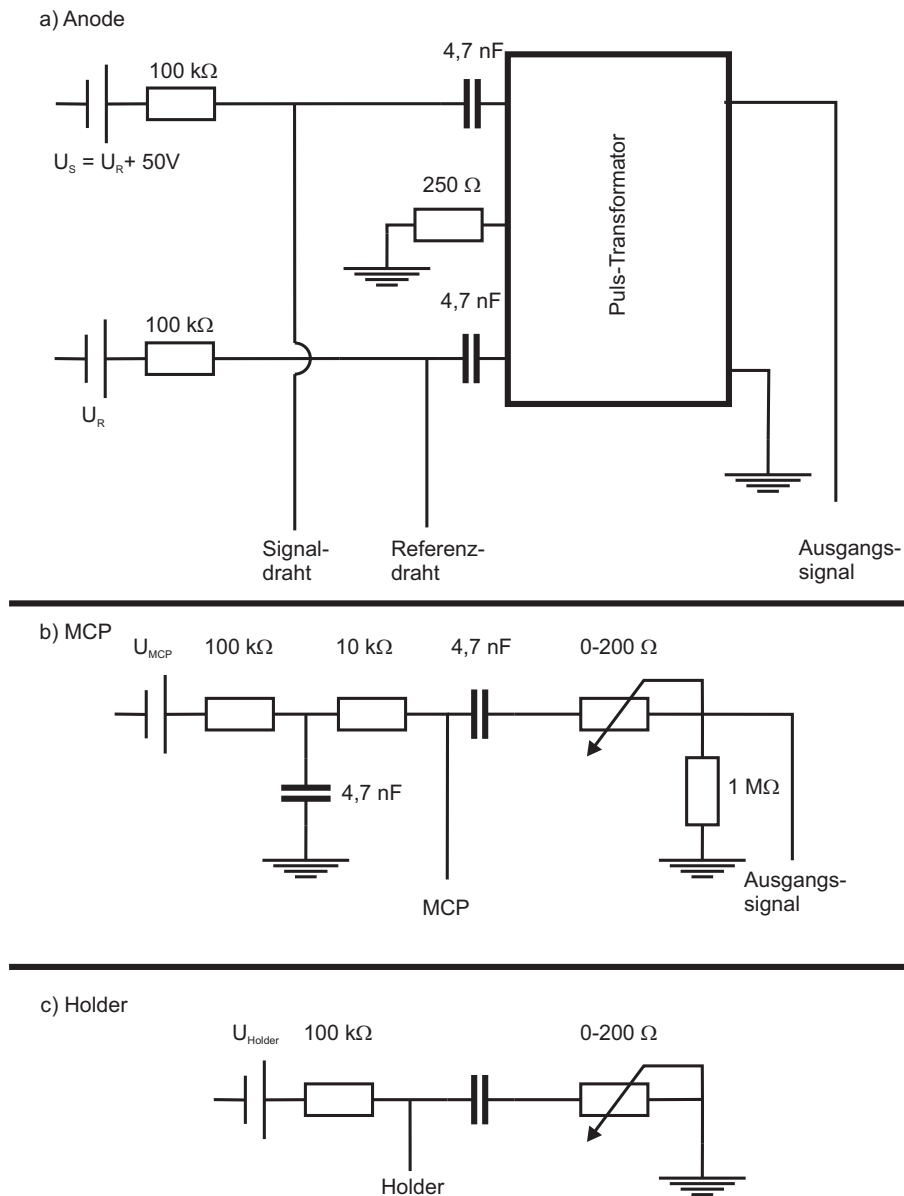


Abbildung 3.6: Schaltskizze der Signalauskopplungen: a) Anode, b) MCP, c) Holder

Signale haben.

Im Gegensatz zu den beiden anderen Bauteilen sind die Anodensignale auf zwei Drähte aufgeteilt, die eine Lecherleitung bilden. Auf dem Referenzdraht bildet sich daher eine Spiegelladung des Signals auf dem Signaldraht. Es handelt sich also um ein bipolares Signal, das allerdings auf beide Drähte aufgeteilt ist. Die Auskopp- lung erfolgt dementsprechend über einen mit Kondensatoren von der Hochspannung getrennten Pulstransformator, der im Wesentlichen den Referenzdraht auf Erdpo- tential legt, sodass nun ein unipolares Signal an nur einer Leitung entsteht (vgl. Abb. 3.6 a)).

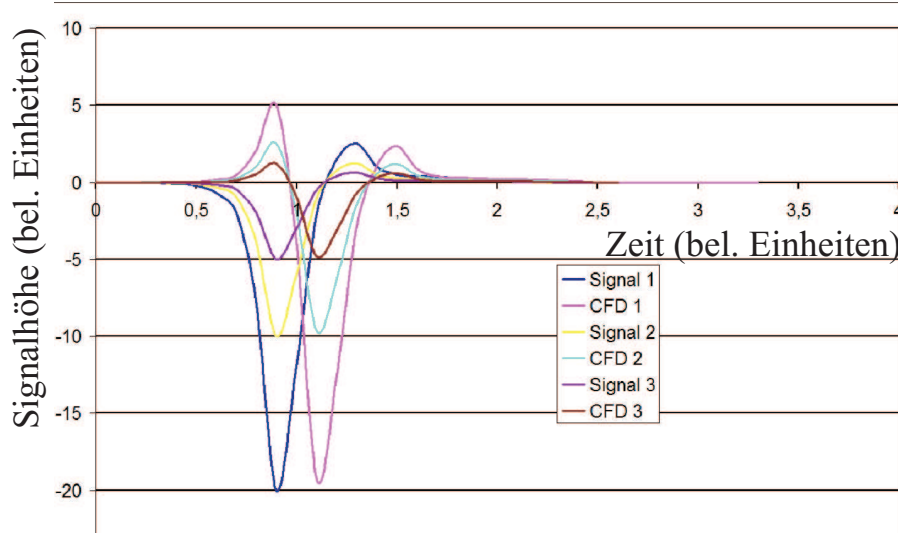
### 3.1.4 Elektronische Datenauswertungssysteme

Wie bereits im vorangegangenen Abschnitt erwähnt wurde, werden von den Detekto- ren keine direkten Orte und Zeiten gemessen, sondern lediglich Signale ausgegeben, die jedoch in einem zeitlichen Zusammenhang zueinander stehen. Jede Umrechnung dieser Signale in Auftrefforte und weiter in Impulse ist bereits eine Form der Da- tenauswertung. Die Signale, die der Detektor liefert, haben im Normalfall zwar die gleiche Form, für gewöhnlich aber nicht die gleiche Pulshöhe. Daher gliedert sich die elektronische Aufarbeitung der Signale in 5 Schritte:

1. Verstärkung der analogen Signale
2. Umwandlung der analogen Signale in digitale
3. Übergabe der Signale an den PC
4. Online-Visualisierung der Messung
5. Speicherung der Daten

Neben den Signalen der Detektoren erzeugt auch jeder Laserpuls durch eine Photodi- ode einen Spannungspuls. Alle Signale haben zunächst nur eine sehr geringe Ampli- tude von wenigen mV. Damit eine zuverlässige Datenanalyse möglich ist, müssen die Signale verstärkt werden. Bei diesem Experiment werden hierzu drei *Fast Amplifier* des Typs FAMP6b der Firma *RoentDek* [83] mit jeweils sechs Eingangskanälen be- nutzt. Diese Module verstärken die Signale um den Faktor 100, sodass sich Pulse mit 0,2 V - 2 V Höhe ergeben. Da diese Verstärker speziell für den Einsatz mit Delayline- Detektoren entwickelt wurden, sind sie in der Lage, das Signal ohne nennenswerte Veränderung der Signalbreite zu verstärken, gleichzeitig aber hochfrequente Schwan- kungen zu glätten.

Die Konvertierung des analogen Signals in ein digitales erfolgt über einen so genann- ten *Constant-Fraction-Discriminator*, kurz CFD. Ein CFD teilt das einkommende



**Abbildung 3.7:** Wirkungsweise des Constant-Fraction-Algorithmus: Es sind drei Analogsignale und die dazugehörigen CFD-Signale dargestellt. Während die Analogsignale ihr Maximum zur gleichen Zeit besitzen, trifft dies für die CFD-Signale in Bezug auf den ersten Nulldurchgang zu.

unipolare Signal in zwei unabhängige Signale auf. Das eine Signal wird verzögert, das andere invertiert und abgeschwächt. Bei richtiger Wahl des Abschwächfaktors und der Verzögerung entsteht ein bipolares Signal, das einen Nulldurchgang mit fester Zeitbeziehung zum Maximum des Eingangssignals hat. Dieser Nulldurchgang dient nun als Trigger für ein digitales Rechteck-Signal (NIM-Puls). In Abb. 3.7 sind sowohl verstärkte Analogsignale, als auch die jeweiligen resultierenden CFD-Signale dargestellt. Es ist ersichtlich, dass, obwohl die Eingangssignale unterschiedliche Pulshöhen aufweisen, die ersten Nulldurchgänge aller drei CFD-Signale zur selben Zeit erfolgen.

Im Rahmen dieses Experiments wurden zwei *Canberra* Quad CFD 454 für die Projektile und zwei *Roentdek* CFD4b für die Signale des Elektronendetektors benutzt. Die digitalen Signale werden mit *Time to Digital Convertern* (TDC) an den PC übergeben. Die TDC sortieren die Signale dabei in so genannte Kanäle ein, die, je nach Modell, unterschiedliche Zeitspannen abdecken. Für die Datenaufnahme wurden zwei *cronologic* HPTDC verwendet [86], die eine Kanalbreite von 25 ps besitzen. Über diesen bekannten Parameter ist es schließlich möglich, die digitalen Informationen wieder auf Zeiten umzurechnen.

Um die aufgenommene Datenmenge und damit die Auswertungszeit überschaubar zu halten, werden nur Daten vom TDC abgerufen, wenn es zu einem Laserpuls ein entsprechendes Projektil gibt. Dazu wird das Signal der Photodiode auf ca. 600 ns ausgeweitet. Dieses Signal bildet damit ein *Gate*, das bei einer Repetitionsrate von 8kHz ungefähr 0,5% der Zeit geöffnet ist. Das Triggersignal wird nun über eine logische "und"-Verknüpfung dieses Signals mit dem des Projektil-MCPs gebildet.

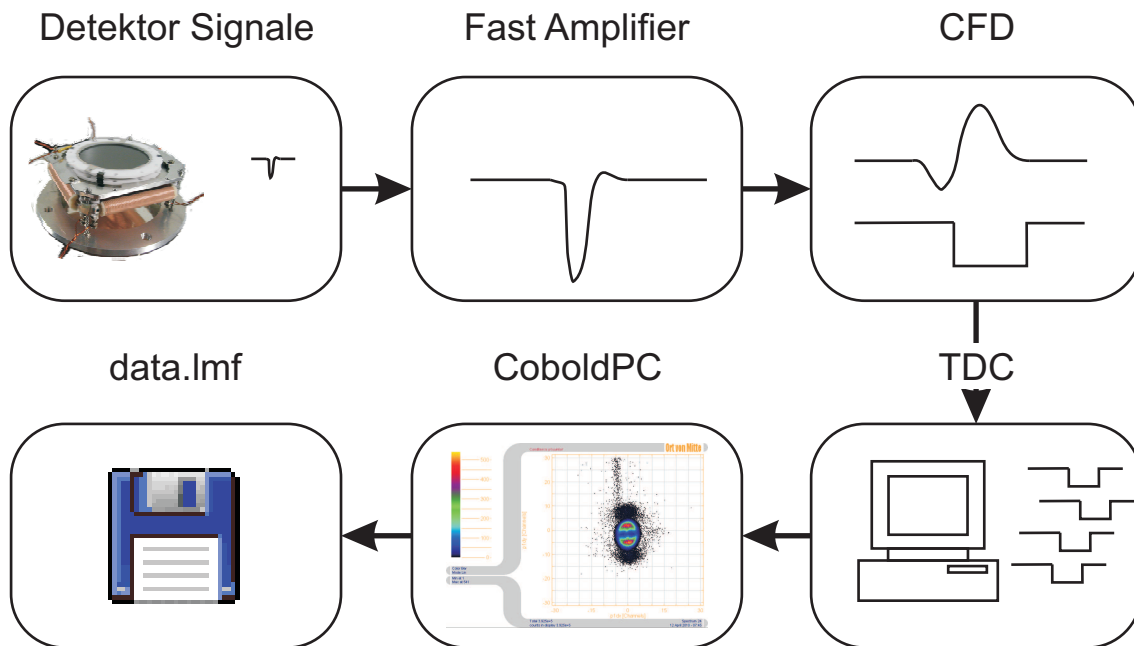
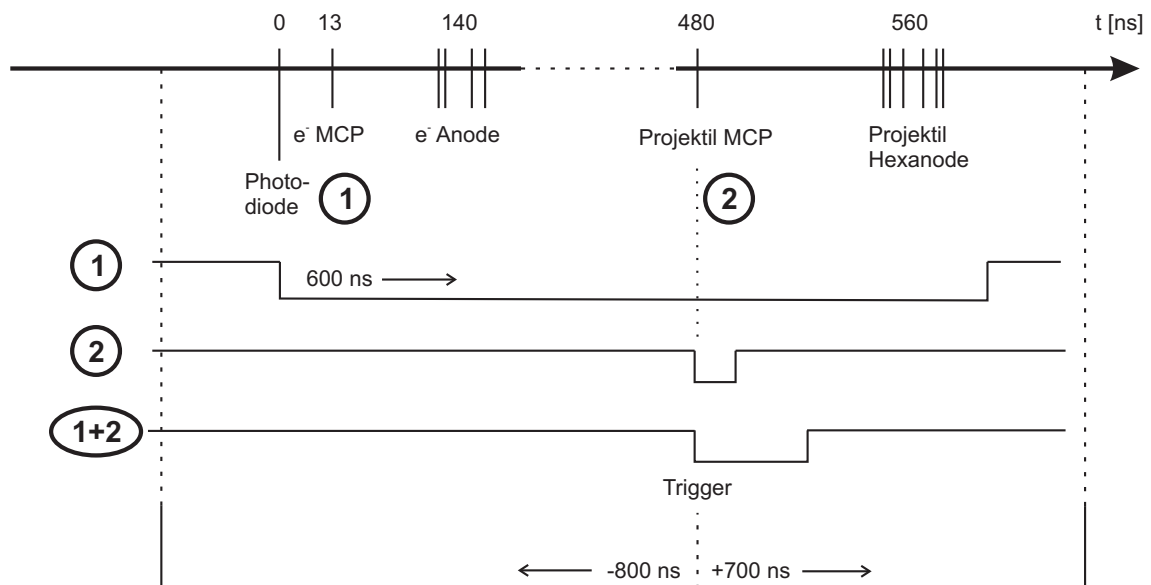


Abbildung 3.8: Schema der elektronischen Signalverarbeitung.

Abbildung 3.9: Schematische Darstellung der Trigger- bzw. Koinzidenzlogik: Das Signal der Photodiode wird auf  $600$  ns ausgedehnt. Löst in dieser Zeit ein Projektil ein MCP Signal aus, werden alle Daten von  $t = -800$  ns bis  $t = +700$  ns relativ zum Triggersignal gespeichert.

Während die Rate aller Projektile, die auf den Detektor gelangen, typischerweise 8kHz beträgt, finden sich durch diese Triggerlogik nur 300 koinzidente Ereignisse.

Die Arbeitsweise der verwendeten TDC erlaubt es, alle einkommenden Daten kurzzeitig zu speichern, sodass es möglich ist, relativ zum Triggersignal sowohl vergangene Daten als auch zukünftige Signale in jeweils einem bestimmbareren Zeitfenster auszulesen. Im Rahmen dieses Experiments wurden bei einkommendem Triggersignal alle Daten der letzten 800 ns sowie der folgenden 700 ns verwendet. In diesem Zeitfenster liegen alle relevanten Daten. Schematisch ist der ungefähre zeitliche Ablauf der einkommenden Signale und die Triggerbedingung in Abb. 3.9 zu finden.

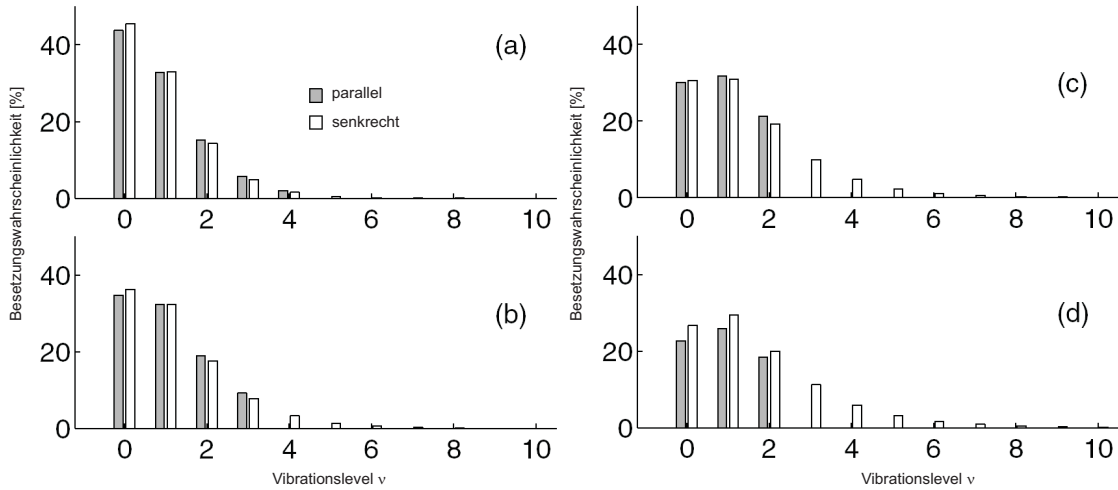
Online-Analyse, erste Visualisierung und Datenarchivierung erfolgen letztlich mit dem Programm *CoboldPC*. Die Archivierung erfolgt dabei in Form von ListMod Dateien (.lmf). Eine schematische Darstellung des gesamten Prozesses der Signalverarbeitung findet sich in Abb. 3.8.

## 3.2 Erzeugung der $H_2^+$ -Ionen

Bei der Erzeugung der  $H_2^+$ -Ionen stehen sich grundsätzlich zwei verschiedene Methoden gegenüber:

- Die Erzeugung der Ionen durch den Laser [87], [88], [89], [14], [8], [90] und
- die Verwendung einer Ionenquelle [91], [6],[92], [80] .

Beide Methoden haben gewisse Vor- und Nachteile, sodass sie sich gegenseitig ergänzen [80]. Weiter verbreitet ist dabei die Nutzung eines Laserpulses, wobei in einem Pump-Probe-Experiment aus dem Grundzustand des neutralen Wasserstoffmoleküls zunächst ein Elektron ionisiert und in einem zweiten Schritt das entstandene  $H_2^+$ -Ion untersucht wird. Dabei kommt es allerdings zu einer Abhängigkeit zwischen dem ersten Ionisationsschritt und der zu untersuchenden Reaktion. Der Laserpuls populiert eine kohärente Überlagerung der Vibrationswellenfunktion des elektronischen Grundzustandes  $1s\sigma_g$  des  $H_2^+$ -Ions. Dies führt zu einer zeitabhängigen Abstandsverteilung der Kerne. Es liegt auf der Hand, dass dies sowohl interessante Effekte, wie beispielsweise *Revival*-Prozesse [93], aber auch Nachteile mit sich bringt, da diese Zeitabhängigkeit selbstverständlich die Messergebnisse maßgeblich verändert bzw. prägt. Ein weiterer Unterschied liegt in der Besetzungshäufigkeit der Vibrationszustände. Während lange Zeit von einem Franck-Condon-Übergang aus dem Grundzustand des neutralen Wasserstoffmoleküls ausgegangen wurde (vgl. Abb. 2.1), hat sich herausgestellt, dass dies nicht der Fall ist [94], [95]. Eine theoretische Rechnung der Verteilung der populierten Vibrationslevel für verschiedene Intensitäten findet



**Abbildung 3.10:** Theoretische Voraussage der populierten Vibrationslevel bei einem laserinduzierten Übergang des neutralen Wasserstoffmoleküls in den  $1s\sigma_g$ -Zustand des  $H_2^+$ -Ions bei a)  $I = 3,5 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ , b)  $I = 5,4 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ , c)  $I = 7,8 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$ , d)  $I = 1,06 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  für parallele und senkrechte Ausrichtung (nach Urbain [94]).

sich in Abb. 3.10, in der Daten von Urbain [94] dargestellt sind. Diese Rechnungen konnten auch experimentell bestätigt werden.

Ein weiterer Vorteil dieser Methode ist die hohe Targetdichte. Da die Zeit zwischen dem Ionisationsprozess und der Messung hinreichend klein ist, reduziert die Coulomb-Abstoßung die Teilchendichte nur unwesentlich. Daher sind Targetdichten in der Größenordnung von Gastargets mit  $\rho_{Gastarget} = 10^8 \frac{\text{Teilchen}}{mm^3}$  möglich.

Eine Elektron-Elektron-Wechselwirkung kann dagegen nicht ausgeschlossen werden und daher einen Einfluss auf die Messung haben. Die Unterscheidung der beiden Elektronen kann außerdem nur über eine Subtraktion der Ein-Elektron-Prozesse von den Gesamtspektren erfolgen, was naturgemäß fehlerbehaftet sein kann.

Aus diesen Gründen wurde im Rahmen dieser Arbeit die alternative Erzeugung der  $H_2^+$ -Ionen angewendet, bei der die Ionen in einer Hochfrequenz-Ionenquelle produziert und anschließend mit dem Frankfurter Van-de-Graaff-Beschleuniger auf 400 keV beschleunigt werden. Dies entspricht einer Geschwindigkeit von 2,82964 a.u.. Eine Skizze der Ionenstrahlführung bis zum Beginn des Experiments findet sich in Abb. 3.11. Nachdem die Ionen erzeugt wurden, durchlaufen sie einen  $90^\circ$ -Ablenkmagneten (in Abb. 3.11 mit M2 bezeichnet), der es erlaubt, die Targetionen von anderen entstandenen Ionen über ihr Masse zu Ladungsverhältnis zu trennen. Ein weiterer Magnet (M4) dient der Verteilung des Ionenstrahls in die unterschiedlichen Kanäle. Das vorliegende Experiment befindet sich am Ende des Kanals 1, sodass dieser Magnet nicht benötigt wird. Nach diesem Magnet verlässt der Ionenstrahl den betonummantelten Bereich der Strahlerzeugung und gelangt in die Experimentierhalle. Entlang des nun folgenden Kanals befinden sich mehrere elektro-magnetische Optiken, um die

Divergenz des Strahls auf Grund der Coulomb-Kraft ausgleichen und die Strahlage verändern zu können. Nicht eingezeichnet sind zwei Sichtquarze zur Visualisierung des Strahlprofils sowie Messstellen für den Strahlstrom. Nach etwa 8,75 m befindet sich ein weiterer Magnet (M1), der es erlaubt, den Strahl für andere Experimente in ein angrenzendes Labor zu leiten. Dieser Magnet wird für dieses Experiment ebenfalls nicht genutzt. Nach insgesamt ca. 22,5 m Strahlweg beginnt der Bereich des eigentlichen Experiments, der ab Kapitel 3.3 beschrieben wird.

Die Erzeugung der  $H_2^+$ -Ionen in der Hochfrequenz-Ionenquelle findet durch Stöße mit den in der Hochfrequenz beschleunigten Elektronen statt. Daraus resultiert eine Besetzung des elektronischen Grundzustands des  $H_2^+$ -Ions, die einem Franck-Condon-Übergang aus dem Grundzustand des neutralen Wasserstoffmoleküls entspricht (vgl. Tab. 2.1 und Abb. 2.4). Im Gegensatz zu den vom Laser erzeugten Ionen findet sich hier also eine breitere Verteilung der Vibrationszustände. Außerdem gibt es keine kohärenten Beziehungen zwischen den einzelnen Zuständen.

Ein wesentlicher Unterschied zwischen der  $H_2^+$ -Erzeugung durch eine Ionenquelle und der Erzeugung mittels eines in einen Gasjet fokussierten Lasers liegt in der Targetdichte: Die hohe Geschwindigkeit der Ionen (verglichen mit neutralen Targets) fließt antiproportional in die Ionendichte ein:

$$\rho_{Ion} = \frac{j}{v \cdot q} \quad (3.1)$$

Hierbei repräsentiert  $\rho_{Ion}$  die Teilchendichte der Ionen,  $j$  die Stromdichte,  $v$  die Geschwindigkeit und  $q$  die Ladung der Ionen. Gibt man die Geschwindigkeit in a.u. an, die Stromdichte in  $\frac{nA}{mm^2}$  und  $q$  in Einheiten von  $e$ , lässt sich diese Formel auch wie folgt notieren:

$$\rho_{Ion}[mm^{-3}] = 2,853 \cdot \frac{j \left[ \frac{nA}{mm^2} \right]}{v[a.u.] \cdot q[e]} \quad (3.2)$$

Im vorliegenden Experiment wurde typischerweise eine Stromdichte von  $22 \frac{nA}{mm^2}$  erreicht, woraus sich eine Ionendichte von  $22,4 \frac{Ionen}{mm^3}$  ergibt. Die Restgasdichte ergibt sich aus der idealen Gasgleichung:

$$\begin{aligned} p \cdot V &= n \cdot k \cdot T \\ \rho_{Restgas} &= \frac{n}{V} = \frac{p}{k \cdot T} \end{aligned} \quad (3.3)$$

Geht man von Zimmertemperatur 293K aus, ergibt sich für die Dichte:

$$\rho_{Restgas}[mm^{-3}] = 2,853 \cdot 10^{13} \cdot p[mbar] \quad (3.4)$$



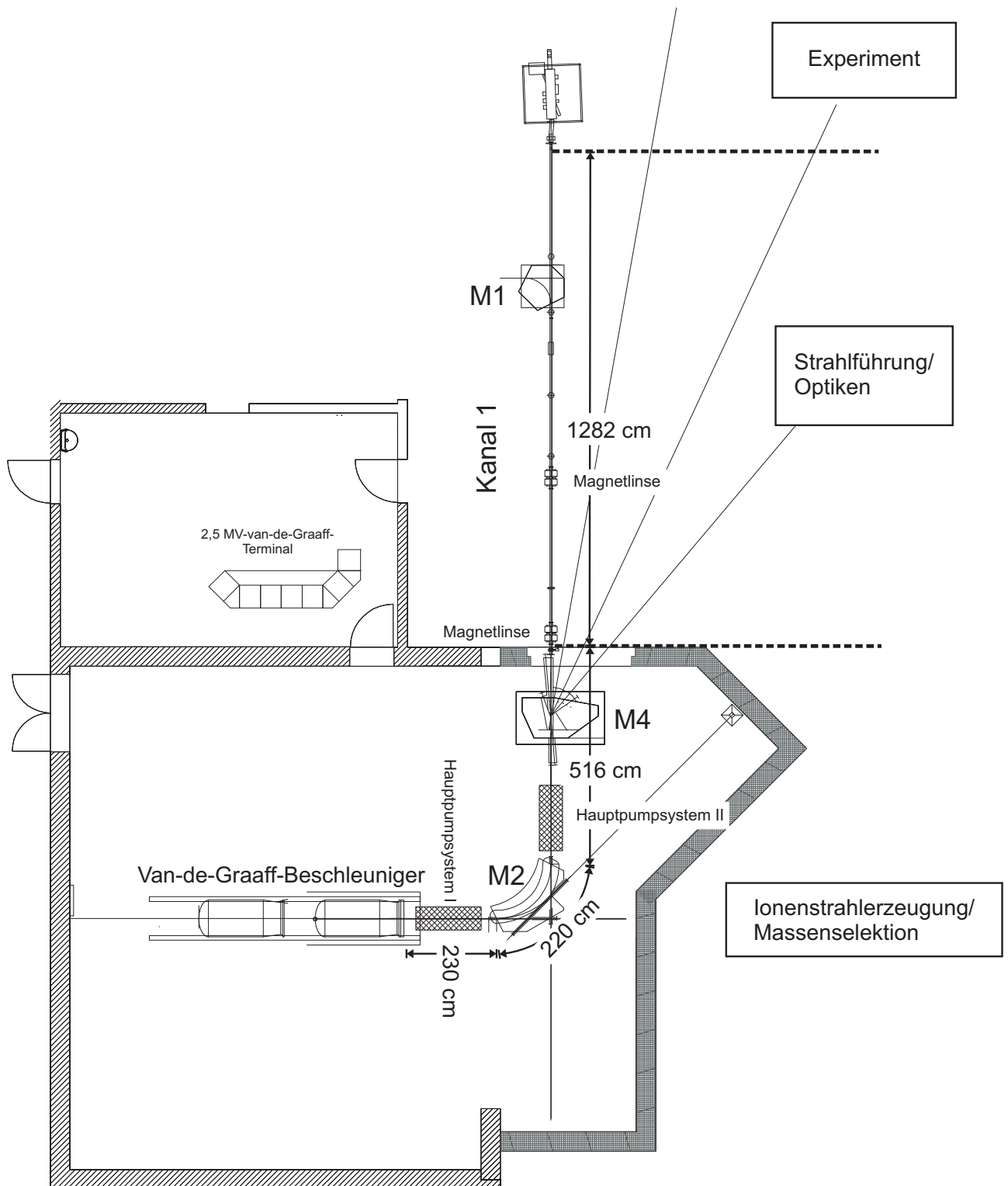


Abbildung 3.11: Skizze des Ionenstrahlwegs.

Bei einem Enddruck von  $1 \cdot 10^{-10}$  mbar, sind also noch ca. 2853 Restgasatome in einem  $mm^3$  zu finden, also etwa 100 Mal mehr als Ionen. Bei einer Fokusslänge von 1,9 mm und einem Fokussdurchmesser von  $31 \mu m$  ergibt sich ein Laservolumen von  $V_{Laser} = 1,4 \cdot 10^{-3} mm^3$ , sodass in diesem Volumen etwa 4 Restgasatome und nur 0,03 Targetionen zu finden sind. Bei einer Repetitionsrate von 8 kHz wäre damit eine Ionisationsrate von etwa 252,4 Hz zu erwarten. Dies ist in guter Übereinstimmung mit den gemessenen Koinzidenzraten (150 Hz - 400 Hz) von Laser und Projektilen (vgl. Kapitel 3.8). Dies führt in der Konsequenz dazu, dass der Laserpuls ebenfalls sehr viel mehr Restgasatome als  $H_2^+$  ionisiert. Eine Messung der Elektronen ist daher nur möglich, wenn es gelingt, diesen Untergrund effizient zu unterdrücken.

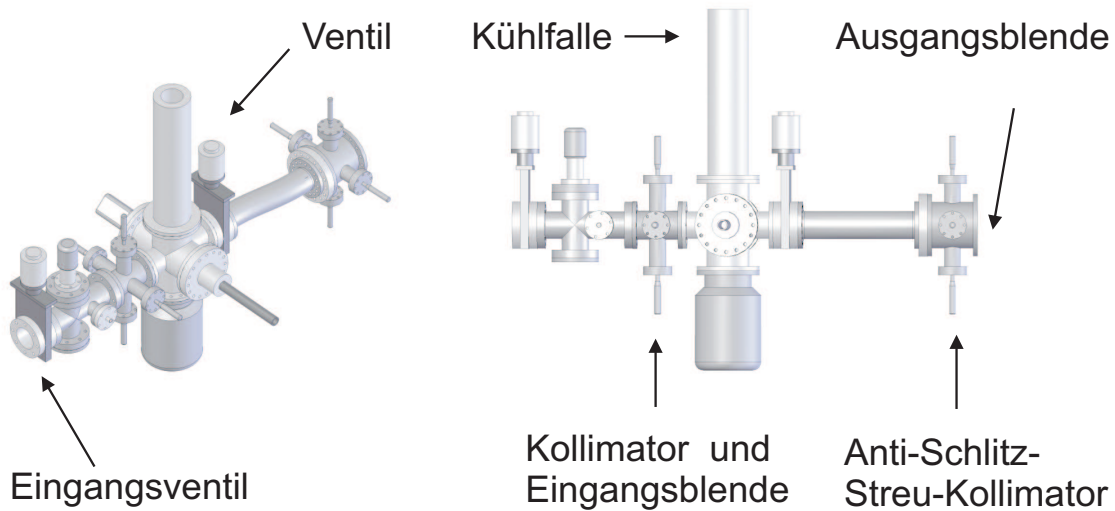
### 3.3 Differentielle Pumpstufe

Wie bereits zu Anfang des Kapitels erwähnt wurde, zieht die Verwendung eines Ionenstrahls eine erhebliche Reduktion der Targetdichte nach sich. In diesem Kontext gewinnt die Vermeidung von ungewollten Reaktionen, die sich als Untergrund niederschlagen, eine große Bedeutung. Durch eine zeitliche Koinzidenz mit den Projektilen lässt sich diese Rate zwar erheblich reduzieren, dennoch ist es von entscheidender Bedeutung, den Ursprung dieser Rate so klein wie möglich zu halten. Insbesondere im Bereich der eigentlichen Reaktion sollten alle Prozesse so gut wie möglich vermieden werden, die zu der Ionisation der Targetmoleküle führen. Dies kann am einfachsten durch eine Verbesserung des Vakuums erreicht werden.

Während im Bereich der Beschleuniger-Anlagen ein Druck von  $4 \cdot 10^{-7}$  mbar zu finden ist, wird für den Reaktionsbereich sowie für die Driftstrecke ein erheblich besseres Vakuum angestrebt. Die Zielsetzung für die Experimentierkammer ist ein Druck von  $10^{-10}$  mbar und für die Driftstrecke  $8 \cdot 10^{-10}$  mbar. Um dies bei angemessener Pumpleistung zu erreichen, wurde eine differentielle Pumpstufe zwischen Beschleuniger-Anlagen und Experimentierkammer integriert. Der Aufbau dieser differentiellen Pumpstufe ist in Abb. 3.12 dargestellt. Da der Grund für die Integration einer differentiellen Pumpstufe in einer Verbesserung des Endvakuums in der Experimentierkammer liegt, soll im Folgenden ein kurzer Überblick über die notwendigen Methoden der Vakuumtechnik gegeben werden. Hierbei wurde sich überwiegend an [96] orientiert.

Zur Verbesserung des Endvakuums ist eine möglichst geringe Gasströmung zwischen Beschleuniger-Anlagen und differentieller Pumpstufe sowie zwischen differentieller Pumpstufe und Experimentierkammer erforderlich. Diese Gasströmung ist allgemein definiert als:

$$q\left[\frac{mbarl}{s}\right] = L\left[\frac{l}{s}\right] \cdot \Delta p[mbar] \quad (3.5)$$



**Abbildung 3.12:** Aufbau der differentiellen Pumpstufe in isometrischer und Seitenansicht.

L gibt hierbei den so genannten Leitwert an und ist der Proportionalitätsfaktor zwischen der Gasströmung und dem Druckunterschied zwischen zwei Vakuumapparaturen. Da der grundlegende Sinn der differentiellen Pumpstufe eine Abgrenzung von Bereichen mit sehr unterschiedlichem Druck sein soll, ist es nicht verwunderlich, dass die Druckdifferenz in diesem Fall in guter Näherung dem Hochdruck entspricht. Die Größe des Leitwertes hängt von der Art der Strömung, der Gassorte und der Form bzw. Geometrie der entsprechenden Verbindung ab. Um eine möglichst gute Abtrennung zwischen zwei Vakuumbauteilen zu erhalten, ist es also notwendig, diesen Leitwert so gering wie möglich zu halten. Bei molekularer Strömung gilt für den Leitwert einer Blende:

$$L_{Blende} = \frac{\bar{c}}{4} \cdot A \quad (3.6)$$

$\bar{c}$  ist dabei die mittlere Geschwindigkeit der entsprechenden Gase, wie sie in Tabelle 3.1 für die wichtigsten Gase und Zimmertemperatur ( $20^\circ\text{C} = 293,15\text{ K}$ ) angegeben sind.  $A$  bezeichnet die Fläche der Blendenöffnung. Da der Leitwert spezifisch für jede Gassorte ist, folgt für die Gasströmung entsprechend, dass die jeweiligen Partialdruckdifferenzen der Gase zu betrachten sind. Die Gesamtströmung ergibt sich daraus folgend als Summe über alle Gaströmungen.

Wie bereits in Gl. 3.6 ersichtlich wird, hängt der Leitwert einer Blende in erster Linie von der Fläche der Blendenöffnung ab. Zugleich muss im vorliegenden Fall jedoch gewährleistet sein, dass der Ionenstrahl möglichst verlustarm in die Experimentierkammer gelangt. Daher wurde speziell für den Übergang der Beschleuniger-Anlagen

Gassorte	mittlere Geschwindigkeit, $\bar{c}[\frac{m}{s}]$
$H_2$	1762
$He$	1246
$H_2O$	587
$N_2$	471
<i>Luft</i>	463
<i>Ar</i>	394
$CO_2$	376

**Tabelle 3.1:** Liste der mittleren Geschwindigkeiten der wichtigsten Gase bei Zimmertemperatur. ([96])

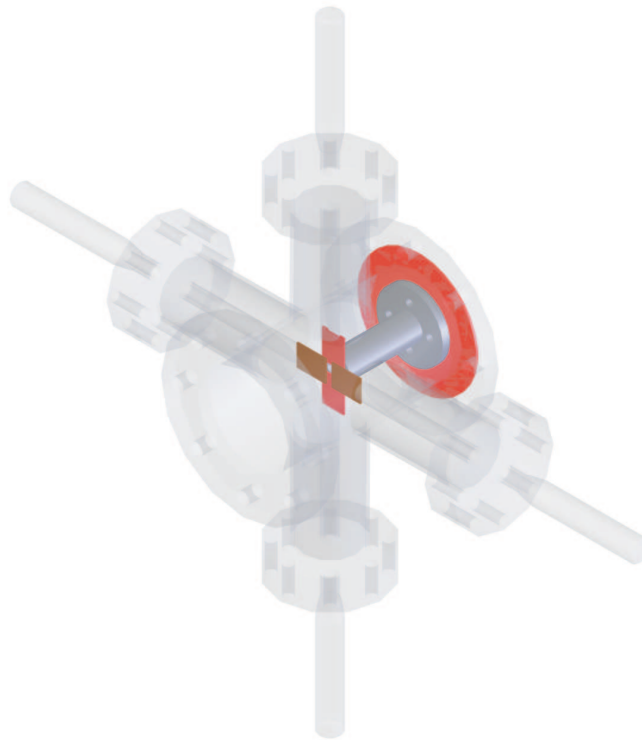
zur differentiellen Pumpstufe ein Kollimatorkreuz derart modifiziert, dass es zugleich als Blende wirkt (Abb. 3.13). Von Seiten der differentiellen Pumpstufe ist ein Rohr mit  $13\text{mm}$  Innendurchmesser so installiert, dass es mit einer Ebene der Kollimatorbacken bündig abschließt. Für den Leitwert eines Rohrstücks gilt:

$$L_{\text{Rohr}} = \frac{\bar{c} \cdot \pi \cdot d^3}{12 \cdot l} \quad (3.7)$$

d: Durchmesser des Rohres,

l: Länge des Rohres.

Da dieses Kollimatorkreuz die Strahlgröße begrenzt, werden die Backen bis auf ca.  $0,5\text{mm}$  geschlossen. Damit entsteht eine Fläche von nur  $0,25\text{mm}^2$  gegenüber der Öffnungsfläche des Röhrchens von  $132,7\text{mm}^2$ , durch die ein Druckausgleich zwischen den Bauteilen stattfinden kann. Daraus resultiert ein Blenden-Leitwert von  $L_{H_2} = 0,11\frac{l}{s}$  für Wasserstoff und  $L_{Luft} = 0,029\frac{l}{s}$  für Luft. Für das Rohrstück ergeben sich die Leitwerte:  $L_{H_2} = 7,8\frac{l}{s}$  für Wasserstoff und  $L_{Luft} = 2,05\frac{l}{s}$  für Luft. Ein weiteres Kollimatorkreuz am Ende der differentiellen Pumpstufe hat keine Blendenfunktion, sondern dient der Ausblendung von am ersten Kollimator gestreuten Teilchen (*Anti-Schlitz-Streu-Kollimator*). Da die Partialdrücke nicht bekannt sind, kann nur eine grobe Abschätzung der Gasströmung erfolgen. Bei einem Druck von  $4 \cdot 10^{-7}\text{mbar}$  seitens des Beschleunigeranlagen ist es naheliegend, dass ein erheblicher Teil des Restgases aus Stickstoff ( $N_2$ ), dem Hauptbestandteil der Luft, besteht. Es ergibt sich so eine Gasströmung von  $q_{N_2} = 1 \cdot 10^{-8} \frac{\text{mbar} \cdot l}{s}$ . Der zusätzliche Einfluss des Röhrchens wurde dabei nicht berücksichtigt. Da der Leitwert des Röhrchens jedoch im Vergleich zum Leitwert der Blende sehr hoch ist, kann er vernachlässigt werden. Diese Werte müssen nun mit der Saugleistung der entsprechenden Pumpen in Beziehung gebracht werden. Die Saugleistung ist der transportierte Gasstrom einer Vakuumpumpe [96] und definiert als:



**Abbildung 3.13:** Kollimatorkreuz mit Eingangsblende. Die Kollimatorbacken einer Richtung schließen bündig mit der Eingangsblende ab, sodass die effektive Blendenöffnung mit der Schlitzöffnung skaliert.

$$Q = S \cdot p \quad (3.8)$$

$S$  bezeichnet dabei das Saugvermögen einer Vakuumpumpe. Für die verwendete Turbomolekularpumpe des Typs *Leybold TW 361* der differentiellen Pumpstufe findet sich als Saugvermögen für  $N_2$ :  $S_{N_2} = 345 \frac{l}{s}$ . Allein durch den abgeschätzten Gasdurchfluss wäre damit ein theoretischer Partialenddruck für  $N_2$  von  $3,4 \cdot 10^{-11} mbar$  möglich. Auch wenn dieser Wert weit unterhalb des erreichten Enddrucks von  $1 \cdot 10^{-8} mbar$  liegt, zeigt dies deutlich, dass die Gasströmung von Seiten der Beschleunigeranlagen nahezu ausgeschaltet werden kann.

Für den tatsächlich erreichten Enddruck spielen noch weitere begrenzende Faktoren eine Rolle. Zum einen stellt jedes Material innerhalb einer Vakuumapparatur eine Leckquelle durch Desorption von Gasteilchen, die sich auf der Oberfläche abgelagert haben, dar. Durch den Desorptionsprozess verringert sich zwar die Oberflächenbelegung, sodass diese Leckrate mit der Zeit abnimmt, allerdings ist dieser Vorgang recht langsam. Um diese Desorption zu vermindern, werden Apparaturen, in denen ein entsprechend gutes Vakuum gefordert wird, über mehrere Tage ausgeheizt. Durch die erhöhte Temperatur verkürzt sich die Verweildauer auf Oberflächen beträchtlich.

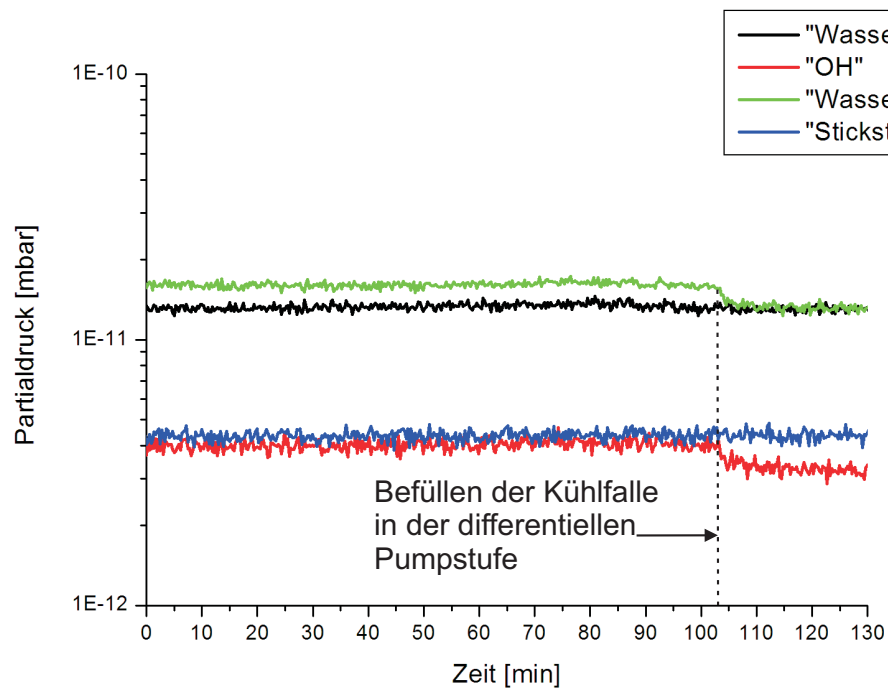
Auf diese Art und Weise, kann die Oberflächenreinheit in relativ kurzer Zeit erhöht und so die Desorptionsrate entsprechend gesenkt werden. Besonders Wasser kann so effektiv aus der Apparatur entfernt werden.

Eine weitere Leckquelle entsteht durch Rückströmung durch die TMP. Dies trifft vor allem für leichte Gase wie Wasserstoff oder Helium ( $He$ ) zu. Hierbei kommt es maßgeblich auf das Druckverhältnis zwischen Hoch- und Niederdruckseite an. Für Wasserstoff liegen typische Werte bei  $1,4 \cdot 10^5$ , für Stickstoff bei  $1 \cdot 10^9$  (Werte für eine Pfeiffer 261YP). Speziell für hohe Anforderungen an das Endvakuum, spielt dieser Wert eine entscheidende Rolle. Daher wurde für den gesamten Aufbau eine ölfreie Membran-TMP-Kombination als Vorpumpe benutzt. Der Pumpstand besteht aus einer Pfeiffer MVP 015-2 Membranpumpe mit  $S_{N_2} = 15 \frac{l}{s}$ , die einen Enddruck von  $3,5 mbar$  erreichen kann, und einer Pfeiffer TMH 071 TMP mit  $S_{N_2} = 59 \frac{l}{s}$ . Da bei diesem Experiment kein Gasballast anfällt, ist das niedrige Saugvermögen nicht von großer Bedeutung. Diese Kombination versorgt die am Experiment befindlichen TMP mit einem sehr guten Vorvakuum von  $1 \cdot 10^{-6} mbar$ .

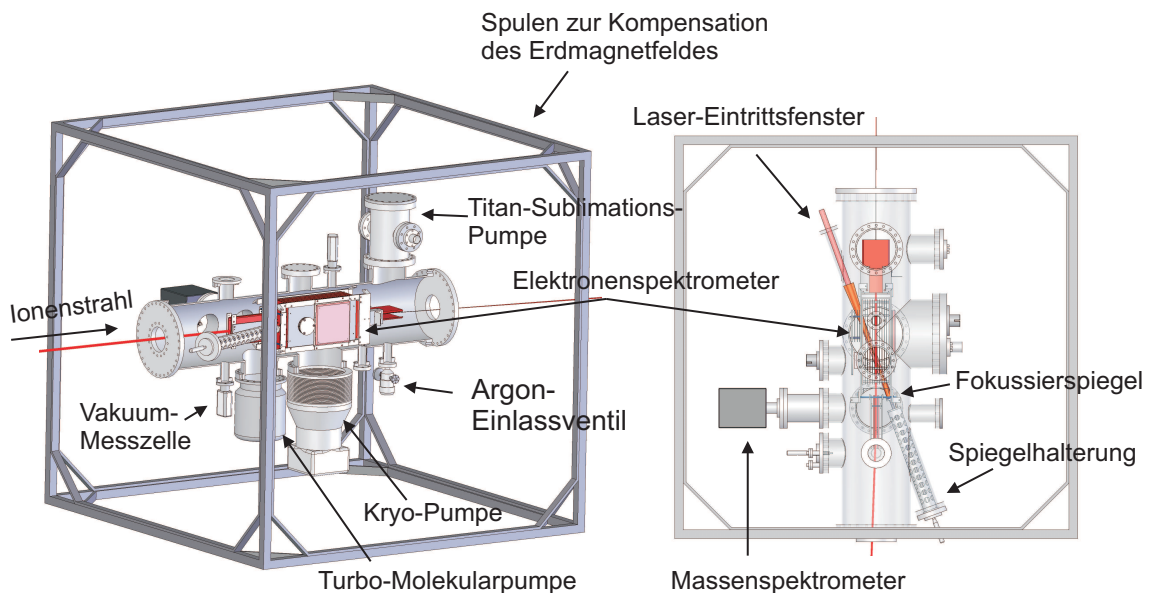
Der Übergang zur Experimentierkammer findet über eine längliche Blende mit etwa  $10 mm \times 20 mm = 2 cm^2$  statt. Obwohl der Leitwert mit  $L_{N_2} = 23,5 \frac{l}{s}$  erheblich größer ist als bei der vorigen Blende, kann hier nicht auf eine kleinere Blende zurückgegriffen werden, da sonst eine Beschneidung des Ionenstrahls wahrscheinlich ist. Da in der differentiellen Pumpstufe allerdings schon ein erheblich besseres Vakuum von  $1 \cdot 10^{-8} mbar$  vorhanden ist, fällt die Gasströmung durch diese große Blende nicht so sehr ins Gewicht. Außerdem gilt es zu beachten, dass sich die Zusammensetzung des Restgases in der differentiellen Pumpstufe von der in den vorausgehenden Beschleunigeranlagen unterscheidet. Vor allem die Konzentration an Wasser wird in der differentiellen Pumpstufe durch eine Kühlfalle und den Ausheizvorgang erheblich reduziert, was sich direkt im Druck der Experimentierkammer niederschlägt. In Abb. 3.14 ist der Einfluss der in der differentiellen Pumpstufe befindlichen Kühlfalle auf die Partialdrücke in der Experimentierkammer dargestellt.

### 3.4 Experimentierkammer

Die eigentlichen Reaktionen finden in der Experimentierkammer statt. Die Kammer selbst besteht im Wesentlichen aus einem 1,2 m langen Rohr mit einem Innendurchmesser von 250 mm. In diesem befindet sich das Elektronenspektrometer, in das Einheiten zur Strahlreinigung und -analyse sowie zwei Strahlfindungsdetektoren, um die dreidimensionale Position des Ionenstrahls und des Laserfokus zu ermitteln, eingebaut sind. Der Laser wird über ein CF 40 Quarzfenster in einem Winkel von  $20^\circ$  zur Kammerachse eingestrahlt. Ein an der gegenüberliegenden Seite installierter Hohlspiegel mit 20 cm Brennweite fokussiert den Laser auf den Ionenstrahl

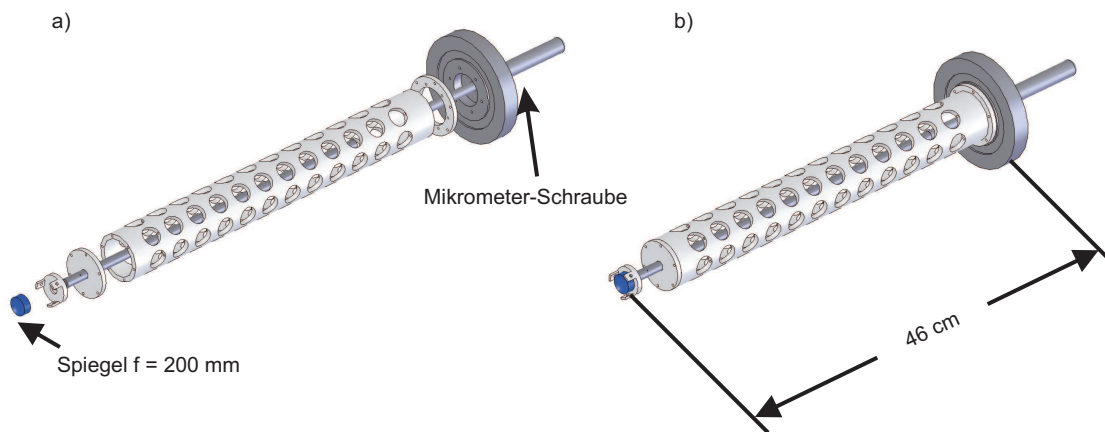


**Abbildung 3.14:** Verlaufsgraf der Partialdrücke in der Experimentierkammer. Bei ca 103 Minuten findet die Befüllung der Kühlfalle in der differentiellen Pumpstufe statt.



**Abbildung 3.15:** Aufbau der Experimentierkammer. Der Laser tritt in einem Winkel von  $20^\circ$  zur Kammerachse in die Experimentierkammer ein. Die Fokussierung erfolgt über einen Spiegel der Brennweite 20 cm.

(siehe Abb. 3.15). Der Spiegel ist über eine Stange mit einer Mikrometerschraube verbunden, die es ermöglicht, den Spiegel in Strahlrichtung zu verschieben. Da der Spiegel eine Entfernung von etwa 46 cm zu dem Flansch besitzt, an dem er befestigt wird, wurde eine Stabilisierung für die Spiegelhalterung angefertigt. Diese besteht im Wesentlichen aus einem Rohr mit 51 mm Außendurchmesser. Um die Vakuumeigenschaften des Rohrs zu verbessern, wurde es mit Löchern versehen. Ein Endstück mit Loch verbindet die Stange, an der der Spiegel befestigt ist, mit der Stabilisierung (siehe Abb. 3.16). Das Vakuum in der Kammer wird von einer *Leybold*

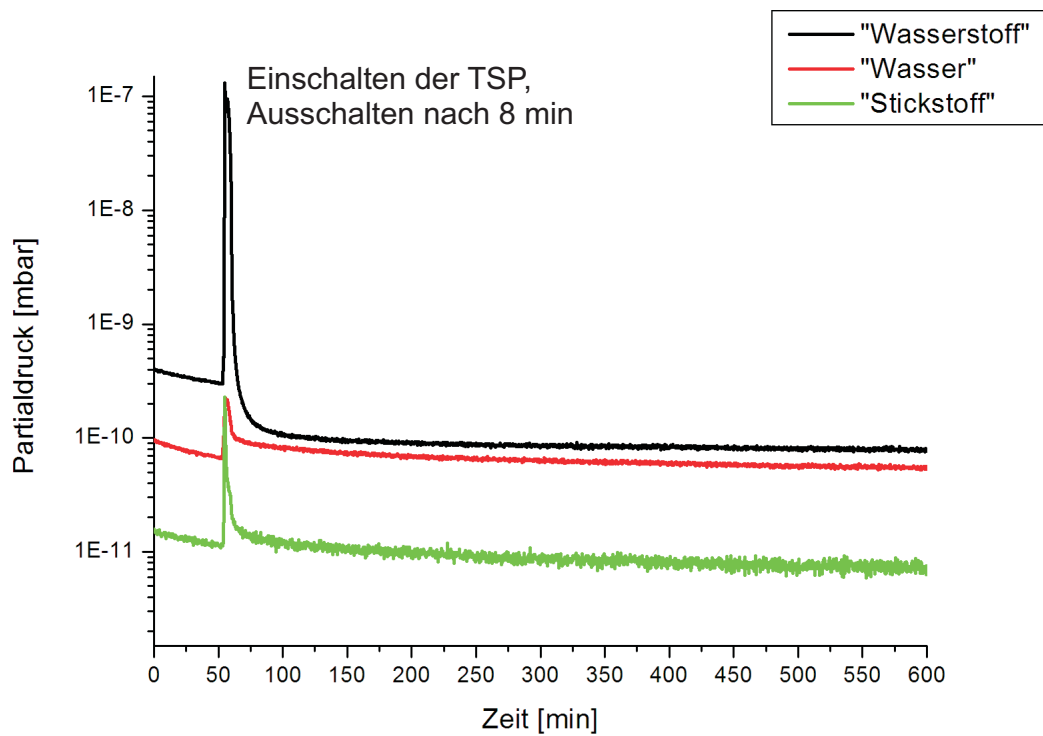


**Abbildung 3.16:** Halterung für den fokussierenden Spiegel in Explosions- und Normalansicht. Durch den großen Abstand zum Flansch ist eine Stabilisierung erforderlich.

TW 700 Turbomolekularpumpe (TMP) mit einem Saugvermögen von  $S_{N_2} = 680 \frac{l}{s}$  erzeugt. Im Übergang zur darauf folgenden Driftstrecke findet sich eine *Pfeiffer* TMU 261YP TMP mit  $S_{N_2} = 210 \frac{l}{s}$ . Ergänzend dazu ist noch eine Kryo-Pumpe installiert sowie heizbare Titanstäbe, die eine Bedampfung von Teilen der Kammerinnenwand mit Titan erlauben. Durch die Gettereigenschaften des Titans werden Restgasatome an die Titanatome gebunden. Dies entspricht dem Grundprinzip einer Titan-Sublimationspumpe. Vor allem für Wasserstoff erweist sich diese Pumpe als effektiv, wie in Abb. 3.17 zu sehen ist. Während bei der Beheizung der Titanstäbe die Partialdrücke stark ansteigen, klingt vor allem die Wasserstoff-Kurve nach dem Abschalten deutlich ab. Für andere Gase, wie Wasser oder Stickstoff, hat die bedampfte Oberfläche kein ähnlich gutes Gettervermögen. Dass die Kurven für diese Gase höher liegen als zuvor, ist auf eine Erwärmung der Kammer in der unmittelbaren Nähe der Titanstäbe zurückzuführen.

An der Unterseite der Kammer ist ein saphirgedichtetes Nadelventil angebracht, über das eine gezielte Kontaminierung mit kleinsten Mengen Argon ( $^{40}Ar$ ) möglich ist. Dieses kann als Eichgas für Flugzeitspektren verwendet werden und wird für





**Abbildung 3.17:** Verlaufsgraf der Partialdrücke bei Bedampfung von Teilen der Kammerinnenwand mit Titan. Nachdem die Titanstäbe nicht mehr geheizt werden, klingt die Wasserstoffkurve schnell ab.

die Bestimmung der Lage des Ionenstrahls und des Laserfokus genutzt. Dies wird in Kapitel 3.7.2 näher ausgeführt.

Außerdem ist ein Quadrupol-Massenspektrometer als Restgasanalysator (RGA) installiert, um Aufschluss über die Zusammensetzung des Restgases zu erhalten. Die typische Verteilung der wichtigsten Partialdrücke in der Experimentierkammer entspricht derjenigen in Abb. 3.14. Als Hauptbeiträge finden sich Wasser und Wasserstoff. Während letzterer durch seine geringe Masse und Größe am leichtesten durch die TMP rückströmt und durch kleinste Lecks diffundieren kann, ist der verbleibende Wasserpartialdruck auf eine Oberflächenbelegung auf Kammerinnenwand und Einbauten zurückzuführen. Die vom RGA gemessenen Partialdrücke lassen darauf schließen, dass das Endvakuum bedeutend besser ist als  $5 \cdot 10^{-10} \text{ mbar}$ , was der Messgrenze der verwendeten Messzellen entspricht. Um während der Messung den Einfluss des Erdmagnetfeldes zu eliminieren, wurden um die Experimentierkammer drei Spulenpaare installiert, die zusammen die Form eines Würfels einnehmen (siehe Abb. 3.15). Durch die unabhängige Spannungsversorgung aller Spulenpaare kann der Stromfluss und damit das entstehende Magnetfeld derart angepasst werden, dass es dem Erdmagnetfeld genau entgegengerichtet ist und daher im Zentrum der Spulenordnung, wo sich das Elektronenspektrometer befindet, ein B-Feld-freier Bereich entsteht.

## 3.5 Lasersystem

In Rahmen dieses Experiments wurden Laserpulse von etwa 40 fs Länge mit der zentralen Wellenlänge 780 nm benutzt. Nachdem die Pulse durch einen konkaven Spiegel der Brennweite 20 cm fokussiert wurden, konnte eine Intensität von mehr als  $6 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  erreicht werden. Im Folgenden soll das System zur Erzeugung dieser Pulse sowie die spezifischen Aufbauten für die Strahlführung hin zum Experiment erläutert werden.

### **Oszillator:**

Die Erzeugung kurzer Laserpulse findet entsprechend dem Schema in Abb. 3.18 statt. Ein frequenzverdoppelter Nd:YAG *Coherent* Verdi 5W pumpt zunächst einen Titan-Saphir-Kristall innerhalb eines Oszillators und sorgt in diesem für die notwendige Besetzungsinversion. Die Länge des Oszillators muss dabei derart angepasst werden, dass sich eine zeitlich stabile stehende Welle ausbilden kann. Bei sehr hohen Intensitäten kommt es aber speziell in Medien, also auch im Verstärkerkristall, zu einem intensitätsabhängigen Brechungsindex. Von Bedeutung ist hier vor allem der *Kerr-Effekt*. Nach diesem ist der Brechungsindex [97]:

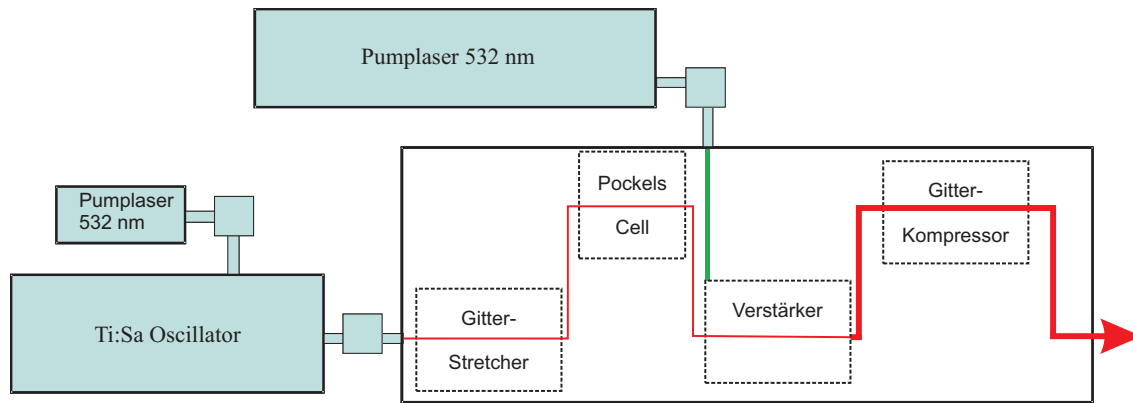


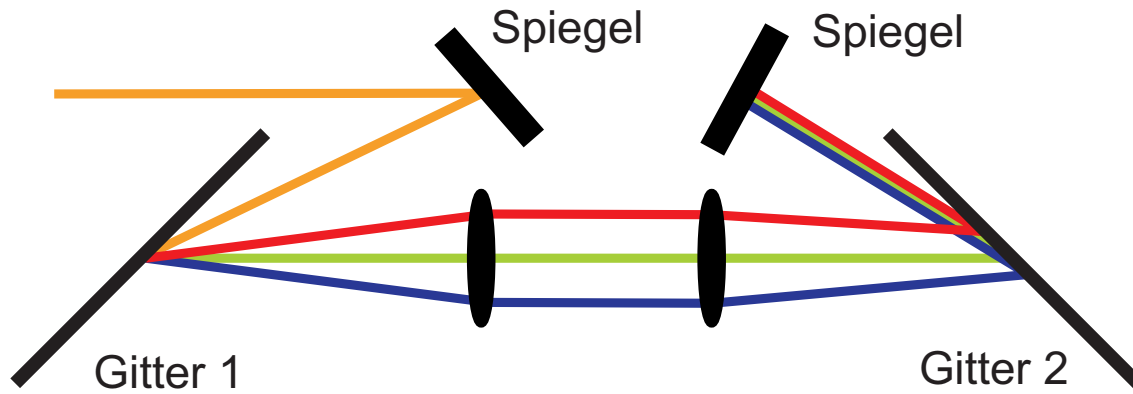
Abbildung 3.18: Schematischer Aufbau des Lasersystems.

$$\begin{aligned}
 n &= n_0 + \bar{n}_2 \cdot \langle E^2 \rangle \\
 &= n_0 + n_2 \cdot I
 \end{aligned}
 \tag{3.9}$$

$n_0$  bezeichnet hierin den unabhängigen Brechungsindex,  $\bar{n}_2$  den zur zeitlich gemittelten Feldstärke quadratischen Brechungsindex. Da die Intensität die gleiche quadratische Abhängigkeit aufweist, kann  $\bar{n}_2 \cdot \langle E^2 \rangle$  auch durch  $n_2 \cdot I$  ausgedrückt werden. Für Saphir liegt dieser bei  $n_2 = 2,9 \cdot 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$  [98]. Durch diesen Effekt kann der Oszillator so eingestellt werden, dass der Resonator auf eine bestimmte Intensität abgestimmt ist. Da die Intensität weiterhin bei gepulsten Strahlen wesentlich höher ist als bei cw Strahlen, kann der Oszillator auf einen gepulsten Betrieb optimiert werden. Eine effiziente Verstärkung wird dann nur beim Durchgang der Pulse durch den Kristall erreicht, sodass sich der Puls selbst aufrecht erhält und ein modengekoppeltes System entsteht. Man bezeichnet in diesem Fall den Oszillator auch als *mode-locked*. Der Kerr-Effekt führt des Weiteren zu einer Selbstfokussierung. Die Repetitionsrate des resultierenden Lasers ist durch die Länge des Resonators definiert. Zusammenfassend liefert der Oszillator selbstfokussierende, modengekoppelte 12 fs Pulse mit einer Repetitionsrate von 80 MHz. Die Bandbreite der Pulse beträgt 65 nm um die zentrale Wellenlänge von 780 nm. Die Ausgangsleistung beträgt 400 mW, sodass die einzelnen Pulse eine Energie von 5 nJ besitzen.

### Gitterstretcher:

Sollen diese Pulse nun auf eine ausreichende Intensität verstärkt werden, ist es notwendig, die Pulse erheblich aufzuweiten und somit die Energie eines Pulses auf einen längeren Zeitraum zu verteilen, damit der Verstärkerkristall nicht beschädigt wird. Aus diesem Grund werden die Pulse mit einem Gitterstretcher auf ca. 2 ps aufgeweitet. Die Funktionsweise beruht auf einer Manipulation der relativen Phasenlage der vorkommenden Frequenzen im Laserpuls. Dies entspricht dem Effekt der Dispersion, der bei der Propagation von Lichtpulsen in Medien auftaucht. Während

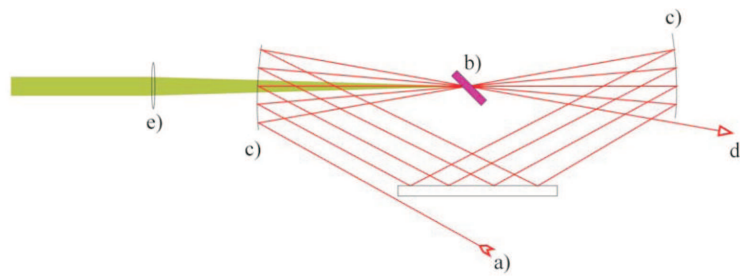


**Abbildung 3.19:** Schematischer Aufbau des Gitterstretchers. Licht fällt auf ein erstes Gitter, wo eine spektrale Aufspaltung stattfindet. Licht kürzerer Wellenlänge (blau) wird dabei in einem größeren Winkel gestreut. Über fokussierende Elemente, ein zweites Gitter sowie einen Spiegel, der den spektral aufgespaltenen Puls wieder zurücksendet, ist die Wegstrecke für Licht kleinerer Wellenlänge größer. Nach der Zusammenführung der spektralen Komponenten resultiert so ein erheblich längerer Laserpuls.

allerdings bei dieser Art der Dispersion der Grund in dem wellenlängenabhängigen Brechungsindex liegt, macht man sich beim Gitterstretcher den wellenlängenabhängigen Beugungswinkel an einer Gitteroberfläche zu Nutze, wodurch eine erheblich effizientere Weise der Pulsaufweitung stattfinden kann. Trifft der Laserpuls auf das Gitter, findet eine spektrale Aufspaltung des Laserpulses statt. Anteile mit kürzerer Wellenlänge werden dabei unter einem größeren Winkel gebeugt (zur Funktionsweise der Gitter siehe [99]). Durch ein zweites Gitter können die durch das erste Gitter aufgespaltenen Wellenlängen parallelisiert werden. Ein Spiegel kann nun die parallelen Strahlen auf dem selben Weg zurücksenden, sodass wieder ein einheitliches Strahlenbündel entsteht. Die räumliche Trennung während dieses Weges führt allerdings zu einer wellenlängenabhängigen Wegstrecke (siehe Abb. 3.19). Über Linsen oder fokussierende Spiegel kann die Strahlführung derart modifiziert werden, dass Licht kürzerer Wellenlänge (in Abb. 3.19 durch blau Linien dargestellt) einen längeren Weg zurücklegt als langwelligeres Licht (grün und rot dargestellt). Nach dem Zusammenführen der Strahlen hat sich die relative Phasenlage derart verändert, dass ein erheblich längerer Puls die Folge ist.

### Pockels-Zelle:

Bevor die aufgeweiteten Pulse verstärkt werden können, muss die Repetitionsrate der Pulse drastisch verringert werden. Dies ist zum einen notwendig, um eine effiziente Verstärkung zu gewährleisten, zum anderen aber auch von experimentellem Interesse, da bei 80 MHz die Pulse in einem zeitlichen Abstand von nur 12,5 ns aufeinander folgen. Dies entspricht etwa der Flugzeit der Elektronen bei diesem Experiment. Die Ionenflugzeiten liegen mit etwa 500 ns weit darüber, sodass es zu erheblichen Zuordnungsproblemen kommen würde. Aus diesem Grund wird mittels



**Abbildung 3.20:** Skizze eines Multipassverstärkers. Der Strahl trifft von a) kommend auf ein Paar Konkavspiegel c), die den Strahl nun mehrere Male derart reflektieren, dass sich alle Wege im Bereich des Kristalls b) treffen. Bei d) verlässt der Laser den Verstärker. Der Kristall wird von einem 532 nm Laser e) gepumpt. [98]

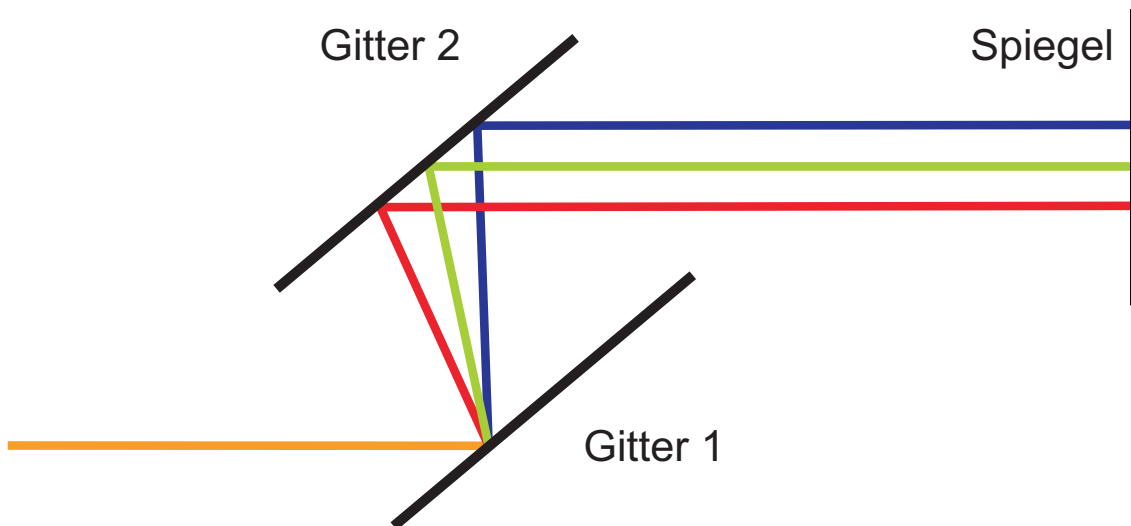
einer Pockels-Zelle die Rate auf 8 kHz reduziert. Die Pockels-Zelle macht sich dabei den *Pockels-Effekt* zu Nutze. Durch das Anlegen einer bestimmten Spannung an den Kristall wirkt dieser als  $\lambda/2$ -Platte. Wird nun ein sehr kurzer Spannungspuls (1-2 ns) mit einer Wiederholungsrate von 8 kHz an den Kristall angelegt, führt das, wenn es zu den Laserpulsen synchronisiert stattfindet, zu einer Drehung der Polarisation um  $90^\circ$ . Während die Eingangspulse eine horizontale Polarisation aufweisen, besitzt jeder 10.000 Puls eine vertikale Polarisation. Abschließend selektiert ein am Ausgang der Pockels-Zelle installierter Polarisationsfilter diese Pulse (vgl. [100]).

### Verstärkung:

Die Verstärkung der Pulse findet durch einen so genannten *Multipass Verstärker* statt. Ein Ti:Sa-Kristall wird von einem 532 nm Q-Switch *Leelaser* LDR200MQG mit 100W, 8 kHz Repetitionsrate und einer Pulslänge von 250 ns gepumpt. Damit sich der Kristall nicht zu sehr erhitzt, wird er mittels eines Helium-Kryostats gekühlt. Der zu verstärkende Laserstrahl läuft über eine Ringstruktur insgesamt 13 mal durch den Verstärkerkristall und erfährt dabei eine Verstärkung auf bis zu  $875 \mu J$  je Puls. Dies entspricht einem Verstärkungsfaktor von 175.000 gegenüber den ursprünglichen Pulsen. Eine Skizze des Multipass Verstärkers findet sich in Abb. 3.20.

### Pulskompression:

Um eine hohe Intensität zu erreichen, müssen die verstärkten Pulse schließlich wieder zeitlich komprimiert werden. Dies erfolgt durch ein ähnliches Verfahren wie es bereits zum Aufweiten der Pulse benutzt wurde. In Abb. 3.21 ist die Wirkungsweise eines Gitterkompressors dargestellt. Wieder spaltet ein erstes Gitter den Puls in seine spektralen Komponenten auf. Ein zweites Gitter, das zum ersten parallel angeordnet ist, parallelisiert die Strahlen. Durch einen Spiegel werden diese wieder auf demselben Weg zurückgeworfen, sodass sie nach dem erneuten Auftreffen auf Gitter 1 wieder zu einem Puls vereinigt werden. Im Gegensatz zum Stretcher ist in



**Abbildung 3.21:** Schematischer Aufbau des Gitterkompressors. Licht fällt von links auf ein erstes Gitter, wo eine spektrale Aufspaltung stattfindet. Licht kürzerer Wellenlänge (blau) wird dabei in einem größeren Winkel gestreut. Ein zweites parallel angeordnetes Gitter parallelisiert die Strahlen. Schließlich wird durch einen Spiegel die Strahlrichtung umgekehrt, sodass die Frequenzen nach Gitter 1 wieder zu einem Puls vereinigt werden. Der Strahlengang für längere Wellenlängen ist länger, sodass eine Pulskompression die Folge ist.

diesem Fall jedoch die Wegstrecke für langwelliges Licht größer, sodass die spektralen Komponenten wieder zusammengesoben werden, was zu einem kurzen Puls führt. Mittels dieses Kompressors kann eine Pulslänge von etwa 35 fs FWHM (*Full Width at Half Maximum*) erreicht werden.

### Strahlführung zum Experiment:

Die Laserpulse werden nun über eine insgesamt etwa 16,5 m lange Strahlführung zum Experiment geleitet. Eine Skizze dieser Strahlführung ist in Abb. 3.22 dargestellt. Nach einem Mauerdurchbruch vom Laserlabor zur Experimentierhalle muss der Laser auf eine Höhe von über etwa 2,6 m gebracht werden, um einen dauerhaften Durchgang zu ermöglichen. In dieser Höhe ist ein Breadboard installiert, um in Zukunft eine Verteilung des Lasers zu etwaigen anderen Experimenten zu ermöglichen. Im weiteren Verlauf wird die Strahlhöhe direkt beim Experiment auf die Höhe des Eintrittsfensters von 178,5 cm abgesenkt. Über eine Anordnung von insgesamt drei Spiegeln auf einem zweiten Breadboard kann die Strahlage angepasst werden. Der fokussierende Spiegel hat, wie bereits in Kapitel 3.4 erwähnt, eine Brennweite von 20 cm und kann über eine Mikrometerschraube lediglich in axialer Richtung bewegt werden. Eine Verschiebung des Fokuspunktes außerhalb dieser Achse ist daher in begrenztem Maße nur über eine geringfügige Veränderung der Strahlage in Bezug auf den Spiegel möglich. Entlang der gesamten Strahlführung sind etliche Blenden installiert, um einen einheitlichen Strahlweg festzulegen.

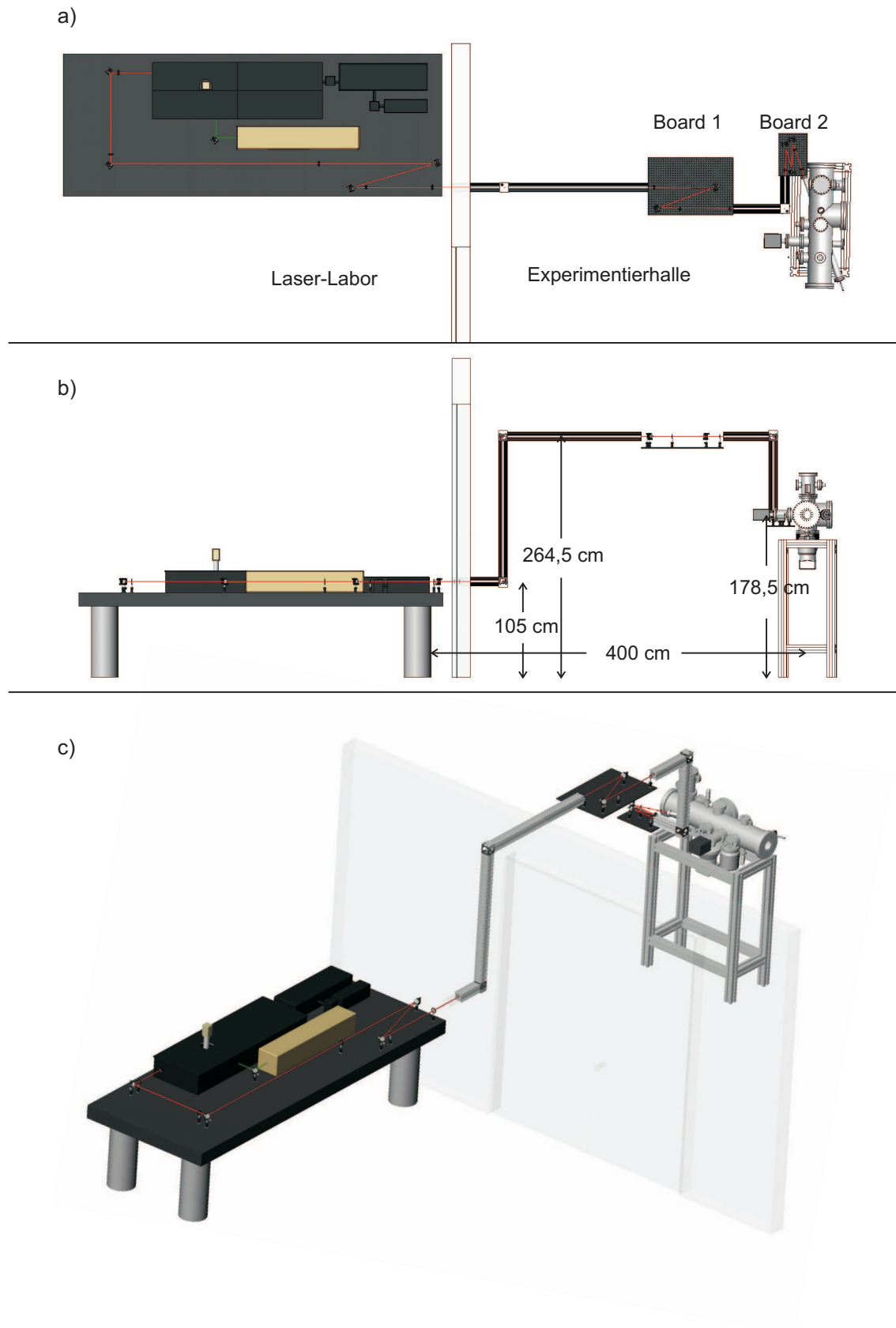
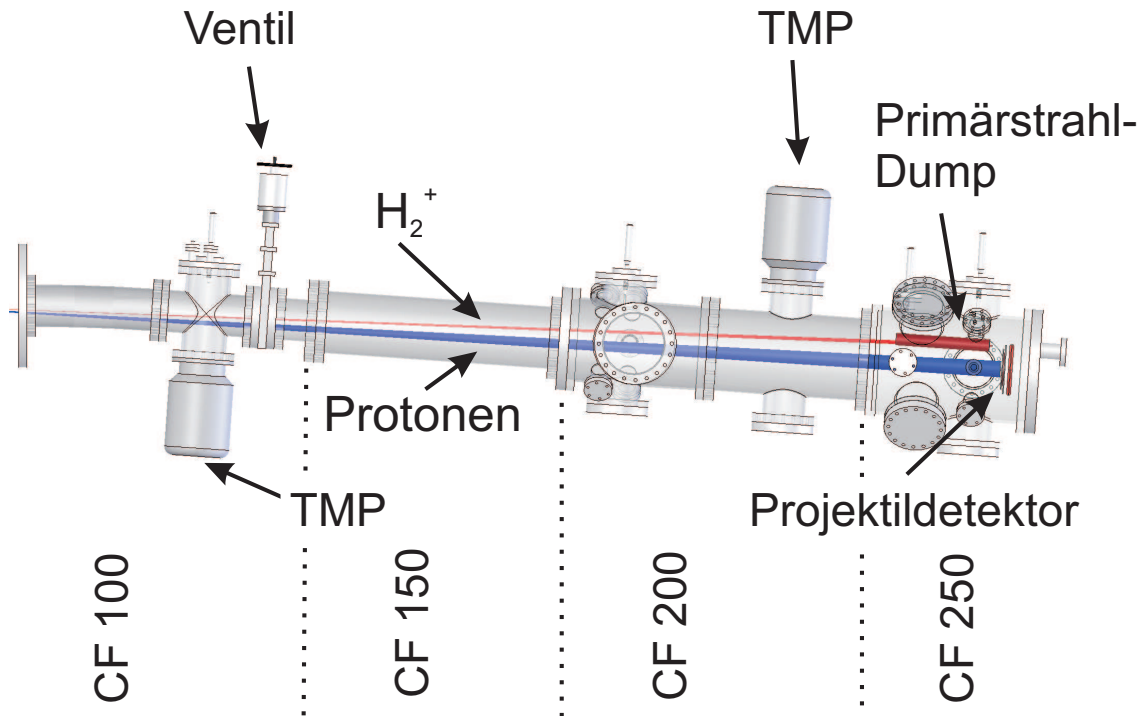


Abbildung 3.22: Laserstrahlführung. a) Draufsicht, b) Seitenansicht, c) Isometrische Ansicht.



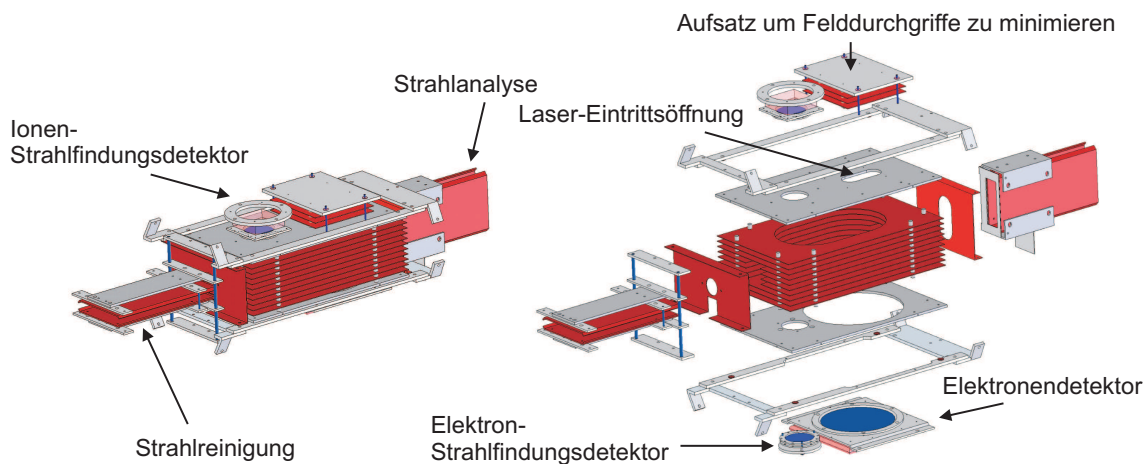
**Abbildung 3.23:** Ansicht der Driftstrecke. Der Projektil-detektor befindet sich in einer Entfernung von etwa 3 m von der Reaktionszone. Der Primärstrahl wird in einem Röhrchen gedumt.

### 3.6 Driftstrecke

Der Gleichgewichtsabstand von  $H_2^+$  liegt bei  $2 \text{ a.u.}$ , was im Falle einer Ionisation bei diesem Abstand einen KER von  $13,6 \text{ eV}$  nach sich ziehen würde. Damit nähme jedes Fragment eine Geschwindigkeit von  $0,0165 \text{ a.u.}$  oder  $36101,4 \frac{\text{m}}{\text{s}}$  auf. Vergleicht man dies mit der Geschwindigkeit des Ionenstrahls von  $2,83 \text{ a.u.}$ , so ergäbe sich aus der Detektorgröße mit einem Radius von  $40 \text{ mm}$  und dem Strahlensatz eine Driftstrecke von fast  $7 \text{ m}$ , um den Detektor vollständig auszuleuchten, sofern der Schwerpunkt der beiden Fragmente in der Detektormitte läge. Diese Länge ist aber schon allein in praktischer Hinsicht durch die Abmessungen der Experimentierhalle nicht zu erreichen.

Im vorliegenden Experiment beträgt die Driftstrecke, gemessen von Reaktionsort bis zum Detektor, etwa  $3 \text{ m}$ , sodass der Detektor zwar nicht vollständig ausgeleuchtet werden kann, der Schwerpunkt der Fragmente jedoch nicht genau in der Mitte liegen muss. In Abb. 3.23 ist der schematische Aufbau der Driftstrecke dargestellt. Durch die Strahlanalyse hinter dem Elektronenspektrometer haben der Primärstrahl und die aus Reaktionen entstandenen Protonen andere Trajektorien. Während die





**Abbildung 3.24:** Aufbau des Elektronenspektrometers. Ein Aufsatz über der Laser-Eintrittsöffnung sorgt für minimale Feldverzerrungen im Bereich der Öffnung. Vor und hinter dem Spektrometer sind elektrische Ablenkeinheiten installiert. Des Weiteren finden sich zwei Strahlfindungsdetektoren sowie ein in Strahlrichtung versetzter Elektronendetektor. Bemaßungen für das Spektrometer finden sich in Abb. 3.25.

fragmentierten Protonen alle auf den Detektor treffen, wird der Primärstrahl in einem kleinen Rohr gedumpt. Dieser Dump ist derart aufgebaut, dass auch der Strom gemessen werden kann, der auf ein isoliertes Plättchen an seinem Ende trifft. Der Abstand des Dumpröhrchens zum Detektor ist dabei so gewählt, dass auch Teilchen, die unmittelbar nach der Strahlanalyse in Restgasstößen ionisiert werden, nicht mehr auf den Detektor gelangen können.

## 3.7 Das Elektronenspektrometer

Die eigentliche Reaktion findet im Bereich des Elektronenspektrometers statt. Daher finden sich viele der wesentlichen Teile ebenfalls in diesem Bereich. Besonders die Konzeption dieses Spektrometers ist direkt auf die Verwendung der bereits diskutierten geometrischen Anordnung des Lasers zur Ionenstrahlachse und auf die Verwendung von Ionen in einem Geschwindigkeitsbereich um 3 a.u. ausgelegt.

Wegen der Geschwindigkeit der Ionen ist das Spektrometer lang gezogen. Der Elektronendetektor ist aus dem gleichen Grund in Strahlrichtung versetzt angebracht. Da der Reaktionsort innerhalb des Spektrometers liegt, muss eine Vorrichtung integriert werden, die es dem Laser erlaubt, ohne Streuung das Spektrometer zu passieren. Dies sollte dennoch derart geschehen, dass das homogene elektrische Feld innerhalb des Spektrometers möglichst wenig gestört wird. Um dies zu gewährleisten, wird oberhalb der Laser-Eintrittsöffnung ein Aufsatz angebracht, der Felddurchgriffe an der Öffnung so gut wie möglich verhindern soll. Abb. 3.24 zeigt eine Explosionssskizze des Spektrometers.

Um ein möglichst reines Target zu erhalten, ist unmittelbar vor dem Spektrometer eine elektrische Ablenkeinheit installiert. Für den Ablenkungswinkel  $\alpha$  in einem homogenen elektrischen Feld der Länge  $l$  gilt:

$$\tan \alpha = \frac{q \cdot E \cdot l}{m \cdot v^2} \quad (3.10)$$

Daraus folgt, dass Targetionen, die durch Stöße mit dem Restgas Elektronen eingefangen haben oder vollständig ionisiert wurden, sich durch Ladung bzw. Masse von den  $H_2^+$ -Ionen unterscheiden, während ihre Geschwindigkeit jedoch in erster Linie unverändert bleibt. Während neutrale  $H_2$ -Moleküle also ohne eine Ablenkung zu erfahren das elektrische Feld durchqueren, werden Protonen entsprechend stärker abgelenkt. Da dieses Verfahren einer Säuberung des Ionenstrahls von umgeladenen Targets darstellt, wird diese Ablenkeinheit auch als *Strahlreinigung* bezeichnet.

Weiterhin ist hinter dem Spektrometer ein gleichartiger, jedoch um  $90^\circ$  gedrehter Aufbau zu finden. Hier wird vor allem der Primärstrahl von den Teilchen getrennt, die vom Laserfeld ionisiert wurden und daher aus Protonen bestehen (*Strahlanalyse*).

### 3.7.1 Untergrundunterdrückung

Grundsätzlich gibt es verschiedene Quellen für Hintergrundsignale. Um eine sinnvolle Aussage über die physikalischen Prozesse treffen zu können, ist es daher notwendig, diese Hintergrundsignale so gut wie möglich zu unterdrücken. Dabei muss man zwischen Hintergrundionen und Hintergrundelektronen unterscheiden. Hintergrundionen entstehen vordringlich durch Stöße mit dem Restgas zwischen Strahlreinigung und Strahlanalyse. Unabhängig davon, ob das  $H_2^+$ -Ion dabei ionisiert oder lediglich in einen repulsiven Zustand angeregt wird, entstehen Protonen, die zunächst einmal die gleiche Trajektorie haben werden, wie Protonen, die durch Wechselwirkung mit dem Laserfeld entstehen. Allerdings sind diese zufällig entstehenden Protonen gleichmäßig in der Zeit verteilt, während Fragmente, die durch den Laser erzeugt werden, mit diesem notwendigerweise zeitlich korreliert sind. Bei einer Repetitionsrate von  $8kHz$  ist nur alle  $125\mu s$  ein Signal zu erwarten. Da selbst bei einem Aufbruch in Flugzeitrichtung die Flugzeit nur wenige ns von der Flugzeit des Schwerpunktes abweicht, ist es möglich, durch eine Flugzeitbedingung diesen Untergrund nahezu vollständig zu unterdrücken.

Für den Elektronenuntergrund gibt es dagegen diverse Ursachen:

1. Der Laser ionisiert nicht nur Targetionen, sondern auch das Restgas.
2. Der Laser trifft nach dem Fokusbereich durch die Strahldivergenz auf Teile des Spektrometers und löst dort Elektronen aus.

3. Der Ionenstrahl ionisiert das Restgas und erzeugt dabei ebenfalls Elektronen.

Während letztere nicht mit dem Laserstrahl zeitlich korreliert sind und daher analog zu den Projektilen über eine Flugzeitbedingung stark reduziert werden können, verfügen alle Elektronen, die in Laser-Reaktionen entstehen, eine an den Laserpuls gekoppelte Verteilung in der Zeit. Da diese Verteilung mit der der echten Elektronen zusammenfällt, ist eine Unterdrückung über die Flugzeit in diesem Fall nicht sehr erfolgsversprechend. Vor allem die Restgasionisation durch den Laser stellt ein grundlegendes Problem bei allen Experimenten dar. In diesem Aufbau konnte jedoch eine effiziente Methode gefunden werden, bei der diese Elektronen idealerweise vollständig unterdrückt werden:

Grundidee ist dabei, dass ein entscheidender Unterschied in der Geschwindigkeitsverteilung der Targetionen im Vergleich zu den im Restgas vorhandenen Teilchen besteht. Letztere bewegen sich innerhalb der Kammer in erster Näherung thermisch. Die innere Energie eines Teilchens im thermodynamischen Gleichgewicht genügt nun der Formel:

$$E_{translation} = \frac{n}{2} \cdot k_B \cdot T \quad (3.11)$$

n gibt hierbei die Anzahl der Freiheitsgrade,  $k_B$  die Boltzmann-Konstante und T die Temperatur an. Die Anzahl der Freiheitsgrade hängt von der Teilchensorte ab, unterteilt sich aber im Allgemeinen in drei translatorische Freiheitsgrade sowie Rotations- und Vibrationsfreiheitsgrade. Für die Betrachtung der Geschwindigkeit spielt allerdings nur die Translation eine Rolle, sodass sich für die Energie ergibt:

$$E_{translation} = \frac{3}{2} \cdot k_B \cdot T \quad (3.12)$$

Dies kann nun mit der allgemeinen Formel für die kinetische Energie gleichgesetzt werden, wobei zu bedenken ist, dass es sich um eine thermische Verteilung handelt und daher die mittlere Geschwindigkeit zu Grunde gelegt werden muss:

$$\frac{1}{2} \cdot m \cdot \langle v^2 \rangle = \frac{3}{2} \cdot k_B \cdot T \quad (3.13)$$

Daraus folgt unmittelbar für die mittlere Geschwindigkeit:

$$\langle v \rangle = \sqrt{\frac{3 \cdot k_B \cdot T}{m}} \quad (3.14)$$

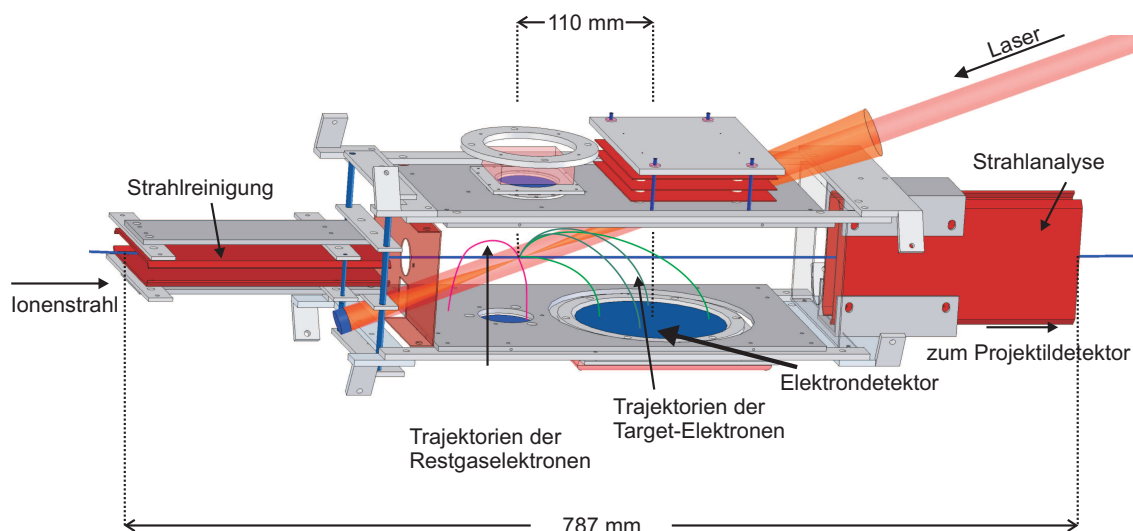
Da die Geschwindigkeit mit  $\frac{1}{m}$  skaliert, werden Wasserstoffmoleküle mit etwa  $1900 \frac{m}{s}$  im Restgas die größte Geschwindigkeit haben. Vergleicht man dies mit der Geschwindigkeit von  $2,83 a.u. = 6,2 \cdot 10^6 \frac{m}{s}$  der Ionen, so erkennt man, dass sich die Teilchen

des Restgases dazu annähernd in Ruhe befinden. Zugleich wird deutlich, dass unabhängig von allen physikalischen Prozessen die  $H_2^+$ -Ionen ein bewegtes Bezugssystem mit nicht zu vernachlässigender Geschwindigkeit darstellen. Dies trifft auch und insbesondere auf Elektronen, die im Laserfokus erzeugt werden, zu.

Die Endgeschwindigkeit von im Laser erzeugten Elektronen hängt von der Polarisation und der Phase des Lasers ab. Bei linear polarisiertem Laserlicht ist die aufgenommene mittlere Geschwindigkeit der Elektronen  $\langle v \rangle = 0$ , hat allerdings eine Verteilung, die sich bis zu einer Energie von  $2 \cdot U_p$  erstreckt. So lange die Laserintensität nicht in relativistische Größen vordringt, kann in den Wechselwirkungen des Laserfeldes mit Elektronen der magnetische Anteil vernachlässigt werden, weshalb die Geschwindigkeit der Elektronen in diesen Fällen, bis auf die Anfangsgeschwindigkeitsverteilung, in Laserpolarisationsrichtung orientiert sein wird.

Bei zirkularer Polarisation entspricht die Endenergie der Elektronen dem ponderomotiven Potential  $E_{kin} = U_p$ , sofern die Ionisation zum Zeitpunkt der Peakintensität stattfand. Für eine Ionisation zu einem anderen Zeitpunkt kann die Elektronenenergie errechnet werden, indem statt der Peakintensität die aktuelle Intensität in Formel 2.22 eingesetzt wird (genauer hierzu findet sich in Kapitel 4.2). Für eine Peakintensität von  $I_{peak} = 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  ergibt sich  $U_p \approx 22eV$  und  $v \approx 1,3 a.u.$  in der Polarisationssebene. Elektronen, die aus dem Restgas erzeugt werden und die eine vernachlässigbare Anfangsgeschwindigkeit haben, werden dementsprechend diese Geschwindigkeit in der Polarisationssebene erhalten. Aus  $H_2^+$ -Ionen stammende Elektronen besitzen dahingegen die nicht zu vernachlässigende Anfangsgeschwindigkeit des bewegten Bezugssystems, die sich zu der Geschwindigkeit, die die Elektronen im Laserfeld aufnehmen, vektoriell hinzuaddiert. Daher ergeben sich unterschiedliche Trajektorien für Target-Elektronen und Untergrundelektronen. Das Elektronenspektrometer ist nun derart aufgebaut, dass Elektronen, die im Laserfeld und im homogenen elektrischen Feld des Spektrometers beschleunigt werden, nicht auf den Elektronendetektor gelangen, während Target-Elektronen durch die zusätzliche Geschwindigkeitskomponente den Elektronendetektor erreichen können (siehe Abb. 3.25).

Zuletzt bleiben noch Elektronen, die durch die Divergenz des Photonenstrahls oder Streulicht an Spektrometerteilen entstehen. Je nachdem, wo genau diese Elektronen entstehen, können sie von den Target-Elektronen über die Auftreffposition auf dem Detektor separiert werden. Bei linear polarisiertem Licht steht außerdem eine Flugzeitseparation zur Verfügung. Bei zirkularer Polarisation kann es allerdings zu Überschneidungen kommen, die sich nur sehr schlecht bis gar nicht separieren lassen.

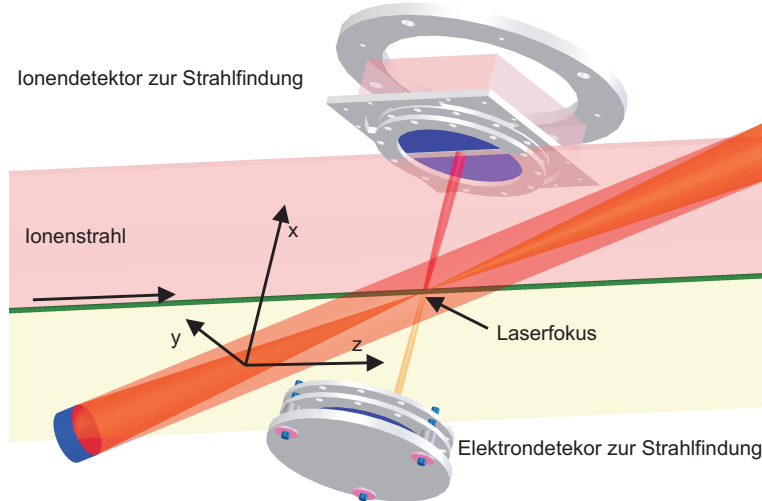


**Abbildung 3.25:** Elektronenspektrometer mit beispielhaften Elektrontrajektorien. Elektronen, die vom Laser aus dem Restgas ionisiert werden (rot), können den Elektronendetektor nicht erreichen, während Target-Elektronen durch die zusätzliche Geschwindigkeitskomponente des Targets auf den Elektronendetektor gelangen können (grün).

### 3.7.2 Bestimmung der Strahleigenschaften

Wie bereits in Kapitel 3.2 erwähnt, ist die Targetdichte im Vergleich zur Restgasedichte sehr gering. Dies wirft nicht nur Probleme mit dem Elektron-Untergrund auf, sondern führt überdies zu Komplikationen beim Überlappen von Laser- und Ionenstrahl, sodass es von entscheidender Bedeutung ist, ein Werkzeug zur Analyse der Lage des Ionenstrahls und des Ortes des Laserfokus zu haben:

In vollständig auskollimiertem Zustand entspricht die Querschnittsfläche des Ionenstrahls einem Quadrat mit 0,3 mm - 0,5 mm Seitenlänge. Der Laserfokus hingegen besitzt einen Durchmesser von etwa 0,02 mm und eine Länge von von ca. 1 mm, bis die Intensität auf  $1/e$  abgefallen ist. Daran wird deutlich, dass es ohne geeignete Mittel zur Analyse des Fokusortes und des Strahlengangs des Ionenstrahls nahezu unmöglich sein wird, diese zum Überlapp zu bringen. Aus diesem Grund wurde analog zum Strahlprofilmonitor von M. Unverzagt ([101]) ein System im Bereich der Reaktionszone installiert, das eine Ortsbestimmung des Fokus und des Ionenstrahls ermöglicht. Dabei stehen sich ein ortsauflösender Ionendetektor und ein nicht-ortsauflösender Elektronendetektor gegenüber (siehe Abb. 3.26). Im Bereich des Laserfokus werden Restgasatome vom Laser ionisiert. Die entstehenden Elektronen und Ionen werden nun durch ein homogenes elektrisches Feld auf die jeweiligen Strahlfindungsdetektoren abgesaugt. Bei der Ionisation von Atomen und Molekülen, die anschließend nicht fragmentieren, bildet das Ortsbild des Ionendetektors eine direkte Projektion des ionisierenden Laservolumens entlang des elektrischen Feldes auf die Ebene des Detektors. Desgleichen gilt auch für den Ionenstrahl, der



**Abbildung 3.26:** Arbeitsweise der beiden Strahlfindungsdetektoren

entlang seines Weges Elektron-Ion-Paare durch Stoßionisation erzeugt:

In relativ guter Näherung kann man bei allen Ionisationsprozessen, bei denen es nicht zu einer Fragmentation der Ionen kommt, davon ausgehen, dass die Anfangsgeschwindigkeit der einer thermischen Verteilung entspricht und daher zum einen sehr gering ist und zum anderen isotrop verteilt sein wird. Sei  $x$  die Richtung des elektrischen Feldes und seien die Detektoren parallel zur  $y$ - $z$ -Ebene installiert, so ergibt sich für den Ort in dieser Ebene:

$$\begin{aligned} r'_{y,z} &= \frac{p_{y,z}}{m_{ion}} \cdot t + r_{y,z} \\ \Rightarrow r_{y,z} &= r'_{y,z} - \frac{p_{y,z}}{m_{ion}} \cdot t \end{aligned} \quad (3.15)$$

Dabei repräsentiert  $r'_{y,z}$  die Orte auf dem Detektor und  $r_{y,z}$  den tatsächlichen Entstehungsort der Ionen. Für vernachlässigbare Startimpulse  $p_{y,z} \ll 1$  sind diese beiden Koordinaten nahezu identisch. Selbst wenn der Anfangsimpuls nicht vernachlässigbar ist, so gibt der Mittelwert der Verteilungen  $r'_{y,z}$  bei isotrop verteiltem  $p_{y,z}$  trotzdem das Zentrum der Verteilung  $r_{y,z}$  an.

Etwas schwieriger erweist sich die Flugzeitrichtung  $x$ . Um den Entstehungsort in dieser Dimension ermitteln zu können, ist es im Gegensatz zur  $y$ - $z$ -Ebene essentiell, die Flugzeit der Ionen bestimmen zu können. Aus diesem Grund befindet sich gegenüber des Ionendetektors noch ein Elektrondetektor, der ein Zeitsignal auftreffender Elektronen liefert. Da die Flugzeit der Elektronen im Vergleich zu den Flugzeiten der Ionen sehr kurz ist, kann die Ionenflugzeit  $tof_{Ion}$  in erster Näherung als die

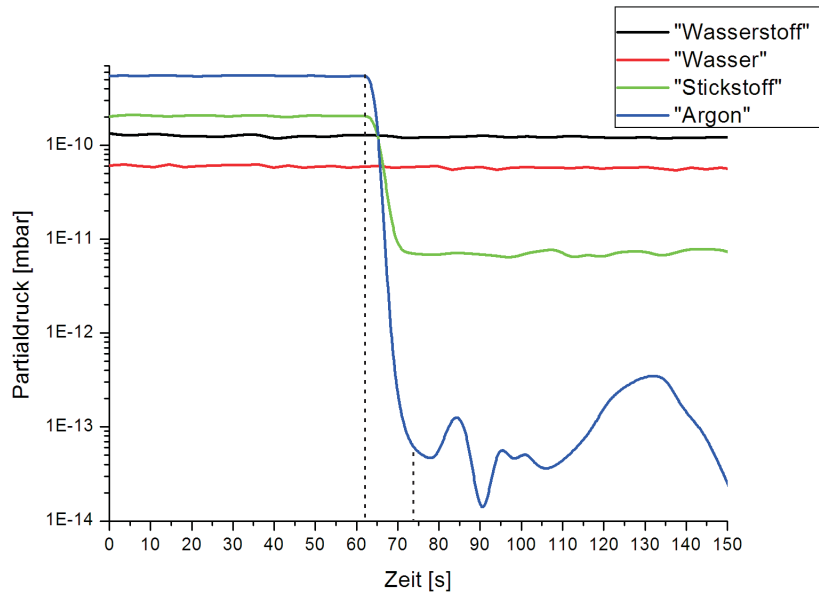
Flugzeitdifferenz von Elektronen und Ionen benutzt werden, also  $tof_{Elektron} = 0$ . Es ergibt sich für den Startort in x-Richtung:

$$r_x = d - \frac{1}{2} \cdot \frac{E \cdot q}{m} \cdot tof_{Ion}^2 + \frac{p_x}{m} \cdot tof_{Ion} \quad (3.16)$$

$d$  repräsentiert dabei den Abstand zwischen Elektron- und Iondetektor.  $x = 0$  entspricht daher dem Ort des Elektronendetektors, wie es auch in Abb. 3.26 zu sehen ist. In dieser Richtung treten allerdings diverse Schwierigkeiten auf:

1. Um den Entstehungsort berechnen zu können, müssen das elektrische Feld und der Abstand der Detektoren hinreichend genau bekannt sein.
2. Unterschiedliche Massen führen zu deutlich unterschiedlichen Flugzeiten. Daher muss zumindest ungefähr bekannt sein, welche Atom- bzw. Molekülsorten im Restgas vorhanden sind.
3. Laser und Ionenstrahl haben unterschiedliche Ionisationswahrscheinlichkeiten für die diversen Gassorten. Daher wird der Laser andere Atomsorten ionisieren als der Ionenstrahl.
4. Die oben vorgenommene Näherung  $tof_{Elektron} = 0$  ist zu ungenau.

Der erste Punkt ist in ausreichender Genauigkeit aus den geometrischen Abmessungen des Spektrometers sowie der angelegten Spannungen zu entnehmen. Um die unterschiedlichen Massen zu berücksichtigen, wurde ein Massenspektrometer installiert, das zuverlässige Informationen über die Zusammensetzung des Restgases liefert. Um zusätzliche Sicherheit in der Bestimmung der Massen zu erhalten und zusätzlich die abweichenden Ionisationswahrscheinlichkeiten zu berücksichtigen, kann über ein Nadelventil das Restgas künstlich mit  $^{40}\text{Ar}$  kontaminiert werden, sodass der Partialdruck von Argon zwei Größenordnungen über allen anderen Partialdrücken liegt. Dies spiegelt sich selbstverständlich auch in den Ionisationsraten wider, sodass die meisten Ionisationen an den Argonatomen stattfinden werden. Mit der Atommasse 40 besteht bei Argon keine Verwechslungsgefahr zu anderen Komponenten des Restgases. Außerdem lässt sich Argon mit den TMP sehr effizient abpumpen, sodass, nachdem die Zufuhr von Argon eingestellt wird, dieses innerhalb von Sekunden nahezu völlig aus der Kammer verschwunden ist (Abb. 3.27). Um schließlich eine Verbesserung der Näherung  $tof_{Elektron} = 0$  zu erreichen, kann man als Flugzeit für die Elektronen die Flugzeit einsetzen, die sie bei einem Start mit  $v = 0$  von der Mitte hätten. Bei den typischen elektrischen Feldstärken und Abmessungen des Spektrometers ergibt sich eine Elektronenflugzeit von etwa  $12,5\text{ns}$ . Zum Vergleich



**Abbildung 3.27:** Verlaufsgraf der Partialdrücke beim Stoppen der Argonzufuhr. Innerhalb von 10 s fällt die Argonkonzentration um über drei Größenordnungen.

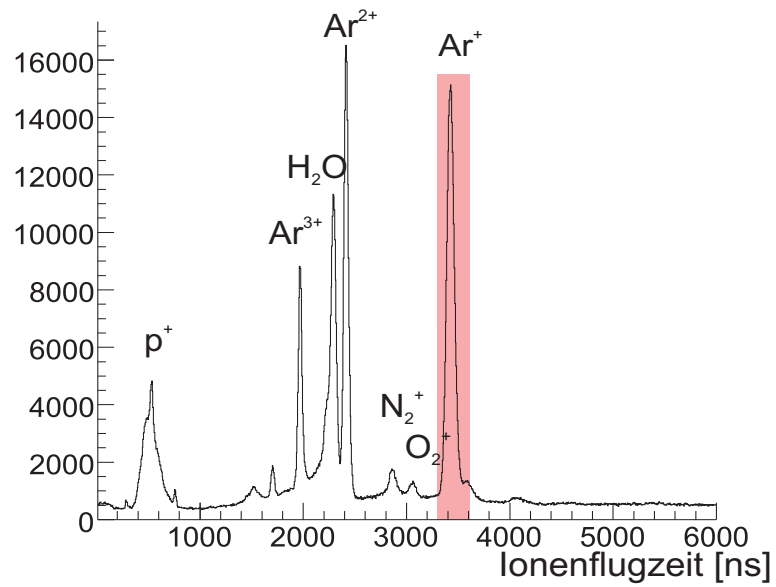
haben die Argon-Atome Flugzeiten im Bereich von 3400 ns, wie beispielsweise in Abb. 3.28 zu sehen ist. Daraus ist ersichtlich, dass schon die erste Näherung nur eine kleine Abweichung von der tatsächlichen Flugzeit liefert. Benutzt man nun die immer noch nicht exakte Näherung  $tof_{Elektron} = 12,5ns$ , so ist die Abweichung, die man erhält, in der Größenordnung einer Nanosekunde und damit hinreichend gut.

Mit diesem Strahlprofilmonitor ist es möglich, sowohl eine dreidimensionale Spur des Ionenstrahls als auch den Ort des Laserfokus zu erhalten. In Abb. 3.29 sind die Projektionen von Ionenstrahl und Laserfokus auf die drei Hauptebenen zu sehen. Durch dieses Verfahren kann zwar noch nicht sichergestellt werden, dass sich Laserfokus und Ionenstrahl überlappen, jedoch sind ihre Positionen nun so nahe beieinander, dass durch leichte Lageveränderungen eine Optimierung des Überlapps möglich ist.

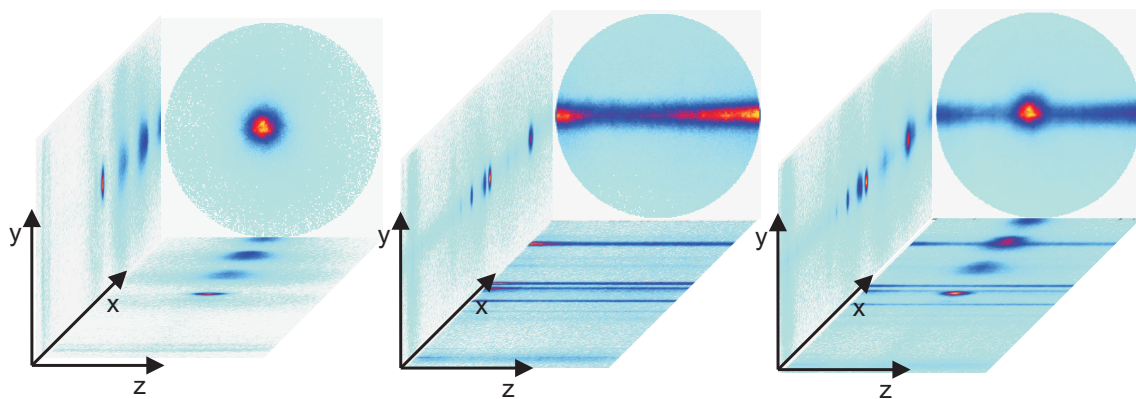
Außer der wichtigen Eigenschaft der Strahlage ist bei Laserstrahlung zusätzlich noch die Peakintensität von wichtiger Bedeutung. Während bei der Verwendung zirkularer Polarisierung die Elektronenenergie zur Bestimmung herangezogen werden kann (siehe Kapitel 4.2), ist man bei linearer Polarisierung auf andere Methoden angewiesen, um die Peakintensität zu bestimmen:

Dazu kann eine Methode verwendet werden, wie sie in [102] und [103] verwendet wird. Wesentlich dabei ist, dass die Wahrscheinlichkeit und damit die Rate für be-





**Abbildung 3.28:** Typisches Flugzeitspektrum der Restgasionen, ionisiert durch Ionenstrahl oder Laser. Das Vakuum wurde gezielt mit Argon kontaminiert, um eine eindeutige Zuordnung Masse  $\rightarrow$  Flugzeit zu erhalten.



**Abbildung 3.29:** Projektion der Ionenstrahlspur und des Laserstrahls. Die z-Achse weist entlang der Flugzeitrichtung der Ionen, die x-Achse in Flugzeitrichtung der Elektronen.

stimmte Aufbruchmechanismen von neutralem Wasserstoff von der Peakintensität abhängen. Für jede Intensität ergeben sich also spezifische Verhältnisse der Peaks zueinander. Die Fragmentation erfolgt dabei überwiegend in Polarisationsrichtung. Um einen direkten Vergleich zu den gemessenen Daten zu erhalten findet sich die entsprechende in Katitel 4.1 (Abb. 4.1).

Da selbst in sehr gutem Vakuum immer noch Wasserstoffmoleküle vorhanden sind, ist es möglich, eine Intensitätseichung vorzunehmen, die direkt aus den Eigenschaften des Laserfokus resultieren.

## 3.8 Experimentelle Durchführung

Die Durchführung des Experiments gliedert sich im Wesentlichen in die Einstellung und Optimierung des Ionen- und Laserstrahls sowie deren Überlappung und im Weiteren die Analyse der relevanten Daten.

### 3.8.1 Einstellung des Experiments

#### **Vorbereitung:**

Vor Beginn der Messung muss sichergestellt sein, dass das Vakuum den gestellten Anforderungen entspricht. Gegebenenfalls ist es notwendig, den Aufbau vorher auszuheizen. Ca. fünf Stunden vor Beginn des Experiments sollte die Kühlfalle im Bereich der differentiellen Pumpstufe (Abb. 3.12) gefüllt werden, da diese einen messbaren Einfluss auf das gesamte Vakuumsystem hat (siehe Abb. 3.14). Auch die Titan-Sublimationspumpe kann unter Umständen zur Verbesserung des Vakuums benutzt werden, was allerdings bei gut ausgeheizter Kammer nur noch einen geringen Einfluss hat, sodass im Normalfall darauf verzichtet werden kann.

#### **Grobeinstellung von Ionen und Laserstrahl:**

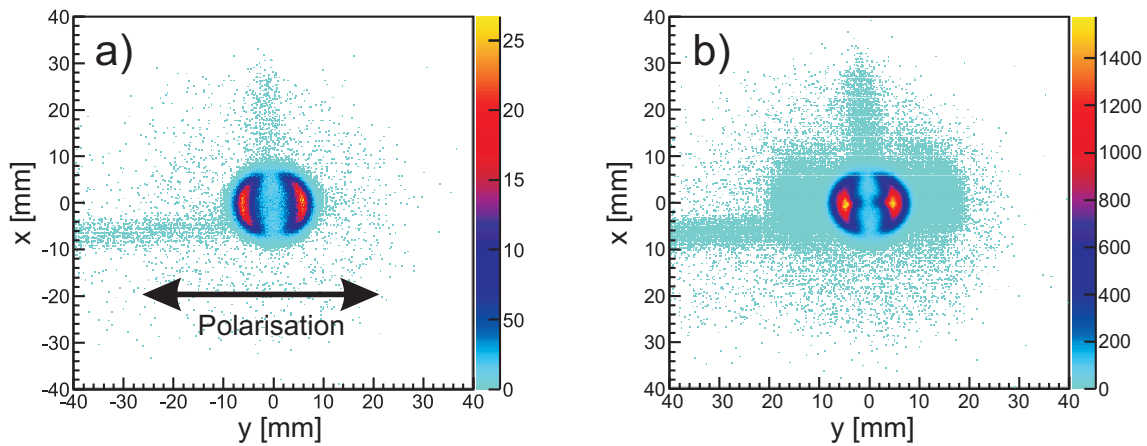
Die Einstellung des Systems beginnt mit dem separaten Einstellen des Ionen- und des Laserstrahls. Die Reihenfolge ist dabei unbedeutend.

Der Ionenstrahl wird zunächst bei geöffnetem Eingangskollimator auf den dahinterliegenden Faraday-Cup (FC) (vgl. Abb.3.12) optimiert. Anschließend wird der Kollimator auf etwa  $0,5\text{ mm} \times 0,5\text{ mm}$  geschlossen. Auf dem FC verbleiben dann typischerweise 1-5 nA. Nun werden die Strahlfindungsdetektoren sowie die Deflektoren zur Strahlreinigung und -analyse in Betrieb genommen. An der Strahlreinigung liegt bei 400 keV  $H_2^+$ -Ionen insgesamt eine Spannung von 2,77 kV und an den Strahlanalysedeflektoren eine Spannung von 2,43 kV an. Mittels des Nadelventils werden nun kleinste Mengen Argon in die Experimentierkammer geleitet, bis das Vakuum vom Messanschlag der Vakuummesszelle ( $5 \cdot 10^{-10}\text{ mbar}$ ) auf etwa  $1 \cdot 10^{-8}\text{ mbar}$  angestiegen ist. Durch Herausfahren des FC gelangt der Ionenstrahl in die Experimentierkammer. Mit Hilfe der Strahlfindungsdetektoren wird nun die Position des Ionenstrahls

überprüft und ggf. durch eine Verschiebung der Kollimatorposition und/oder eine Variation der Spannung für den Strahlreinigungsdeflektor korrigiert. Darauf folgend wird der FC zwecks Strahlblockung wieder eingefahren und die Argonzufuhr gestoppt. Das Vakuum sollte daraufhin nahezu sofort wieder zum Wert vor Öffnung des Nadelventils absinken (vgl. Abb. 3.14). Anschließend kann der Projektildetektor mit Spannung versorgt und der FC wieder aus dem Strahlweg gefahren werden. Als Triggersignal sollte in diesem Abschnitt das MCP-Signal des Projektildetektors verwendet werden. Die Rate auf dem Projektildetektor sollte 10 kHz bei unblockiertem Ionenstrahl nicht wesentlich überschreiten. Insbesondere falls Teile des Primärstrahls den Detektor treffen, steigt die Rate erheblich an und kann bei längerer Zeitdauer den Detektor beschädigen. Sollte eine zu hohe Rate nicht vom Primärstrahl herühren, kann die Öffnung des Eingangskollimators geringfügig verändert werden. Im Idealfall befindet sich auf dem Ortsbild des Detektors im Bereich der Mitte ein Fleck erhöhter Intensität, von dem ein Streifen zur Seite und ein Streifen nach oben verläuft. Der Fleck entspricht stoßbedingten Dissoziationsprozessen im Bereich zwischen Strahlreinigung und -analyse und die Streifen zeigen entsprechende Prozesse, die im Bereich der jeweiligen Deflektoren stattfinden. Im Dump kann idealerweise ein Strom gemessen werden, der dem mit dem FC gemessenen etwa entspricht. Der Detektor sollte keineswegs bei einer Argonzufuhr in die Experimentierkammer eingeschaltet bleiben, da dies einen erheblichen Anstieg der fragmentierten Projektile mit sich bringt und ebenfalls den Detektor beschädigen kann.

Der Laserstrahl sollte zunächst in vertikaler Richtung polarisiert sein, damit die Polarisationsachse in der Ebene der Detektoren liegt. Durch die an diversen Stellen installierten Blenden ist es möglich, den Laserstrahl über den gesamten Strahlweg (vgl. Abb. 3.22) von 16,5 m zu fixieren. Mit den Strahlfindungsdetektoren kann nun die Position des Laserfokus ermittelt werden. Hierbei werden wiederum kleinste Mengen Argon zugeführt und die Laserintensität an einer Blende erheblich reduziert, da sonst Mehrfachionisationen überwiegen würden.

Die Position des Laserfokus kann auf zwei Wegen manipuliert werden: Zum einen ist der Spiegel über eine Verlängerung an einer Mikrometerschraube befestigt (vgl. Abb. 3.16), sodass sich über diese die Fokusposition in Laserausbreitungsrichtung verschieben lässt. Dies entspricht einer linearen Verschiebung in der x-z-Ebene. Zum anderen können auch der Winkel, in dem der Laser auf den fokussierenden Spiegel fällt sowie der Auftreffort leicht verändert werden, was durch eine geringfügige Verkipfung der letzten beiden Spiegel vor dem Eintritt in die Experimentierkammer zu erreichen ist. Dieses Verfahren ist allerdings durch die Unkenntnis des aktuellen Winkels zum Fokussierspiegel und der Position auf diesem nur ungenau zu handhaben. Auch sind solche Änderungen nur in begrenztem Maße umkehrbar, da für gewöhnlich beide Spiegel zur gleichen Zeit variiert werden müssen. Die Position des



**Abbildung 3.30:** Ortsbild des Projektildetektors mit Bedingung auf die Projektflugzeit a) bei geringer Intensität  $I < 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ , b) hoher Intensität  $I = 5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . [55]

Laserfokus sollte etwa mittig in y-Richtung und x-Richtung sein. Da die z-Richtung im Idealfall der Ausbreitungsrichtung des Ionenstrahls entspricht, ist eine Verschiebung in z-Richtung in gewissen Grenzen möglich, hat aber natürlich einen Einfluss auf den Auftreffort der Elektronen auf den Elektrodendetektor und in geringem Maße auf die Flugzeit der Ionen.

Trotz erheblich verminderter Intensität ionisiert der Laser für gewöhnlich erheblich mehr Restgasatome als der Ionenstrahl. Um nun beide Strahlen auf den Strahlfindungsdetektoren gleichermaßen deutlich zu sehen, ist es daher notwendig, den Ionenstrahl über einen erheblich längeren Zeitraum aufzunehmen als den Laser. Daher wird der Laser geblockt, während die Spur des Ionenstrahls aufgenommen wird. Nach ein paar Minuten, wird der Laser für einen Zeitraum weniger Sekunden nicht geblockt. So entstehen die in Abb. 3.29 dargestellten Spektren. Nun kann je nach spezieller Strahllage die Position des Ionenstrahls oder des Laserfokus wie bereits erwähnt verändert werden, bis Fokus und Ionenstrahl in allen Richtungen optisch aufeinander liegen.

### Feineinstellung des Überlapps:

Nach der Einstellung über die Strahlfindungsdetektoren ist der ca. 0,5 mm breite Ionenstrahl und der 1 mm lange und  $23\mu m$  im Durchmesser messende Laserfokus nahezu im Überlapp. Um diesen allerdings exakt einzustellen, ist die Auflösung der Detektoren nicht genau genug. Die Feineinstellung erfolgt daher über eine Optimierung der tatsächlichen Reaktionsrate. Bei unterbrochener Argonzufuhr und nicht reduzierter Laserintensität kann der Projektildetektor wieder mit Spannung versorgt werden. Als Triggersignal wird die in Kapitel 3.1.4 beschriebene Koinzidenzschaltung von Laserpuls und Projektilsignal benutzt.

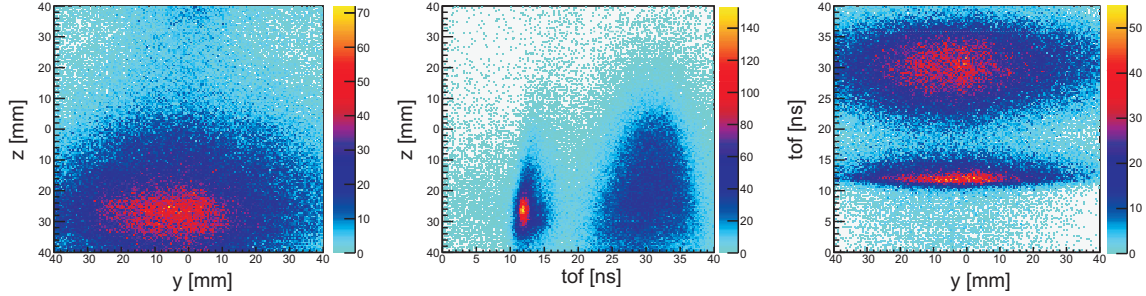
Eine erste Feineinstellung erfolgt über das Vergleichen der Koinzidenzrate mit der

Projektilrate, die beide direkt ablesbar sind. Die Projektilrate besitzt typischerweise Werte zwischen 2 kHz und 10 kHz, die Koinzidenzrate zwischen 150 Hz und 400 Hz. Das beste erreichte Resultat für das Verhältnis dieser beiden Größen ist  $\frac{n_{Koinz}}{n_{Pro}} = 0,055$ . Damit entfällt im besten Fall 5,5 % der Projektilrate auf Laserbedingte Prozesse. Dieser Anteil ist niedriger als die natürliche Ionenstrahlbedingte Schwankung der Rate. Daher kann auch die Koinzidenzrate selbst als eine passable Richtgröße für den Überlapp angenommen werden, statt des etwas umständlicheren Verhältnisses von Koinzidenz- zu Projektilrate.

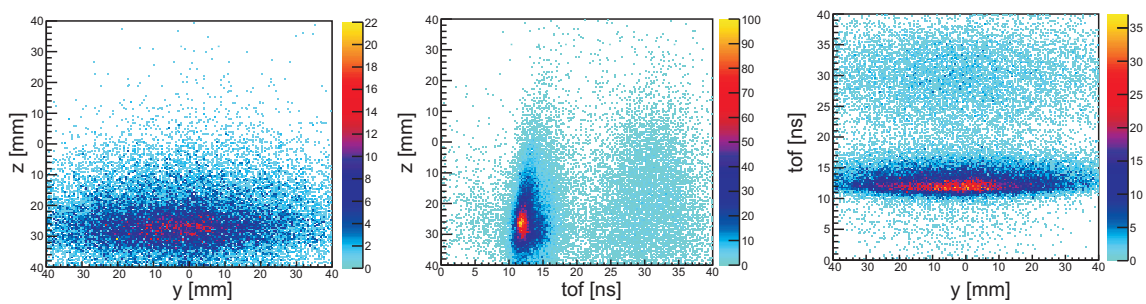
Bei einer zumindest teilweisen Überlappung entsteht auf dem Projektildetektor ein Bild ähnlich dem in Abb. 3.30 a). Sobald es zu Reaktionen mit dem Laser kommt, sind auch ausgezeichnete Flugzeiten der Ionen vorhanden, sodass auf diese eine diskriminierende Bedingung für andere Spektren gesetzt werden kann. Bei den dargestellten Spektren wurde diese Bedingung bereits genutzt. Die entstehende Struktur ist ein Indiz für Dissoziationsprozesse bei geringer Intensität, was bei hoher Laserintensität darauf hindeutet, dass die Überlappung im Randbereich des Laserfokus stattfindet. Durch leichte Variation des Ionenstrahls oder des Lasers kann nun versucht werden, den Überlapp zu optimieren. Sobald der Fokusbereich einen besseren Überlapp mit dem Ionenstrahl bildet, steigt die Intensität in diesem Bereich, sodass es zu der in Abb. 3.30 b) dargestellten Verteilung kommt. Im Außenbereich der Verteilung sind bereits Ionisationsprodukte sichtbar.

Eine weitere Feineinstellung kann über den Elektrodendetektor vorgenommen werden. Die Verteilung der Elektronen in den beiden Ortsrichtungen und in Elektronflugzeitrichtung ohne zusätzliche Bedingungen entsprechen denen in Abb. 3.31. Im Ortsbild ist dabei zunächst nur eine breite Verteilung auf der dem Reaktionsbereich zugewandten Seite des Elektrodendetektors zu erkennen. Bei Betrachtung der Elektronflugzeit lässt sich dagegen eine deutliche Struktur erkennen. Da die Polarisationsrichtung des Lasers nicht in Richtung der Elektronflugzeit verläuft, ist eine Flugzeit von ca. 12,5 ns zu erwarten. Die dargestellte Verteilung besitzt tatsächlich eine Häufung bei dieser Flugzeit. Dies wird auch insbesondere deutlich, wenn eine Bedingung auf die Projektilflugzeit und den Projektilort gesetzt wird, sodass nur Elektronen angezeigt werden, zu denen es ein Proton aus einem Ionisationsprozess gibt. Dies ist in Abb. 3.32 dargestellt. Im Ortsbild des Detektors wurde zusätzlich eine Bedingung auf eine Elektronflugzeit zwischen 7 und 18 ns angewendet, sodass dieses Spektrum am wenigsten Elektronuntergrund aufweist.

Eine letzte Feineinstellung kann über das Verhältnis der Gesamtzahl der Projektile zur Anzahl der Ereignisse im linken Spektrum von Abb. 3.32 vorgenommen werden. Dies liefert die beste schnell zugängliche Kenngröße für den Anteil ionisierter Targetatome. Für das dargestellte Spektrum und auf die Projektilflugzeit begrenzte Projektile liegt das Verhältnis bei  $\frac{n_{Projektil}}{n_{Elektron}} = 61$ .



**Abbildung 3.31:** Rohdaten des Elektronendetektors ohne Bedingungen: von links nach rechts: Ortsbild des Detektors, Flugrichtung der Ionen gegen die Elektronflugzeit, Elektronflugzeit gegen die Polarisationsrichtung des Lasers.



**Abbildung 3.32:** Wie Abb. 3.31 mit Bedingung auf  $474,5 \text{ ns} < tof_{\text{Projektil}} < 479 \text{ ns}$ ,  $9 \text{ a.u.} < |p_{\text{Projektil}}| < 30 \text{ a.u.}$  und  $|p_z, \text{Projektil}| < 15 \text{ a.u.}$ . In der linken Abbildung wurde zusätzlich eine Bedingung auf die Elektronflugzeit  $7 \text{ ns} < tof_{\text{Elektron}} < 18 \text{ ns}$  gesetzt.

<b>Raten:</b>			
Projektildetektor	8 kHz	Ionisierte Projektile	4,5 Hz
Laser-Projektil-Koinzidenz	300 Hz	Elektronendetektor	2-7 kHz
Projektile im Flugzeitfenster	64 Hz	Elektronen im Koinzidenzfenster	15 Hz
Dissoziierte Projektile	59,5 Hz	Echte Elektronen	1 Hz

**Tabelle 3.2:** Ereignisraten. In schwarz dargestellt sind direkt gemessene Raten, in blau aus der Koinzidenzrate und den Spektren errechnete Raten.

Nach der Einstellung kann mit Hilfe der Strahlfindungsdetektoren bei blockiertem Ionenstrahl ein Intensitätsspektrum gemäß Kapitel 3.7.2 aufgenommen werden. Um zirkulare Polarisation zu erhalten, wird ein  $\lambda/4$ -Plättchen in den Strahlengang des Lasers eingefügt. Im Idealfall ändert sich dabei die Strahllage des Lasers nicht, ggf. muss aber noch einmal eine Feinjustierung erfolgen. Durch die geänderte Polarisation sind jedoch die gewählten Bedingungen nicht mehr passend und müssen entsprechend geändert werden.

### 3.8.2 Datenanalyse

Im nächsten Schritt werden die aufgenommenen Daten in Impulse umgerechnet und die verschiedenen Spektren erzeugt. Durch die Anordnung der Detektoren erfolgt dabei die Berechnung der Impulse für Projektile und Elektronen auf unterschiedliche Weise.

#### 3.8.2.1 Berechnung der Projektilimpulse

Bei diatomaren Molekülen erfolgt der Aufbruch der Kerne unter Vernachlässigung des Elektrons entlang der Verbindungsachse der Kerne. Dabei nehmen sie bezüglich ihres Schwerpunktes einen gegensätzlichen, vom Betrag gleichen Impuls auf. Es ist daher zweckmäßig, die Auftrefforte durch eine Verschiebung relativ zum Schwerpunkt zu definieren, der aus der Symmetrie der Verteilung leicht abzulesen ist. Es ergibt sich mit dem so definierten Ort für den Impuls in der x-y-Ebene der einfache Zusammenhang:

$$\begin{aligned}
 p_{\text{Projektil},x} &= m \cdot \frac{x}{tof} \\
 p_{\text{Projektil},y} &= m \cdot \frac{y}{tof}
 \end{aligned}
 \tag{3.17}$$

Die Flugzeit wird hier durch das gebräuchliche *tof* (engl. für *time of flight*) abgekürzt,  $x$  und  $y$  bezeichnen die Orte relativ zum Mittelpunkt der symmetrischen Verteilung und  $m$  die Protonenmasse.

Der aufgenommene Impuls senkrecht zur Polarisationsrichtung liegt im Wesentlichen unter 5 a.u., was einer Geschwindigkeit von 0,0027 a.u. entspricht. Dies ist im Vergleich zur Schwerpunktschwindigkeit von 2,83 a.u. sehr gering, sodass man in sehr guter Näherung das Maximum der Flugzeitverteilung als Flugzeit des Schwerpunktes  $tof_{SP}$  interpretieren kann. Damit ergibt sich die zurückgelegte Strecke vom Reaktionsort zum Detektor als:

$$s = v_0 \cdot tof_{SP} \quad (3.18)$$

Die Flugzeit andererseits ist:

$$tof = \frac{s}{v_{ges}} = \frac{v_0 \cdot tof_{SP}}{v_0 + v_z} \quad (3.19)$$

Durch Umstellung ergibt sich:

$$v_z = \frac{v_0 \cdot (tof_{SP} - tof)}{tof} \quad (3.20)$$

So lässt sich die aufgenommene Geschwindigkeit und damit auch der Impuls aus der Schwerpunktschwindigkeit, der Flugzeit und der Flugzeitdifferenz zum Flugzeitmaximum errechnen. Die entstehende Impulsverteilung sollte dabei symmetrisch um den Nullpunkt angelegt sein. Ist dies nicht der Fall, kann die ermittelte Schwerpunktschwindigkeit leicht variiert werden, auch wenn sie dann leicht vom Maximum der Flugzeitverteilung abweicht.

Damit werden alle Impulse relativ zum aus der Verteilung ermittelten Schwerpunkt ermittelt. Da die Detektoren grundsätzlich in der Lage sind, auch mehrere Teilchen nachzuweisen, gibt es für Ereignisse, bei denen zwei Protonen entstehen, grundsätzlich die Möglichkeit, die aufgenommenen Impulse aus beiden Teilchen zu bestimmen. Durch den sehr kleinen Flugzeitunterschied beider Protonen sowie die nicht allzu große räumlich Trennung gelingt dies im vorliegenden Fall nicht.

### 3.8.2.2 Berechnung der Elektronimpulse

Im Vergleich zu der Berechnung der Projektilimpulse erweist sich die Zuordnung der Elektronimpulse als wesentlich aufwendiger. Dies ist auf die bedeutend geringere Elektronrate, die Abwesenheit einer ähnlich ausgeprägten Struktur sowie durch das angelegte elektrische Feld zurückzuführen. Dennoch folgen auch die Elektronen



nach dem sehr schnellen Abklingen des Laserpulses der klassischen Trajektorie eines geladenen Teilchens mit Anfangsimpuls in einem homogenen elektrischen Feld. Für die y-Komponente gilt analog zu Gl. 3.18:

$$p_{Elektron,y} = m_e \cdot \frac{y}{tof_e} \quad (3.21)$$

y ist dabei wiederum der Relativort zum Schwerpunkt, der durch die Position auf den Strahlfindungsdetektoren ermittelbar ist. Für gewöhnlich wird der Ionenstrahl das Spektrometer mittig durchfliegen, sodass der Relativort mit dem direkt gemessenen y-Ort nahezu übereinstimmt.

In z-Richtung sind die Schwerpunktschwindigkeit und der vor dem Detektor liegende Startpunkt zu berücksichtigen. Sei  $z_0$  der Abstand der Reaktionszone vom Mittelpunkt des Detektors und z der gemessene Ort relativ zu dieser Mitte, ergibt sich für den zurückgelegten Weg  $\tilde{z}$ :

$$\tilde{z} = z_0 + z \quad (3.22)$$

Und damit für den Impuls:

$$p_{Elektron,z} = p_{ges,z} - p_{SP,z} = m_e \cdot \frac{\tilde{z}}{tof_e} - m_e \cdot v_0 = m_e \cdot \left( \frac{z_0 + z}{tof_e} - v_0 \right) \quad (3.23)$$

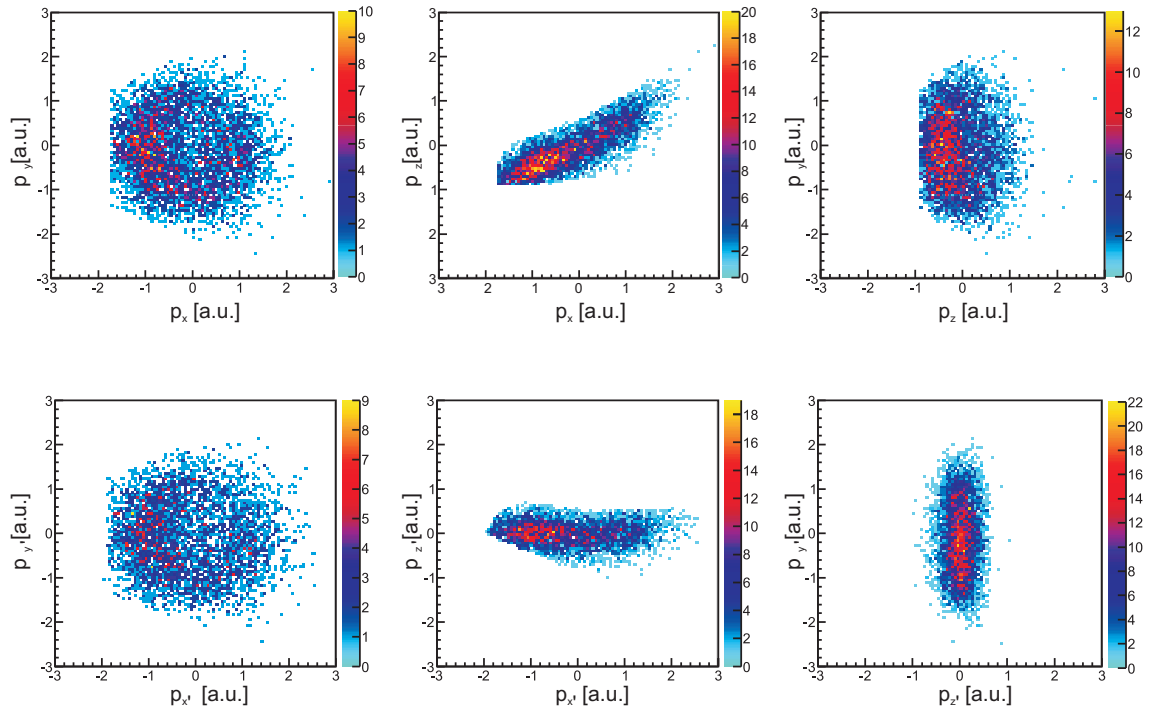
Der Abstand  $z_0$  ist dabei teilweise aus der Position auf dem Strahlfindungsdetektor abschätzbar, muss aber durch die notwendige Symmetrie bei den Impulsen später optimiert werden. Die Flugzeitrichtung schließlich folgt der Bewegungsgleichung:

$$x = \frac{1}{2} \cdot a \cdot tof_e^2 + v_x \cdot tof_e + x_0 \quad (3.24)$$

Definiert man den Reaktionsort bei  $x_0 = 0$  und die Position des Elektronendetektors als  $x = x_{det}$ , ergibt sich  $v_x$  durch Umstellung:

$$v_x = \frac{x_{det}}{tof_e} - \frac{1}{2} \cdot a \cdot tof_e \quad (3.25)$$

Auch hier kann durch Variation von  $x_{det}$  auf die Symmetrie der Verteilung optimiert werden.



**Abbildung 3.33:** Elektronimpulse bei zirkularer Polarisation mit Bedingung  $474,8 \text{ ns} < t_{\text{of}_{\text{Projektil}}} < 479 \text{ ns}$  sowie der in Abb. 3.35c) dargestellten Parallelogrammbedingung seitens der Elektronen. Obere Reihe: Im Laborsystem. Untere Reihe: Im in die Polarisationsene ( $x'$ - $y'$ -Ebene) gedrehten System.

### 3.8.2.3 Impulseichung bei zirkularer Polarisation

Bei zirkularer Polarisation ergibt sich eine neue Symmetrie in der Polarisationsene. Diese fällt allerdings mit keiner durch die Detektoren ausgezeichneten Richtung zusammen. Es ist daher ohnehin zweckmäßig, eine Koordinatentransformation vorzunehmen. Durch eine Drehung um die  $y$ -Achse entsteht ein neues Koordinatensystem, bei dem die Polarisationsene in der  $x' - y'$ - bzw. der  $x' - y$ -Ebene liegt. Die verbleibende  $z'$ -Richtung ist damit senkrecht zur Polarisationsene definiert.

Abb. 3.33 zeigt die Impulsverteilung der Elektronen bei zirkular polarisiertem Licht im Laborsystem und im um  $28^\circ$  gedrehten System. Der Drehwinkel ist gegenüber den vermuteten  $20^\circ$  vergrößert. Da jedoch die Lage des Spektrometers sowie der Einfluss des fokussierenden Spiegels nicht genau bekannt sind, kann es auch zu solchen Winkeln kommen. In diesem neuen Koordinatensystem kann nun die Eichung der Parameter durch das Zentrieren der Impulsverteilung erreicht werden.

Das Ortsbild des Projektildetektors spiegelt bei zirkularer Polarisation eine elliptische Form wider, bei der der Ort wiederum unmittelbar proportional zum Impuls ist. Daher können  $p_{\text{Projektil},x}$  und  $p_{\text{Projektil},y}$  wiederum einfach über eine Zentrierung der Ortsverteilung und anschließende Anwendung von Gl. 3.18 bestimmt werden. Auch für die Flugzeitrichtung ergibt sich eine symmetrische Aufbruchsstruktur, weshalb

auch in dieser Richtung das bereits für lineare Polarisation beschriebene Verfahren Anwendung findet.

#### 3.8.2.4 Wahl geeigneter Einschränkungen

Wie bereits in Abb. 3.30 und 3.31 erkennbar ist, befinden sich in den Rohdaten noch sehr viele Hintergrundereignisse. Es muss daher ein wesentliches Ziel sein, die tatsächlichen Ereignisse von den zufälligen zu trennen. Es kommt dabei sowohl auf dem Projektil als auch auf dem Elektronendetektor zu Ereignissen, die nicht aus der Reaktion



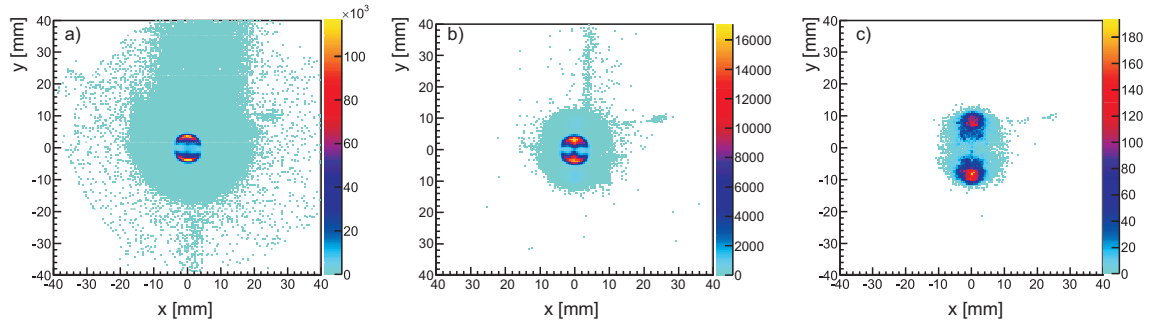
stammen. Sollten dennoch ein Proton und ein Elektron gemessen werden, so bezeichnet man diese Ereignisse als *falsche Koinzidenzen*. Jede Form zufälliger Ereignisse seitens der Projektile oder der Elektronen kann in der Regel durch eine Flugzeitbedingung sehr gut unterdrückt werden, da sich solche Ereignisse gleichmäßig in der Zeit verteilen. Echte Ereignisse hingegen erreichen die Detektoren in einem sehr begrenzten Zeitfenster.

Da die Wahrscheinlichkeit für den Dissoziationsprozess

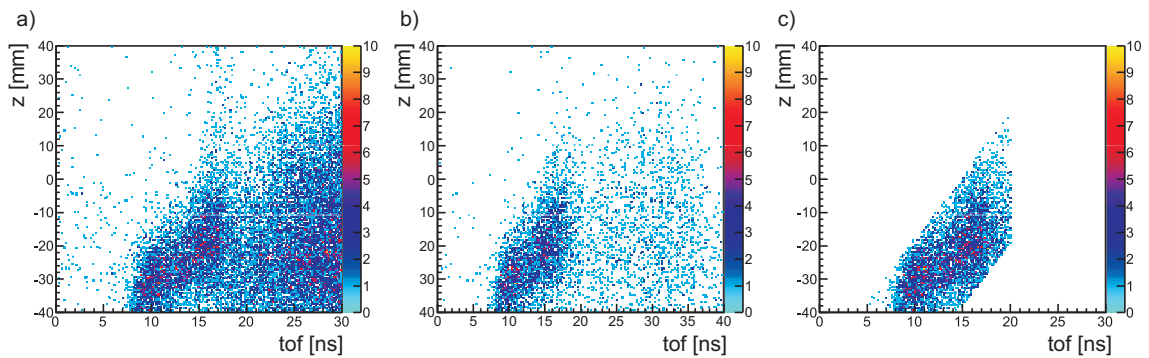


erheblich höher ist, kommt es aber gerade im Bereich des Projektildetektors auch zu sehr vielen Ereignissen, die zwar die gleiche Flugzeit, aber keine entsprechenden Elektronen aufweisen. In Abb. 3.34 ist der Einfluss der Flugzeitbedingungen auf den Projektildetektor abgebildet. Die Einschränkung auf die Projektilflugzeit eliminiert den größten Teil der nicht aus der Reaktion stammenden Protonen. Eine weitere Einschränkung auf die Elektronflugzeit wählt aus den verbleibenden Ereignissen im Wesentlichen die Ereignisse aus Ionisationsprozessen aus. Dies genügt jedoch nicht, um Ereignisse aus Dissoziationsprozessen vollkommen zu unterdrücken. Da jedoch Ereignisse aus der Dissoziation niedrigere Impulse aufweisen, kann die Unterscheidung notfalls auch später durch den Betrag des Impulsvektors bzw. die Energie erfolgen.

Auch auf Seiten der Elektronen kommt es zu erheblichem Untergrund, der nicht gleichmäßig in der Zeit verteilt ist, wie bereits in Abb. 3.31 zu erkennen war. Dies deutet darauf hin, dass der Laser auf irgendeine Weise diese Elektronen produziert. Da der Hauptteil der Verteilung allerdings bei größeren Flugzeiten liegt, ist eine Separation über die Flugzeit noch möglich. Betrachtet man die Elektronspektren für zirkulare Polarisation, fällt der Einfluss der gekippten Polarisationsebene direkt ins



**Abbildung 3.34:** Ortsbild des Projektildetektors a) ohne Bedingungen, b) mit Bedingung auf die Projektilflugzeit  $474,5 \text{ ns} < \text{tof}_{\text{Projektile}} < 479 \text{ ns}$ , c) mit Bedingung auf Projektil- und Elektronflugzeit  $7 \text{ ns} < \text{tof}_{\text{Elektronen}} < 18 \text{ ns}$ .

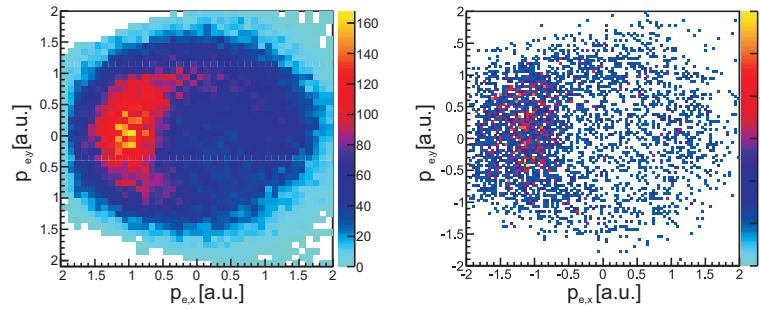


**Abbildung 3.35:** Elektronflugzeit gegen die z-Ortskomponente des Elektronendetektors. a) ohne Bedingungen, b) Bedingung auf Projektilflugzeit  $474,5 \text{ ns} < \text{tof}_{\text{Projektile}} < 479 \text{ ns}$  und den Projektilimpuls  $5 \text{ a.u.} < |p_{\text{Projektile}}| < 25 \text{ a.u.}$ , c) Einschränkung auf einen parallelogrammförmigen Bereich, in dem die echten Ereignisse zu finden sind.

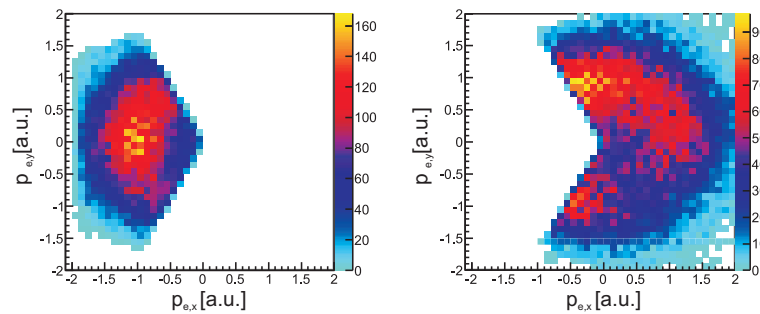
Auge. Die Verteilung der echten Daten besitzt dabei die Form eines Parallelogramms, was bei einer Einschränkung der Projektilflugzeit und des Projektilimpulses noch deutlicher wird (Abb. 3.35). Vor allem in Abb. 3.35a) fällt allerdings auf, dass es auch falsche Koinzidenzen im Bereich einer Elektronenflugzeit von 17 ns und damit im Bereich der echten Flugzeit gibt. Eine Bedingung auf Projektilflugzeit und -impuls verdeutlicht den Bereich der echten Koinzidenzen (Abb. 3.35b)), so dass schließlich eine parallelogrammförmiger Bereich als weitgreifendste Einschränkung auf Seiten der Elektronen definiert werden kann (Abb. 3.35c)).

Bei der Berechnung der Impulse ergibt sich also auf Seiten der Projektile eine Flugzeitbedingung und seitens der Elektronen eine Flugzeitbedingung bei linearer Polarisation sowie die dargestellte Parallelogrammbedingung bei zirkularer Polarisation.

Bei der Verteilung der gedrehten Elektronimpulse zeigt sich, dass sie von der erwarteten ringförmigen Struktur etwas abweicht und ein deutliches Maximum in negativer x-Richtung zeigt (Abb. 3.36 a)).



**Abbildung 3.36:** Elektronimpulse im in die Polarisationssebene gedrehten Laborsystem. a) alle KER, b) KER < 1 eV



**Abbildung 3.37:** Elektronimpulse im in die Polarisationssebene gedrehten Laborsystem. a) nicht verwendete Winkel, b) verwendeter Winkelbereich

Betrachtet man nun speziell nur Ereignisse mit sehr kleinem KER und damit Prozesse, die der Dissoziation zuzuordnen sind und daher kein Elektron aufweisen sollten, so erkennt man, dass im Bereich dieses Maximums noch immer ein deutlicher Beitrag zu finden ist. In diesem Bereich werden daher echte Ereignisse von unechten derart überdeckt, dass es nicht möglich ist, sie voneinander zu trennen. Deshalb wird ein ganzer Winkelbereich dieser Verteilung bei der Analyse nicht berücksichtigt, wie in Abb. 3.37 verdeutlicht ist.

### 3.8.3 Auflösungen

Die Auflösungen der Detektoren ist im Wesentlichen durch die verwendete Elektronik limitiert, die mit den beschriebenen Systemen eine zeitliche Auflösung von bestenfalls 100 ps, realistischer jedoch 200-300 ps, liefert [104]. Dies trifft sowohl auf die Messung der Flugzeiten als auch auf die aus Zeiten bestimmten Orte zu. Bei letzteren ergibt sich sowohl beim Projektil- als auch beim Elektronendetektor eine Ortsauflösung von 0,3 mm. Der Fehler einer Funktion von mehreren fehlerbehafteten aber unabhängigen Größen ergibt sich aus dem *Gaußschen Fehlerfortpflanzungsgesetz*.

$$\Delta f(x_1, x_2, \dots) = \sqrt{\left(\frac{df}{dx_1} \cdot \Delta x_1\right)^2 + \left(\frac{df}{dx_2} \cdot \Delta x_2\right)^2 + \dots} \quad (3.28)$$

Dieses Gesetz kann zur Abschätzung der Impulsaufösungen genutzt werden, indem die Gleichungen 3.18, 3.20, 3.21, 3.23, 3.25 als Funktion darin eingesetzt werden: Für ein 400 keV  $H_2^+$ -Target ergibt sich so seitens der Projektile:

$$\Delta p_{p,x} = \Delta p_{p,y} = \sqrt{\left(\frac{m_p}{tof} \cdot \Delta x, y\right)^2 + \left(\frac{m_p \cdot x, y}{tof^2} \cdot \Delta tof\right)^2} \quad (3.29)$$

Durch die vergleichsweise lange Flugzeit von 484 ns fällt der zweite Term kaum ins Gewicht, sodass sich für die Ipmulskomponenten in der Detektorebene eine Auflösung von 0,5 a.u. ergibt. Bei der Flugzeitrichtung ergibt sich hingegen:

$$\Delta p_{p,z} = \sqrt{\left(\frac{m_p \cdot (tof_{SP} - tof)}{tof} \cdot \Delta v\right)^2 + \left(-\frac{m_p \cdot v}{tof} - \frac{m_p \cdot v \cdot (tof_{SP} - tof)}{tof^2} \cdot \Delta tof\right)^2} \quad (3.30)$$

Bei einer Geschwindigkeit von  $v = 2,83 \pm 0,01 a.u.$  ergibt sich in diesem Fall eine Impulsauflösung von 3,2 a.u., was im Vergleich zu den anderen Impulskomponenten erheblich schlechter ist.

Für die Elektronen ergibt sich in y-Richtung analog zu Gleichung 3.29

$$\Delta p_{e,y} = \sqrt{\left(\frac{m_e}{tof} \cdot \Delta y\right)^2 + \left(\frac{m_e \cdot y}{tof^2} \cdot \Delta tof\right)^2} \quad (3.31)$$

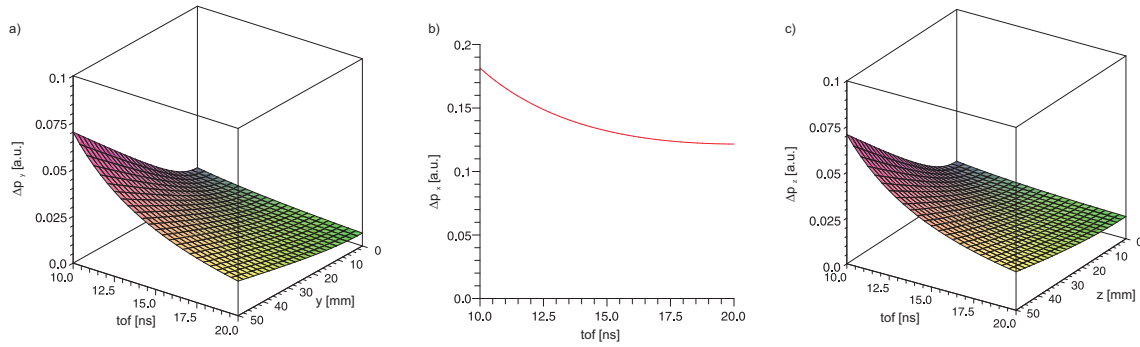
Durch die kürzere Flugzeit hat hierbei allerdings auch der zweite Term einen Einfluss auf die Auflösung. In Abb. 3.38a) findet sich die orts- und flugzeitabhängige Auflösung in dieser Richtung. Im schlechtesten Fall erreicht die Auflösung 0,07 a.u.. Für die Flugzeitrichtung der Elektronen folgt:

$$\Delta p_{e,x} = \sqrt{\left(\frac{m_e}{tof} \cdot \Delta x\right)^2 + \left(m_e \cdot \left(-\frac{x}{tof^2} - 0,5 \cdot a\right) \Delta tof\right)^2 + (m_e \cdot tof \cdot \Delta a)^2} \quad (3.32)$$

Hierin bezeichnet x die Entfernung der Reaktion von der Detektoroberfläche. Im Normalfall beträgt diese 50 mm. Dieser Wert kann auf 3 mm genau bestimmt werden. Die einzig variierende Größe herein ist die Flugzeit, so dass sich eine flugzeitabhängige Auflösung gemäß Abb. 3.38b) ergibt.  $\Delta p_{e,x}$  liegt in dieser Richtung immer über 0,13 a.u. und erreicht für kurze Flugzeiten sogar 0.18 a.u..

Schließlich entspricht die Auflösung des Elektronimpulses in Flugzeitrichtung der  $H_2^+$ -Ionen:

$$\Delta p_{e,z} = \sqrt{\left(\frac{m_e}{tof} \cdot \Delta z\right)^2 + \left(\frac{m_e \cdot (z + z_0)}{tof^2} \cdot \Delta tof\right)^2 + \left(\frac{m_e}{tof} \cdot \Delta z_0\right)^2 + (m_e \cdot \Delta v)^2} \quad (3.33)$$



**Abbildung 3.38:** Impulsauflösung der Elektronen für a) y-Richtung, b) x-Richtung, die Flugrichtung der Elektronen und c) z-Richtung, die Flugrichtung der  $H_2^+$ -Ionen.

Projektile		Elektronen	
$\Delta tof$	0,3 ns	$\Delta tof$	0,3 ns
$\Delta x, \Delta y$	0,3 mm	$\Delta y, \Delta z$	0,3 mm
$\Delta p_{tof} = \Delta p_z$	3,2 a.u.	$\Delta p_{tof} = \Delta p_x$	0,18 a.u.
$\Delta p_x, \Delta p_y$	0,5 a.u.	$\Delta p_y$	0,07 a.u.
		$\Delta p_z$	0,07 a.u.

**Tabelle 3.3:** Auflösungen der verwendeten Detektorsysteme und der errechneten Impulse bei 400 keV  $H_2^+$ -Ionen und einem elektrischen Feld von  $E = 35,714 \frac{V}{cm}$  im Bereich des Elektronenspektrometers.

$z_0$  ist hierbei die Entfernung des Reaktionspunktes vom Mittelpunkt des Elektronendetektors. Je nach Positionierung des Laserfokus beträgt diese Entfernung ca 110 mm.- Durch die Strahlfindungsdetektoren kann die Position auf 5 mm genau bestimmt werden. Vergleicht man die Auflösung in dieser Richtung (siehe Abb. 3.38c)) mit der in y-Richtung, ist erkennbar, dass die zusätzlichen Einflüsse der Projektilgeschwindigkeit und der resultierende Versatz des Elektronendetektors keine relevante Verschlechterung der Auflösung zur Folge haben. Es ergibt sich eine Auflösung von schlechtestenfalls  $\delta p_{e,z} = 0,07$  a.u.. Eine Liste aller Auflösungen findet sich in Tabelle 3.3.





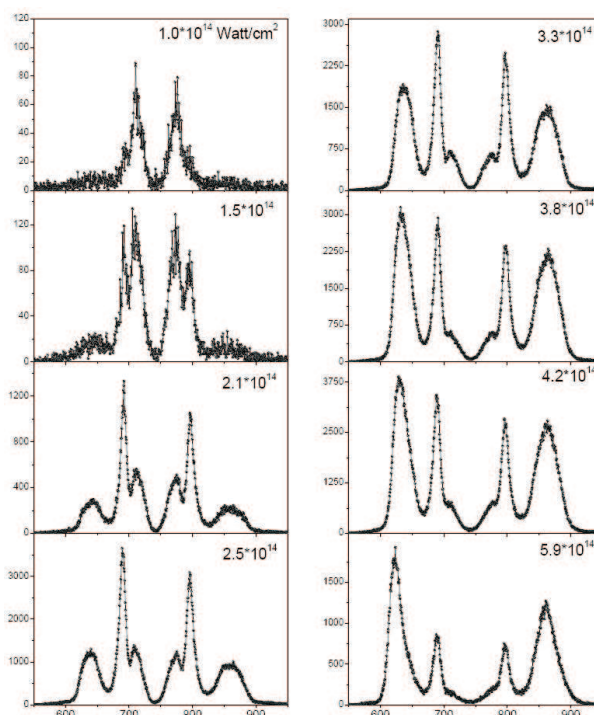
## 4. Ergebnisse und Interpretation

Die im Folgenden präsentierten Ergebnisse gliedern sich in Messungen mit linearer und zirkularer Polarisation. Die Intensität beträgt in der Messung mit linear polarisiertem Licht etwa  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  und für die Messung mit zirkular polarisiertem etwa  $2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . Vorweg lässt sich sagen, dass sich die Messungen mit linearer Polarisation in besonderem Maße für Aussagen die Kerne betreffend eignen, weil in diesem Fall die Richtung des elektrischen Feldvektors der Laserstrahlung eindeutig ist. In allen Versuchen, die ausschließlich die Kerndynamik untersuchen (vgl. Kapitel 2.3), wird daher auch linear polarisiertes Licht benutzt. Da im Rahmen dieses Experiments die Flugzeitrichtung sowohl der Kerne als auch der Elektronen eine schlechtere Auflösung als die Ortsauflösung der Detektoren aufweist, kann bei linearer Polarisation die Richtung derart festgelegt werden, dass sie in beiden Detektorebenen liegt. Dies ist bei Verwendung zirkularer Polarisation experimentell durch den Neigungswinkel von  $20^\circ$  zwischen Laserausbreitungs- und Ionenflugrichtung nicht möglich. Für die Analyse der Elektronimpulse hingegen eignet sich die Verwendung zirkularer Polarisation, so dass die beiden Messungen ergänzenden Charakter haben. Der inhaltliche Schwerpunkt liegt eindeutig bei der Betrachtung der zirkularen Polarisation.

### 4.1 Lineare Polarisation

#### **Intensitätseichung:**

Für die Eichung der Intensität bei linearer Polarisation wird das in Kapitel 3.7.2 erläuterte Verfahren benutzt. Im Gegensatz zu der Flugzeitmessung wie sie in [102] und [103] verwendet wird, ist im Rahmen dieser Arbeit die Polarisation nicht in Flugzeitrichtung, sondern entlang der y-Achse orientiert. Damit befindet sich die Polarisationsachse sowohl parallel zum Elektrondetektor als auch nahezu parallel zum Projektildetektor. Mit Hilfe der Strahlfindungsdetektoren kann ein entsprechendes



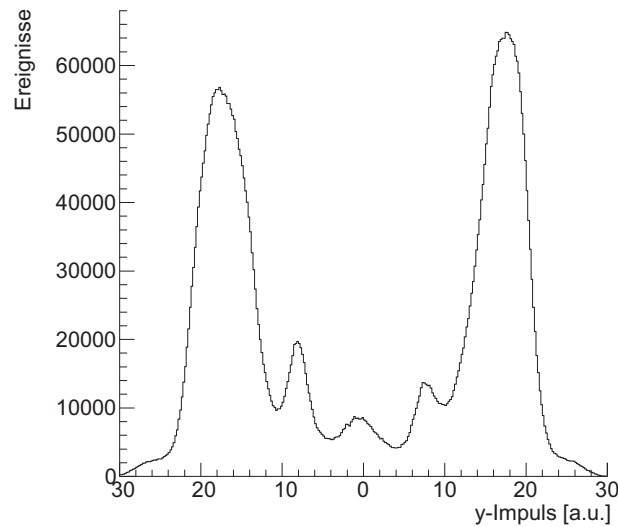
**Abbildung 4.1:** Flugzeitverteilung von Wasserstofffragmenten bei diversen Laserintensitäten. Das Verhältnis der unterschiedlichen Peaks gibt Aufschluss über die Peakintensität. (aus [103])

Eichspektrum für Wasserstoff gewonnen werden. Da der Auftreffort auf dem Ionen-detektor bei dieser Anordnung linear zum Anfangsimpuls ist (vgl. 3.15), genügt die Betrachtung des Auftreffortes in Polarisationsrichtung, um eine Intensitätseichung vornehmen zu können. In Abb. 4.2 ist eine solche Verteilung beispielhaft dargestellt. Durch Vergleich mit Abb. 4.1 lässt sich die Intensität auf über  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  bestimmen.

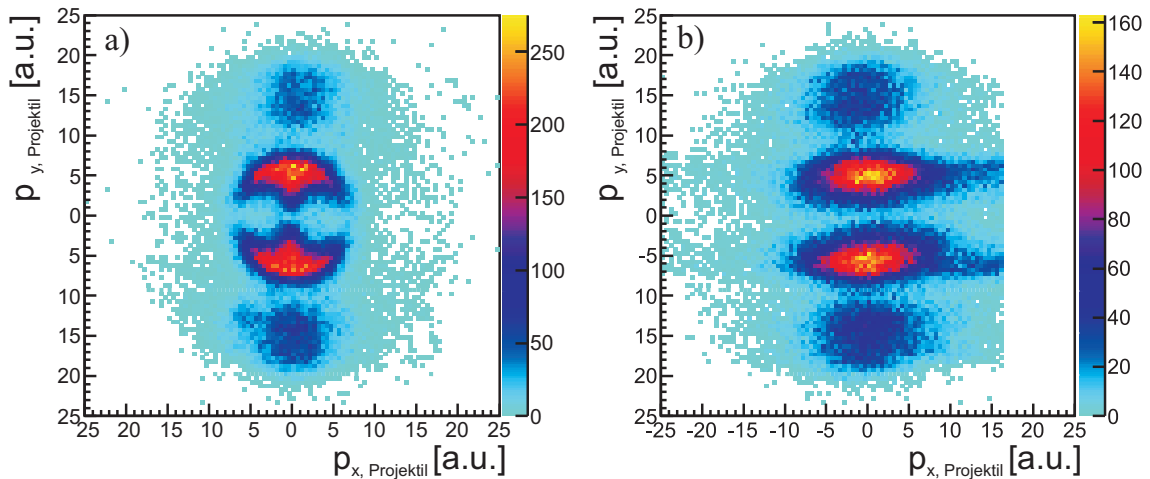
### Projektilspektren:

Bei linearer Polarisation schwingt das elektrische Feld entlang einer Achse. Eine Rotationssymmetrie um diese Achse dementsprechend für alle Messungen zu erwarten. In Abb. 4.3 a) ist der Projektilimpuls in der Detektorebene dargestellt (x-y-Ebene). Die Polarisationsrichtung verläuft entlang der y-Achse. Im Bereich bis etwa 10 a.u. finden sich Dissoziationsprozesse. Die Ankerstruktur ist dabei eine typische Struktur für Bond-Softening-Prozesse. Eine genauere Betrachtung der Dissoziationsmechanismen in diesem Versuch findet sich in [55]. Für größere Impulse finden sich Beiträge von Ionisationsprozessen. Schon in dieser Abbildung ist ersichtlich, dass die Ionisation überwiegend dann stattfindet, wenn das elektrische Feld in Richtung der molekularen Achse weist.

Vergleicht man die Spektren für die x-y-Ebene (Detektorebene) mit der für die z-y-Ebene, fällt auf, dass die Flugzeitrichtung vor allem im Bereich der Dissoziation eine erheblich schlechtere Auflösung liefert als die beiden Ortsrichtungen. Dies hat



**Abbildung 4.2:** y-Impulse fragmentierter  $H_2$ -Moleküle aus dem Restgas. Ein Vergleich der Peaks mit Abb. 4.1 zeigt, dass die Intensität des Lasers über  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  liegt.



**Abbildung 4.3:** a) Projektilimpuls in der x-y-Ebene für Projektilflugzeiten  $474,5ns < tof_p < 479ns$ . Die Polarisationsrichtung verläuft entlang der y-Achse. Im Inneren Bereich, für Impulsbeiträge  $< 10$  a.u. finden sich Events, die der Dissoziation zugeordnet werden können. Im äußeren Teil finden sich die Protonen, die aus Ionisationsprozessen stammen. Um den Kontrast zwischen Dissoziation und Ionisation zu verbessern, wurde eine Bedingung auf das Vorhandensein eines Elektronensignals gesetzt. b) Projektilimpuls in z-y-Richtung. Die Dissoziationsprozesse sind im Vergleich zur Ionisation breit ausgeschmiert, da diese Prozesse bei sehr viel niedrigeren Intensitäten und damit über einen größeren Raumbereich stattfinden.

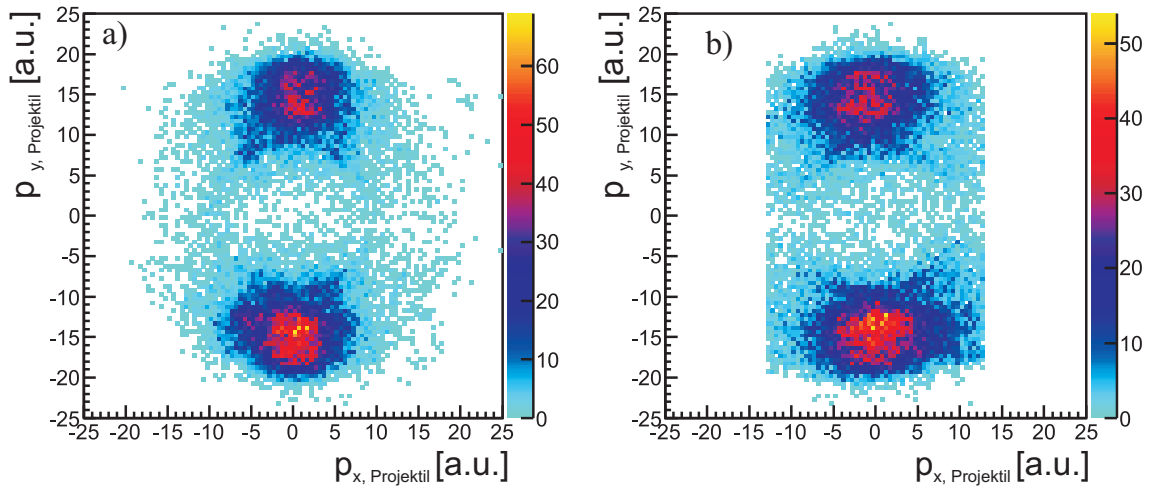
im Wesentlichen zwei Ursachen: Zum einen haben die  $H_2^+$ -Ionen in dieser Richtung bereits eine Geschwindigkeit von 2,83 a.u. (bei 400 keV Beschleunigungsspannung). Die beiden Protonen erhalten im Molekülsystem jeweils einen Impuls von maximal 20 a.u., was einer Geschwindigkeit von 0,01 a.u. entspricht. Bei einem Molekül, das in Flugzeitrichtung dissoziiert, macht dies so einen Flugzeitunterschied von nur 2,5 ns aus. Für kleinere Impulse ist der Flugzeitunterschied entsprechend noch geringer. Da die Zeitauflösung der Detektoren, bzw. der verwendeten Elektronik bestenfalls bei 0,1 realistisch allerdings eher 0,3 ns beträgt [104], liefert die Flugzeitrichtung eine erheblich schlechtere Auflösung als die Ortsrichtungen (vgl. Kapitel 3.8.3).

Zum anderen kommt es schon bei einer Intensität unter  $10^{14} \frac{W}{cm^2}$  zu Dissoziationsprozessen. Da für die Fokussierung eine relativ lange Brennweite von 20 cm benutzt wurde, ergibt sich ein entsprechend langer Fokus. Die Region bis die Intensität auf  $1/e$  abgefallen ist, beträgt etwa 1,9 mm. Bei einer Peakintensität von  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  ist der Bereich, in dem noch genügend Intensität für Dissoziationsprozesse vorhanden ist, entsprechend noch größer, während Ionisationsprozesse nur in einem sehr viel engeren Bereich um den Fokusort anzutreffen sind. Durch den flachen Winkel von  $20^\circ$  zwischen Ionenstrahl und Laserausbreitungsrichtung befindet sich die längliche Ausdehnung des Fokus im Wesentlichen entlang der Flugzeitrichtung. Eine Ortsunschärfe von ca. 2,5 mm des Entstehungsortes führt bei einer festen Schwerpunkts- geschwindigkeit von 2,83 a.u. und der gegebenen Driftstrecke zu einer zeitlichen Verschmierung von 0,4 ns.

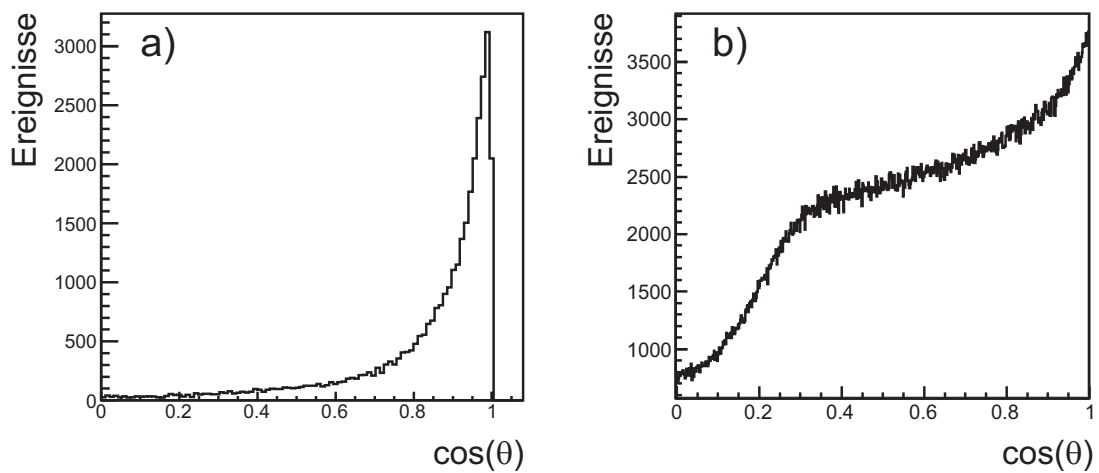
Dies entspricht einer Impulsunschärfe von 4,3 a.u. zusätzlich zu der im Vergleich zu den Ortsrichtungen ohnehin schlechteren Auflösung in Flugzeitrichtung (vgl. Tab. 3.3). Daher ist es nicht verwunderlich, dass die Flugzeitrichtung insbesondere für die Dissoziation sehr breit ausgeschmiert ist. Für die Ionisationsprozesse fällt gerade der zweite Punkt nicht mehr so stark ins Gewicht, da der Bereich ausreichender Intensität entsprechend kleiner ist. Die prozessabhängige Ausschmierung in Flugzeitrichtung ist in Abb. 4.3 deutlich zu erkennen.

In Abb. 4.4 c) und d) sind die Projektionen auf die x- und z-Impulskomponenten für den Ionisationskanal dargestellt. Entsprechend den obigen Ausführungen ist die Verteilung in z-Richtung mit ca. 10 a.u. FWHM gegenüber der x-Richtung mit 8 a.u. etwas breiter. Dennoch ist auch in dieser Verteilung eine deutliche Ausrichtung in Polarisationsrichtung erkennbar. Dies wird auch von der dreidimensionalen Winkelverteilung der Projektile relativ zur Polarisationsrichtung in Abb. 4.5 a) deutlich. Um verfälschende Einflüsse des Raumwinkels auf die Winkelverteilung auszuschließen, ist der Kosinus des Winkels aufgetragen.

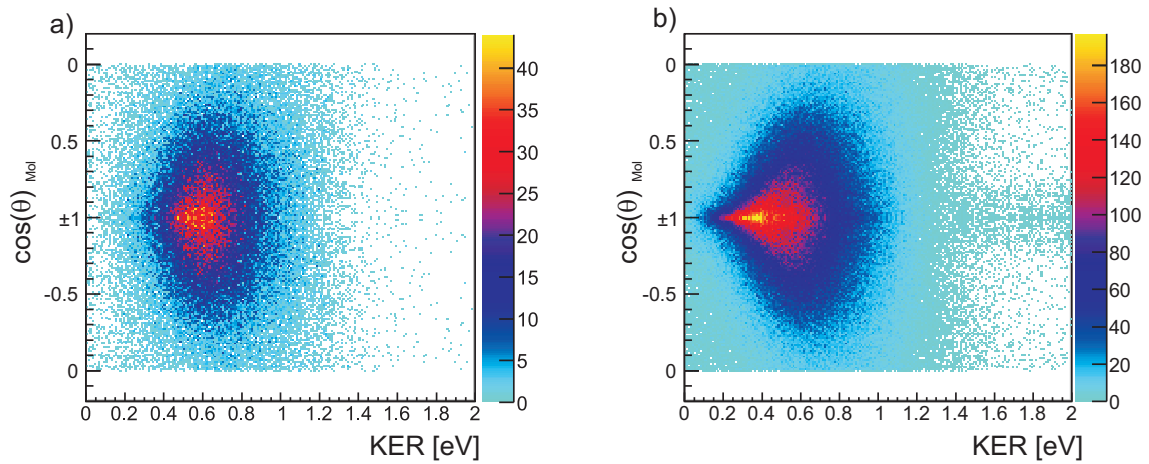
Bei den Dissoziationsprozessen fällt überdies auf, dass die Winkelverteilung vom KER abhängt. Dies ist auf verschiedene Prozesse bei der Dissoziation zurückzuführen.



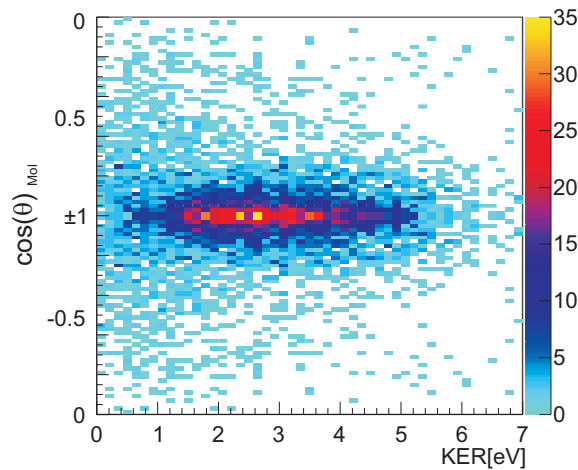
**Abbildung 4.4:** a) Projekttilimpuls in der x-y-Ebene. Durch eine Bedingung auf Elektronflugzeit ( $8\text{ns} < \text{tof}_e < 17\text{ns}$ ), Projekttilflugzeit ( $474,5\text{ns} < \text{tof}_p < 479\text{ns}$ ) sowie den Projekttilimpuls ( $|p_p| > 9\text{a.u.}$ ) sind fast nur noch Ionisationsereignisse zu sehen. Die Polarisationsrichtung verläuft entlang der y-Achse. b) Projekttilimpuls in der z-y-Ebene. Bedingungen wie a), c) Projekttilimpuls in x Richtung, d) Projekttilimpuls in z Richtung.



**Abbildung 4.5:** Kosinus des Winkels zwischen Polarisationsrichtung und molekularer Achse für a) Ionisationsprozesse, b) Dissoziationsprozesse.



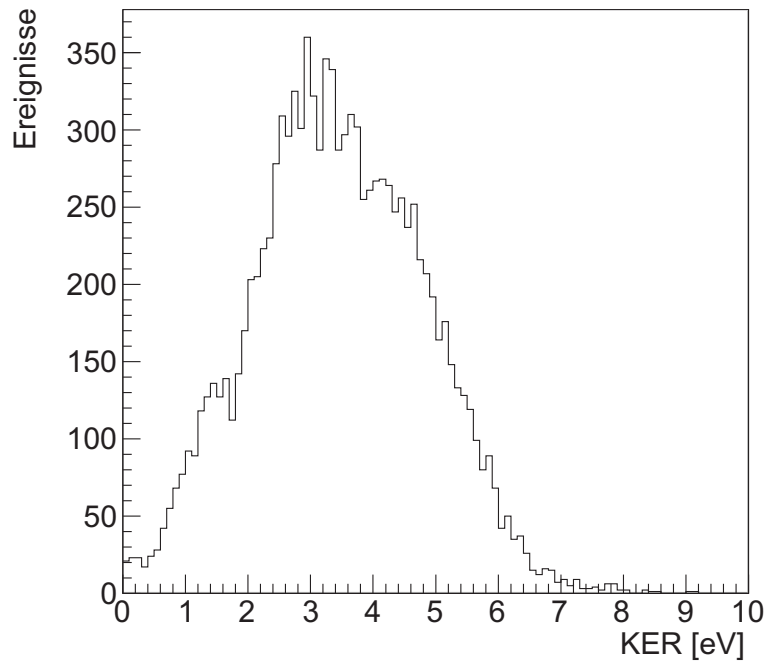
**Abbildung 4.6:** Verteilung der Winkel in Abhängigkeit vom KER für den Dissoziationsprozess. a) bei niedriger Intensität  $I < 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ , b) bei hoher Intensität  $I = 5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  [55].



**Abbildung 4.7:** Wie Abb. 4.6. Durch Bedingungen auf Projekttilflugzeit ( $474,5 ns < tof_p < 479 ns$ ) und Elektronflugzeit ( $8 ns < tof_e < 17 ns$ ), werden fast ausschließlich Fragmente des Ionisationsprozesses gemessen ( $I = 6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ).

ren. In Abb. 4.6 ist die KER-Abhängigkeit der Winkelverteilung nochmals verdeutlicht.

Die Ausrichtung der Ionisationsprozesse besitzt dagegen keine derartige Struktur (Abb. 4.7). Die enge Ausrichtung in Polarisationsrichtung legt den Schluss nahe, dass so gut wie gar keine Ionisationsmechanismen auftreten, die unabhängig von der Molekülausrichtung sind. Dies gilt für alle Prozesse, die auch als Ionisation bei Atomen auftreten. Des Weiteren sind im Bereich der Ionisation auch keine statistisch relevanten Einflüsse senkrechter Übergänge zu finden. Eine Mögliche Erklärung der beobachteten Ausrichtung der ionisierten Moleküle entlang der Polarisationsachse bietet der CREI-Prozess (vgl. Kapitel 2.2.4.3). Da der CREI-Prozess eng mit dem Vorhandensein kritischer internuklearer Abstände verknüpft ist, und sich diese



**Abbildung 4.8:** Verteilung der kinetischen Energie der Kernfragmente im Schwerpunktsystem (KER) für linear polarisiertes 780 nm Laserlicht. ( $I \approx 6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ )

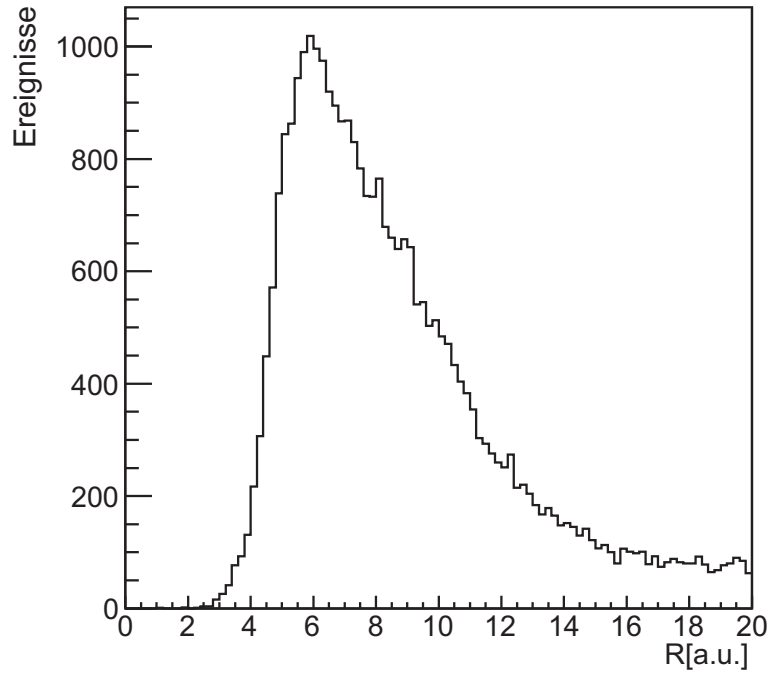
wiederum im KER, der kinetischen Energie der Kerne, niederschlagen, kann man unter diesem Aspekt die KER-Verteilung betrachten (Abb.4.8).

Geht man davon aus, dass diese Energie ausschließlich aus den vollständig ionisierten Teilchen hervorgeht (*Reflection Approximation*, vgl. Kapitel 2.1.2), kann man unter Verwendung atomarer Einheiten für ein Coulomb-Potential den Zusammenhang

$$KER = \frac{1}{R} \quad (4.1)$$

zwischen KER und internuklearem Abstand herstellen. Unter dieser Annahme lässt sich das Energie-Spektrum zu einer Verteilung des internuklearen Abstands umformen, wie es zur Verdeutlichung in Abb. 4.9 dargestellt ist.

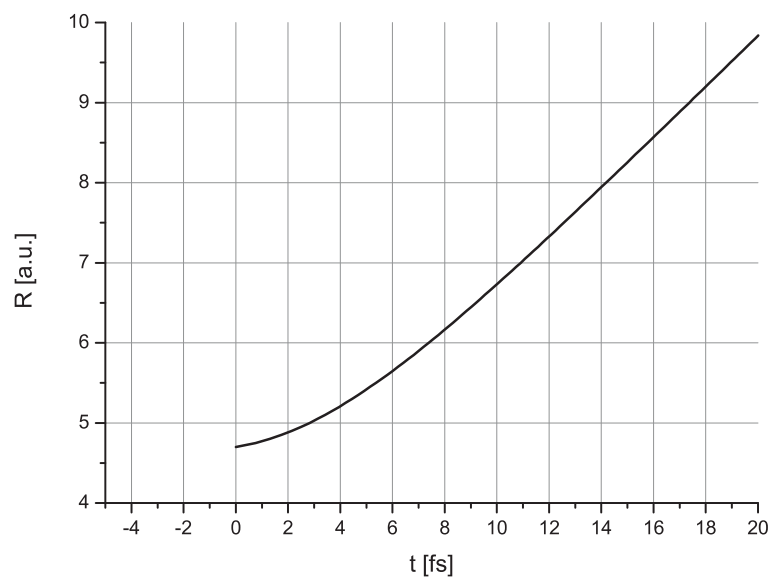
Für den CREI-Prozess ist eine erhöhte Rate ab einem Abstand von ca. 6 a.u. zu erwarten, wohingegen die dargestellte Abstandsverteilung schon bei etwas kleineren Abständen einen starken Anstieg der Rate verzeichnet. Andererseits muss auch berücksichtigt werden, dass nur 4,4 % der Target-Moleküle nach Abb. 2.4 in Kapitel 2.1.3 Abstände jenseits dieses kritischen Abstands haben. Es ist jedoch naheliegend, dass der eigentlichen Ionisation eine Dissoziation vorausgeht, sodass die Voraussetzung, das Molekül habe zum Ionisationszeitpunkt keine kinetische Energie, an dieser Stelle in der Regel nicht erfüllt sein wird. Da dissoziative Übergänge im Vergleich zur Ionisation bei sehr viel geringeren Intensitäten stattfinden, kann es auf der ansteigenden Flanke des Laserpulses bereits zu einer dissoziativen Anregung kommen.



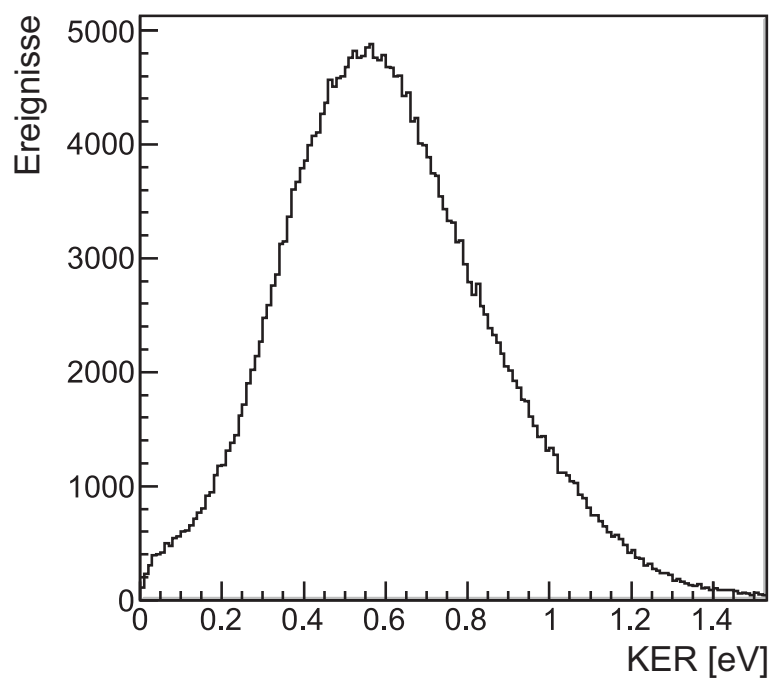
**Abbildung 4.9:** Abstandsverteilung, wie sie bei der in Abb. 4.8 zugrunde liegenden KER-Verteilung aus einer reinen Coulomb-Explosion hervorgeht.

Der verwendete Laserpuls besitzt eine Pulslänge von 40 fs und eine Peakintensität von etwa  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . Eine Anregung auf den dissoziativen  $2p\pi_u$ -Zustand tritt nun schon bei  $I \leq 3,5 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$  auf ([9]). Legt man ein Gauß-Profil zu Grunde, ist dies bereits ca. 20 fs vor Erreichen des Maximums der elektrischen Feldstärke erfüllt. Diese Zeit ist vergleichbar mit der Vibrationsperiode von  $H_2^+$  im Grundzustand von 14 fs [105]. In Abb. 4.10 ist der zeitliche Verlauf der Dissoziation entlang der  $2p\sigma_u$ -Potentialkurve verdeutlicht. Zum Zeitnullpunkt wird der  $2p\sigma_u$ -Zustand beim Abstand der Ein-Photon-Resonanz  $R = 4,7$  a.u. ohne Anfangsenergie populiert. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Fragmente während der ansteigenden Flanke des Laserpulses leicht in den Abstandsbereich für CREI gelangen können. Daher ergibt sich die Schlussfolgerung, dass auch im Endzustand ionisierte Teilchen zum Zeitpunkt der Ionisation bereits eine kinetische Energie durch die vorausgehende Dissoziation aufgenommen haben. Geht man von einer Dissoziation mittels der Ein-Photonen-Resonanz als Hauptprozess aus, führt dies zu einer kinetischen Energie von ca. 0,6 eV, bevor die Ionisation stattfinden kann. Dieser Wert ist jedoch nicht fest, sondern folgt selbst einer Verteilung, wie sie in Abb. 4.11 für den reinen Dissoziationsprozess dargestellt ist. Die gemessene KER-Verteilung stellt damit lediglich eine Summe der Energien aus Dissoziation und Ionisation  $KER_{gesamt} = KER_1 + KER_2$  dar, wobei  $KER_1$  der Dissoziation und  $KER_2$  der Ionisation zugeordnet sein soll. Obwohl eine eindeutige Zuordnung KER zu Abstand nicht möglich ist, kann die Verteilung aus Abb. 4.11 genutzt werden, um den aus der Dissoziation stammenden Anteil zu

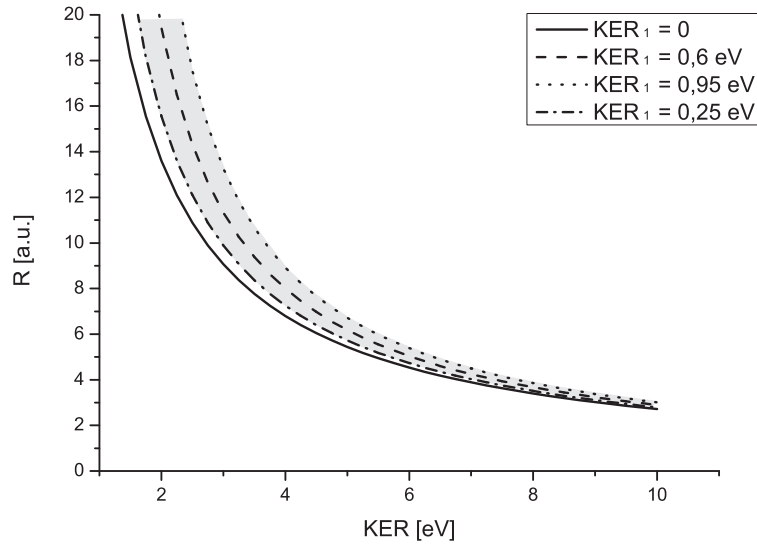




**Abbildung 4.10:** Internuklearer Abstand als Funktion der Zeit bei einer Besetzung des  $2p\sigma_u$ -Zustandes im Bereich der Ein-Photonenresonanz bei  $R = 4,7$  a.u..



**Abbildung 4.11:** KER-Verteilung für den reinen Dissoziationsprozess des Wasserstoffmoleküls.

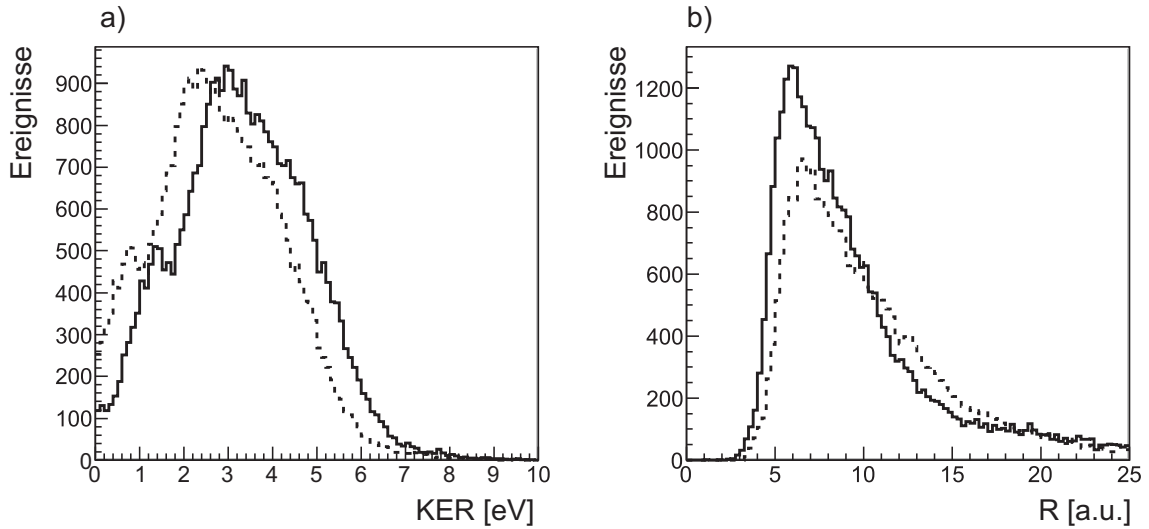


**Abbildung 4.12:** Zuweisung des gemessenen KERs zum internuklearen Abstand der Kerne für verschiedene Beiträge  $KER_1$  des Dissoziationsprozesses. Für den reinen Dissoziationsprozess finden sich die überwiegende Mehrheit aller Ereignisse in einem Bereich von  $0,6 \pm 0,35 \text{ eV}$  (vgl. Abb. 4.11). Ausgehend von einem Beitrag der Dissoziation innerhalb dieser Grenzen findet sich die Zuordnung von gemessenem KER zu internuklearem Abstand in dem grau unterlegten Bereich.

$KER_1 = 0,6 \text{ eV} \pm 0,35 \text{ eV}$  abzuschätzen. Für große  $KER_{gesamt}$ -Werte sind seitens der Dissoziation nur kleine Beiträge zu erwarten, da schon bei geringen Kernabständen der Ionisationsschritt erfolgen muss. Andererseits ist bei kleinen  $KER_{gesamt}$ -Werten ein größerer Anteil von  $KER_1$  zu erwarten, da das Molekül vor der Ionisation einen großen internuklearen Abstand erreichen und dementsprechend mehr Energie während des Dissoziationsprozesses aufnehmen muss. In Abb. 4.12 sind die Zuweisungen von internuklearem Abstand und gemessenem KER für  $KER_1 = 0$ ,  $KER_1 = 0,6 \text{ eV}$  sowie  $KER_1 = 0,6 \text{ eV} - 0,35 \text{ eV}$  und  $KER_1 = 0,6 \text{ eV} + 0,35 \text{ eV}$  der Dissoziation dargestellt. Die tatsächliche Zuordnung befindet sich von den bisherigen Ausführungen ausgehend in dem grau unterlegten Bereich.

In Abb. 4.13 a) ist daher nochmals die Original KER-Verteilung mit entsprechender Abstandsverteilung sowie mit durchbrochener Linie der um  $0,6 \text{ eV}$  korrigierte KER dargestellt. Die resultierende Abstandsverteilung (Abb. 4.13 b)) zeigt entsprechend eine Tendenz zu größeren internuklearen Abständen.

Weiterhin fällt auf, dass die Dissoziation im Gegensatz zur Ionisation einen weniger scharf ausgerichteten Charakter hat (siehe Abb. 4.3 und Abb. 4.5). Nun gilt die Vorzugsrichtung entlang der Laserachse zunächst für beide Prozesse, da auch die Dissoziation in der Regel über eine Kopplung des  $1s\sigma_g$ - mit dem  $2p\sigma_u$ -Zustand stattfindet, was einem parallelen Übergang entspricht. Die vergleichsweise geringe Mindestintensität liefert zumindest ansatzweise eine Erklärung. Trotzdem gibt es gerade im Bereich der großen Winkel Uneinigkeit darüber, ob diese Effekte einer Deausrich-



**Abbildung 4.13:** a) Gemessene KER-Verteilung (—) und die um 0,6 eV korrigierte Verteilung (- -) b) den KER-Verteilungen aus a) entsprechende Abstandsverteilung.

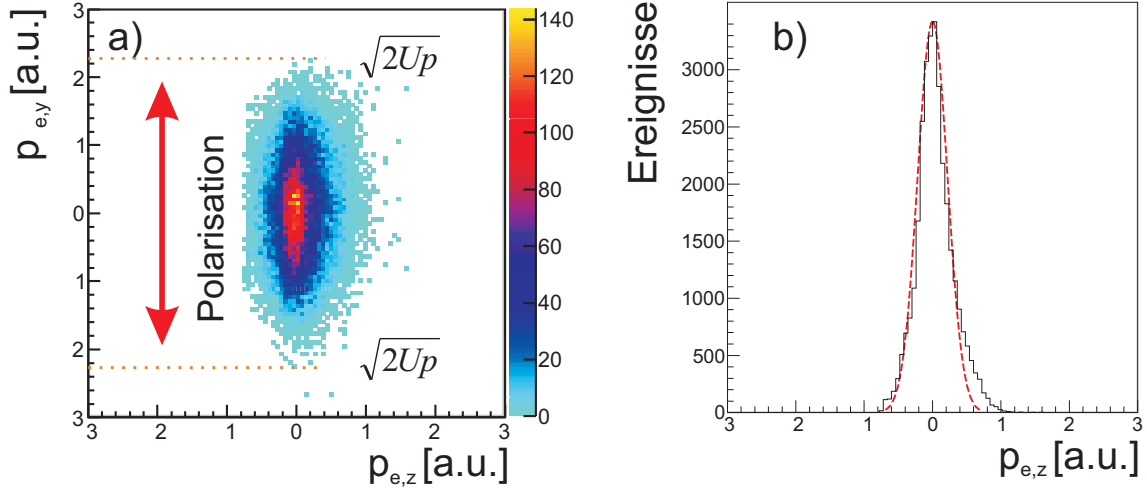
tion des Moleküls im Laserfeld über den Prozess des Bond-Hardening zuzuordnen sind, oder ob auch senkrechte Übergänge zum  $2p\pi_u$ -Zustand dafür verantwortlich sein können [46], [47], [45]. Letzteres wurde allerdings bislang nur für Licht kürzerer Wellenlänge gefunden. Da nach einem senkrechten Übergang zum  $2p\pi_u$ -Zustand das Ionisationspotential auf unter 10 eV absinkt, wäre eine Ionisation solcher Zustände durchaus möglich. Da in diesen Spektren allerdings keine nennenswerten Beiträge in senkrechter Richtung zu finden sind, scheint dieses Szenario nicht zutreffend zu sein.

### Elektronspektren:

In Abb. 4.14 a) ist der Elektronenimpuls in der Ebene des Elektronendetektors (y-z Ebene) zu sehen. Auch hier fällt eine Orientierung entlang der Polarisationsrichtung auf, was auf Grund der Beschleunigung durch das elektrische Feld des Lasers zunächst nicht weiter verwundert. Die Verteilung senkrecht zur Laserpolarisation spiegelt hierbei die Impulsverteilung der Elektronen wider (Abb.4.14 b)), während die Verteilung entlang der Laserpolarisation maßgeblich vom treibenden elektrischen Feld des Lasers beeinflusst wird. Die Endenergie bzw. Endgeschwindigkeit der Elektronen hängt bei linearer Polarisation außer von der Peakintensität des Lasers entscheidend von der Phase des elektrischen Feldes zum Ionisationszeitpunkt ab.

Die Endgeschwindigkeit  $v_{end} = v(t_\infty)$  für ein ruhendes Elektron, das zum Zeitpunkt  $t_0$  ionisiert wird und ausschließlich dem Einfluss des elektrischen Feldes des Lasers unterliegt, ergibt sich aus:

$$\vec{v}_{end} = \int_{-\infty}^{t_0} \vec{a} dt = \int_{-\infty}^{t_0} \frac{-e}{m_e} \cdot \vec{E}(t) dt \quad (4.2)$$



**Abbildung 4.14:** a) Elektronimpulse in der Detektorebene. Es kommen in Polarisationsrichtung keine Impulse vor, die  $2 \cdot U_p$  übersteigen. b) Elektron-z-Impuls. Die orangefarbene durchbrochene Linie stellt die nach der ADK-Formel Gl. 2.34 errechnete Impulsverteilung dar.

Dabei gilt für einen in y-Richtung polarisierten Gaußpuls:

$$\vec{E}(t) = E_0 \cdot \cos(\omega \cdot t) \cdot e^{-4 \frac{t^2}{T^2}} \cdot \vec{e}_y \quad (4.3)$$

Das Maximum der einhüllenden Gaußkurve ist dabei als Zeitnullpunkt definiert. Dieses Integral ist numerisch einfach zu lösen, eine anschauliche analytische Lösung lässt sich jedoch nur schwer finden. Die wesentlichen Eigenschaften des Integrals lassen sich allerdings auch ohne die konkrete Lösung bestimmen. Außerdem sind die folgenden Abschätzungen für alle Pulsformen zutreffend, die sich im Vergleich zur Schwingung des elektrischen Feldes nur langsam ändern und die nach endlicher Zeit schnell genug gegen 0 streben:

Der Einfachheit halber soll der Integrand als  $f(t)$  bezeichnet werden, die dazu gehörige Stammfunktion entsprechend mit  $F(t)$ , sodass  $v_{end} = F(\infty) - F(t_0)$ . Zum einen ist es offensichtlich, dass die Gauß-Funktion für  $t \rightarrow \infty$  stark genug gegen 0 strebt, dass das Integral konvergiert ( $F(\infty) = 0$ ). Physikalisch bedeutet dies, dass nach Abklingen des Laserpulses das Elektron auch nicht mehr vom Laserfeld beschleunigt wird ( $\vec{a}(t = \infty) = 0$ ). Damit ist bereits gezeigt, dass die Endgeschwindigkeit einzig vom Ionisationszeitpunkt  $t_0$  abhängt ( $v_{end} = -F(t_0)$ ). Damit kann auch direkt eine Aussage über die Zeiten getroffen werden, die zu maximalen Endgeschwindigkeiten führen. Die Ableitung der Endgeschwindigkeit nach dem Anfangszeitpunkt führt zur Extremwertgleichung:

$$\frac{dv_{end}}{dt_0} = -\frac{dF(t_0)}{dt_0} = 0 = f(t_0) \quad (4.4)$$

Da  $f(t_0) = \frac{-e}{m_e} \cdot \vec{E}(t_0)$  ist, folgt trivialerweise, dass die Extrema genau zu den Zeiten auftreten, zu denen das elektrische Feld 0 ist. Ebenso einleuchtend ist, dass

sich Maxima und Minima abwechseln müssen, also die relativen maximalen Endgeschwindigkeiten abwechselnd in positiver und negativer Polarisationsrichtung auftreten. Daraus resultiert unmittelbar das Vorhandensein von Nulldurchgängen. Nun kann man bei Laserpulsen, die lang gegenüber der Oszillation des elektrischen Feldes sind, davon ausgehen, dass sich die Einhüllende zwischen zwei Nulldurchgängen nur sehr wenig verändert, weshalb man jeweils für einen solchen Bereich die Funktion  $f(t)$  durch eine reine Kosinusfunktion annähern kann. Da  $F(t)$  alternierend maximal wird für die Nulldurchgänge von  $f(t)$ , folgt aus der Symmetrie der Kosinusfunktion, dass die Nulldurchgänge von  $F(t)$  entsprechend in den relativen Maxima des Kosinus liegen werden. Für die Endgeschwindigkeiten lässt sich somit sagen, dass ein Elektron, welches bei linearer Polarisation in der Nähe des Maximums des elektrischen Feldes erzeugt wird, sehr kleine Endgeschwindigkeiten aufweisen wird.

Unter der Bedingung, dass obige Näherung zulässig ist, kann nun die tatsächliche Endgeschwindigkeit abgeschätzt werden. Da das Integral von relativem Maximum bis unendlich verschwindet, ergibt sich die Endgeschwindigkeit aus dem Integral des Entstehungszeitpunktes, bis zum nächsten relativen Maximum von  $f(t)$ . Da dieses Intervall immer kleiner ist, als die für die Näherung benutzte Zeitdifferenz, kann auch hier die Funktion durch eine Kosinusfunktion angenähert werden. Die Amplitude richtet sich dabei nach dem Funktionswert der Einhüllenden. Die absolut maximale Endgeschwindigkeit lässt sich daher im Bereich der Peakintensität genähert bestimmen als das Integral vom Nullpunkt vor dem Maximum der Einhüllenden bis zum nächsten Maximum, das in diesem Fall mit dem Maximum der Einhüllenden und dem Zeitnullpunkt zusammenfällt:

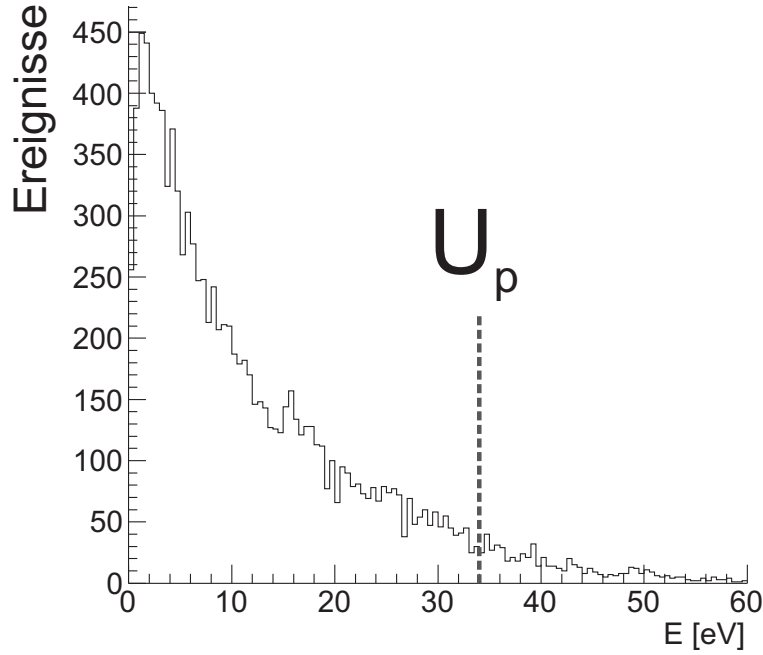
$$\begin{aligned}
 \vec{v}_{end,maximal} &= \int_{-\frac{\pi}{2\omega}}^{\infty} \frac{-e}{m_e} \cdot E_0 \cdot \cos(\omega \cdot t) \cdot e^{-4\frac{t^2}{T^2}} \cdot \vec{e}_y dt \\
 &\approx \int_{-\frac{\pi}{2\omega}}^0 \frac{-e}{m_e} \cdot E_0 \cdot \cos(\omega \cdot t) \cdot e^{-4\frac{t^2}{T^2}} \cdot \vec{e}_y dt \\
 &\approx \int_{-\frac{\pi}{2\omega}}^0 \frac{-e}{m_e} \cdot E_0 \cdot \cos(\omega \cdot t) \vec{e}_y dt \\
 &= -\frac{e \cdot E_0}{m_e \cdot \omega} \vec{e}_y
 \end{aligned} \tag{4.5}$$

Daraus folgt automatisch für den maximalen Endimpuls:

$$p_{max} = \frac{e \cdot E_0}{\omega} \tag{4.6}$$

Berechnet man die maximale kinetische Energie, so stellt man fest, dass sie mit

$$E_{max} = \frac{1}{2} \cdot m_e \cdot v_{end}^2 = \frac{e^2 \cdot E_0^2}{2 \cdot m_e \cdot \omega^2} \tag{4.7}$$



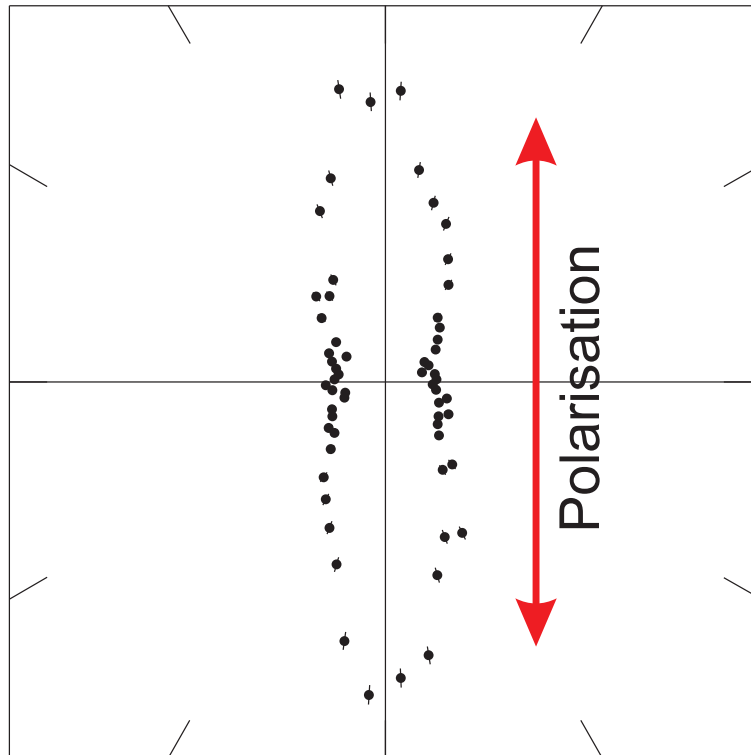
**Abbildung 4.15:** Elektronenergie [eV] bei linearer Polarisation und einer Intensität von  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . Es werden nur Ereignisse berücksichtigt, bei denen die Flugzeiten in den Grenzen  $474,5ns < tof_p < 479ns$  und  $8ns < tof_e < 17ns$  liegen.

genau  $2 \cdot U_{p,lin}$  (vgl. Gl. 2.20) beträgt.

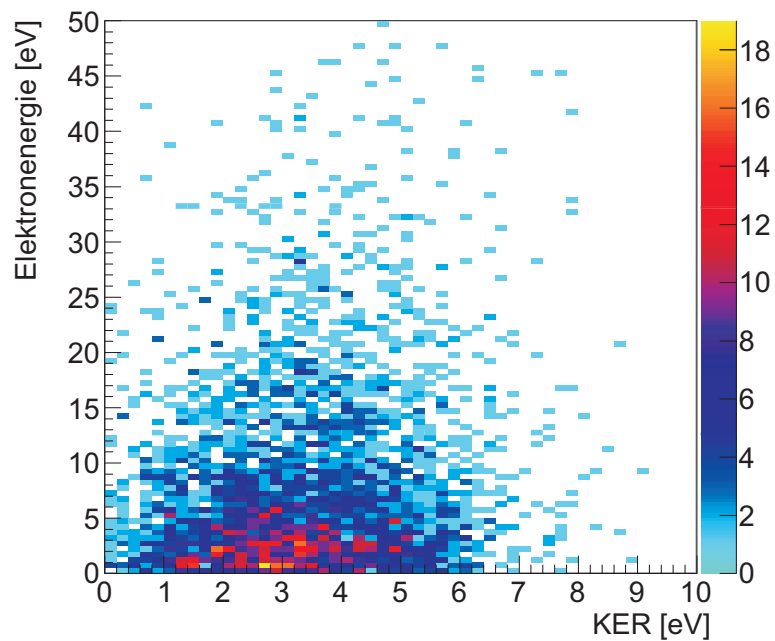
Dieser Wert geht allerdings von einer ausschließlichen Beschleunigung im Laserfeld aus. Kommt es zu einer Rekollision des Elektrons, sind auch höhere Energien möglich. Berücksichtigt man, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit maßgeblich von der elektrischen Feldstärke abhängt, so ist die wahrscheinlichste Endgeschwindigkeit  $v_{end} = 0$ . Sie verfügt jedoch über eine Verteilung, die bis zu  $2 \cdot U_p$  breit sein kann. Dieser Maximalwert wird bei linearer Polarisation jedoch beinahe nie erreicht. Die Verteilung in Abb. 4.15, die mit einer Peakintensität von etwa  $6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  und damit einer ponderomotiven Energie von 34 eV gemessen wurde, weist nahezu keine Energien jenseits von 50 eV auf.

Da die relative Phase des Ionisationszeitpunkts nicht bestimmbar ist, verwischt dieser Beitrag jeden echten elektronischen Effekt in dieser Richtung. Es ist daher nicht verwunderlich, dass die gemessene Elektronstruktur eine längliche Verteilung entlang der Laserpolarisationsachse aufweist, wie in Abb. 4.16 und Abb. 4.16 zu sehen ist.

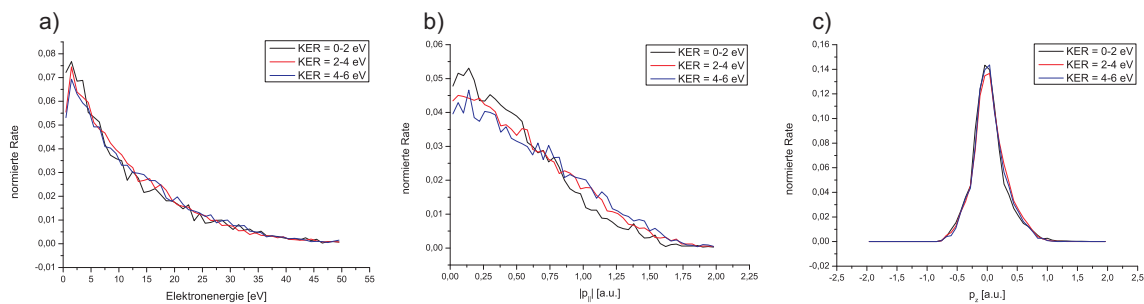
In Abb. 4.18 sind Elektronenergie, der Impuls parallel zur Polarisation des Lasers sowie die dazu senkrechte z-Komponente des Elektronimpulses für verschiedene Bereiche des KERs dargestellt. Es fällt auf, dass die abgebildeten Spektren nahezu völlig unabhängig vom KER und damit vom internuklearen Abstand der Protonen sind. Lediglich der Parallelimpuls für kleine KER zeichnet sich durch eine etwas



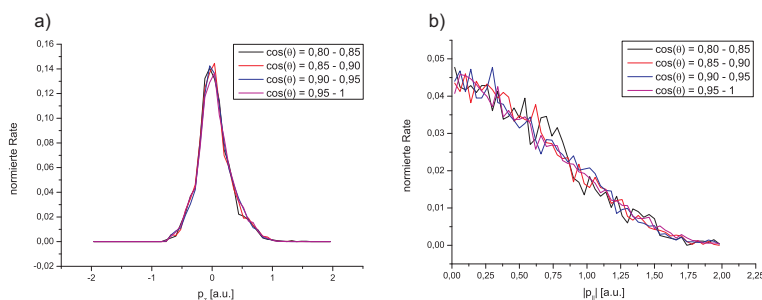
**Abbildung 4.16:** Elektronwinkelverteilung bezüglich der Laserpolarisationsrichtung für  $474,5\text{ns} < \text{tof}_p < 479\text{ns}$  und  $8\text{ns} < \text{tof}_e < 17\text{ns}$ .



**Abbildung 4.17:** KER-Elektronenergie-Spektrum für linear polarisiertes Licht  $I = 6 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ . Es werden nur Ereignisse berücksichtigt, bei denen die Flugzeiten in den Grenzen  $474,5\text{ns} < \text{tof}_p < 479\text{ns}$  und  $8\text{ns} < \text{tof}_e < 17\text{ns}$  liegen.



**Abbildung 4.18:** Eigenschaften der Elektronspektren bei linear polarisiertem Licht ( $I = 6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ) für verschiedene KER-Bereiche: a) Elektronenergie, b) Parallelimpuls, c) den zur Polarisation senkrechten z-Impuls.



**Abbildung 4.19:** Eigenschaften der Elektronspektren bei linear polarisiertem Licht ( $I = 6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ) für verschiedene Winkel zwischen molekularer Achse und Polarisation: a) Parallelimpuls, b) den zur Polarisation senkrechten z-Impuls.

schmalere Verteilung aus. Auch bei Betrachtung verschiedener Winkel (Abb. 4.19) zwischen Polarisation und Molekülachse fällt keine Abhängigkeit in den normierten Spektren auf.



## 4.2 Zirkulare Polarisation

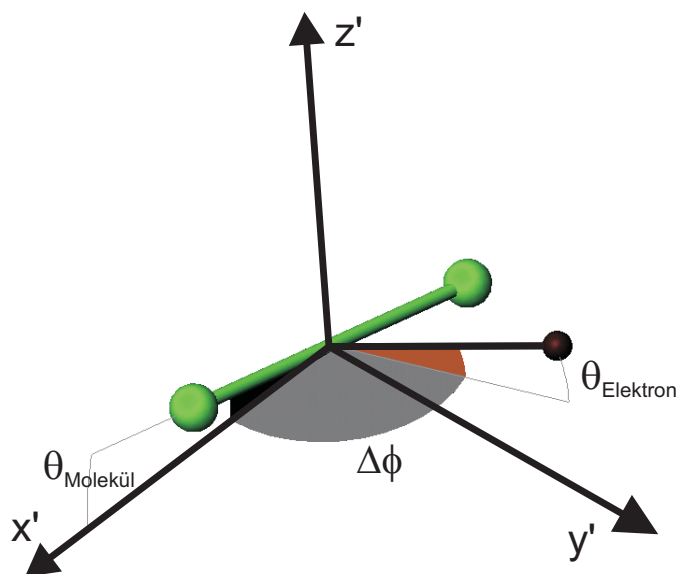
Bei zirkularer Polarisation drehen der elektrische und magnetische Feldvektor in der Normalenebene zur Ausbreitungsrichtung. Mathematisch wird dies durch eine Überlagerung zweier linear polarisierter Wellen beschrieben. Die beiden Wellen schwingen dabei in orthogonaler Richtung zueinander und besitzen einen Phasenversatz von  $\frac{\pi}{2}$ .

$$\vec{E}(t) = E_0 \cdot e^{-\frac{4 \cdot t^2}{T^2}} \cdot (\cos(\omega \cdot t) \cdot \vec{e}_x \pm \sin(\omega \cdot t) \vec{e}_y) \quad (4.8)$$

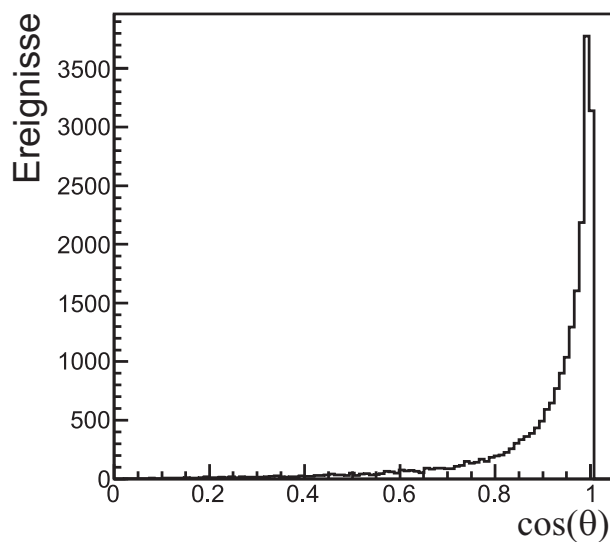
Diese Gleichung repräsentiert eine in der x-y-Ebene zirkular polarisierte Welle. Dabei kann man rechtsdrehende (+ in Gl. 4.8) und linksdrehende (- in Gl. 4.8) Polarisation unterscheiden. Dieser Drehsinn wird auch als *Helizität* bezeichnet.

Wie die Ergebnisse für lineare Polarisation zeigen, ist der überwiegende Ionisationsprozess CREI. Dieser ist durch eine starke Ausrichtung der Ionisationsrate entlang der Polarisation bzw. des elektrischen Feldvektors gekennzeichnet. Um dieses Verhalten auch für zirkulare Laserpolarisation beobachten zu können, kann man den Winkel  $\Theta_{mol}$  zwischen der molekularen Achse und Polarisationsebene betrachten, wie in Abb. 4.21 dargestellt ist. Erwartungsgemäß ist auch hier die gleiche Abhängigkeit wie bei linearer Polarisation zu finden. Die Ionisation findet überwiegend in der Polarisationsebene statt. Durch die in Kap. 3.8.2.3 thematisierte Drehung der Impulse stellt die neue x-y-Ebene die Polarisationsebene dar. Damit ergeben sich die in Abb. 4.20 dargestellten Winkel  $\Theta_{Molekül}$  und  $\Theta_{Elektron}$  als Winkel zu der Polarisationsebene und  $\Delta\phi$  als Polarwinkel zwischen Molekülachse und Elektron in der Polarisationsebene. In Abb. 4.22 ist das gedrehte Impulsspektrum für die Projektile zu sehen. Es ist eine deutliche Donut-Struktur zu erkennen, die in der Polarisationsebene einen Durchmesser von 15 a.u. und senkrecht zu dieser Ebene eine Breite von 8 a.u. aufweist. Auch hier findet sich eine Übereinstimmung zu den Verteilungen bei linearer Polarisation. Auch in den KER-Spektren für zirkular polarisierte Laserstrahlung findet sich ein etwas zu großer KER, wie in Abb. 4.23 dargestellt, es kann jedoch analog zu den Ausführungen in Kapitel 4.1 auch hier wieder ein dissoziativer Anteil von  $0,6 \pm 0,35 eV$  zum gemessenen KER angenommen werden.

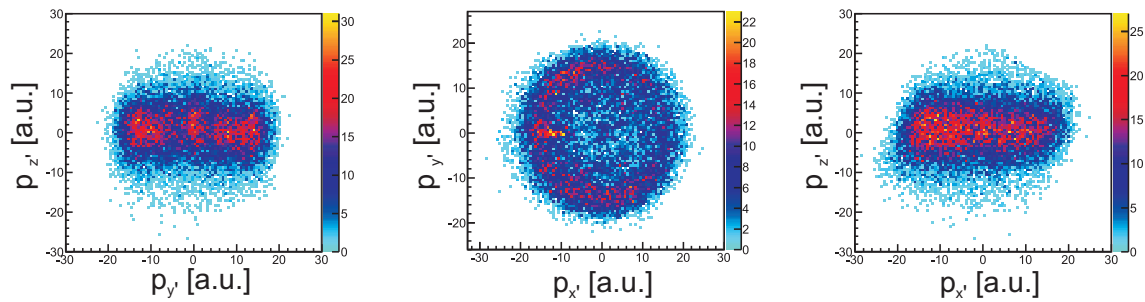
Im Gegensatz zu den Kernen reagieren die Trajektorien der Elektronen unmittelbar auf das Laserfeld. Da sich die zirkulare Polarisation aus einer Überlagerung zweier linear polarisierter Wellen ergibt, kann hier auf die Erkenntnisse aus Kapitel 4.1 zurückgegriffen werden. Dort folgte unmittelbar eine maximale Energie für Elektronen, die während eines Nulldurchgangs des elektrischen Feldes entstehen. Die Richtung der Endgeschwindigkeit verlief dabei trivialerweise in Polarisationsrichtung. Für Laserpulse, deren Pulslänge gegenüber der Schwingungsdauer des Laserlichts lang ist, konnte weiterhin abgeschätzt werden, dass für Elektronen, die im Maximum des



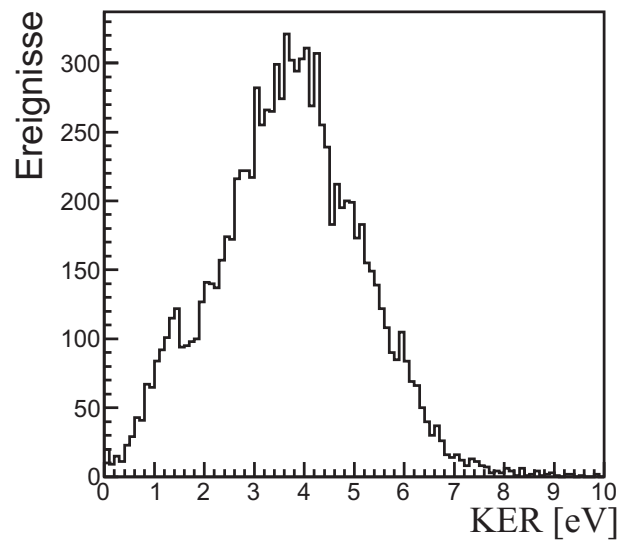
**Abbildung 4.20:** Verwendetes Koordinatensystem einschließlich der verwendeten Winkel. Die Ausbreitungsrichtung der Photonen verläuft entlang der  $z'$ -Richtung. Die  $x'$ - $y'$ -Richtung repräsentiert daher die Polarisationssebene.  $\Theta_{Molekül}$  und  $\Theta_{Elektron}$  geben die Winkel relativ zu dieser Ebene an,  $\Delta\phi$  den Polarwinkel zwischen molekularer Achse und Elektronimpuls innerhalb der Polarisationssebene.



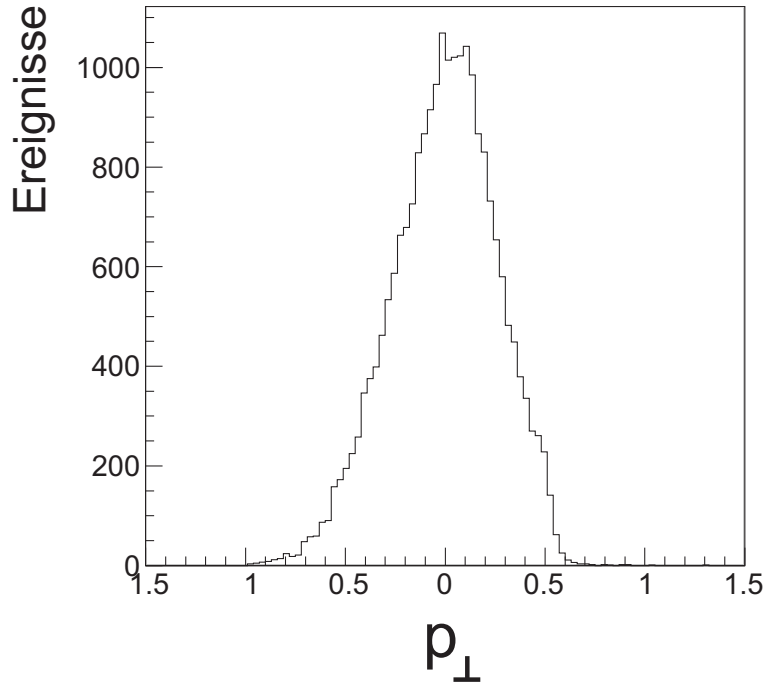
**Abbildung 4.21:** Kosinus des Winkels zwischen molekularer Achse und Polarisationssebene  $\cos\Theta_{Molekül}$  bei zirkular polarisiertem Licht der Intensität  $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ .



**Abbildung 4.22:** Impulsverteilung der Protonen im in die Polarisationsebene des Lasers gedrehten System ( $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ).



**Abbildung 4.23:** KER-Verteilung bei zirkular polarisierter Laserstrahlung der Intensität  $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . es werden eine Flugzeitbedingung der Projektile  $474,5ns < tof_p < 479ns$  und die in Abb. 3.35 dargestellte "Parallelogrammbedingung" seitens der Elektronen gefordert.



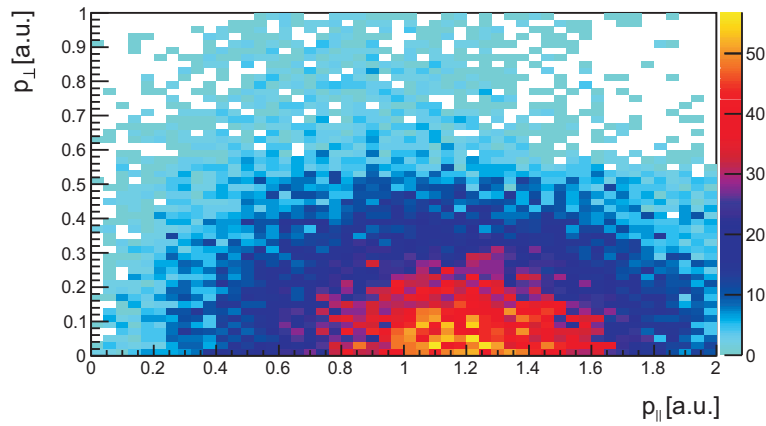
**Abbildung 4.24:** Impulsverteilung der Elektronen senkrecht zur Polarisationssebene ( $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ).

elektrischen Feldes erzeugt werden, die Endgeschwindigkeit 0 wird. Wird nun ein Elektron bei zirkularer Polarisation zu einem beliebigen Zeitpunkt  $t_0$  erzeugt, kann ein Koordinatensystem gefunden werden, sodass die vektorielle Zerlegung der zirkularen Polarisation in zwei lineare Polarisationen derart erfolgt, dass zu diesem Zeitpunkt eine Komponente gerade maximal ist, während die andere einen Nulldurchgang hat. Für die Geschwindigkeit nach dem Abklingen des Laserpulses folgt, dass die Komponente in der Richtung des elektrischen Feldes zum Ionisationszeitpunkt für  $t \rightarrow \infty$  verschwindet, während die Komponente orthogonal maximal wird. Die Energie, die ein Elektron in dem Laserfeld aufnimmt, hängt damit vom Betrag des elektrischen Feldes zum Ionisationszeitpunkt ab. Sie ergibt sich aus den in Kapitel 4.1 und insbesondere in Gl. 4.6 dargestellten Zusammenhängen zu:

$$|\vec{p}_{end}| = -\frac{e \cdot E(t_0)}{\omega} \quad (4.9)$$

Der vom Elektron aufgenommene Impuls in der Polarisationssebene, liefert bei zirkularer Polarisation damit eine direkte Messmethode für das elektrische Feld bzw. die Laserintensität zum Ionisationszeitpunkt. Hinzu kommt allerdings die Anfangsimpulsverteilung der Elektronen.

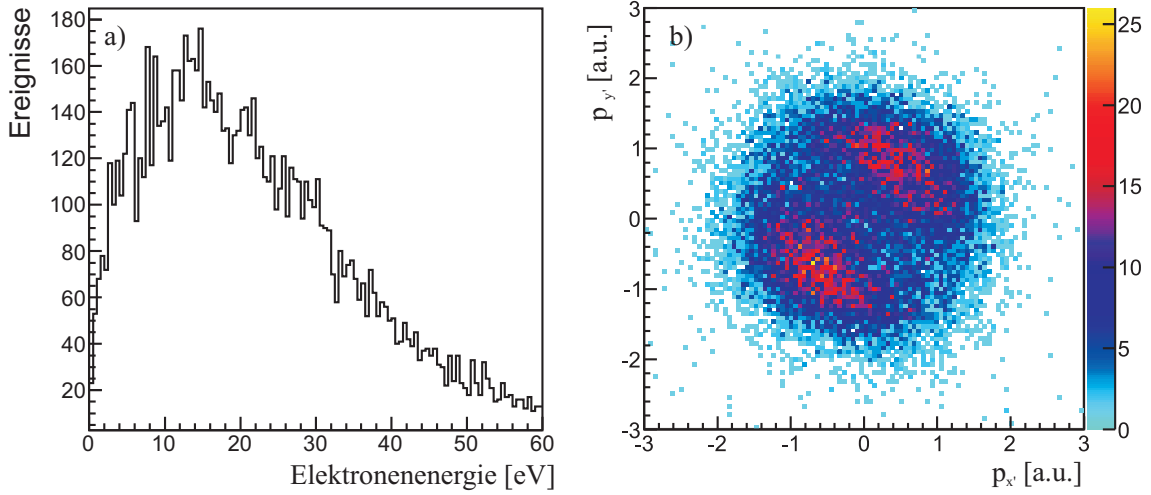
Eine Messgröße für die Breite dieser Verteilung liefert der Elektronimpuls senkrecht zur Polarisationssebene, wie er in Abb. 4.24 dargestellt ist. Daraus ist ersichtlich, dass die Elektronen selbst eine Impulsverteilung von 0,6 a.u. FWHM besitzen. Die größten



**Abbildung 4.25:** Darstellung der Elektronimpulse in der Polarisationssebene zur Komponente senkrecht zu dieser ( $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ).

vorkommenden Impulse liegen bei  $\pm 0,5$  a.u., sodass auch innerhalb der Polarisationssebene von dieser Impulsbreite ausgegangen werden kann. Allerdings kommt in Richtung der Polarisationssebene noch ein zusätzlicher Einfluss durch den zeitabhängigen Intensitätsverlauf des Laserpulses zustande. So müssen nicht alle Elektronen zum Zeitpunkt der höchsten Intensität emittiert werden. Dies führt zu einer zusätzlichen Verbreiterung der Impulsverteilung in der Polarisationssebene. Dies ist auch in Abb. 4.25 zu erkennen, in der die Verteilung der Elektronimpulsbestandteile in der Polarisationssebene zu der dazu senkrechten dargestellt ist. Zur Separation zufälliger Ereignisse und Verminderung des Untergrundes werden ausschließlich Ereignisse gezeigt, deren Projektionszeit in einem Fenster zwischen 474,5 und 479 ns liegt und die Elektronen in dem in Abb. 3.35 dargestellten Parallelogrammbereich angesiedelt sind. Ebenso wird nur der in Abb. 3.37 dargestellte Winkelbereich benutzt. Diese Bedingungen gelten für alle folgenden Spektren. Aus der Verteilung lässt sich des Weiteren die Intensität durch Anwendung von Gl. 4.9 und durch Vergleich mit Abb. 2.10 zu  $2 - 3 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  bestimmen.

In Abb. 4.26 a) ist die Verteilung der Elektronenergien dargestellt. Elektronenergien über ca. 55 eV ( $|p| \approx 2a.u.$ ) sind auf Untergrund zurückzuführen, was ein Vergleich mit den Elektronimpulsen, wie es in Abb. 4.26 b) gezeigt wird, belegt. Die dargestellte Impulsverteilung ist dabei bereits in Richtung der molekularen Achse, die in x-Richtung festgehalten wird, ausgerichtet. Das Vorhandensein sehr niedriger Elektronenergien legt den Schluss nahe, dass es nicht nur im Bereich der Peakintensität zu Ionisationsprozessen kommt. Dies kann sowohl im Randbereich des Fokus vorkommen als auch auf der aufsteigenden Flanke des Laserpulses. Dies erklärt die breitere Verteilung der Impulse in der Polarisationssebene in Abb. 4.25. In Abb. 4.27 ist zur differenzierteren Betrachtung die Abhängigkeit der Elektronenergie vom gemessenen KER dargestellt. Im Bereich bis ca. 2eV KER liegen dabei Ereignisse, die

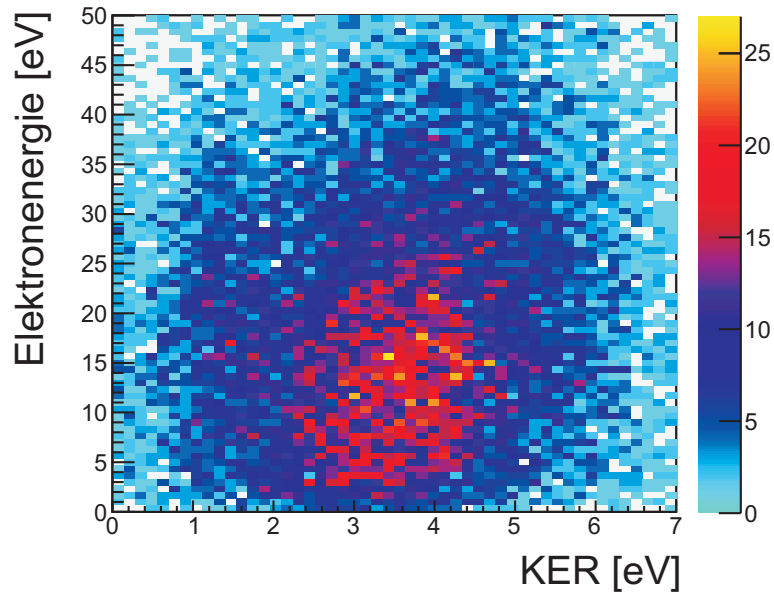


**Abbildung 4.26:** a) Energieverteilung der Elektronen, b) Elektronimpuls in der Polarisations-ebene im Molekülsystem. Die molekulare Achse ist in x-Richtung fixiert. Für beide Abbildungen ist eine Bedingung auf  $\Theta_{\text{Molekül}} < 20^\circ$  und  $\Theta_{\text{Elektron}} < 20^\circ$  gesetzt. Die Laserintensität beträgt  $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ .

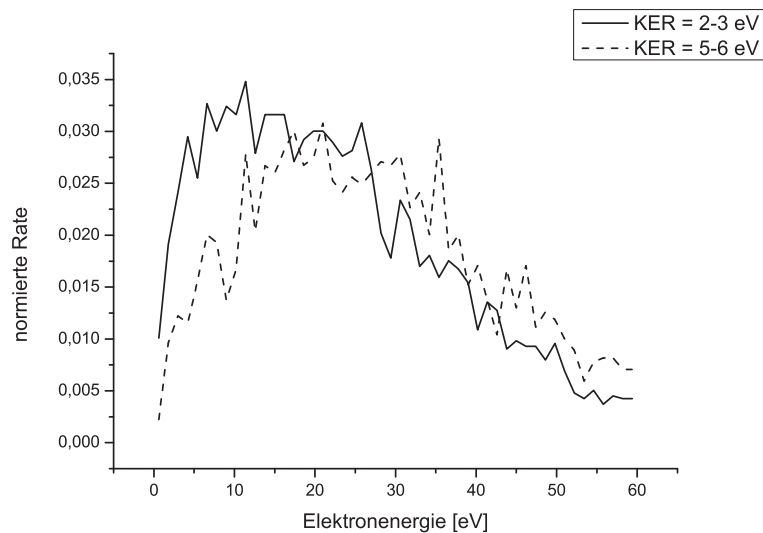
eine zufällige Koinzidenz mit dissoziativen Aufbrüchen aufweisen. Auffällig ist hierbei vor allem, dass die niedrigsten Elektronenergien in einem KER-Bereich liegen, der kleiner als 4 eV ist. Eine klare innere Struktur ist nicht zu vezeichnen. Mit weiter steigendem KER sinkt die Rate der niederenergetischen Elektronen, was zur Verdeutlichung in Abb. 4.28 dargestellt ist. Da die Elektronenergie ein gewisses Maß für die Laserintensität zum Ionisationszeitpunkt darstellt, kann aus Abb. 4.27 und Abb. 4.28 geschlossen werden, dass für einen weiten KER-Bereich bis etwa 4 eV und damit nach Abb. 4.12 bei Abständen  $R > 7a.u.$  die Ionisation auch bei relativ niedrigen Intensitäten stattfindet. Erst für höhere KER bzw. kleinere internukleare Abstände ist eine höhere Intensität erforderlich.

Die oben thematisierte Richtung der Endgeschwindigkeit ist jedoch in einem klassischen Bild zunächst unabhängig von der Intensität. Geht man von CREI als Ionisationsmechanismus aus, so fände die Ionisation statt, wenn das elektrische Feld in Richtung der molekularen Achse weist. Da die Endgeschwindigkeit der Elektronen bei ausschließlicher Berücksichtigung des Laserfeldes in einem rechten Winkel zur Richtung des elektrischen Feldes zum Ionisationszeitpunkt ausgerichtet ist, wäre damit eine Verteilung der Elektronen zu erwarten, die in der Polarisations-ebene in einem  $90^\circ$  Winkel zur Molekülachse ausgerichtet ist.

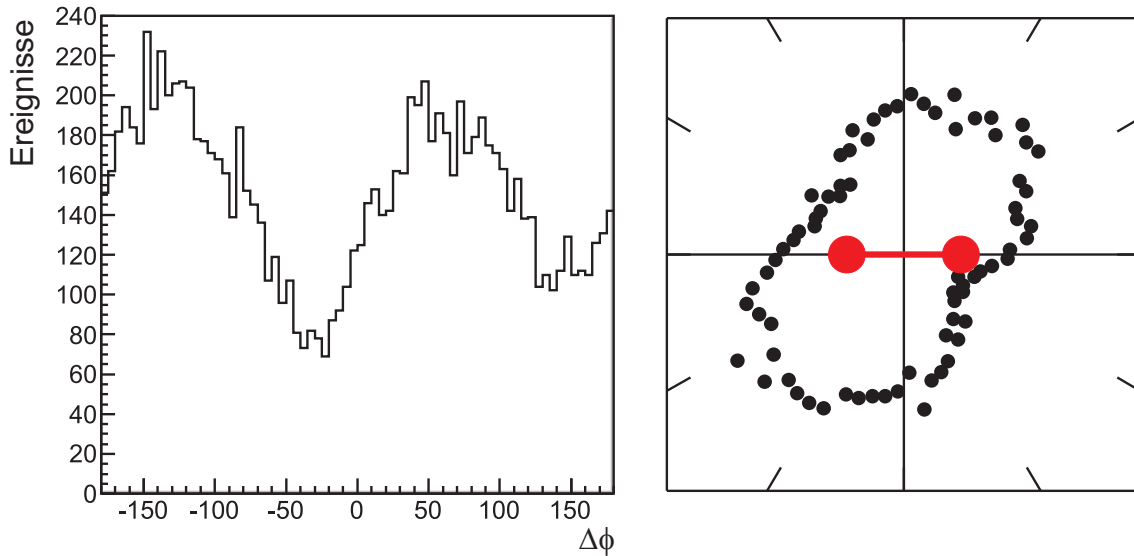
In Abb. 4.29 ist der Winkel in der Polarisations-ebene zwischen Elektronimpuls und molekularer Achse angegeben. Die Abweichung von der erwarteten Verteilung ist direkt ersichtlich. Die Rotation des Spektrums gegenüber der erwarteten Winkelverteilung resultiert in einer Asymmetrie und wurde bereits in Doppelionisationsprozessen, zum Beispiel von Staudte [14], beobachtet. In vorangegangenen Experimenten



**Abbildung 4.27:** KER-Elektronenergie bei zirkularer Polarisation ( $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ) für  $\Theta_{Molekül} < 20^\circ$  und  $\Theta_{Elektron} < 20^\circ$ .



**Abbildung 4.28:** Elektronenergie bei zirkularer polarisiertem Laserlicht der Intensität  $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  für zwei verschiedene KER-Bereiche. Sowohl  $\Theta_{Elektron}$  als auch  $\Theta_{Molekül}$  sind auf Werte  $< 20^\circ$  begrenzt.



**Abbildung 4.29:** Winkelverteilung der Elektronen bezüglich der molekularen Achse in der Polarisationssebene ( $\Theta_{\text{Molekül}} < 20^\circ$  und  $\Theta_{\text{Elektron}} < 20^\circ$ ) als a) Histogramm und b) Polarplot. Die molekulare Achse ist entlang der x-Achse orientiert, die Laserintensität beträgt  $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ .

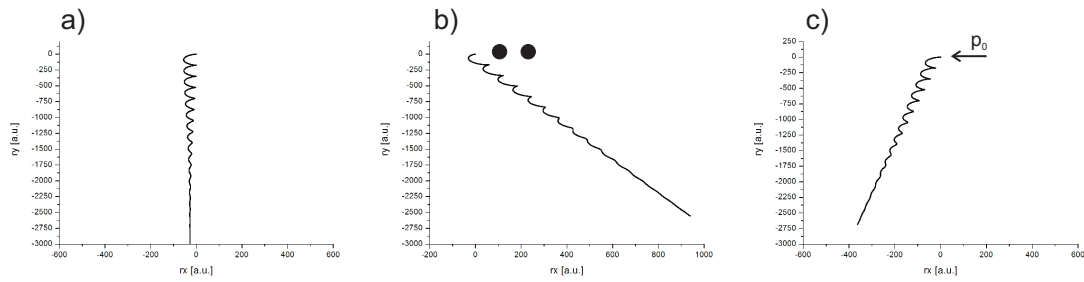
konnte dieser Effekt allerdings nicht losgelöst vom ersten Ionisationsschritt betrachtet werden. Durch die vorliegende Messung kann nun eine Asymmetrie für das verbleibende Elektron eindeutig nachgewiesen werden. Als Gründe für die Verdrehung kommen

1. der Einfluss des Coulomb-Potentials der Kerne, die so genannte *Coulomb-Asymmetrie*,
2. die anfängliche Impulsverteilung der Elektronen,
3. Prozesse, bei denen die Ionisation bei anderen Winkeln zwischen E-Feld und Molekülachse stattfindet,

in Frage.

In Abb. 4.30 sind simulierte Elektrontrajektorien für die klassische Bewegung in einem zirkular polarisierten 40 fs Laserfeld der Intensität  $I = 6 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  unter ausschließlicher Betrachtung des Laserfeldes, unter Einfluss des Coulomb-Potentials der Kerne sowie mit Anfangsimpuls dargestellt. Die Richtung ist dabei derart gewählt, dass das E-Feld zu Beginn in positive x-Richtung weist und der Drehsinn entgegen dem Uhrzeigersinn verläuft. Durch die negative Ladung der Elektronen resultiert damit eine anfängliche Beschleunigung in negativer x-Richtung. Wie zu erwarten, führt dies bei ausschließlicher Betrachtung des Lasereinflusses (Abb. 4.30 a)) zu einer Endgeschwindigkeit in negativer y-Richtung, sodass sich das Elektron gegenüber der anfänglichen Beschleunigung um  $90^\circ$  in Drehrichtung bewegt hat.





**Abbildung 4.30:** Simulierte klassische Elektrontrajektorien. a) in zirkular polarisiertem Laserlicht. b) mit zusätzlichem Einfluss der Kerne. c) im Laserfeld mit Anfangsgeschwindigkeit

In der Abb. 4.30 b) zu Grunde liegenden Simulation wird der Einfluss der Kerne mitberücksichtigt. Die Protonen haben hierbei einen Abstand von 5 a.u., was dem ungefähren Beginn des CREI-Abstandes entspricht. Das Elektron startet im Pulsmaximum mit einem Abstand von 5 a.u. vom linken Proton ohne Anfangsgeschwindigkeit. Durch die Anziehung der Kerne wird die Bahn zu den Kernen hin geneigt. Daher resultiert eine Vergrößerung dieses  $90^\circ$  Winkels auf  $110^\circ$ .

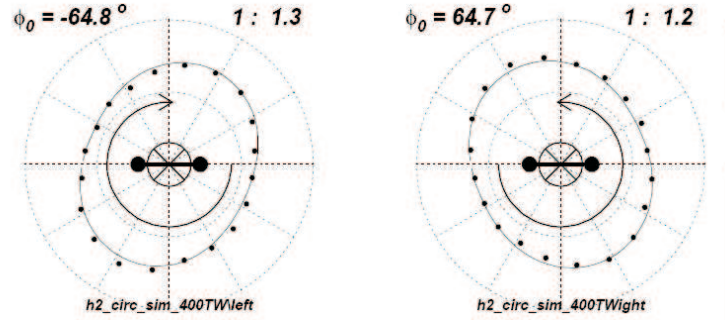
In der rechten Abbildung schließlich wird ein Elektron mit Anfangsgeschwindigkeit 0,2 a.u. in negativer  $x$ -Richtung ohne Kerneinflüsse dargestellt. Die anfängliche Geschwindigkeitskomponente geht dabei vektoriell in die Richtung der Endgeschwindigkeit ein, sodass in diesem Fall eine Verkleinerung des Winkels auf  $82^\circ$  die Folge ist. Neben diesem Effekt führt eine Anfangsgeschwindigkeit, die von dem Molekül fortweist, zu einer schnelleren Entfernung des Elektrons vom Einfluss des Coulomb-Feldes. Damit wird außer dem bereits beschriebenen Einfluss einer Anfangsgeschwindigkeit zusätzlich der Einfluss des Coulomb-Potentials vermindert. Für den CREI-Mechanismus kommt eine Anfangsgeschwindigkeit, die zum Molekül gerichtet ist, nicht in Frage.

Die Größe der resultierenden Winkel variiert bei Änderung des Abstandes von den Kernen oder der Anfangsgeschwindigkeit der Elektronen bei dieser sehr einfachen Simulation mitunter sehr stark, sodass die berechneten Winkel an dieser Stelle nur beispielhaften Charakter haben.

Bevor eine tatsächliche Deutung der dargestellten Winkelverteilung möglich ist, ist es zunächst wichtig zu ermitteln, in welche Richtung die Drehung des elektrischen Feldes erfolgt. Da die Helizität, also der Drehsinn des Lichts nicht bekannt ist, gibt es grundsätzlich beide Möglichkeiten:

1. Mathematisch positiver Drehsinn (gegen den Uhrzeigersinn): Eine solche Drehung wird in der  $x$ - $y$ -Ebene dargestellt durch:

$$\vec{E} = |E(t)| \cdot \begin{pmatrix} \cos(\omega \cdot t) \\ \sin(\omega \cdot t) \end{pmatrix} \quad (4.10)$$



**Abbildung 4.31:** Ergebnisse der CTMC-Simulation von Staudte [14] für zirkuläre Polarisation bei  $I = 4 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ ,  $\lambda = 800\text{nm}$ ,  $\tau = 40\text{fs}$ . Dargestellt ist die Winkelverteilung des CREI-Kanals bei der Ionisation von  $H_2$ -Molekülen.

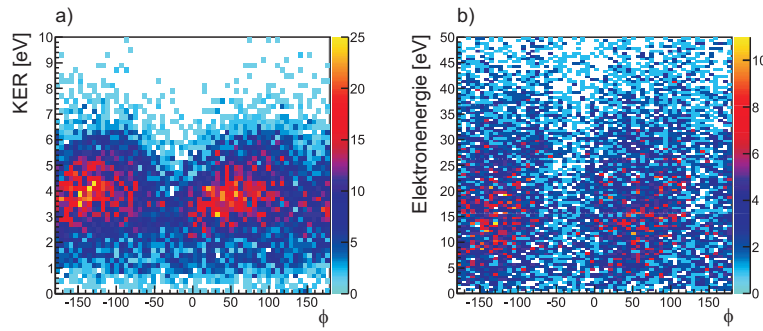
Die Rotation bei ausschließlicher Berücksichtigung des Laserfeldes verläuft um  $90^\circ$  in Drehrichtung gegenüber der Beschleunigung zum Ionisationszeitpunkt. Weist beispielsweise das elektrische Feld zur Anfangszeit in positive x-Richtung, so folgt durch die negative Ladung der Elektronen eine Beschleunigung in negative x-Richtung. Die Richtung nach Abklingen des Laserpulses verläuft dann in Richtung der negativen y-Achse.

2. Mathematisch negativer Drehsinn (mit dem Uhrzeigersinn): Eine solche Drehung wird in der x-y-Ebene dargestellt durch:

$$\vec{E} = |E(t)| \cdot \begin{pmatrix} \cos(\omega \cdot t) \\ -\sin(\omega \cdot t) \end{pmatrix} \quad (4.11)$$

Bei gleicher Richtung des elektrischen Feldes zum Anfangszeitpunkt liegt die Richtung der Endgeschwindigkeit nun entlang der positiven y-Richtung.

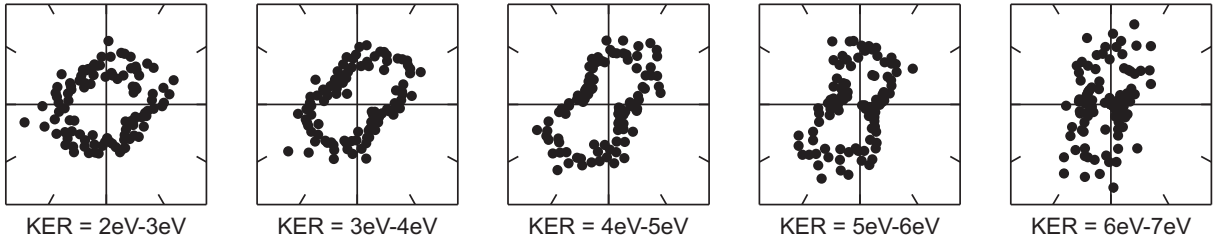
Liegen keine zu einer Asymmetrie führenden Einflüsse vor, so führen beide Fälle zum gleichen Ergebnis, da nicht unterscheidbar ist, welcher Anteil der Verteilung zu welchem Anfangsszenario gehört. Durch das Vorhandensein der Asymmetrie stellt sich nun allerdings die Frage, ob die beobachtete Verdrehung mit oder gegen den Drehsinn des Lichts geschieht. Diese Frage stellte sich bereits bei der Doppelionisation von  $H_2$ . Damals wurde von Staudte eine *Classical-Trajectory-Monte-Carlo-Simulation* (CTMC) entwickelt. In Abb. 4.31 sind die für die Asymmetrie entscheidenden Ergebnisse dieser Simulation dargestellt. Daran ist zu erkennen, dass die Asymmetrie einer Überdrehung und damit einem Winkel  $> 90^\circ$  entspricht. Daher kann auch der im Experiment verwendete Drehsinn als mit dem Uhrzeigersinn verlaufend charakterisiert werden. Beim CREI-Prozess verläuft die Emission auf Grund der Molekülorbitalsymmetrie sowie über ein Aufsplitten der Zustände in einen am "oberen" Potential befindlichen  $|u\rangle$  Zustand und einen  $|g\rangle$  Zustand,



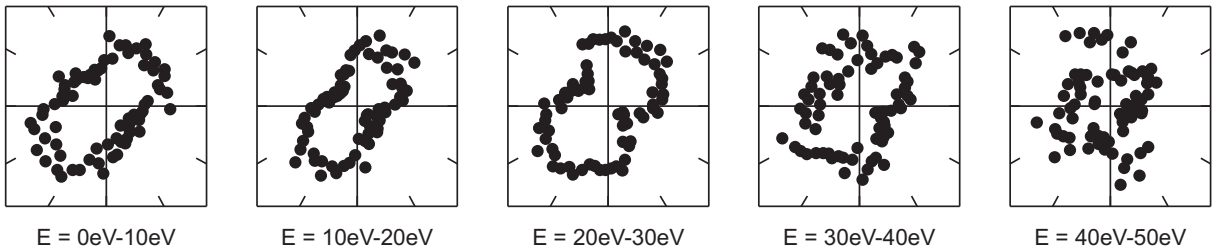
**Abbildung 4.32:** Zwischenwinkel von Elektronimpuls zu internuklearer Achse in der Polarisationssebene ( $\Theta_{Molekül} < 20^\circ$  und  $\Theta_{Elektron} < 20^\circ$ ) in Abhängigkeit zu den Energien a) der Kernfragmente und b) der Elektronen ( $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ).

der am "unteren" Potential lokalisiert ist, überwiegend entlang der intermolekularen Achse (vgl. Kapitel 2.2.4.3 und speziell Abb. 2.15). Allerdings muss an dieser Stelle berücksichtigt werden, dass die Richtung des elektrischen Feldes mit etwa  $138,5^\circ/fs$  rotiert. Die Zeit, die das Elektron in der lokalisierten CREI-Vorstellung benötigt, um zu einem Abstand zu gelangen, bei dem der Einfluss des Laserpotential das der Kerne genügend überwiegt, sei im Folgenden als "Ionisationszeit" bezeichnet. Sollte diese Ionisationszeit hinreichend lang sein, zöge dies eine Rotation der Verteilung im Drehsinn nach sich, sodass ein Einfluss der Rotation nur vernachlässigt werden kann, wenn diese Zeit im Vergleich zur Periodendauer hinreichend klein ist. Vor kurzem konnte diese Zeit von Eckle [106] bei Helium experimentell auf maximal 34 as bestimmt werden. Verglichen mit der Periodendauer des Lasers von  $\tau = 2,6 fs$ , entspricht eine Tunnelzeit von 34 as allerdings immer noch einer Rotation um  $5^\circ$ . Sollte die Tunnelzeit bei Molekülen und speziell beim Wasserstoffmolekülion im Vergleich zu der Messung an Helium länger sein, könnte diese "Verzögerung der Ionisation" tatsächlich einen messbaren Einfluss auf die Ausrichtung der Verteilung haben.

Um nun die dargestellte Winkelverteilung weiter zu untersuchen, kann nach Parametern gesucht werden, die einen Einfluss auf die Verteilung haben könnten. Die vielversprechendsten Größen wären dabei der internukleare Abstand, die tatsächliche Phase des Lasers zum Ionisationszeitpunkt sowie der Anfangsimpuls des Elektrons. Leider ist keine dieser Größen direkt messbar. Ein Einfluss ist allerdings auch für den KER zu erwarten, der mit der bereits diskutierten Unsicherheit eine Abschätzung des Kernabstands zulässt, sowie für die Elektronenenergie, in die sowohl der anfängliche Elektronenimpuls als auch die Intensität zum Ionisationszeitpunkt einfließt. In Abb. 4.32 a) ist daher die Abhängigkeit des Polarwinkels zwischen Elektron-Endimpuls und KER bzw. Elektronenenergie dargestellt. Direkt offensichtlich ist dabei eine Rotation mit steigendem KER. Dies wird insbesondere deutlich, wenn man die entspre-



**Abbildung 4.33:** Polardarstellung der Winkelverteilung der Elektronen in Bezug zur Molekülachse in der Polarisationssebene ( $\Theta_{Molekül} < 20^\circ$  und  $\Theta_{Elektron} < 20^\circ$ ) für verschiedene KER ( $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ). Es werden alle Elektronenergien berücksichtigt.



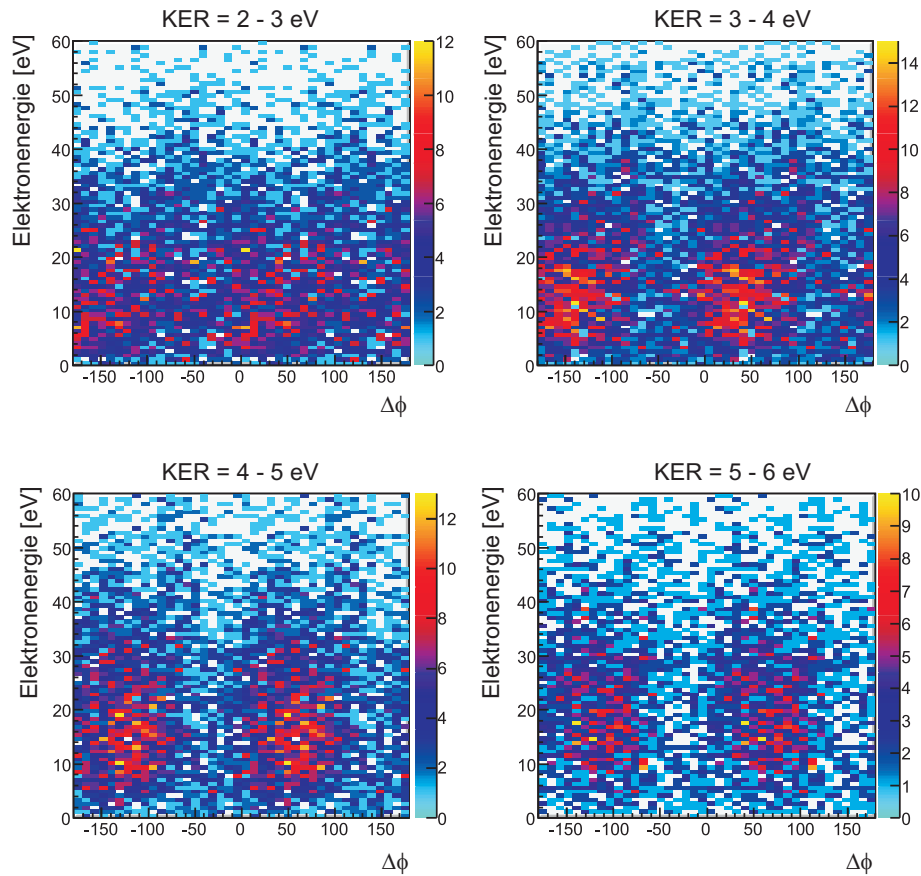
**Abbildung 4.34:** Polardarstellung der Winkelverteilung der Elektronen in Bezug zur Molekülachse in der Polarisationssebene ( $\Theta_{Molekül} < 20^\circ$  und  $\Theta_{Elektron} < 20^\circ$ ) für verschiedene Elektronenergien ( $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ ). Es wird über alle KER integriert.

chenen Polardarstellungen des Winkels für diverse KER-Bereiche betrachtet, wie sie in Abb. 4.33 gezeigt sind. Legt man einen im Uhrzeigersinn verlaufenden Drehsinn zu Grunde, rotiert die Verteilung hin zu niedrigeren Winkeln.

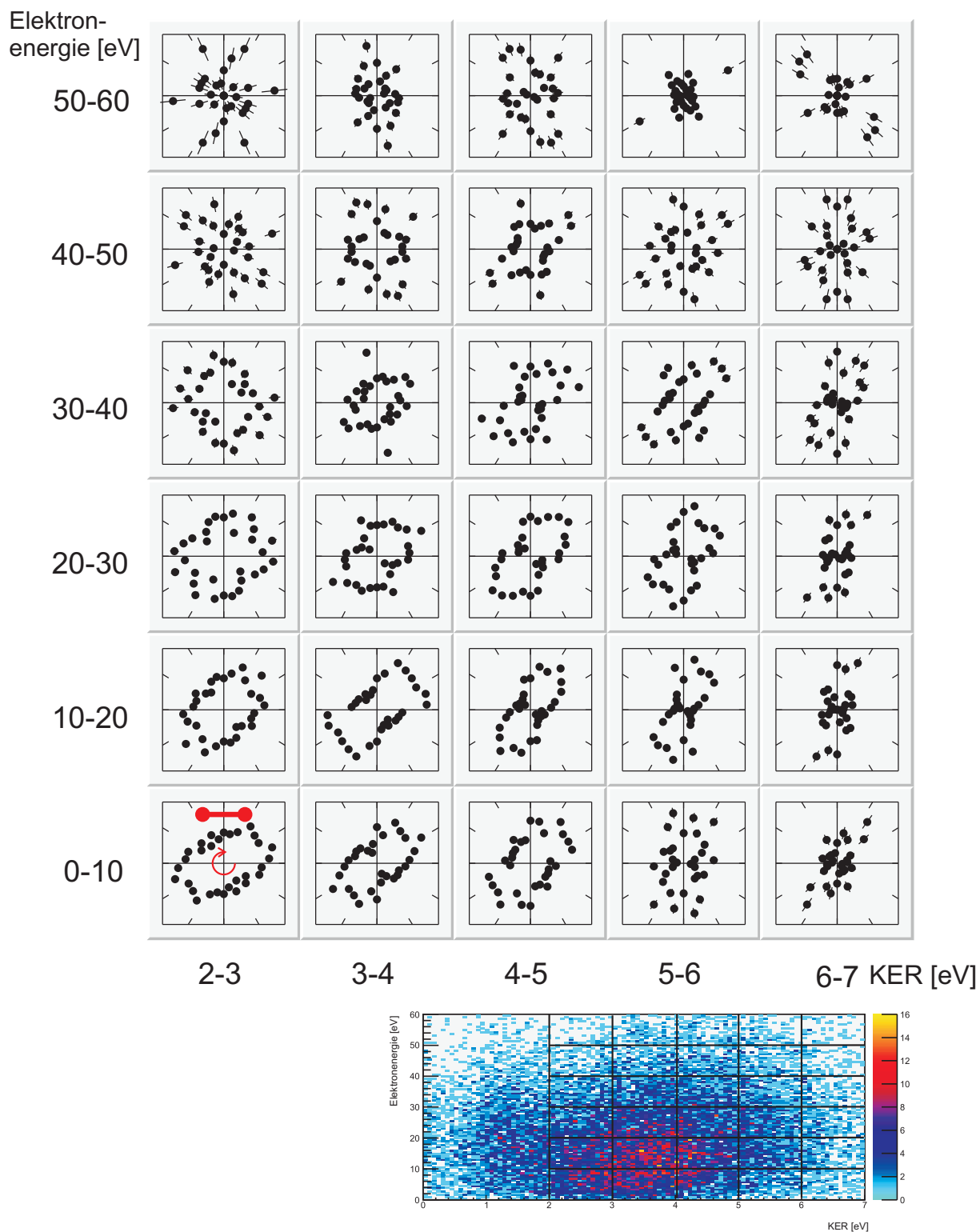
Im Gegensatz dazu fällt in Abb. 4.32 b) keine so eindeutige Rotation der Verteilung auf. Dafür ist ansatzweise eine Aufspaltung in vier Arme erkennbar. In den Polardarstellungen (Abb. 4.34) wird dies deutlicher. Es kommt zu der Ausbildung eines weiteren Peaks, der allerdings an dieser Stelle noch nicht allzu deutlich zu Tage tritt.

Einen detaillierteren Einblick bietet eine doppelte Unterteilung in KER und Elektronenergien. Abb. 4.35 zeigt das zu Abb. 4.32 b) entsprechende Spektrum für verschiedene KER-Bereiche. Die Ausbildung der zusätzlichen Struktur bei Elektronenergien ab ca. 25 eV ist hierbei schon besser zu erkennen.

In Abb. 4.36 ist schließlich ein Überblick über die Winkelverteilungen bei allen relevanten KERs und Elektronenergien zusammengefasst. Es wurden hierbei nur Ereignisse betrachtet, für die sowohl  $\Theta_{Molekül}$  als auch  $\Theta_{Elektron}$  kleiner als  $20^\circ$  sind und damit im Wesentlichen in der Polarisationssebene liegen. Da die Verteilungen punktsymmetrisch sind, wurden zur besseren Übersicht alle Daten gespiegelt. Im unteren Bereich der Abbildung ist nochmals das entsprechende Energiespektrum dargestellt, bei dem die der Winkelverteilung zu Grunde liegenden Bereiche markiert sind.



**Abbildung 4.35:** Elektronenergie in Abhängigkeit des Zwischenwinkels von Elektronimpuls zu internuklearer Achse in der Polarisationssebene ( $\Theta_{Molekül} < 20^\circ$  und  $\Theta_{Elektron} < 20^\circ$ ) bei  $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ . Zur Verbesserung der Statistik wurden die Daten gespiegelt.



**Abbildung 4.36:** Elektron-Winkelverteilungen in der Polarisationssebene ( $\Theta_{Molekül} < 20^\circ$  und  $\Theta_{Elektron} < 20^\circ$ ) für verschiedene KERs und Elektronenergien bei der Ionisation von  $H_2^+$  mit  $\lambda = 780\text{nm}$  und  $I \approx 2 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ . Der Drehsinn des Lichts verläuft im Uhrzeigersinn und die Richtung der molekularen Achse ist in x-Richtung festgehalten. Im unteren Abschnitt ist zur Verdeutlichung nochmals die Verteilung der Elektronenergien und KERs mitsamt den den Winkelverteilungen zu Grunde liegenden Bereichen dargestellt.

Besonders im Bereich niedriger Elektronenergien fällt in dieser Darstellung die Rotation der Verteilung mit wachsendem KER auf, während bei höheren Elektronenergien und nicht zu hohen KER-Werten eine zusätzliche Komponente in der Verteilung erkennbar ist. Im Bereich der niedrigsten Elektronenergien bis 10 eV ist eine Rotation der Verteilung mit wachsendem KER bis 6 eV zu verzeichnen. Gemäß der in Kapitel 4.1 dargelegten Abschätzung der Abhängigkeit des gemessenen KERs zum internuklearen Abstand zum Ionisationszeitpunkt lässt sich sagen, dass die Winkelverteilung umso mehr rotiert, je größer der internukleare Abstand ist. Geht man davon aus, dass die Rotation von einem Einfluss des Coulomb-Potentials herrührt, würde man jedoch einen umgekehrten Zusammenhang vermuten, da der Einfluss des weiter entfernten Protons mit zunehmendem Abstand immer kleiner wird. Betrachtet man hingegen das Bild der verzögerten Ionisation, erscheint es durchaus glaubhaft, dass das Elektron bei kleinem KER bzw. größeren Kernabständen eine längere Zeit zum Ionisieren benötigt und eine entsprechend größere Rotation zur Folge hat. Insbesondere für so große Abstände, dass das Elektron durch die innere Barriere tunneln muss, resultiert eine geringere Tunnel- bzw. Ionisationswahrscheinlichkeit, da die Breite dieser Barriere mit steigendem Abstand zunimmt. Die Folge einer längeren Zeit wäre eine Verdrehung der Verteilung dem Drehsinn des Lichtes entsprechend, was mit den beobachteten Verteilungen übereinstimmt. Diese These kann durch den Einfluss der Elektronenergien auf die Winkelverteilung unterstützt werden: Zumindest bei relativ niedrigen Elektronenergien ist diese eine Messgröße für die Intensität bzw. die elektrische Feldstärke zum Ionisationszeitpunkt. Für größere Elektronenergien und damit höhere Feldstärke ist eine entsprechende Verkürzung der Ionisationszeit und damit eine Verkleinerung der Rotation zu erwarten. Betrachtet man unter diesem Gesichtspunkt Abb. 4.28, fällt besonders bei den Minima des KER-Bereiches von 3-4 eV eine Rotation auf. Da der Drehsinn des Lichtes entgegen dem dargestellten mathematischen Drehsinn verläuft, entspricht die erkennbare Rotation tatsächlich einer Verringerung der Asymmetrie.

Der KER-Bereich ab 6 eV liegt unter Berücksichtigung der Dissoziation an der Grenze zu internuklearen Abständen, die kleiner sind als der für CREI notwendige kritische Abstand. Speziell bei niedrigen Intensitäten können daher diese Ereignisse noch relativ stark gebunden sein, so dass in diesem Bereich nur wenige Ereignisse zu finden sind.

Während bei kleinen Elektronenergien die Verteilungen recht deutlich eine einzige Vorzugsrichtung aufweisen, kommt es bei höheren Elektronenergien zur Ausprägung der weiteren Struktur. Diese neue Struktur ist ausnahmslos bei kleineren Winkeln als die zum ersten Prozess gehörende Struktur anzutreffen. Ferner fällt auf, dass diese Struktur nicht in allen KER-Bereichen gleichermaßen auftritt. So bildet sich für  $2\text{eV} < \text{KER} < 3\text{eV}$  bereits ab einer Elektronenergie von 20 eV eine derartige

weitere Struktur, in diesem Fall sogar entlang der internuklearen Achse. Für größere KER-Werte ist der sekundäre Peak meist erst ab 40 eV deutlich zu erkennen. Bemerkenswert ist auch, dass für die größten Elektronenergien dieser zweite Prozess den ersten Prozess sogar dominiert.

Für eine Intensität von  $I = 3 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  ergibt sich der maximal aus dem Laserfeld stammende Endimpuls gemäß Gl. 4.9 und dem Zusammenhang

$$I_{zir} = c_0 \cdot \epsilon \cdot E_0^2 \quad (4.12)$$

zu 1,59 a.u.. Dies entspricht einer Energie von 34,4 eV. Für höhere Elektronenergien ist damit von einer Anfangsgeschwindigkeit der Elektronen auszugehen. Die Richtung dieser Geschwindigkeit ist allerdings unklar. Eine Anfangsgeschwindigkeit in Richtung der Beschleunigung zum Ionisationszeitpunkt führt zu der stärksten Verkippung. Die höchste Endenergie ergibt sich jedoch bei einem Anfangsimpuls in Richtung des Endimpulses, sodass sich diese Komponente direkt zum vom Laser herrührenden Impulsbeitrag hinzuaddiert. In jedem Fall wird hat eine Anfangsgeschwindigkeit, die nicht in Richtung des Moleküls zeigt, eine Verringerung der Rotation zur Folge. Ob allerdings dieser Sachverhalt auch eine Erklärung für die beobachtete zweite Struktur liefert, kann zu diesem Zeitpunkt noch nicht beantwortet werden.

Am deutlichsten ist die Doppelstruktur für  $4eV < KER < 5eV$  und  $40eV < Elektronenergie < 50eV$  zu erkennen. Die Maxima befinden sich unter Berücksichtigung des Drehsinns bei  $73^\circ$  und  $140^\circ$ . Eine genaue Deutung dieser Struktur sowie des gesamten Verhaltens der Verteilungen ist aus den Messdaten nicht möglich.

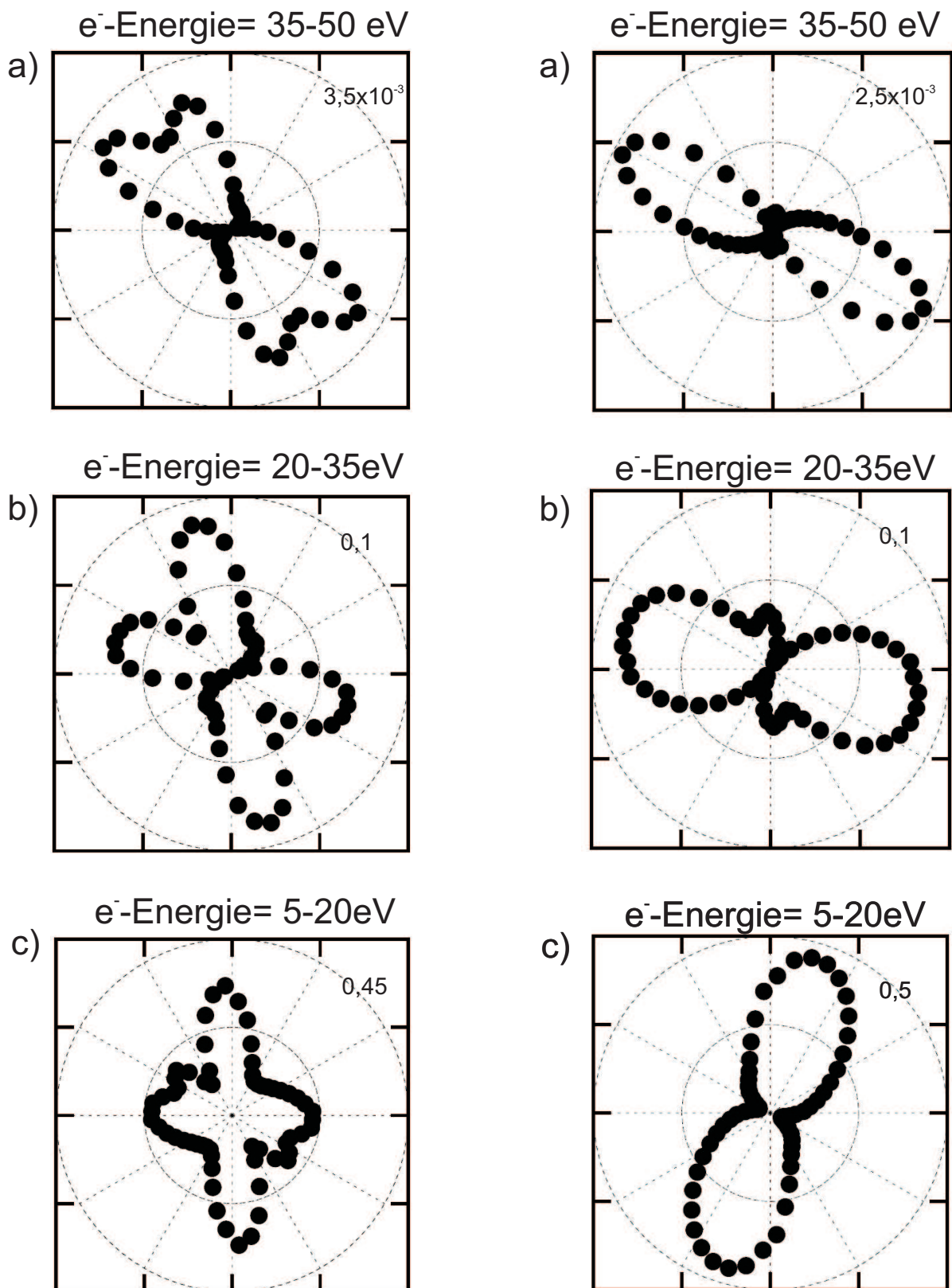
Ein wesentlicher Grund für die Untersuchung des  $H_2^+$ -Systems ist dessen Einfachheit. So ist eine numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung von  $H_2^+$  in einem Laserfeld auf einem Gitter numerisch gerade an der Grenze dessen, was mit modernen Computersystemen behandelbar ist. So wurde von N. Takemoto und A. Becker (JILA, Boulder) für festgehaltene Kernabstände eine Rechnung angefertigt. In Abb. 4.37 sind die berechneten Winkelverteilungen für verschiedene Elektronenergien unter dem Einfluss eines zirkularen Laserpulses dargestellt. Den Rechnungen liegt ein fester Kernabstand von  $R = 5 a.u.$  und  $R = 7 a.u.$ , eine Pulslänge von 10 fs, Wellenlänge  $\lambda = 800nm$  und Intensität von  $I = 2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  zu Grunde. Die Rechnungen gehen davon aus, dass sich das Molekülion anfangs im  $1s\sigma_g$ -Zustand befindet. Auf einem zeitlichen und einem zweidimensionalen räumlichen Gitter ( $N_t = 20001$ ,  $\Delta t = 0,0441280 a.u.$ ,  $N_x = N_y = 4096$ ,  $\Delta x = \Delta y = 0,390530 a.u.$ ) wird nun die Wellenfunktion unter Einfluss des Laserpulses propagiert. Anstelle des Coulomb-Potential wurde dabei das Soft-Core-Coulomb-Potential

$$V_{soft-core}(x, y, R) = -\frac{1}{\sqrt{(x - R/2)^2 + y^2 + q_{en}}} - \frac{1}{\sqrt{(x + R/2)^2 + y^2 + q_{en}}} \quad (4.13)$$



mit dem Soft-Core-Parameter  $q_{en} = 1a.u.$  verwendet. Bei den dargestellten Verteilungen finden sich die hauptsächlichlichen Beiträge im Bereich niedriger Elektronenergien (Reihe c) in Abb. 4.37).

Der Abstand 5 a.u. entspricht dabei einem KER von 6 eV und 7 a.u. Abstand einem KER von 4,5 eV. Vergleicht man dies mit den gemessenen Winkelverteilungen, fällt eine deutliche Diskrepanz zwischen diesen auf. Für  $R = 5a.u.$  entspricht jedoch der Hauptteil der errechneten Verteilung dem grundsätzlichen Trend der beobachteten Rotation. Bei höheren Energien kommt es auch bei der Simulation zur Ausbildung eines weiteren Peaks. Auch wenn die Position nicht mit dem Experiment übereinstimmt, kann damit dennoch das grundsätzliche Auftauchen der Struktur reproduziert werden.

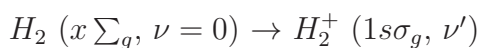


**Abbildung 4.37:** Simulierte Winkelverteilungen bei zirkular polarisierten 10 fs,  $2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$  Laserpulsen für verschiedene Elektronenergien. links:  $R = 7 a.u.$ . rechts:  $R = 5 a.u.$ . [107]

# 5. Zusammenfassung und Ausblick

## 5.1 Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit ist es gelungen, eine weltweit einmalige Messapparatur zu entwickeln, mit der Wasserstoffmolekülionen mittels kurzer Laserpulse ionisiert und die Reaktionsprodukte kinematisch vollständig vermessen werden können. Es wird dazu eine an die Coltrims-Technik angelehnte Detektionsmethode genutzt, bei der sowohl Protonen als auch Elektronen über den vollen Raumwinkel nachgewiesen werden können. Die  $H_2^+$ -Ionen stammen aus einer Hochfrequenz-Ionenquelle und werden auf 400keV beschleunigt. Die Besetzungshäufigkeit der Vibrationsniveaus entspricht daher der Franck-Condon-Verteilung für den Übergang aus dem Grundzustand des neutralen Wasserstoffmoleküls in den elektronischen Grundzustand des Molekülions:



Dieser Ionenstrahl wird mit einem 780 nm Laserpuls der Pulslänge 40 fs überlappt. Nach der Reaktion fragmentiert das Molekülion entweder über den Dissoziationskanal  $H_2^+ + nh\nu \Rightarrow H + H^+$  oder über eine Ionisation gefolgt von einer Coulomb-Explosion:  $H_2^+ + nh\nu \Rightarrow H^+ + H^+ + e^-$ .

Die Projektile werden nach einer Driftstrecke von etwa 3 m auf einem Ionendetektor nachgewiesen.

Für den Nachweis der Elektronen wurde ein spezielles Spektrometer konzipiert, das eine Unterdrückung ungewollter Elektronen erlaubt und so die Messung der Elektronen ermöglicht. Um Elektronen auszublenden, die vom Laser aus dem Restgas ionisiert werden, ist der Elektronendetektor in Flugrichtung der Ionen versetzt angebracht. Durch die unkonventionelle Ausrichtung des Lasers in einem Winkel von  $20^\circ$  relativ zur Flugrichtung der Ionen können vom Laser erzeugte Elektronen nur dann den Elektronendetektor erreichen, wenn sie aus dem bewegten Bezugssystem

der Projektile stammen. Diese Unterdrückung macht die Messung der Elektronen erst möglich, hat aber auch eine nachteilige Geometrie der Verteilungen gegenüber den Detektorebenen zur Folge. Durch die Ausnutzung der Projektilgeschwindigkeit ist überdies die Benutzung eines B-Feldes zur Verbesserung der Flugzeitauflösung der Elektronen nicht möglich.

Um eine Überlappung des Ionenstrahls mit dem Laserfokus zu erreichen, wurde im Bereich der Reaktionszone ein System zur Visualisierung der Strahlpositionen integriert. Dieses kann überdies für eine Intensitätseichung bei linear polarisiertem Licht verwendet werden.

Bei der Reaktion kommt es durch die vergleichsweise lange Pulsdauer schon bei relativ niedrigen Intensitäten zu Dissoziationsprozessen. Das dissoziierende Molekül erreicht noch während der ansteigenden Flanke des Laserpulses auf diese Weise Abstände, bei denen der Prozess der Charge-Resonance-Enhanced-Ionization (CREI) stattfinden kann. Auch die in einem sehr engen Winkelbereich um die Polarisationsrichtung des Lasers liegende Winkelverteilung der gemessenen Protonen deutet darauf hin, dass CREI der dominante Ionisationsprozess ist. Durch die vorausgehende Dissoziation nimmt das Molekül schon vor der Ionisation eine kinetische Energie auf, so dass die gemessene KER-Verteilung einer Summe aus  $KER_{Dissoziation}$  und  $KER_{Ionisation}$  darstellt. Ein Vergleich mit den KER-Spektren des Dissoziationsprozesses zeigt, dass die aufgenommene Energie durch Dissoziation zu einem überwiegenden Anteil in einem Bereich von  $0,6 \pm 0,35$  eV besitzt, während die Gesamt-KER-Verteilung deutlich höhere Werte bis zu 6 eV aufweist. Dies ermöglicht, aus der gemessenen KER-Verteilung den internuklearen Abstand zum Ionisationszeitpunkt näherungsweise zu bestimmen.

Die gemessenen Elektronen weisen, ebenso wie die Protonen, eine scharfe Ausrichtung entlang der Laserpolarisation auf, was durch den Einfluss des Lasers auf dieser Achse nicht verwunderlich ist.

Bei zirkularer Polarisation dagegen findet eine Netto-Beschleunigung der Elektronen senkrecht zur Richtung des elektrischen Feldes zum Ionisationszeitpunkt statt, sodass die Messung der Elektronenimpulse eine geeignete Messgröße zur Untersuchung des Ionisationsprozesses darstellt. Auf diese Art konnten Winkelverteilungen der Elektronen bezüglich der internuklearen Achse innerhalb der Polarisations Ebene gemessen werden. Abhängig von KER und Elektronenergie konnte dabei eine Verdrehung der Verteilung gegenüber den klassisch erwarteten  $90^\circ$  relativ zur internuklearen Achse festgestellt werden. Die Winkelverteilung rotiert dabei mit steigendem KER entgegen des Drehsinns. Dies widerspricht der gängigen Vorstellung einer Tunnelionisation, bei der nur die Beschleunigung des Elektrons im Laserfeld eine Rolle spielt und der Einfluss des Coulomb-Potentials vernachlässigt wird.

Für höhere Elektronenergien zeigt sich eine zweite konkurrierende Struktur, die für die höchsten Energien die sonst vorherrschende erste Struktur sogar dominiert. Da sich in den Protonenspektren für linear polarisiertes Licht kein Einfluss einer Ionisation senkrecht zur Polarisationsrichtung findet, erscheint dies als Grund für die zweite Struktur in den Elektron-Winkelverteilungen als unwahrscheinlich. Eine stichhaltige und gestützte Erklärung gibt es bisher weder für die Rotation der ersten Struktur noch für die Herkunft der zweiten. Dies zeigt deutlich, dass es auch für dieses einfachste Molekülsystem noch einen erheblichen Handlungsbedarf sowohl auf theoretischer als auch von experimenteller Seite gibt. Da dieses Experiment den ersten experimentellen Zugang für die direkte Untersuchung der Elektronimpulse bei der Ionisation von  $H_2^+$ -Ionen in kurzen Laserpulsen darstellt, bietet sich hier die bisher einzige Möglichkeit, dieses Verhalten experimentell zu untersuchen.

## 5.2 Ausblick

Die in dieser Arbeit dargestellte Messung sieht sich als erste einer Reihe von Messungen, um die spezifische Dynamik und das Verhalten der Elektronen des Wasserstoffmoleküls zu untersuchen. In einem ersten Schritt kann als nächstes eine entsprechende Messung für die Isotope des Wasserstoffmoleküls durchgeführt werden. Für  $D_2^+$  ergibt sich neben einer abweichenden Verteilung der Vibrationsniveaus auch eine im Vergleich zum leichteren  $H_2^+$  langsamere Kerndynamik [108], sodass der der Ionisation vorausgehende Dissoziationsprozess weniger Einfluss sowohl auf die KER-Verteilung als auch auf den Zuwachs des Kernabstandes haben sollte. Es ist zu erwarten, dass mit der Verwendung von  $D_2^+$  eine direktere Zuordnung des KERs zum Abstand sowie eine vermehrte Ionisation bei kleineren internuklearen Abständen möglich ist. Eine Messung des Hybrids  $HD^+$  dagegen bietet die Möglichkeit, der internuklearen Achse eine Richtung zuzuweisen. Auch wenn ein Isotopeneffekt nicht zu erwarten ist, kann dies durch die Verwendung von  $HD^+$  experimentell belegt werden. Durch den Strahlanalysedeflektor gelangen dabei  $H^+$  und  $D^+$  zu räumlich weit voneinander getrennten Orten auf dem Projektildetektor, sodass tatsächlich eine Messung beider Projektilfragmente möglich sein wird.

Seitens des Lasers bietet sich außer der obligatorischen Variation der Peakintensität auch eine Verkürzung der Pulsdauer an. Damit wäre wiederum eine direktere Messung der Ionisation, losgelöst vom Dissoziationsprozess, möglich. Mit der Verwendung erheblich kürzerer Laserpulse eröffnet sich auch die Gelegenheit, den Dissoziationsprozess an sich zu untersuchen. In einem möglichen Pump-Probe Szenario kann das Molekül zunächst zur Dissoziation angeregt werden um es mit dem zweiten Laserpuls durch die Ionisation abzufragen. Durch Variation des zeitlichen Abstandes der beiden Pulse kann so der Mechanismus der Dissoziation in seinem zeitlichen

Verlauf untersucht werden. Auch eine direkte Messung der abstandsabhängigen Ionisationswahrscheinlichkeit des CREI-Prozesses wird so ermöglicht. Dies verspricht weitergehende Erkenntnisse über das Verhalten der Elektronen während eines Dissoziationsprozesses und damit vielleicht grundlegende Informationen über das Wesen der chemischen Bindung im Allgemeinen.

Schließlich bietet sich noch die Verwendung unterschiedlicher Wellenlängen an [109]. Bei 400 nm Laserpulsen wurden bereits Beiträge für senkrechte Übergänge über den  $2p\pi_u$  Zustand des Wasserstoffmolekülions gefunden [45], [46], [47]. Daher bietet die Verwendung frequenzverdoppelter Laserstrahlung die Aussicht, diese Übergänge auch in den Elektronspektren nachweisen zu können, da in diesem Fall die Winkelverteilungen Beiträge der entsprechenden Orbitale aufweisen sollten. Gerade im Hinblick auf die zweite beobachtete Struktur ist die Frage nach der Signatur eines senkrechten Übergangs von erheblichem Interesse.

# A. Potentialbelegungen

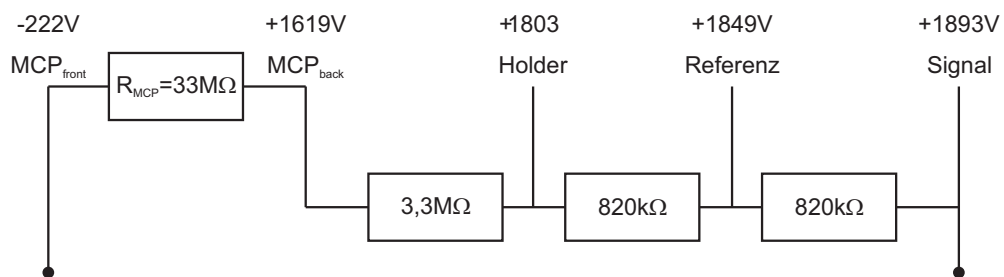
In der folgenden Tabelle finden sich die Potentialbelegungen für alle elektronischen Einbauten. Um die Detektoren mit Spannung zu versorgen wird für gewöhnlich ein Spannungsteiler benutzt, so dass lediglich die Potentiale für die Vorderseite des MCPs ( $MCP_{front}$ ) sowie des Signaldrahts vorgegeben sind. Der hohe, jedoch endliche Widerstand des MCPs muss dafür über den Stromfluss bei gegebener Spannung ermittelt werden. Abb. A.1 zeigt die verwendeten Spannungsteiler für Projektil- und Elektrondetektor.

Bezeichnung	U	Bezeichnung	U
Projektil $MCP_{front}$	-222 V	Strahlreinigung gesamt	3,13 kV
Projektil $MCP_{back}$	+1619 V	Stahlanalyse gesamt	2,44 kV
Projektil <i>Holder</i>	+1803 V	<b>Strahlfindungsdetektoren:</b>	
Projektil <i>Referenz</i>	+1849 V		
Projektil <i>Signal</i>	+1893 V	Ion $MCP_{front}$	-2382 V
Elektron $MCP_{front}$	+323 V	Ion $MCP_{back}$	-56 V
Elektron $MCP_{back}$	+2290 V	Ion <i>Holder</i>	+177 V
Elektron <i>Holder</i>	+2437 V	Ion <i>Referenz</i>	+232 V
Elektron <i>Referenz</i>	+2495 V	Ion <i>Signal</i>	+293 V
Elektron <i>Signal</i>	+2547 V	Elektron $MCP_{front}$	+149 V
Spektrometer Ionenseite	-500 V	Elektron $MCP_{back}$	+2030 V
Spektrometer $e^-$ - Seite	0 V	Elektron <i>Endplatte</i>	+2382 V

**Tabelle A.1:** Verwendete Potentialbelegungen für 400 keV  $H_2^+$  Ionen. Schwarze Einträge werden direkt vorgegeben, blaue ergeben sich durch Spannungsteiler (vgl. A.1).



### Spannungsteiler Projektildetektor



### Spannungsteiler Elektrodendetektor

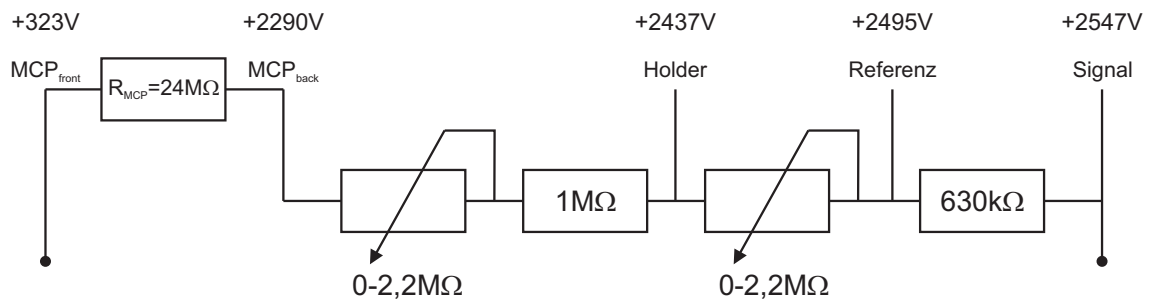


Abbildung A.1: Spannungsteiler für Projektil- und Elektrodendetektor.



## B. Einheiten und Konstanten

In dieser Arbeit werden überwiegend atomare Einheiten, kurz a.u. (von "atomic units"), benutzt. Dieses Einheitensystem ist in der Hauptsache durch den Bezug zum Elektron im Wasserstoffatom definiert. In der folgenden tabellarischen Auflistung sind die Umrechnungsvorschriften für atomare Einheiten angegeben. Durch die Verwendung atomarer Einheiten vereinfachen sich viele Gleichungen wesentlich. Des Weiteren vermitteln sie ein direkteres Gefühl für vorkommende Größen, da sie in vielen praktischen Fällen, vor allem bei Längen, Energien, Impulsen und Geschwindigkeiten, im Zahlenraum von 0 bis 100 angesiedelt sind und sich entsprechend schnell in einander umrechnen und vergleichen lassen. Beim Verwenden von atomaren Einheiten gehen allerdings Informationen über die Dimension der Größen verloren. In den folgenden Tabellen B.1 und B.2 sind die wichtigsten Umrechnungen von atomaren Einheiten in das internationale Einheiten System (SI) sowie die Werte für einige wichtige Naturkonstanten aufgelistet.

Größe	Symbol	ggf. Bezeichnung	SI
1 a.u. der Ladung	$e$	Elementarladung	$1,60217653 \cdot 10^{-19} C$
1 a.u. der Masse	$m_e$	Elektron Ruhemasse	$9,1093826 \cdot 10^{-31} kg$
1 a.u. der Länge	$a_0$	Bohrscher K-Schalen Radius	$5,291772108 \cdot 10^{-11} m$
1 a.u. der Geschwindigkeit	$v_e$	Geschwindigkeit auf Bohrscher Bahn	$2,187691 \cdot 10^6 \frac{m}{s}$
1 a.u. der Wirkung	$\hbar = \frac{h}{2\pi}$	reduziertes Planck'sches Wirkungsquantum	$1,05457168 \cdot 10^{-34} Js$
1 a.u. der Energie	$E_h$	Hartree-Energie	$4,35974417 \cdot 10^{-18} J (= 27,2 eV)$
1 a.u. des Impulses	$p_e$	Impuls auf Bohrscher Bahn	$1,99285166 \cdot 10^{-24} \frac{kg m}{s}$
1 a.u. der Zeit	$t_e$	-	$2,418884326 \cdot 10^{-17} s$
1 a.u. des elektrischen Potentials	$U$	-	$27,2113845 V$
1 a.u. des elektrischen Feldes	$E$	-	$5,14220642 \cdot 10^{11} \frac{V}{m}$

**Tabelle B.1:** Aufstellung der Umrechnungen von atomaren Einheiten (a.u.) in SI Einheiten [110].

Bezeichnung	Symbol	a.u.	SI
Plancksches Wirkungsquantum	$h$	$2\pi$	$6,62606896 \cdot 10^{-34} \text{ Js}$
Feinstrukturkonstante	$\alpha$	$\frac{1}{137,036}$	$\frac{1}{137,036}$
Vakuum-Lichtgeschwindigkeit	$c_0 = \frac{v_e}{\alpha}$	137,036	$2,99792458 \cdot 10^8 \frac{m}{s}$
Elektrische Feldkonstante	$\epsilon_0$	$\frac{1}{4\pi}$	$8,854187817 \cdot 10^{-12} \frac{F}{m}$
Magnetische Feldkonstante	$\mu_0 = \frac{\alpha^2}{4\pi i}$	$4,23761 \cdot 10^{-6}$	$4 \cdot \pi \cdot 10^{-7} \frac{N}{A^2}$
Proton Ruhemasse	$m_p$	1836,15267247	$1,672621637 \cdot 10^{-27} \text{ kg}$

**Tabelle B.2:** Weitere relevante Konstanten in atomaren Einheiten (a.u.) und in SI Einheiten [110].



# Literaturverzeichnis

- [1] H. Haken and H. C. Wolf. *Atom- und Quantenphysik*. Springer-Verlag, 1987.
- [2] T. J. McIlrath, P. H. Bucksbaum, R. R. Freeman, and M. Bashkansky. Above-threshold ionization processes in xenon and krypton. *Phys. Rev. A*, 35(11):4611–4623, Jun 1987.
- [3] K. Burnett, V.C. Reed, and P.L. Knight. Atoms in ultra-intense laser fields. *Journal of Physics B*, 26:561, 1993.
- [4] N.B. Delone and V.P. Krainov. Tunneling and barrier-suppression ionization of atoms and ions in a laser radiation field. *Physics- Uspekhi*, 41:469, 1998.
- [5] M. Meckel, D. Comtois, D. Zeidler, A. Staudte, D. Pavicic, H.C. Bandulet, H. Pepin, J.C. Kieffer, R. Dörner, D.M. Villeneuve, and P.B. Corkum. Laser-Induced Electron Tunneling and Diffraction. *Science*, 320:1478, 2008.
- [6] I. Ben-Itzhak, P. Q. Wang, J.F.Xia, A.M.Sayler, M.A. Smith, K. D. Carnes, and B. D. Esry. Dissociation and Ionization of  $H_2^+$  by ultrashort Intense Laser Pulses Probed by Coincidence 3D Momentum Imaging. *Physical Review Letters*, 95:073002, 2005.
- [7] I. Ben-Itzhak, P. Wang, J. Xia, A.M. Sayler, M.A. Smith, J.W. Maseberg, K.D. Carnes, and B.D. Esry. Dissociation and ionization of molecular ions by ultra.short intense laser pulses probed by coincidence 3D momentum imaging. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research B*, 233:56, 2005.
- [8] I. Ben-Itzhak, P.Q. Wang, A.M. Sayler, K.D. Carnes, M. Leonard, B.D. Esry, A.S. Alnaser, B. Ulrich, X.M. Tong, C.M. Litvinyuk, C.M. Maharjan, P. Rantovic, T. Osipov, S. Ghimire, Z. Chang, and C.L. Cocke. Elusive enhanced ionization structure for  $H_2^+$  in intense ultrashort laser pulses. *Physical Review A*, 78:063419, 2008.
- [9] K. Sändig, H. Figger, and T.W. Hänsch. Dissoziation Dynamics of  $H_2^+$  in Intense Laser Fields: Investigation of Photofragments from Single Vibrational Levels. *Physical Review Letters*, 85(23):4876, 2000.

- [10] K. Sändig.  $H_2^+$  in intensiven Lichtfeldern. *Dissertation*, Fakultät für Physik, Ludwig-Maximilians-Universität, München, 2000.
- [11] D. Pavicic, A. Kiess, T.W. Hänsch, and H. Figger. Clearly structured fragment kinetic energy spectra discovered in the Coulomb explosion of  $H_2^+$  and  $D_2^+$ . *The European Physical Journal D*, 23:39, 2003.
- [12] D. Pavicic, A. Kiess, T.W. Hänsch, and H. Figger. Intense-Laser - field Ionization of the Hydrogen Molecular Ions  $H_2^+$  and  $D_2^+$  at Critical Internuclear Distances. *Physical Review Letters*, 94:163002, 2005.
- [13] G.N. Gibson, M. Li, C. Guo, and J. Neira. Strong-Field Dissociation and Ionization of  $H_2^+$  Using Ultrashort Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 79(11):2022, 1997.
- [14] A. Staudte. Subfemtosecond Electron Dynamics of  $H_2$  in Strong Fields. *Dissertation*, Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main, 2005.
- [15] H. Haken and H. C. Wolf. *Molekülphysik und Quantenchemie*. Springer-Verlag, 1993.
- [16] T.E. Sharp. Potential-Energy curves for Molecular Hydrogen and its Ions. *Atomic Data*, 2:119, 1971.
- [17] M. Born and R. Oppenheimer. Zur Quantentheorie der Molekeln. *Annalen der Physik*, 389 (84)(20):457 (30), 1928.
- [18] E.U. Condon. Nuclear Motions Associated with Electron Transitions in Diatomic Molecules. *Physical Review*, 32(6):858, Dec 1928.
- [19] E.A. Gislason. Series expansions for Franck-Condon factors. I. Linear potential and the reflection approximation. *Journal of Chemical Physics*, 58:3702, 1973.
- [20] S.-Y. Lee. Energy shift correction for the reflection approximation. *Journal of Chemical Physics*, 82:4588, 1985.
- [21] K. Bethge and G. Gruber. *Physik der Atome und Moleküle*. VCH-Verlagsgesellschaft Weinheim, 1990.
- [22] G. Dunn. Franck-Condon Factors for the Ionization of  $H_2^+$  and  $D_2^+$ . *The Journal of Chemical Physics*, 44(7):2592, 1966.
- [23] S. Cohen, J.R.Hiskes, and R.J. Riddell Jr. Vibrational States of the Hydrogen Molecular Ion. *Physical Review*, 119:1025, 1960.



- [24] A. Einstein. Zur Quantentheorie der Strahlung. *Physikalische Zeitschrift*, 18:121, 1917.
- [25] H. Kopfermann and R. Ladenburg. Experimental Proof of "Negative Dispersion." . *Nature*, 122:438, 1928.
- [26] J.P. Gordon, H.J. Zeiger, and C.H. Townes. Molecular Microwave Oscillator and New Hyperfine Structure in the Microwave Spectrum of  $NH_3$ . *Physical Review*, 95:282, 1954.
- [27] J.P. Gordon, H.J. Zeiger, and C.H. Townes. The Maser - New Type of Microwave Amplifier, Frequency Standard, and Spectrometer. *Physical Review*, 99:1264, 1955.
- [28] T.H. Maiman. Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature*, 187:493, 1960.
- [29] L.V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics JETP*, 20(20):1307, 1965.
- [30] L.B. Madsen, M. Plummer, and J.F. McCann. Multiphoton ionization of  $H_2^+$  by intense light: A comparison of Floquet and wave-packet results. *Physical Review A*, 58(1):456, July 1998.
- [31] F. Fabre, G. Petite, P. Agostini, and M. Clement. Multiphoton above-threshold ionisation of xenon at 0.53 and 1.06  $\mu\text{m}$ . *Journal of Physics B*, 15:1353, 1982.
- [32] M.V. Ammosov, N.B. Delone, and V.P. Krainov. Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Soviet Physics JETP*, 64:1191, 1986.
- [33] N.B. Delone and V.P. Krainov. Energy and angular electron spectra for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation. *Journal of the Optical Society of America B*, 8:1207, 1991.
- [34] M. Meckel. Strong-Field Ionization of Aligned Oxygen. *Diplomarbeit*, Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main, 2006.
- [35] J. Ludwig, H. Rottke, and W. Sander. Dissociation of  $H_2^+$  and  $D_2^+$  in an intense laser field. *Physical Review A*, 53(3):2168, September 1997.
- [36] L.J. Frasinski, J.H. Posthumus, J. Plumridge, K. Codling, P.F. Taday, and A.J. Langley. Manipulation of Bond Hardening in  $H_2^+$  by Chirping of Intense Femtosecond Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 83(18):3625, Nov 1999.

- [37] J. McKenna, A.M. Sayler, F. Anis, B. Gaire, N.G. Johnson, E. Parke, J.J. Hua, H. Mashiko, C.M. Nakamura, E. Moon, Z. Chang, K.D. Carnes, B.D. Esry, and I. Ben-Itzhak. Enhancing High-Order Above-Threshold Dissociation of  $H_2^+$  Beams with Few-Cycle Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 100:133001, 2008.
- [38] T. Zuo and A.D. Bandrauk. Superdressed  $H_2^+$  and  $H_3^+$  molecular ions in intense, high-frequency laser fields. *Physical Review A*, 51:R26, 1995.
- [39] S. Chu and D.A. Telnov. Beyond the Floquet theorem: generalized Floquet formalism and quasienergy methods for atomic and molecular multiphoton processes in intense laser fields. *Physics Reports*, 390:1, 2004.
- [40] S. Chu. Complex quasivibrational energy formalism for intense-field multi-photon and above-threshold dissociation: Complex-scaling Fourier-grid Hamiltonian method. *Journal of Chemical Physics*, 94:7901, 1991.
- [41] N.B. Delone and V.P. Krainov. AC Stark shift of atomic energy levels. *Physics-Uspekhi*, 42:669, 1999.
- [42] B.D. Esry, A.M. Sayler, P.Q. Wang, K.D. Carnes, and I. Ben-Itzhak. Above Threshold Coulomb Explosion of Molecules in Intense Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 97(1):013003, Jul 2006.
- [43] E.E. Aubanel, J. Gauthier, and A.D. Bandrauk. Molecular stabilization and angular distribution in photodissociation of  $H_2^+$  in intense laser fields. *Physical Review A*, 48(3):2145, 1993.
- [44] K.C. Kulander, F.H. Mies, and K.J. Schafer. Model for studies of laser-induced nonlinear processes in molecules. *Physical Review A*, 53:2562, 1996.
- [45] A. Talebpour, K. Vijayalakshmi, A. Bandrauk, T.T. Nguyen-Dang, and S.L. Chin. Dissociative ionization of  $D_2$  in intense laser fields:  $D^+$ -ion production perpendicular to the polarization of a 400-nm laser field. *Physical Review A*, 62:042708, 2000.
- [46] K. Vijayalakshmi, A. Talebpour, T.T. Nguyen-Dang, J. Yang, A.D. Bandrauk, and S.L. Chin. Dissociative ionization of  $D_2$  in a linearly polarized two color ( $\omega + 2\omega$ ) laser field: Role of high-lying electronic states. *Physical Review A*, 62:053408, 2000.
- [47] T.T. Nguyen-Dang, H. Abou-Rachid, N.A. Nguyen, N. Mireault, and J. Lesvesque. Perpendicular dissociation of  $D_2^+$  in intense Ti:sapphire laser pulses. *Physical Review A*, 67:013405, 2003.

- [48] J.H. Shirley. Solution of the Schrödinger Equation with a Hamiltonian Periodic in Time. *Physical Review*, 128:B979, 1965.
- [49] C. Cohen-Tannoudji and S. Reynaud. Dressed-atom description of resonance fluorescence and absorption spectra of a multi-level atom in an intense laser beam. *Journal of Physics B*, 10(3):345, 1977.
- [50] S. Chu and J. Cooper. Threshold shift and above-threshold multiphoton ionization of atomic hydrogen in intense laser fields. *Physical Review A*, 32:2769, 1985.
- [51] A. Giusti-Suzor, F.H. Mies, L.F. DiMauro, E. Charron, and B. Yang. Dynamics of  $H_2^+$  in intense laser fields. *Journal of Physics B*, 28:309, 1995.
- [52] A.M.F. Lau. Radiative-dressed molecules: Ab initio theory and single/multiphoton dissociative with electronic transitions. *Physical Review A*, 16(4):1535, 1977.
- [53] P.H. Bucksbaum, A.Zavrijev, H.G. Muller, and D.W.Schumacher. Softening of the  $H_2^+$  molecular Bond in intense Laser Fields. *Physical Review Letters*, 64(16):1883, 1990.
- [54] M. Chrysos, O. Atabek, and R. Lefebvre. Molecular photodissociation with diverging couplings: An application to  $H_2^+$  in intense cw Laser fields. II. The multiphoton problem. *Physical Review A*, 48(5):3855, 1993.
- [55] K. Pahl. Dissoziation von einfach ionisierten Wasserstoffmolekülen in starken Laserfeldern. *Bachelor-Arbeit*, Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main, 2009.
- [56] A. Datta, S. Saha, and S.S. Bhattacharyya. Above-Threshold multiphoton dissociation of  $HD^+$  and  $H_2^+$  in intense laser fields. *Journal of Physics B*, 30:5737, 1997.
- [57] A. Giusti-Suzor, X. He, and O. Attabek. Above-Threshold Dissociation of  $H_2^+$  in Intense Laser Fields. *Physical Review Letters*, 64(5):515, 1990.
- [58] G. Jolicard and O. Atabek. Above-Threshold-dissociation dynamics of  $H_2^+$  with short intense laser pulses. *Physical Review A*, 46(9):5845, 1992.
- [59] L.J. Frasinski, J. Plumridge, J.H. Posthumus, and K. Codling. Counterintuitive Alignment of  $H_2^+$  in Intense Femtosecond Laser Fields. *Physical Review Letters*, 86:2541, 2001.

- [60] A. Giusti-Suzor and F.H. Mies. Vibrational Trapping and Suppression of Dissociation in Intense Laser Fields. *Physical Review Letters*, 68(26):3869, 1992.
- [61] J.H. Posthumus, J. Plumridge, L.J. Frasinski, K. Codling, E.J. Divall, A.J. Langley, and P.F. Taday. Slow protons as a signature of zero-photon dissociation of  $H_2^+$  in intense laser fields. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 33(16):L563, 2000.
- [62] S. Zhao, C. Jin, A. Le, T.F. Jiang, and C.D. Lin. Determination of structure parameters in strong-field tunneling ionization theory of molecules. *Physical Review A*, 81:033423, 2010.
- [63] X.M. Tong, Z.X. Zhao, and C.D. Lin. Theory of molecular tunneling ionization. *Physical Review A*, 66(3):033402, Sep 2002.
- [64] T. Zuo and A.D. Bandrauk. Charge-resonance-enhanced ionization of diatomic molecular ions by intense lasers. *Physical Review A*, 52:R2511, 1995.
- [65] T. Seideman, M.Y. Ivanov, and P.B. Corkum. Role of Electron Localization in Intense-Field Molecular Ionization. *Physical Review Letters*, 75:2819, 1995.
- [66] S. Chelkowski, A. Conjusteau, T. Zuo, and A. Bandrauk. Dissociative ionization of  $H_2^+$  in an intense laser field: Charge-resonance-enhanced, ionization, Coulomb explosion, and harmonic generation at 600 nm. *Physical Review A*, 54(4):3235, 1996.
- [67] H. Yu, T. Zuo, and A.D. Bandrauk. Molecules in intense laser fields: Enhanced ionization in a one-dimensional model of  $H_2$ . *Physical Review A*, 54(4):3290, Oct 1996.
- [68] S. Chelkowski, C. Foisy, and A.D. Bandrauk. Electron-nuclear dynamics of multiphoton  $H_2^+$  dissociative ionization in intense laser fields. *Physical Review A*, 57(2):1176, 1998.
- [69] M. Vafaei, H. Sabzyan, Z. Vafaei, and A. Katanforoush. Detailed instantaneous ionization rate of  $H_2^+$  in an intense laser field. *Physical Review A*, 74(4):043416, Oct 2006.
- [70] A.D. Bandrauk and H.Z. Lu. Enhanced ionization of the molecular ion  $H_2^+$  in intense laser and static magnetic fields. *Physical Review A*, 62:053406, 2000.
- [71] R.S. Mulliken. Intensities of Electronic Transitions in Molecular Spectra. *Journal of Chemical Physics*, 7:20, 1939.

- [72] G.H. Dunn. Photodissociation of  $H_2^+$  and  $D_2^+$ : Theory. *Physical Review*, 172(1):1, 1968.
- [73] M. Plummer and J.F. McCann. Field-ionization rates of the hydrogen molecular ion. *Journal of Physics B*, 29:4625, 1996.
- [74] J.H. Posthumus, J. Plumridge, M.K.Thomas, K. Codling, L.J. Fransinski, A.J. Langley, and P.F.Taday. Dynamic and geometric laser-induced alignment of molecules in intense laser fields. *Journal of Physics B*, 31:L553, 1998.
- [75] M. Plummer and J.F. McCann. Orientation dependence of field ionization of the hydrogen molecular ion. *Journal of Physics B*, 30:L401, 1997.
- [76] J. Fernandez and L. B. Madsen. Alignment dependence in above-threshold ionization of  $H_2^+$  : role of intermediate resonances. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 42(8):085602, 2009.
- [77] D.A. Telnov and Shih.I Chu. Ab initio study of the orientation effects in multiphoton ionization and high-order harmonic generation from the ground and excited electronic states of  $H_2^+$ . *Physical Review A*, 76:043412, 2007.
- [78] D. Pavicic, K.F. Lee, D.M. Rayner, P.B. Corkum, and D.M. Villeneuve. Direct Measurement of the Angular Dependence of Ionization for  $N_2$ ,  $O_2$ , and  $CO_2$  in Intense Laser Fields. *Physical Review Letters*, 98(24):243001, Jun 2007.
- [79] T.K. Kjeldsen and L.B. Madsen. Ab initio studies of strong-field ionization of arbitrary oriented  $H_2^+$  molecules. *Physical Review A*, 74:035402, 2006.
- [80] P.Q. Wang, A.M. Sayler, K.D. Carnes, J.F. Xia, M.A. Smith, B.D. Esry, and I. Ben-Itzhak. Dissociation of  $H_2^+$  in intense femtosecond laser fields studied by coincidence three-dimensional momentum imaging. *Physical Review A*, 74:043411, 2006.
- [81] D. Pavicic. Coulomb Explosion and Intense-Field Photodissociation of Ion-Beam  $H_2^+$  and  $D_2^+$ . *Dissertation*, Ludwig-Maximilians-Universität, München, 2004.
- [82] A. Staudte, D. Pavicic, S. Chelkowski, D. Zeidler, M. Meckel, N. Niikura, M. Schöffler, S. Schössler, B. Ullrich, P.P. Rajeev, Th. Weber, T. Jahnke, D.M. Villeneuve, A.D. Bandrauk, C.L. Cocke, P.B. Corkum, and R. Dörner. Attosecond Strobnging of Two-Surface Population Dynamics in Dissociation  $H_2^+$ . *Physical Review Letters*, 98:073003, 2007.
- [83] RoentDek Handels GmbH. <http://www.roentdek.com/>.

- [84] M. Schöffler. Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energien. *Diplomarbeit*, Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main, 2002.
- [85] O. Jagutzki, V. Mergel, K. Ullmann-Pfleger, L. Spielberger, U. Spillmann, R. Dörner, and H. Schmidt-Böcking. A broad-application microchannel-plate detector system for advanced particle or photon detection tasks: large area imaging, precise multi-hit timing information and high detection rate. *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research A*, 477:244, 2002.
- [86] cronologic GmbH & Co. KG. <http://www.cronologic.de/>.
- [87] C. Trump, H. Rottke, and W. Sandner. Multiphoton ionization of dissociating  $D_2^+$  molecules. *Physical Review A*, 59(4):2858, Apr 1999.
- [88] C. Trump, H. Rottke, and W. Sandner. Strong-field photoionization of vibrational ground-state  $H_2^+$  and  $D_2^+$  molecules. *Physical Review A*, 60(5):3924, Nov 1999.
- [89] Th. Ergler, A. Rudenko, B. Feuerstein, K. Zrost, C.D. Schröter, R. Moshhammer, and J. Ullrich. Time Resolved Imaging and Manipulation of  $H_2$  Fragmentation in Intense Laser fields. *Physical Review Letters*, 95:093001, 2005.
- [90] A.S. Alnaser, X.M. Tong, T. Osipov, S. Voss, C.M. Maharjan, P. Ranitovic, B. Ulrich, B. Shan, Z. Chang, C.D. Lin, and C.L. Cocke. Routes to Control of  $H_2$  Coulomb Explosion in Few-Cycle Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 93(18):183202, Oct 2004.
- [91] 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, and A.J. Langley. Fast-beam study of  $H_2^+$  ions in an intense femtosecond laser field. *Journal of Physics B*, 33:2743, 2000.
- [92] J. McKenna, A.M. Sayler, B. Gaire, N.G. Johnson, E. Parke, K.D. Carnes, B.D. Esry, and I. Ben-Itzhak. Dissociation and ionization of an  $HD^+$  beam induced by intense 395-nm ultrashort laser pulses. *Physical Review A*, 80:023421, 2009.
- [93] Th. Ergler, A. Rudenko, and B. Feuerstein K. Zrost C.D. Schröter R. Moshhammer J. Ullrich. Spatiotemporal Imaging of Ultrafast Molecular Motion: Collapse and Revival of the  $D_2^+$  Nuclear Wave Packet. *Physical Review Letters*, 97:193001, 2006.

- [94] X. Urbain, B. Fabre, E. M. Staicu-Casagrande, N. de Ruelle, V. M. Andriana-rijaona, J. Jureta, J.H. J. H. Posthumus, A. Saenz, E. Baldit, and C. Cornaglia. Intense-Laser-Field Ionization of Molecular Hydrogen in the Tunneling Regime and its Effect on the Vibrational Excitation of  $H_2^+$ . *Physical Review Letters*, 92(16):163004–1, 2004.
- [95] T.K. Kjeldsen and L.B. Madsen. Vibrational excitation of diatomic Molecular Ions in Strong Field Ionization of Diatomic Molecules. *Physical Review Letters*, 95:073004, 2005.
- [96] Pfeiffer Vacuum. <http://onlinecatalog.pfeiffer-vacuum.de/de/tec1.2.4/technology.do>.
- [97] Robert W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, 1992.
- [98] M. Smolarski. Ionisation von Atomen und Molekülen in starken Laserfeldern. Eine Betrachtung zeitabhängiger Phänomene. *Dissertation*, Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main, 2008.
- [99] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik 2: Elektrizität und Optik*. springer Verlag, 2009.
- [100] Eugene Hecht. *Optics*. Addison Wesley, 2002.
- [101] M. Unverzagt. Entwicklung eines Strahlprofilmonitors für den ESR. *Diplomarbeit*, Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main, 1992.
- [102] A.S. Alnaser, X.M. Tong, T. Osipov, S. Voss and C.M.Maharjan, B. Shan, Z. Chang, and C.L. Cocke. Laser-peak-intensity calibration using recoil-ion momentum imaging. *Physical Review A*, 70:023413, 2004.
- [103] S. Voss. Orientierungseffekte bei der Doppelionisation von kleinen Molekülen. *Diplomarbeit*, Kansas State University Manhattan, KS USA und Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main, Deutschland, 2004.
- [104] J. Voigtsberger. Bestimmung und Optimierung der Zeitauflösung von Detektoren. *Diplomarbeit*, Institut für Kernphysik, Johann Wolfgang Goethe-Universität, Frankfurt am Main, 2009.
- [105] B. Feuerstein and U. Thumm. Fragmentation of  $H_2^+$  in strong 800-nm laser pulses: Initial-vibration-state dependence. *Physical Review A*, 67:043405, 2003.

- [106] P. Eckle, A.N. Pfeiffer, C. Cirelli, A. Staudte, R. Döner, H.G. Muller, M. Büttiker, and U. Keller. Attosecond Ionization and Tunneling Delay Time Measurements in Helium. *Science*, 322:1525, 2008.
- [107] Norio Takemoto and Andreas Becker. Jila, university of colorado at boulder. *private communication*, 2009.
- [108] J.J. Hua and B.D. Esry. Isotopic pulse-length scaling of molecular dissociation in an intense laser field. *Physical Review A*, 78:055403, 2008.
- [109] I.V. Litvinyuk, A.S. Alnaser, D. Comtois, D-Ray, J.-C. Kieffer, and D.M. Villeneuve. Wavelength-dependent study of strong-field Coulomb explosion of hydrogen. *New Journal of Physics*, 10:083011, 2008.
- [110] National Institut of Standards and Technology. <http://physics.nist.gov/cuu/Constants/>.
- [111] N.P.F.B. van Asselt, J.G.Maas, and J. Los. Laser induced Photodissociation of  $H_2^+$  and  $D_2^+$  ions. *Chemical Physics*, 5:429, 1974.
- [112] A.D. Bandrauk and M. L. Sink. Photodissociation in Intense laser fields: Predissociation analogy. *Journal of Chemical Physics*, 74(2):1110, 1981.
- [113] D.R. Bates. The Oscillator Strength of  $H_2^+$ ,  $1s\sigma - 2p\sigma$ . *Journal of Chemical Physics*, 19(9):1122, 1951.
- [114] J.P. Brichta, W-K. Liu, a.A. Zaidi, A. Trottier, and J.H. Sanderson. Comparison of ADK ionization rates as a diagnostic for selective vibrational level populaion measurment. *Journal of Physics B*, 39:3769, 2006.
- [115] R. Caudano and J.M. Delfosse. Energy spectrum of protons produced in collisional dissociation of fast  $H_2^+$  ions. *Journal of Physics B*, 1:813, 1968.
- [116] E. Charron. Coherent control of photodissociation in intense laser fields. *Journal of Chemical Physics*, 17:7359, 1995.
- [117] J. Fernandez and L.B. Madsen. Energy-resolved photoelectron angular distributions of  $H_2^+$  in intense femtosecond laser pulses. *Journal of Physics B*, 42:021001, 2009.
- [118] R.R. Freeman and P.H. Bucksbaum. Investigation of above-threshold ionization using subpicosecond laser pulses. *Journal of Physics B*, 24:325, 1991.
- [119] R.R. Freeman, P.H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M. E. Geusic. Above-Threshold Ionization with Subpicosecond Laser Pulses. *Physical Review Letters*, 59:1092, 1987.



- [120] J.R. Hiskes. Dissociation of Molecular Ions by Electric and Magnetic Fields. *Physical Review*, 122(4):1207, 1961.
- [121] O. Jagutzki, A. Cerezo, A. Czasch, R. Dörner, M. Hataß, M. Huang, V. Mergel, U. Spillmann and K. Ullmann-Pfleger and T. Weber, H. Schmidt-Böcking, and G.D.W. Smith. Multiple Hit readout of a Microchannel Plate Detector With a Three-Layer Delay-Line Anode. *IEEE Transactions on Nuclear Science*, 49(5):2477, 2002.
- [122] F. Li, T. Wang, G. Zhang, W. Xiang, and W.T. Hill. Double-Exponentially Decayed Photoionization in CREI Effect: Numerical Experiment on 3D  $H_2^+$ . *Chinese Physical Letters*, 25:465, 2008.
- [123] F. Li, G. Zhang, W. Xiang, and W.T. Hill. An alternative way for computing absolute and normalized photoionization rates: Testet in 1D  $H_2^+$  systems. *Optics Communications*, 281:2097, 2008.
- [124] S. Miret-Artes, O. Atabek, and A. Bandrauk. Multiphoton absorption line shapes and branching ratios in intense laser fields: An application to  $H_2^+$  photodissociation. *Physical Review A*, 45(11):8056, 1992.
- [125] P.J. Mohr and B.N. Taylor. CODATA recommended values of the fundamental physical constants: 2002. *Review of Modern Physics Reports*, 77:1, 2005.
- [126] H.G. Muller, A. Tip, and M. J. van der Wiel. Ponderomotive force and AC Stark shift in multiphoton ionisation. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 16(22):L679, 1983.
- [127] L.-Y. Peng, I.D. Williams, and J.F. McCann. Dissociation of  $H_2^+$  from a short, intense, infrared laser pulse: proton emission spectra and pulse calibration. *Journal of Physics B*, 38:1727, 2005.
- [128] A.L. Schawlow and C.H. Townes. Infrared and Optical Masers. *Physical Review*, 112:1940, 1958.
- [129] S. Selsto, M. Forre, J.P. Hansen, and L.B. Madsen. Strong Orientation Effects in Ionization of  $H_2^+$  by short, intense, high-frequency light pulses. *Physical Review Letters*, 95:093002, 2005.
- [130] John C. Slater. *Quantum Theory of Molecules and Solids Vol. 1*. McGraw-Hill Book Company, 1963.
- [131] D. Telnov and S. Chu. High-order above-threshold multiphoton detachment of  $H^-$ : time dependent non-Hermitian Floquet approach. *Journal of Physics B*, 37:1489, 2004.



# Danksagung

Zum Abschluss dieser Arbeit folgt das einzige Kapitel, das keinen physikalischen, sondern einen rein menschlichen Hintergrund hat. Obwohl diese Arbeit unter meinem Namen steht, ist das beschriebene Experiment und damit auch indirekt diese Arbeit keine Einzelleistung, sondern das Resultat eines sehr engagierten Teams in Form der Atomphysik-Arbeitsgruppe. Ich habe in den letzten Jahren hier erhellende Gespräche, angeregte Diskussionen und eine großartige Menschlichkeit erlebt, für die ich sehr dankbar bin. Dieser direkten Hilfe gilt es, noch die emotionale Unterstützung außerhalb der physikbezogenen Welt hinzuzufügen, ohne die ich nicht der Mensch wäre, der ich bin. Am Schluss müsste ich also jeden erwähnen, der mich in irgendeiner Weise geprägt, begleitet oder mir helfend unter die Arme gegriffen hat. Da dies vielleicht etwas zu ausschweifend werden könnte, möchte ich aus dieser Menge einige besonders aufgreifen und mich gezielt bedanken.

- An erster Stelle danke ich meinem Gott!
- Ich danke meinem Doktorvater Reinhard Dörner, der die Idee für dieses Projekt hatte. Neben der vielen Zeit für bereichernde Diskussionen über die Interpretation und Bedeutung der Messergebnisse hast du mich vor allem durch deinen Enthusiasmus immer wieder motiviert und damit maßgeblich zum Gelingen des Experimentes beigetragen.
- Horst Schmidt-Böcking danke ich für seine Begeisterungsfähigkeit und einige physikalisch-philosophische Debatten über Quantenmechanik und den Aufbau unserer Welt.
- Mein herzlicher Dank gilt auch Lothar Schmidt, der bei vielen Fragen, durch sein fundiertes Wissen in nahezu allen relevanten Bereichen oft meine erste Anlaufstelle war.
- Ich danke Kyra Cole und Arno Vredenburg, unseren Laserspezialisten, die es geschafft haben, den ewig kränkelnden Laser schließlich doch zu einem stabilen Arbeitsgerät zu machen.

- Einen wichtigen Teil zum Gelingen dieses Experimentes haben Mustafa Yildirim, Kevin Pahl und Maximilian Schütt geleistet, die an diesem Experiment ihre Bachelor- bzw. Masterarbeiten anfertig(t)en und am Aufbau und oder der Durchführung in besonderem Maße beteiligt waren.
- Mein Dank gilt auch Till Jahnke, Moritz Meckel, Jasmin Titze, Nadine Neumann, Katharina Kreidi und Tilo Havermeier, die mir mit Rat und Tat bei etlichen Fragen, Unklarheiten oder auch fehlender Erfahrung eine große Hilfe waren.
- Ich danke allen, die während der Messungen ihre Zeit um meinetwillen teilweise auch nachts und am Wochenende geopfert haben. Da die Strahlzeiten manchmal recht kurzfristig anberaumt wurden, sehe ich es nicht als Selbstverständlichkeit, dass ihr euch bereiterklärt habt, mich und meine Messung so spontan zu unterstützen.
- Einen herzliches Dankeschön geht des Weiteren an das gesamte Administratoren-Team. Gerade nach der Umstellung auf Windows 7 habe ich euch wohl etwas mehr Arbeit als der Durchschnitt gemacht.
- Da dieses Experiment außer auf einen funktionierenden Laser auch auf einen Ionenstrahl angewiesen ist, möchte ich mich herzlich bei der Beschleuniger-Mannschaft für die Bereitstellung des  $H_2^+$ -Ionenstrahls sowie für ihre technische Hilfe rund um das Vakuumsystem bedanken.
- Der Feinmechanik-Werkstatt unseres Instituts möchte ich für ihre kompetente Arbeit beim Bau der Spektrometerteile danken. Durch das unsymmetrische Design, meine speziellen Material- und zahlreichen Extrawünsche habe ich mit Sicherheit nicht zu den einfachsten "Kunden" gehört und weiß es zu schätzen, dass all diese komplizierten Wünsche zu meiner vollsten Zufriedenheit erfüllt werden konnten.
- Ich danke der Schlosserei, die sich höchst unkompliziert und schnell meinen Problemen angenommen hat. Sei es beim Bau des FlexLink-Gestells, der Anbringung der Laserstrahlführung oder sonstigen Extras, die Schlosserei ist stets ein Garant für schnelle und gute Arbeit. Gerade meine Anfragen bezüglich spezieller Werkzeuge, wie einem ultra-kurzen Schraubenzieher für die Verankerung des Spektrometers in der Kammer und einem Kabel-zieh-Haken, um die 33(!) am Spektrometer befindlichen Kabel aus der Kammer zu den entsprechenden Anschlüssen zu "fischen", ist mir dabei in sehr positiver Erinnerung. Den besten Beweis für die kreative Schaffenskraft und den Willen zur Problemlösung sehe ich jedoch nach wie vor in der Konstruktion des Spezialkrans, der

es überhaupt erst möglich macht, das ca. 15 kg schwere und fast 80 cm lange Spektrometer in die im Durchmesser nur um Haaresbreite größere Kammer einfahren zu können (Ich empfehle, zur Würdigung noch einmal mit diesem Hintergrund einen Blick auf Abb. 3.15 zu werfen).

- Neben den physikalischen Helfern möchte ich mich vor allem bei meiner Frau Kristina bedanken, die mir während meiner Zeit als Doktorand (und auch schon davor) immer eine große Stütze und der Lichtfleck in manch düsterem Moment ("Der Laser ist schon wieder kaputt!!") gewesen ist.
- Ich möchte mich auch bei meiner Schwägerin und guten Freundin Birgitta für das Korrekturlesen bedanken.

Danke!!!



# Lebenslauf

## **Matthias Odenweller**

geboren am 12.10.1978 in Bad Homburg v.d.H.

Eltern: Heinrich Odenweller und Annegret Odenweller-Lenk geb. Wick

Geschwister: Martin Odenweller

Familienstand: Seit 30.04.2009 verheiratet mit Kristina Gisela Odenweller geb. Stein

## **Schule:**

1985 Grundschule, Limesgrundschule, Wehrheim

1989 integrierte Gesamtschule, Adolf-Reichwein-Schule, Neu-Anspach

1995 Gymnasium, Phillipp-Reis-Schule, Friedrichsdorf/Ts

1998 Abitur, Gesamtnote 1,0

## **Zivildienst:**

1998 Zivildienst, evangelische Kirchengemeinde Anspach, Neu-Anspach

## **Studium:**

1999 Physikstudium, Goethe-Universität, Frankfurt

2001 Vordiplom in Physik, Beurteilung: sehr gut

2005 Diplom in Physik, Beurteilung: sehr gut, mit Auszeichnung

2005 Beginn der Promotion

## **Akademische Lehrer:**

Prof. Dr. H. Roskos

Prof. Dr. Dr. H. Stöcker

Prof. Dr. H.J. Lüdde

Prof. Dr. H. Dinges

PD. Dr. R. Lang

Prof. Dr. H. Schmidt-Böcking

Prof. Dr. R. Stock

Prof. Dr. U. Ratzinger

Prof. Dr. R.J. Jelitto

**Forschungsaufenthalte:**

07/2005 - 08/2005	LBNL, ALS, Berkeley, USA
06/2006	DESY, Hasylab, Hamburg
03/2007 - 04/2007	BESSY II, Berlin

**Konferenzteinahmen:**

03/2004	EAS Tagung, Riezlern, Österreich
03/2006	DPG-Frühjahrstagung, Frankfurt
09/2006	Heraeus Summerschool, Wittenberg
03/2007	DPG-Frühjahrstagung, Düsseldorf
02/2008	EAS Tagung, Riezlern, Österreich
03/2008	DPG-Frühjahrstagung, Darmstadt
09/2008	ICOMP 2008, Heidelberg
01/2010 - 02/2010	Gordon Research Conference, Galveston, Texas, USA

**Wissenschaftliche Veröffentlichungen**

1. M. Odenweller **Erzeugung negativer Ionen mit einer Mikrostruktur-Ionenquelle**, *Diplomarbeit* Johann Wolfgang Goethe-Universität, (2005)
2. M. Odenweller, S.Kirschner, L. Schmidt, M. Smolarski, K. Cole, M. Schöffler, J. Titze, N. Neumann, K. Kreidi, T. Jahnke, L. Foucar, B. Ullrich, M. Yildirim, H. Schmidt-Böcking und R. Dörner **Entwicklung einer Messapparatur für Ion-Laser-Experimente**, *IKF-Jahresbericht2006/2007* (2007).
3. K. Kreidi, T. Jahnke, Th. Weber, T. Havermeier, R. Grisenti, X. Liu, Y. Morisita, S. Schössler, L. Ph. H. Schmidt, M. Schöffler, M. Odenweller, J. Titze, N. Neumann, L. Foucar, F. Sturm, C. Stuck, H. Fukuzawa, G. Prümper, N. Saito, K. Ueda, A. Czasch, O. Jagutzki, H. Schmidt-Böcking, S. Semenov und R. Dörner **Localization Of Inner Shell Photo Electron Emission And ICD In Neon Dimers**, *J.Phys.B.* 41, 101002 (2008).
4. K. Kreidi, T. Jahnke, Th. Weber, T. Havermeier, X. Liu, Y. Morisita, S. Schössler, L. Ph. H. Schmidt, M. Schöffler, M. Odenweller, N. Neumann, L. Foucar, J. Titze, B. Ulrich, F. Sturm, C. Stuck, R. Wallauer, S. Voss, I. Lauter, H. K. Kim, M. Rudloff, H. Fukuzawa, G. Prümper, N. Saito, K. Ueda, A. Czasch, O. Jagutzki, H. Schmidt-Böcking, S. Stoychev, Ph. V. Demekhin und R. Dörner **Relaxation processes following 1s photoionization and Auger decay in Ne<sub>2</sub>**, *Physical Review A* 78, 043422 (2008)
5. T. Osipov, T. N. Rescigno, T. Weber, S. Miyabe, T. Jahnke, A. S. Alnaser, M. P. Hertlein, O. Jagutzki, L. Ph. H. Schmidt, M. Schöffler, L. Foucar, S. Schössler, T. Havermeier, M. Odenweller, S. Voss, B. Feinberg, A. L. Landers, M. H. Prior, R. Dörner, C. L. Cocke und A. Belkacem, **Fragmentation pathways for selected electronic states of the acetylene dication**, *J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys.* 41, 091001 (2008)



- 
6. K. Kreidi, Ph.V. Demekhin, T. Jahnke, Th. Weber, T. Havermeier, X.-J. Liu, Y. Morisita, S. Schössler, L. Ph. H. Schmidt, M. Schöffler, M. Odenweller, N. Neumann, L. Foucar, J. Titze, B. Ulrich, F. Sturm, C. Stuck, R. Wallauer, S. Voss, I. Lauter, H. K. Kim, M. Rudloff, H. Fukuzawa, G. Prümper, N. Saito, K. Ueda, A. Czasch, O. Jagutzki, H. Schmidt-Böcking, S. Scheit, L. S. Cederbaum, und R. Dörner **Photo- and Auger-Electron Recoil Induced Dynamics of Interatomic Coulombic Decay**, *Physical Review Letters* 103, 033001 (2009)