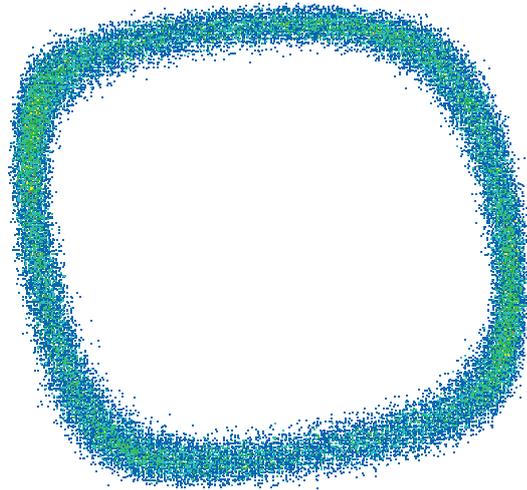


Photodissoziation des Wasserstoffmoleküls durch
Einzelzyklenlaserpulse

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)



vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät der
Friedrich-Schiller-Universität Jena

von Tim Rathje

geboren am 31.07.1979 in Leverkusen

1. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Gerhard G. Paulus, FSU Jena
2. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. habil. Ullrich Eichmann, MBI Berlin
3. Gutachter: Prof. Dr. rer. nat. Giuseppe Sansone, DFP Mailand, Italien

Tag der Promotion: 16.10.2013

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	4
2	Photodissoziation in starken Laserfeldern	9
2.1	Neutrale versus geladene Moleküle	10
2.2	Kinetic-energy-release (KER) -Spektren	13
2.3	Theoretische Beschreibung von Molekülen im Laserfeld	16
2.3.1	1- und 3-Photonen-Dissoziation	16
2.3.2	Das „dressed-molecule-“ oder Floquet-Modell	18
2.4	Dissoziations Prozesse	19
2.4.1	Bond-softening und -hardening	19
2.4.2	„Bond-slopping“ oder Netto-0-Photonen-Dissoziation	20
2.4.3	Doppel- und multiresonante Prozesse	21
2.4.4	Zeitliche Dynamik der Prozesse	23
2.5	Dissoziation mit Einzelzyklenpulsen	23
3	Übersicht über den experimentellen Aufbau	28
3.1	Das Lasersystem	30
3.2	Messung der absoluten Phase	31
3.3	Die Ionenstrahlanlage	33

4	Das Phasenmeter	34
4.1	Starkfeld-Photoionisation	34
4.2	Aufbau des Phasenmeters	37
4.3	Wellenformcharakterisierung von Einzelzyklenpulsen	39
4.3.1	Bestimmung der absoluten Phase	39
4.3.2	Messung der Pulslänge	42
4.4	Messung oder Stabilisierung der absoluten Phase	44
4.4.1	Phase-Tagging Technik	44
4.4.2	Phasenstabilisierung mit einem Phasenmeter	46
5	Die Ionenstrahlanlage	49
5.1	Gesamtaufbau	50
5.2	Ionenquelle	51
5.3	Flugstrecke und Interaktionszone	53
5.3.1	Ladungs- und Massenselektion	53
5.3.2	Strahljustage, Strahlmanipulation	54
5.3.3	Interaktionszone	57
5.4	Detektor	59
6	Ergebnisse und Diskussion	61
6.1	Rohdatenauswertung	61
6.1.1	Von den Rohdaten zum E_{KER} Spektrum	61
6.1.2	Überwachung der Laserstabilität	64
6.1.3	Phasenkorrektur	64
6.2	Messung der Winkelverteilung der E_{KER}	65
6.3	Phasenabhängige Effekte der Elektronenlokalisierung im H_2^+ Molekül	68
6.3.1	Parallel zur Laserpolarisation ausgerichtete Moleküle	68
6.3.2	Vergleich mit H_2	71

6.3.3	Winkelverteilung der absoluten Phaseneffekten	73
6.3.4	Phaseneffekte der totalen Dissoziationswahrscheinlichkeit	74
6.4	Vergleich der Lokalisierungseffekte zwischen H_2^+ und D_2^+	76
7	Zusammenfassung	78
	Literatur	81

Kapitel 1

Einleitung

Die Erfindung des Lasers [1] vor nunmehr gut 50 Jahren hat die Phantasie der Physiker beflügelt. Schon bald, so glaubte man, würden so hohe Intensitäten erreicht, dass Elektronen oder gar Protonen innerhalb eines optischen Zyklus' relativistische Geschwindigkeiten erreichen würden. Auch das Schwinger-Limit, bei dem spontane Paarerzeugung aus dem Vakuum stattfindet, schien nicht völlig außer Reichweite.

Die tatsächliche Entwicklung ging dann deutlich verhaltener vonstatten. Erst Ende der 1970er Jahre wurde der erste Effekt entdeckt, den man heute als den Beginn der Starkfeld-Laserphysik betrachtet: Atome können mehr Photonen absorbieren als zu ihrer Ionisation notwendig [2]. Der Effekt erhielt den eher unglücklich gewählten Namen Above-threshold Ionisation (ATI). Wenige Jahre später waren die Intensitäten durch Verkürzung der Pulsdauer um eine Größenordnung in den Bereich von 10^{14} W/cm² gestiegen. Damit wurden Phänomene sichtbar, die unverkennbar *nicht* durch störungstheoretische Ansätze beschrieben werden können. Die bekanntesten dieser Phänomene sind die Plateaus in den Spektren hoher Harmonischer (HHG) [3] und von ATI-Photoelektronen [4].

Für die theoretische Beschreibung der neuen Phänomene setzte sich, neben dem rein numerischen Lösen der zeitabhängigen Schrödingergleichung [5], die sogenannte Starkfeld-Approximation (SFA) durch [6, 7, 8]. Ihre Anfänge, begründet von L. Keldysh [9],

reichen bis in die Anfangstage des Lasers zurück. Mitte der 1990er Jahre formulierte M. Lewenstein die zwischenzeitlich durch viele Wissenschaftler erweiterte und verfeinerte Theorie neu und verlieh damit einer insbesondere unter den Experimentatoren populären simplen Theorie ein theoretisches Fundament [10]. Diese simple Theorie [11, 12, 13, 14] reduziert die Atome auf Elektronenquellen, die zu einer bestimmten Phase des Laserfeldes Elektronen ins Feld abgeben. Die sich entwickelnden Elektronen-Trajektorien werden zumeist rein klassisch und unter Vernachlässigung des atomaren Potentials betrachtet.

Die erstaunliche Vorhersagekraft dieses an und für sich trivialen theoretischen Modells hat im Laufe der Zeit dazu geführt, dass den inhärenten Annahmen des Modells immer stärker eine physikalische Relevanz zugesprochen wurde. Beispielsweise erhält man die höchsten Photoelektronenenergien für solche Elektronentrajektorien, die kurz nach einem Feldmaximum starten, etwa einem Dreiviertel-Zyklus später zum Kern zurückkehren, dort um 180° streuen und dann vom Laserfeld weiter beschleunigt werden [15]. Wenn man diese Modelle wirklich ernst nimmt, impliziert dies, dass die elektronische Dynamik mit Sub-Zyklen-Auflösung, also mit Attosekunden-Auflösung, analysiert wird. Die Starkfeld-Laserphysik hat sich auf diesem Wege, aber auch durch die Attosekunden-Pulserzeugung mittels HHG [16, 17, 18], in die Attosekunden-Laserphysik weiterentwickelt.

Das Paradigma, elektronische Dynamik innerhalb eines optischen Zyklus' zu betrachten, ist langfristig nur dann tragfähig, wenn Laserpulse erzeugt werden, bei denen sich die Wechselwirkung mit der Materie auf einen oder höchstens zwei optische Zyklen beschränkt. Im konzeptionell einfachsten Fall verwendet man entsprechend Laserpulse, die nur aus weniger als zwei optischen Zyklen bestehen, sogenannte Einzelzyklen- oder few-cycle-Pulse. Möglich geworden ist die Erzeugung derartig kurzer Pulse durch einen genial einfachen Aufbau von Nisoli *et al.* im Jahre 1996/97 [19, 20].

Die Realität von Einzelzyklenpulsen brachte eine besondere Eigenschaft derselben auf die Tagesordnung: Je nach Phasenlage ihrer Trägerwelle im Bezug auf das Maximum der Pulseinhüllenden verändert sich der zeitliche Verlauf des Laserfeldes. Entsprechend

ist zu erwarten, dass die “absolute” oder carrier-envelope- (CE-) Phase der Laserpulse eine profunde Auswirkung auf die Elektronendynamik in Atomen oder Molekülen hat, die von Einzelzyklenpulsen initiiert wird. Die präzise Messung der absoluten Phase ist daher von entscheidender Bedeutung in der Attosekunden-Laserphysik. Die wichtigsten Entwicklungen in dieser Hinsicht waren das von Hänsch erfundene f -to- $2f$ -Interferometer [21] und das von Paulus eingeführte Stereo-ATI-Verfahren [22].

Die aus der Atomphysik gewonnenen Erkenntnisse in der Attosekunden-Laserphysik wurden selbstverständlich auch für die Molekülphysik relevant. 1988 begann die Erforschung fundamentaler photochemischer Prozesse mit intensiver Laserstrahlung, indem beispielsweise verschiedene Reaktionswege für die Photoionisation und Photodissoziation an H_2 gezeigt wurden [23].

Durch die Verkürzung der Laserpulsdauer und Vergrößerung der Laserintensitäten konnten weitere Experimente durchgeführt werden, um z.B. die mögliche Besetzungsverteilung der verschiedenen Vibrationszustände von H_2^+ mit Hilfe von Photodissoziation darzustellen [24].

Vergleichbar zu der Entwicklung bei Experimenten mit Atomen können diese Prozesse nun ebenfalls mit Hilfe von Einzelzyklenpulsen sensitiv auf die absolute Phase und damit auf subfemtosekunden Zeitskalen untersucht werden. Erste Experimente dazu wurden im Jahr 2006 [25] und 2010 [26] mit neutralem H_2 und D_2 Molekülen durchgeführt. Das Interesse dieser Experimente galt der Frage nach der Elektronenlokalisation bei der Photodissoziation, also welches der beiden Protonen das Elektron nach der Dissoziation behält. Diese Frage konnte aber mit diesen Experimenten nicht endgültig geklärt werden, da der zu untersuchende Dissoziationsprozess mit dem vorangehenden Ionisationsschritt kohärent verbunden ist, der Dissoziationsschritt also durch den Ionisationsschritt initiiert wird. Es ist also wünschenswert, den Dissoziationsschritt von anderen Prozessen getrennt zu untersuchen.

Des Weiteren musste bei diesen Experimenten die absolute Phase der Laserpulse stabilisiert werden. Dies stellt eine besondere Herausforderung an das Lasersystem dar.

Zum einen kann die absolute Phase solcher Systeme nur auf einige 100 mrad ($> 20^\circ$) pro Einzelschuss stabilisiert werden. Zum anderen reagiert eine Phasenstabilisierung äußerst empfindlich auf Änderungen der Umgebung, wodurch die mögliche Dauer dieser Messungen auf nur einige Stunden beschränkt wird.

Damit ist die Ausgangslage dieser Arbeit abgesteckt: Ihr Ziel ist, die Wechselwirkung intensiver Einzelzyklenpulse mit dem einfachsten aller Moleküle, dem Wasserstoffmolekül-Ion H_2^+ , zu studieren. Insbesondere wird die oben besprochene Elektronenlokalisierung abhängig von der absoluten Phase untersucht werden. Gewissermaßen wird die einfachste denkbare photochemische Reaktion realisiert und studiert – die Photodissoziation des Einelektronen-Moleküls H_2^+ durch im Wesentlichen einen einzelnen optischen Zyklus. Es stellt sich heraus, dass die Elektronenlokalisierung durch die absolute Phase des Lasers stark beeinflusst werden kann. Insofern ist das Experiment auch als das einfachste denkbare Szenario der kohärenten Steuerung chemischer Reaktionen zu betrachten.

Dazu wurde im Rahmen dieser Arbeit eine Ionenstrahlanlage konzipiert, aufgebaut und in Betrieb genommen, um einen kollimierten Ionenstrahl mit den einfachsten Molekülen H_2^+ und D_2^+ zu erzeugen. Dieser Ionenstrahl wird mit dem Fokus eines Einzelzyklenpulses überlagert, die H_2^+ -Moleküle dissoziiert und alle Dissoziationsfragmente detektiert. Da diese Effekte durch die absolute Phase des Laserfeldes bei der Verwendung von ultrakurzen Laserpulsen gesteuert werden, wird eine zusätzliche Messeinheit parallel zum Ionenstrahl benötigt, die die absolute Phase des jeweiligen Laserpulses für jeden einzelnen Laserpuls in Echtzeit registriert. Dazu wurde ein Phasenmeter weiterentwickelt, um eine genauere und zeitgleiche Messung und Auswertung der absoluten Phase zu erreichen und eine Stabilisierung der absoluten Phase im Lasersystem umgehen zu können [27].

Die Arbeit gliedert sich wie folgt: Nach einem kurzen Überblick über vorangegangene einschlägige Arbeiten zu H_2^+ wird im zweiten Kapitel das derzeitige Verständnis der Photodissoziation durch intensive Laserpulse erläutert. Kapitel 3 gibt dann einen

Überblick über den experimentellen Aufbau, dessen neuartige Bestandteile in folgenden Kapiteln näher beschrieben werden. In Kapitel 4 werden einige Durchbrüche beschrieben, die bezüglich der Messung der absoluten Phase mittels eines ATI-Phasenmeters erzielt wurden. Das folgende Kapitel behandelt die Ionenstrahlapparatur, mit der H_2^+ präpariert, der Laserstrahlung ausgesetzt und die Dissoziationsprodukte hochdifferenziell nachgewiesen werden. Die entsprechenden Messungen und ihre Interpretation werden abschließend in Kapitel 6 vorgestellt.

Kapitel 2

Photodissoziation in starken Laserfeldern

Nachdem vor nunmehr über 30 Jahren die Starkfeld-Laserphysik durch die Entdeckung ihres ersten charakteristischen Effektes in Form der Above-threshold Ionisation (ATI) aus der Taufe gehoben worden war [2], richtete sich das Interesse bald auch auf die Wechselwirkung intensiver Laserfelder mit Molekülen. Durch die Bereitstellung immer kürzerer Laserpulse ist es heute möglich, die Dissoziationsdynamik zeitlich aufzulösen und diesen Prozess in gewissem Grade sogar von außen zu steuern. Beispielsweise kann die Dynamik des Elektrons vor der Dissoziation durch Einzelzyklenpulse so beeinflusst werden, dass sich bei bestimmten zeitlichen Verläufen des elektrischen Feldes des Lasers das Elektron bevorzugt mit einem bestimmten Molekülfragment verbindet. Die dabei ablaufenden Prozesse sind zum Teil sehr verwickelt und hoch komplex. Deshalb wird für die theoretische Modellierung gerne das einfachste aller Moleküle, das Wasserstoffmolekül H_2^+ und seine Isotope D_2^+ und HD^+ , verwendet [25]. Damit werden die Herausforderungen teilweise auf das Experiment übertragen, da die Darstellung dieses Moleküls und das experimentelle Studium seiner Wechselwirkung mit intensiven Einzelzyklenpulsen ebenfalls hoch komplex ist.

2.1 Neutrale versus geladene Moleküle

Starkfeld-Dissoziationsexperimente wurden zuerst mit ungeladenen Molekülen und vergleichsweise langen Laserpulsen durchgeführt, s. beispielsweise [23, 28, 29]. Die dabei gewonnen Erkenntnisse wurden später mit positiv geladenen Molekülen von Williams et al. [30, 31] und von Figger et al. [24, 32, 33, 34] überprüft und verfeinert. Ab 2005 ist an der Kansas State University von I. Ben-Itzhak ebenfalls eine Ionenstrahlapparatur in Betrieb genommen worden, mit der erstmals geladenen Moleküle mit 45 fs Pulsen und ultrakurzen Laserpulsen (7 fs) untersucht wurden [35, 36, 37].

Im Folgenden sollen die wichtigsten Unterschiede in den experimentellen Techniken und der Interpretation der Messergebnisse, die sich aus der Verwendung neutraler und ionisierter Moleküle ergeben, herausgearbeitet werden. Dies wird beispielhaft mit H_2 Molekülen geschehen. Die Überlegungen gelten aber auch für D_2 und HD Moleküle.

Neutrale Moleküle: Als Stand der Technik bei der Untersuchung des Verhaltens neutraler Moleküle in starken Laserfeldern sind heute die sogenannte „cold target recoil ion momentum spectroscopy“- (COLTRIMS-) Apparaturen zu betrachten [38, 39, 40]. Im Idealfall erlauben sie eine vollständige Rekonstruktion der Kinematik der im Laserfeld erfolgten Reaktion. Dazu wird mit Hilfe eines Überschallgasjets ein kalter Molekülstrahl hergestellt (Gasdichte: 10^{11} Moleküle/ cm^3), der dann vom Laserstrahl gekreuzt wird. Die Moleküle weisen eine sehr geringe Vibrationsanregung auf und befinden sich deshalb nicht nur im elektronischen, sondern auch im Vibrations-Grundzustand. Die Wechselwirkung mit dem Laserfeld kann in zwei Schritte zerlegt werden. (i) Zunächst wird durch Photoionisation ein Elektron entfernt, z.B. $\text{H}_2 \rightarrow \text{H}_2^+ + e^-$. Damit geht ein elektronischer Übergang des molekularen Wellenpakets auf ein H_2^+ -Potential einher. Infolge dessen starten alle weiteren Prozesse mit einem kohärenten Wellenpaket im H_2^+ -Potential. (ii) Bei der nun folgenden Dissoziation des H_2^+ -Moleküls ist die Besetzungsverteilung der Vibrationszustände ebenso zu berücksichtigen wie ihre zeitliche Kohärenz. Erstere kann qualitativ mit Hilfe der Frank-Condon Verteilung

abgeschätzt werden, ist aber experimentell schwierig zu verifizieren [41, 42, 43].

Da das Molekül vor der Dissoziation ionisiert werden muss, werden einerseits höhere Laserintensitäten benötigt, als für eine reine Dissoziation notwendig wären. Dies begrenzt den Parameterraum der Intensitäten, die im Experiment verwendet werden können. Andererseits kann das Photoelektron durch das starke Laserfeld zum Molekül zurückgetrieben werden. Solche Elektronen sind in der Starkfeld-Laserphysik für eine ganze Reihe charakteristischer Effekte verantwortlich, insbesondere auch für die Plateaustrukturen in den Spektren hoher Harmonischer und der ATI. Bei Molekülen sind diese Elektronen für einen eigenen Dissoziationskanal verantwortlich. Die bemerkenswerte Empfindlichkeit zurückkehrender Elektronen auf den zeitlichen Verlauf des Laserfeldes erlaubt eine Steuerung dieses Dissoziationskanals durch Einzelzyklenpulse mit passend gewählter absoluter Phase [25]. Gleichzeitig wird unter diesen Umständen auch der Dissoziationszeitpunkt determiniert.

Die experimentelle Analyse dieser Vorgänge erfolgt dadurch, dass nach der Wechselwirkung des Lasers mit den Molekülen alle geladenen Dissoziationsprodukte durch elektrische und magnetische Felder zu Detektoren gelenkt werden. Diese müssen die Fähigkeit besitzen, sowohl den Zeitpunkt wie auch den Ort des Eintreffens der Fragmente auf den Detektor zu messen, so dass deren Impuls vollständig rekonstruiert werden kann. Aufgrund der geringen kinetischen Energie der Fragmente werden mit dieser Technik in der Regel nur die geladenen Dissoziationsprodukte wie z.B. H^+ und e^- detektiert, nicht aber das neutral geladene H bei einer beispielhaften Reaktion von $H_2 \rightarrow H_2^+ + e^- \rightarrow H + p^+ + e^-$.

Geladene Moleküle: Zur Untersuchung positiv geladener Moleküle werden typischerweise Ionenstrahlanlagen verwendet [24, 30, 33, 36]. Ihre detaillierte technische Realisierung wird in Kapitel 5 beschrieben. Das (elektrisch neutrale) Gas wird in eine Quellenkammer geleitet und dort beispielsweise durch eine Hochspannungsentladung ionisiert. Danach werden die ionisierten Moleküle mit einigen Kilovolt aus der Quelle heraus beschleunigt und in die Interaktionszone geführt. Durch die Flugzeit von

nur wenigen Mikrosekunden entspricht die Verteilung der Vibrationszustände derjenigen in der Quelle. Die Vibrationszustände sind aber untereinander nicht kohärent. Da die Elektronenstoßionisation der bei weitem dominierende Prozess bei der Erzeugung von H_2^+ ist, kann die Besetzungswahrscheinlichkeit der Vibrationszustände mittels der Franck-Condon-Verteilung bestimmt werden [44].

Im Interaktionsbereich wird der Ionenstrahl mit der Laserstrahlung überlagert. Nachdem mit bereits geladenen Molekülen begonnen wird, entfällt der für neutrale Moleküle notwendige Ionisationsschritt und die Dissoziation findet unmittelbar statt. Dadurch fehlt einerseits das Elektron, das durch die Rückkehr zum Ursprungskern den Dissoziationsprozess beeinflussen kann, während andererseits die Dissoziation bereits bei vergleichsweise geringeren Intensitäten untersucht werden kann. Insgesamt hat man einen deutlich besser definierten Anfangszustand und, durch das fehlende zweite Elektron, ein weniger komplexes Untersuchungsobjekt.

Nach der Wechselwirkung mit der Laserstrahlung durchlaufen die Moleküle eine ca. 1 m lange Flugstrecke, bis sie auf einem orts- und zeitauflösenden Detektor registriert werden. Wie bei COLTRIMS-Experimenten auch, werden in aller Regel Mikrokanalplatten (MCPs) verwendet, so dass der Fragment-Nachweis auf Stoßionisation mit anschließender Sekundärelektronenvervielfachung beruht. Aufgrund der hohen Teilchenenergie des Ionenstrahls werden in Ionenstrahl-Experimenten auch die neutral geladenen Dissoziationsprodukte registriert. Durch Messung der Flugzeit und durch die Bestimmung des Auftreffpunktes auf dem Detektor können die Impulse in alle drei Raumrichtungen für sämtliche Dissoziationsprodukte berechnet werden.

Diesen günstigen experimentellen Umständen steht eine, selbst im Vergleich zu COLTRIMS-Experimenten, sehr geringe Teilchendichte gegenüber, welche mit folgender Gleichung abgeschätzt werden kann:

$$\rho = \frac{I}{A q_{\text{Ion}}} \sqrt{\frac{m}{2 E_{\text{Strahl}}}} . \quad (2.1)$$

Dabei ist $I \simeq 7 \text{ nA}$ der Ionenstrom, $A \simeq 0,5 \times 0,5 \text{ mm}^2$ die Fläche des Ionenstrahls, q_{Ion} die Ladung der Ionen, m die Ionenmasse und $E_{\text{Strahl}} \simeq 8 \text{ keV}$ die kinetische Ener-

gie des Ionenstrahls. Eine typische Dichte für H_2^+ Moleküle liegt also bei $\rho \simeq 2 \times 10^5$ Moleküle/cm³. Raumladungseffekte von einigen $\mu\text{eV}/\mu\text{s}$ sind bei diesen geringen Dichten trotz der langen Flugdauern (einige μs) zu vernachlässigen [36].

2.2 Kinetic-energy-release (KER) -Spektren

Die detailliertesten Informationen über unterschiedliche Dissoziationsmechanismen und die Dynamik der Dissoziation gewinnt man über die Spektroskopie der kinetischen Energie E_{KER} der Dissoziationsfragmente. Im Falle des H_2^+ -Moleküls betrachtet man demzufolge die Bilanz



Mit der oben skizzierten und in Kap. 5 eingehend beschriebenen Apparatur ist E_{KER} sehr einfach messbar: Als einfachsten Fall betrachte man ein Molekül, dessen Achse senkrecht auf der Ionenstrahlflugrichtung und damit parallel zur Detektorfläche steht. Je größer die Entfernung der Auftreffpunkte der beiden Fragmente auf dem Detektor, desto größer war die kinetische Energie, die die Fragmente bei der Dissoziation gewonnen haben. Bei beliebiger Ausrichtung des Moleküls ist der raum-zeitliche Abstand der Fragmente auf dem Detektor maßgeblich. Aus dem Abstand der Fragmente, zusammen mit der bekannten Flugzeit T_G und Flugstrecke vom Wechselwirkungspunkt zum Detektor, kann E_{KER} trivial berechnet werden (siehe Abbildung 2.1).

Ebenso offensichtlich ist, dass aus den raum-zeitlichen Auftreffpunkten auf dem Detektor die räumliche Ausrichtung des Moleküls zum Zeitpunkt der Dissoziation rekonstruiert werden kann. Bei linearer Laserpolarisation, wie sie in dieser Arbeit verwendet wird, spielt aus Symmetriegründen nur der Winkel θ zwischen Molekülachse und Laserpolarisation eine Rolle. Damit wird jedes Dissoziationsereignis durch die beiden Größen E_{KER} und θ charakterisiert. In Folge dessen erhält man eine zweidimensionale differentielle Dissoziationsrate $R(E_{\text{KER}}, \theta)$, die man beispielsweise mit einer Falschfarbendarstellung visualisieren kann (siehe Abbildung 2.2).

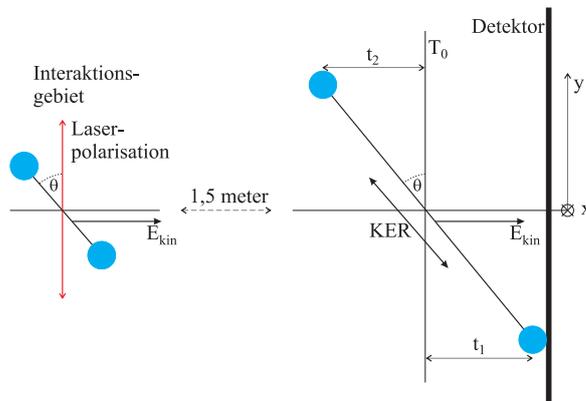


Abbildung 2.1: Schematische Darstellung der Molekülausrichtung im Verhältnis zur Laserpolarisation und Detektor. θ beschreibt den Winkel der Molekülachse zur Laserpolarisation. Das Molekül bewegt sich mit der kinetischen Energie E_{kin} in Richtung des Detektors, der sich in einer Entfernung von 1,5 m befindet. Am Detektor werden die Ankunftszeit $T_G = T_0 + t_{1,2}$, und die Positionskoordinaten x und y gemessen. Aus diesen Werten kann E_{KER} und θ einfach berechnet werden.

Die Skalierung der Achsen erfolgt zweckmäßigerweise so, dass triviale geometrische Effekte nicht das Aussehen der Graphik dominieren. Dies betrifft insbesondere die Tatsache, dass die Verteilungsfunktion von θ bei einer zufälligen räumlichen Ausrichtung der Moleküle proportional zu $\sin \theta$ ist: Es gibt wesentlich mehr Moleküle, deren Molekülachse senkrecht auf der Polarisation steht als solche, die parallel ausgerichtet sind (Projektion einer Halbkugel auf eine ebene Fläche). Um diesen Effekt zu eliminieren, sortiert man die Ereignisse in äquidistante Intervalle („Bins“) von $\cos \theta$. Ein Beispiel ist in Abb. 2.2 a dargestellt. Sie zeigt die Dissoziation von H_2^+ mit einem 4,5 fs langen Puls bei einer Spitzenintensität von 4×10^{14} Watt/cm².

Man erkennt, dass es trotz der Auftragung der Ereignisse über $\cos \theta$ keine isotrope Verteilung in θ -Richtung gibt. Vielmehr ist die Dissoziationswahrscheinlichkeit von Molekülen, die parallel zur Polarisation ausgerichtet sind, deutlich höher als für Moleküle mit größerem θ .

In erster Näherung kann dies dadurch erklärt werden, dass für die Dissoziation nur die Komponente des Laserfeldes wirksam wird, die parallel zur Molekülachse steht. Wenn R linear von der Intensität abhängt, wird R mit $\cos^2 \theta$ abfallen. Dieser und der zuvor diskutierte Effekt kann dadurch kompensiert werden, dass man R über $\cos^3 \theta$ aufträgt, wie dies in Abb. 2.2 b für dieselben Messdaten wie die von Abb. 2.2 a geschehen ist.

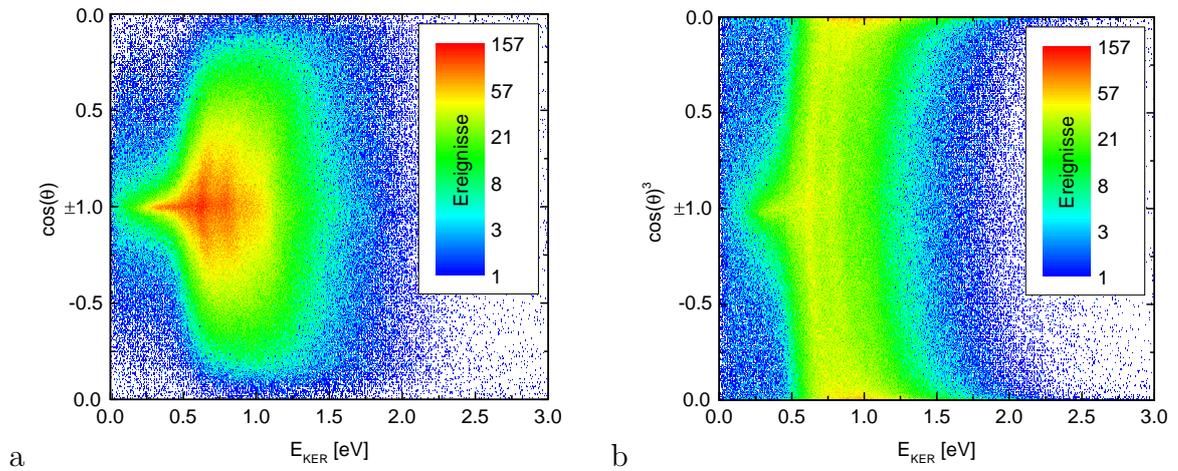


Abbildung 2.2: Konturdarstellung der Dissoziationsereignisse über den Winkel θ und E_{KER} . Zur Korrektur trivialer geometrischer Effekte wird in (a) der $\cos(\theta)$ und in (b) der $\cos(\theta)^3$ aufgetragen (siehe Text für Details). Die sichtbaren Strukturen in dem Energiebereich zwischen 0,5 – 1,0 eV sind nicht die Vibrationszustände des Moleküls, sondern entstehen durch das nicht gaußförmige Laserspektrum.

Tatsächlich ist eine fast isotrope Verteilung in dem Energiebereich von 0,6 eV bis 1,4 eV zu erkennen. Dieses Verhalten kann als *scheinbare* Ausrichtung beschrieben werden, da die Moleküle nicht dynamisch durch das Laserfeld ausgerichtet werden, sondern sich mit einer isotropen Ausrichtungsverteilung im Ionenstrahl befinden¹. Im Gegensatz dazu gibt es noch die dynamische Ausrichtungen der Moleküle in einem Laserfeld. Diese Prozesse verlaufen über deutlich längere Zeiträume als die hier verwendeten ultrakurzen Laserpulse, sodass sie nicht weiter beschrieben werden.

Im Gebiet unterhalb von 0,6 eV gibt es trotz der Korrektur der geometrischen Ausrichtung immer noch ein Maximum in der Mitte ($\theta = 0^\circ$) des Graphen, das auf Effekte zurückzuführen ist, die in Abschnitt 2.4 beschrieben werden.

¹In der Literatur wird dieser Effekt häufig geometrische Ausrichtung genannt

2.3 Theoretische Beschreibung von Molekülen im Laserfeld

2.3.1 1- und 3-Photonen-Dissoziation

Im Rahmen der Born-Oppenheimer-Approximation zeichnet sich H_2^+ durch eine besonders einfache Struktur seiner elektronischen Zustände aus. Bei den hier vorliegenden experimentellen Bedingungen sind nur der Grundzustand $|1s\sigma_g\rangle$ und der angeregte Zustand $|2p\sigma_u\rangle$ von Bedeutung, da alle weiteren Zustände energetisch sehr weit über dem Grundzustand liegen. Die Potentialkurven dieser beiden Zustände sind in Abb. 2.3 a zu sehen. Dissoziation entsteht in diesem Beispiel durch den Übergang $|1s\sigma_g\rangle \rightarrow |2p\sigma_u\rangle$. Aus Symmetriegründen sind resonante Übergänge nur mit Absorption einer ungeraden Anzahl von Photonen erlaubt. Bei 700 nm Laserwellenlänge ist für die 1-Photonen-Dissoziation das $\nu = 9$ Vibrationsniveau resonant und wird bei gleicher Besetzung der Vibrationsniveaus am wahrscheinlichsten dissoziiert. Die 3-Photonen-Dissoziation ist hingegen für $\nu = 3$ resonant. Die Besetzungszahlverteilung der Vibrationsniveaus ist damit von entscheidender Bedeutung für die relative Stärke der 1- und 3-Photonen-Dissoziation.

Die beiden bisher diskutierten Dissoziationsprozesse führen zu deutlich verschiedenen E_{KER} und können daher anhand der E_{KER} -Spektren experimentell identifiziert werden. Beim 1-Photonenprozess, der bereits bei Intensitäten von $< 10^{12} \text{ W/cm}^2$ zu beobachten ist, erhält man ca. 0.8 eV, beim 3-Photonenprozess bei deutlich höheren Intensitäten 3,0 eV, wie Abb. 2.3 a entnommen werden kann. Im ersten Fall wird dabei, wie gesagt, vorzugsweise das $\nu = 9$ Vibrationsniveau und im zweiten Fall Vibrationsniveaus nahe des Grundzustandes dissoziiert. Da bei diesem 3-Photonenprozess mehr als ein Photon zur Dissoziation beiträgt und die Fragmente eine umso größere E_{KER} besitzen, werden diese Prozesse auch „Above-threshold Dissoziation“ (ATD) genannt (analog zur Above-threshold Ionisation) [28, 45, 46].

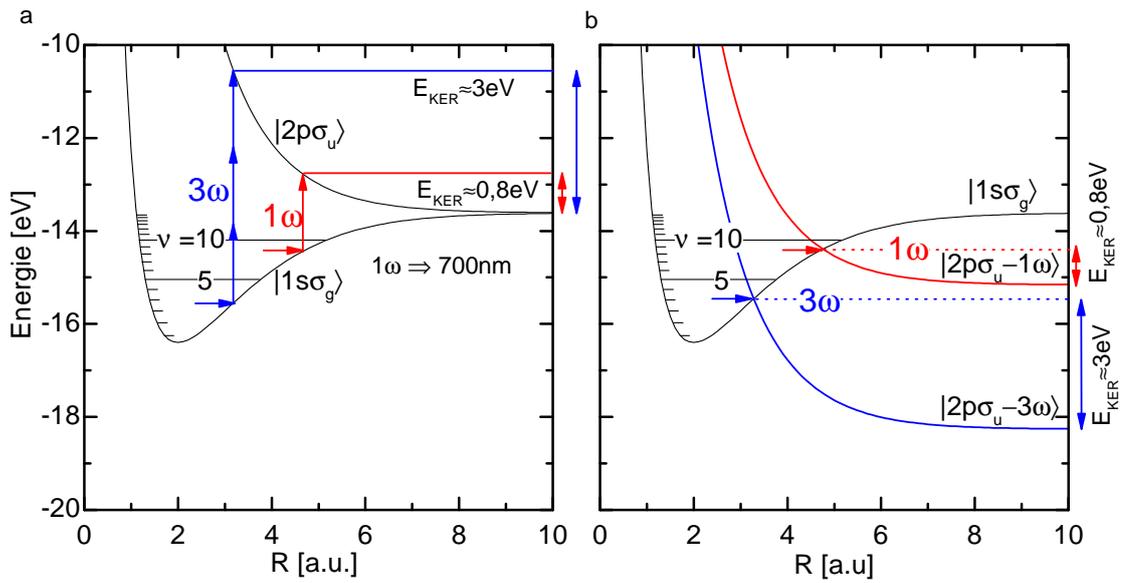


Abbildung 2.3: a, Darstellung der 1- und 3-Photonen Dissoziation. Ein Übergang vom $1s\sigma_g$ in das $2p\sigma_u$ Potential ist nur bei einer Energiedifferenz von einem ungeraden ganzzahligen Vielfachen der Photonenenergie aus Symmetriegründen möglich. b, Darstellung im Floquet-Modell. Das $2p\sigma_u$ Potential wird um die einfache (rote Kurve) oder dreifache (blaue Kurve) Photonenenergie nach unten verschoben. An den Schnittpunkten ist die Dissoziation möglich. Die E_{KER} errechnet sich aus der Differenz der Schnittpunkte und der asymptotischen Energie für $R \rightarrow \infty$.

2.3.2 Das „dressed-molecule-“ oder Floquet-Modell

Eine alternative Beschreibung für die 1- und 3-Photonen-Dissoziation ist das aus der Quantenoptik bekannte Floquet-Modell. Es bildet zugleich die Basis für die Erklärung weiterer Effekte. Während die bisher gezeigten Potentialkurven die Lösungen der *feldfreien* Hamiltonfunktion des Moleküls im Rahmen der Born-Oppenheimer-Approximation darstellen, wird im Floquet-Bild das Laserfeld Bestandteil der Hamiltonfunktion; das Molekül wird mit dem Laserfeld sozusagen bekleidet, daher auch die Bezeichnung „dressed-molecule“. Im Sinne der Lösbarkeit der Gleichungen und Interpretierbarkeit der Resultate wird das Laserfeld in aller Regel als eine monochromatische Oszillation approximiert. Es wird also davon ausgegangen, dass die Existenz des Laserfeldes länger als die Dauer der molekularen Prozesse ist. Mit stetig kürzer werdenden Laserpulsen wird diese Approximation und damit der gesamte Floquet-Ansatz zunehmend fragwürdiger. Nach wie vor ist er jedoch, zumindest in der qualitativen Erklärung vieler beobachteter Effekte, auch bei sehr kurzen Pulsen (≈ 10 fs) erfolgreich.

Wie im Fall des Atoms hat auch beim Molekül die Berücksichtigung des oszillierenden Laserfeldes in der Hamiltonfunktion die Folge, dass jeder feldfreie Zustand in eine Mannigfaltigkeit an Zuständen überführt wird, wobei die neuen Zustände gegenüber den ursprünglichen um ein ganzzahliges Vielfaches n der Photonenenergie verschoben sind. Die Verschiebung entspricht der Absorption bzw. Emission von Photonen aus dem bzw. in das Laserfeld. Beispielsweise korrespondiert die blaue Potentialkurve in Abb. 2.3 b zu einer Absorption von 3 Photonen aus dem Laserfeld. Deshalb wird dieser Zustand auch mit $|2p\sigma_u - 3\omega\rangle$ bezeichnet.

Resonante Übergänge zwischen den Floquet-Zuständen finden genau dort statt, an denen sich Potentialkurven mit nicht-verschwindendem Dipolmatrixelement schneiden. Am Schnittpunkt kann ein Wellenpaket von der $|1s\sigma_g\rangle$ - auf die $|2p\sigma_u - n\omega\rangle$ -Potentialkurve wechseln. Offensichtlich erhalten die Fragmente eine Energie, die gleich der Differenz der beiden Energien ist, bei der der Kurvenschnittpunkt liegt und der asymptotischen Energie für $R \rightarrow \infty$. Ebenso evident ist, dass sich die Vorhersagen für E_{KER}

aus dem vorangegangenen Modell und aus dem Floquet-Modell nicht unterscheiden. Der entscheidende Vorteil des Floquet-Bildes ist, dass die Kopplung der Molekülzustände sehr anschaulich beschreibbar ist. Wie aus der Quantenoptik bekannt, bildet sich an Niveau-Kreuzungen eine vermiedene Kreuzung („avoided crossing“), wenn eine nicht-verschwindende Kopplung zwischen den Niveaus besteht, wie das hier für eine ungeradzahlige Absorption von Photonen der Fall ist.

2.4 Dissoziations Prozesse

2.4.1 Bond-softening und -hardening

Die Abbildung 2.4 zeigt avoided crossings für die 1-Photonendissoziation von H_2^+ . Die Stärke der Kreuzungsvermeidung, also die Energielücke zwischen den beiden „gedrehten“ Potentialkurven ist proportional zur Kopplung der beiden Niveaus und hängt damit von der Intensität des Laserfeldes ab – je höher das Laserfeld, desto größer die Energielücke (blaue bis rote Kurve). Damit wird sofort klar, dass nun nicht nur der Vi-

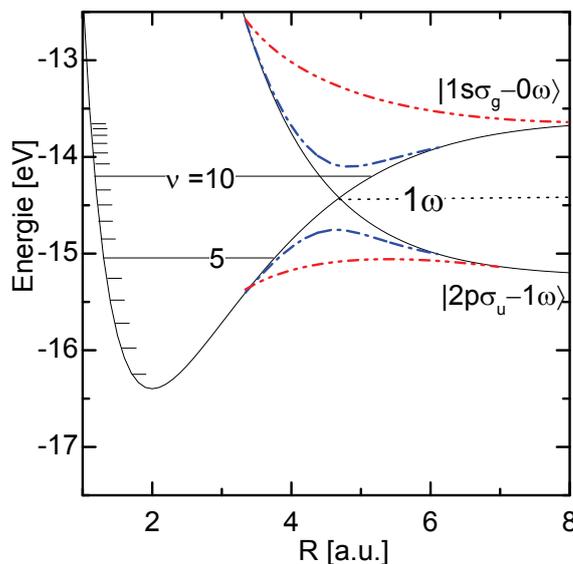


Abbildung 2.4: Dargestellt wird Bond-softening, hardening und slopping für den 1-Photonenübergang. Die unteren (oberen) blauen und roten Kurven stellen Bond-softening (Bond-hardening) dar. Durch die Kopplung öffnet sich eine Energielücke und weitere Vibrationszustände können dissoziieren (Bond-softening). Während die Bond-hardening Kurve (obere blaue Kurve) bindende Potentiale erzeugt, werden bei noch höherer Intensität (obere rote Kurve) die Potentialkurven so verformt, dass der bindende Charakter verloren geht. Die ursprünglich in den gebundenen Zuständen befindliche Population wird also dissoziieren (Bond-Slopping).

brationszustand $\nu = 9$ dissoziieren kann, sondern auch weitere Zustände mit größeren und kleineren Vibrationszahlen. Es hat also den Anschein, als wäre durch die Wechselwirkung des Moleküls mit dem Laser die molekulare Bindung aufgeweicht worden. Entsprechend hat der Effekt den Namen „bond softening“ erhalten. In den KER-Spektren zeigt er sich durch eine Verteilung, die sich deutlich über einen wohldefinierten Energiebereich bei 0.8 eV, wie ursprünglich vorhergesagt, hinaus erstreckt. Die Breite dieser Verteilung vergrößert sich mit zunehmender Laserintensität. Aufgrund der höheren Besetzung der niedrigeren Vibrationszustände erweitert sich das Energiespektrum nicht symmetrisch um die resonanten Übergänge. Vielmehr verschiebt sich das Maximum zu kleineren Energien und bildet dort eine markante Spitze; mehr dazu im nächsten Abschnitt. Bildet man die Differenz zwischen E_{KER} -Spektren, die durch verschiedene Laserintensitäten erzeugt wurden, kann gezeigt werden, dass diese Spitze nur durch die größeren Intensitäten hervorgerufen wird [35]. Für die 3-Photonen-Dissoziation gilt Analoges.

Als irreführend kann die Bezeichnung Bond-softening empfunden werden, weil sie mit ihrem Gegenteil, dem „bond hardening“ einhergeht. Wie in Abb. 2.4 zu sehen, bildet sich oberhalb der Energielücke ein bindendes Potential, ein wannenförmiger „Potentialtopf“. In diesem lichtinduzierten Potential wird die Besetzung aus den Vibrationsniveaus $\nu > 11$ eingefangen, also mit zunehmender Intensität zumindest zunächst stärker gebunden, was die Dissoziationswahrscheinlichkeit herabsetzt.

2.4.2 „Bond-slopping“ oder Netto-0-Photonen-Dissoziation

Die Erklärung der 0-Photonen-Dissoziation schließt sich direkt an das soeben diskutierte Modell des Bond-hardening an. Wir hatten festgestellt, dass die Population in den hohen Vibrationsniveaus ($\nu > 11$) durch das lichtinduzierte Potential stärker gebunden wird. Durch die Erzeugung der H_2^+ Moleküle mit Hilfe einer Hochspannungsentladung ist diese Population nicht zu vernachlässigen. Wenn nun die Intensität noch weiter gesteigert wird, wird die Energielücke schließlich so groß, dass das Potentialminimum

wieder verschwindet, siehe Abb. 2.4 (obere rote Kurve). Die bisher in diesem Potential gebundenen molekularen Zustände werden also zu dissoziierenden Zuständen. Wenn wir den oben mit Bedacht gewählten Begriff eines wannenförmigen Potentialtopfes aufgreifen, können wir für diesen Effekt die griffige Formulierung finden, dass die bisher gefangene Population ausgeschüttet wird (bond-slopping). Charakteristisch für den Effekt ist die sehr geringe KER, die durch das allmähliche Verschieben des Niveaus nach oben mit anschließender Öffnung des Potentialtopfes zustande kommt. In Abbildung 2.2 b erscheint dieser Effekt in Form einer kleinen Spitze in der Zählrate bei $\cos(\theta)=1$ und einer Energie unter 0,6 eV [35]. Da dieser Prozess ohne Netto-Absorption von Photonen einhergeht, wird er auch gerne Netto-0-Photonen-Dissoziation genannt.

2.4.3 Doppel- und multiresonante Prozesse

Ein weiterer Dissoziations-Mechanismus beruht auf dem sukzessiven Durchlaufen zweier oder mehrerer Kreuzungen von Potentialkurven. Da Potentialkurven-Kreuzungen resonante Vorgänge repräsentieren, spricht man in diesem Fall konsequenterweise von einer Doppel- oder Multiresonanz.

Bei H_2^+ und 700 nm Laserwellenlänge und hohen Laserintensitäten kann eine Kopplung zwischen den Floquet-Zuständen $|1s\sigma_g\rangle$ und $|2p\sigma_u - 3\omega\rangle$ sowie auch zwischen dem $|1s\sigma_g - 2\omega\rangle$ - und $|2p\sigma_u - 3\omega\rangle$ -Zustand hinreichend stark sein (siehe Abbildung 2.5 a). Damit öffnet sich ein Dissoziationskanal dergestalt, dass ein molekulares Wellenpaket zunächst wie bei der 3-Photonen-Dissoziation adiabatisch vom $|1s\sigma_g\rangle$ - auf den $|2p\sigma_u - 3\omega\rangle$ -Zustand wechselt. Dabei werden aus dem Laserfeld 3 Photonen absorbiert. Wenn sich nun der Kernabstand des Moleküls während der nun in Gang gesetzten Dissoziation von 3.2 a.u. auf 4.7 a.u. vergrößert hat, gerät das System erneut in Resonanz, diesmal mit dem $|1s\sigma_g - 2\omega\rangle$ -Zustand. Unter Abgabe eines Photons an das Laserfeld kann das Molekül dem adiabatischen Zustand weiter folgen, indem es in den $|1s\sigma_g - 2\omega\rangle$ -Zustand geht. Dieser Dissoziationsweg wird dann beispielsweise Netto-2-Photonen-Dissoziation genannt.

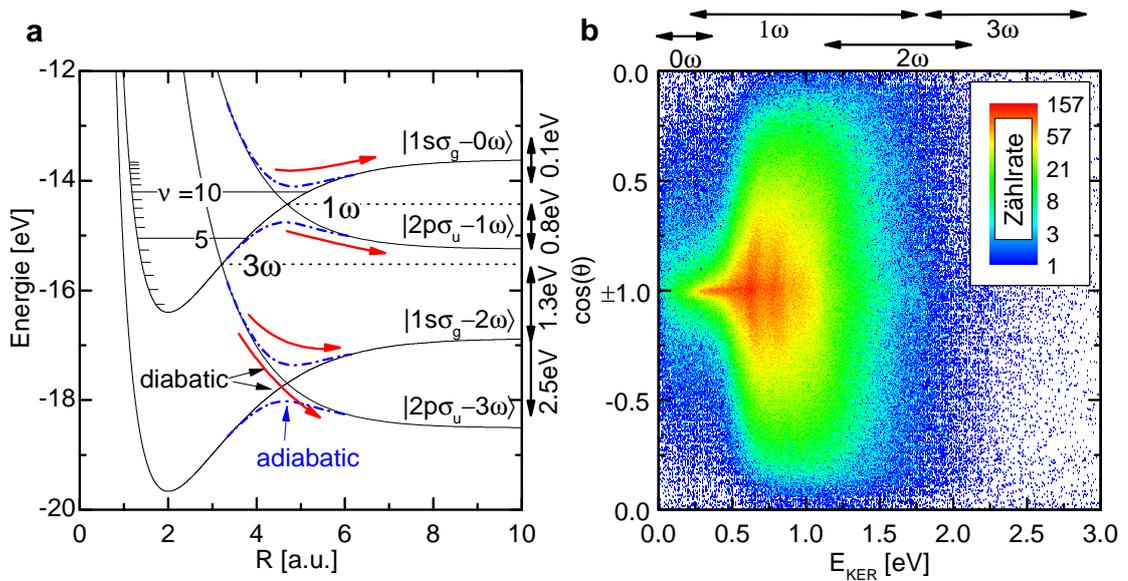


Abbildung 2.5: a, Darstellung der diabatischen und adiabatischen Dissoziationswege für H_2^+ bei 700 nm (rote Pfeile) für (netto) 0- bis 3-Photonen-Absorption für das $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ Potential. Diese Prozesse sind für die durchgeführten Messungen relevant. Durch die eingezeichneten Energielevel der Vibrationszustände werden die Dissoziationswege, die den verschiedenen Vibrationszuständen offen stehen, deutlich. Die zu erwartenden mittleren E_{KER} für die verschiedenen Dissoziationswege sind rechts eingezeichnet. b, Darstellung der Dissoziationszählrate für einen 4,5 fs langen Einzelzyklenpuls mit einer Intensität von $(4 \pm 2) \times 10^{14}$ Watt/cm², aufgelöst über den Orientierungswinkel θ des Moleküls und der E_{KER} . Zum besseren Verständnis sind die möglichen E_{KER} Bereiche der verschiedenen Dissoziationswege durch Pfeile oben markiert. Die feinen Strukturen im Energiebereich zwischen 0,5 und 1,2 eV sind nicht zu verwechseln mit den bekannten Strukturen durch die Vibrationsniveaus, sondern werden durch das nicht gaußförmige Laserspektrum hervorgerufen.

2.4.4 Zeitliche Dynamik der Prozesse

Bei der Starkfeld-Ionisation von Atomen spielen für gewöhnlich lediglich die optische Periodendauer T (ca. 2.5 fs bei 800 nm), die Pulsdauer (≤ 4 fs) und die Dauer von atomaren Prozessen eine Rolle. Letztere sind bei den bislang hauptsächlich betrachteten Atomen mit hoher Ionisationsenergie sehr kurz im Vergleich zu T . Dies ändert sich bei Molekülen grundlegend dadurch, dass mit der Vibrationsperiode des Moleküls eine weitere Zeitskala hinzukommt. Bei H_2^+ beträgt diese ca. 14 fs und ist damit relativ lang verglichen mit der optischen Periode. Allerdings ist es ohne Weiteres möglich, deutlich kürzere Laserpulse als diese Molekülschwingungsperiode zu erzeugen. In Abbildung 2.6 ist der zeitliche Verlauf der Elektronenaufenthaltswahrscheinlichkeit dargestellt. Zur Darstellung der Verteilung wird die zeitabhängige Schrödingergleichung voll quantenmechanisch gelöst und nur die lineare Kombination der atomaren Orbitalen verwendet, um die adiabatischen Wellenfunktionen des Elektrons darzustellen. Sehr deutlich ist das Mitschwingen des Elektrons mit dem Laserfeld zu erkennen. Diese Schwingung wird erst nach ca. 10 fs durch die wachsende Potentialbarriere blockiert und das Molekül bleibt daraufhin entweder gebunden oder es dissoziiert.

Ebenfalls berücksichtigt werden muss eine weitere Prozessdauer, die sich am Floquet-Modell sofort ablesen lässt: Wie aus der Atomphysik vertraut, entspricht der Abstand der $1s\sigma_g$ - und $2p\sigma_u$ -Niveaus der Rabi-Frequenz. Bei $1.5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ erhält man deshalb Rabi-Zykluszeiten von ca. 300 as. Das ist zehnmal kürzer als die optische Periode.

2.5 Dissoziation mit Einzelzyklenpulsen

Aufgrund der Weiterentwicklung der Lasersysteme ist es heutzutage möglich, intensive Einzelzyklenpulse zu erzeugen und Licht-Materie-Wechselwirkungen im Femtosekunden-Zeitbereich zu untersuchen. Dies geschieht mit Pulsen, bei der die Phase der Trägerfrequenz am Maximum der Pulseinhüllenden – die sogenannte absolute Phase oder Carrier-envelope-phase (CEP) – diese Wechselwirkung beeinflusst. Diese absolute Pha-

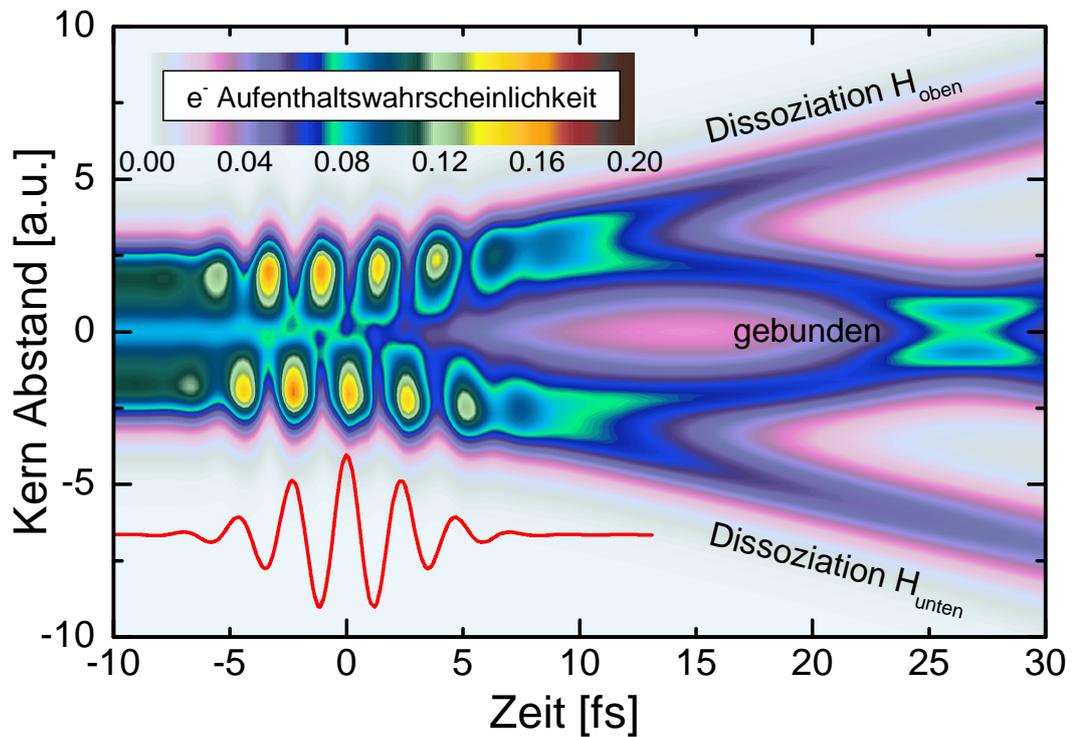


Abbildung 2.6: Darstellung der Elektronenaufenthaltswahrscheinlichkeit während der Dissoziation von H_2^+ mit einem ultrakurzen Einzelzyklenpuls (4,5 fs, rote Kurve, kosinusartiger Puls, $\phi = 0$), erzeugt aus Lösungen der zeitabhängigen Schrödingergleichung für eine Spitzenintensität von $1,0 \times 10^{14}$ Watt/cm². Für die Berechnung wird nur der 8. Vibrationszustand von H_2^+ verwendet. Zuerst beschleunigt das Laserfeld die Elektronenpopulation auf und ab, bis der Abstand zwischen den Kernen zu groß wird und die Potentialbarriere eine weitere Schwingung unterbindet. Bei ca. 10 fs teilt sich die molekulare Wellenfunktion (hier dargestellt durch die Elektronenaufenthaltswahrscheinlichkeit) in den gebunden und dissoziierten Zustand auf. Eine Asymmetrie im Elektronenwellenpaket ist nur sehr schwach zu erkennen, da die Darstellung über alle Ausrichtungswinkel θ des Moleküls gemittelt ist.

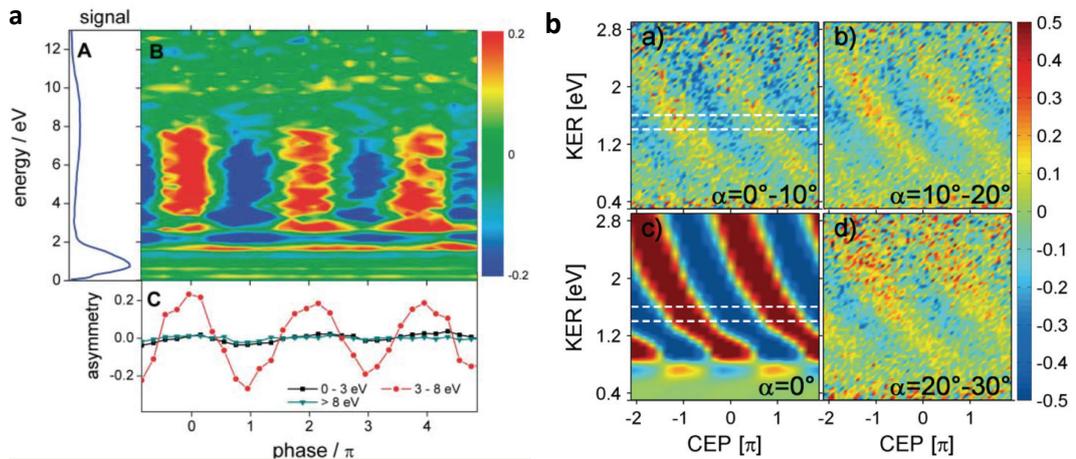


Abbildung 2.7: a(A) Spektrum der E_{KER} für die Dissoziation von D_2 mit 5 fs, $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ Laserpulsen ohne Stabilisierung der absoluten Phase. a(B) Darstellung der Asymmetrieparameter als Funktion der kinetischen Energie von D^+ und der absoluten Phase. a(C) Integrierte Asymmetrie über drei Energiebereiche über der absoluten Phase (aus [25] entnommen.). b, Messung der Dissoziation von H_2 . In Abbildung b-a),b-b),b-d) sind die Asymmetrien für verschiedene Molekülausrichtungen relativ zur Laserpolarisation dargestellt. In b-c) ist die Asymmetrie mit der Lösung einer semiklassischen 1 dimensionalen zeitabhängigen Schrödingergleichung berechnet worden (aus [48] entnommen).

se ϕ wird typischerweise folgendermaßen definiert:

$$E(t) = E_0 \exp(-t^2/\tau^2) \cos(\omega t + \phi), \quad (2.3)$$

wobei E_0 die Maximalamplitude des elektrischen Feldes ist und τ die Pulslänge. Bei einer Wellenlänge von 800 nm mit einer Schwingungsdauer der Trägerfrequenz von 2,6 fs bestehen typische 4-5 fs Laserpulse aus weniger als zwei Zyklen des elektrischen Feldes. Zahlreiche Experimente, wie z.B. die Starkfeld-Photoionisation von Edelgasen [22] oder auch die Erzeugung von höheren Harmonischen [47] zeigen eine starke Abhängigkeit von der absoluten Phase.

Nach der Photoionisation von Atomen ist auch die Photodissoziation von Molekülen mit Einzelzyklenpulsen in das Zentrum des Interesses gerückt.

Mit neutralen D_2 wurden phasensensitive Dissoziationsmessungen mit ultrakurzen Laserpulsen bereits 2006 durch Kling *et al.* [25] durchgeführt. In Abbildung 2.7 a (B) sind

die gemessenen Phasenabhängigkeiten der Asymmetrie der Ionisations-Dissoziation von D_2 abhängig von E_{KER} dargestellt. Als Asymmetrie wird die normierte Differenz zwischen der Protonenzählrate in positiver und negativer Richtung parallel zur Laserpolarisation bezeichnet. Die Laserpulslänge betrug 5 fs mit einer Intensität von $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und einer Zentralwellenlänge von 800 nm. Es sind deutliche Asymmetrien von ca. 20 % in dem Energiebereich von 2,2 bis 8 eV zu erkennen.

In einem Experiment von Kremer *et al.* [48] im Jahr 2009 wurde die E_{KER} der Dissoziationsfragmente von H_2 in dem Bereich von 0,5 bis 3 eV untersucht (siehe Abbildung 2.7 b). Es sind Asymmetrien von bis zu 30 % gemessen worden mit einer zusätzlichen Änderung der Asymmetrie als Funktion der E_{KER} (erkennbar an dem diagonalen Streifenmuster zwischen 0,5 und 2,5 eV). Die Laserparameter sind vergleichbar zu dem Experiment von Kling *et al.*.

Wie schon am Anfang des Kapitels in Abschnitt 2.1 beschrieben, findet vor der Dissoziation von neutral geladenen Molekülen immer ein Photoionisationsschritt statt, bei dem ein Elektron aus dem Molekül herausgelöst wird. Durch diesen Übergang beginnen die weiteren Dissoziationsschritte mit einem kohärenten Wellenpaket im H_2^+ -Potential (Ionisations-Dissoziationsprozess). Ihre Dynamik wird durch die vorangegangene Ionisation entscheidend beeinflusst. Aus der Starkfeld-Ionisation von Atomen ist jedoch bekannt, dass die Ionisation dieses Elektrons bereits eine starke Phasenabhängigkeit aufweist [49], die sich im Falle des Moleküls auf den nachfolgenden Dissoziationsschritt überträgt. Das elektrische Feld des Lasers kann das Photoelektron bei bestimmten absoluten Phasen wieder zu dem Mutterion oder hier -molekül zurück beschleunigen und durch eine Kollisionsanregung nun die Dissoziation bewirken. Bei der Starkfeld-Ionisation werden durch diese Rückkehr des Elektrons Effekte wie nichtsequentielle Doppelionisation, Erzeugung höherer Harmonischer-Strahlung oder inelastische Rückstreuungen des Elektrons hervorgerufen. Diese Effekte sind bei ultrakurzen Laserpulsen bekannter Weise sehr stark von der absoluten Phase abhängig und werden z.B. zur Messung der absoluten Phase genutzt (siehe Kapitel 4).

Wenn also neutrale Moleküle unter gleichzeitiger Ionisation photodissoziiert werden,

wird die Phasenabhängigkeit in der Regel vom Ionisationsprozess dominiert werden. In jedem Fall ist die Phasenabhängigkeit der Dissoziation von der Ionisation kaum zu differenzieren. Werden dagegen geladene Moleküle wie z.B. H_2^+ mit inkohärenten Anfangszuständen dissoziiert, entfällt der vorherige Ionisationsschritt und in der Analyse muss nur noch ein Prozess untersucht und theoretisch beschrieben werden. H_2^+ ist als Ein-Elektronensystem auch in dieser Hinsicht besonders vorteilhaft.

Kapitel 3

Übersicht über den experimentellen Aufbau

Dieses Kapitel gibt einen Überblick über das Konzept des Experiments, das im Rahmen dieser Arbeit aufgebaut wurde, um die Photodissoziation durch Einzelzyklenpulse sowie ihre Abhängigkeit von deren absoluter Phase zu studieren. In den danach folgenden Kapiteln werden die vom Verfasser entwickelten bzw. mitentwickelten Komponenten eingehender behandelt.

Der prinzipielle Aufbau des Experiments ergibt sich aus der im vorangegangenen Kapitel diskutierten Fragestellung: Ein H_2^+ -Ionenstrahl wird mit einem Einzelzyklenpuls-Laserstrahl überlagert und die Impulse der Dissoziationsfragmente werden in Abhängigkeit der Laserparameter, insbesondere der absoluten Phase, gemessen.

In Abbildung 3.1 ist der experimentelle Aufbau schematisch dargestellt. Die H_2^+ -Moleküle durchlaufen die Ionenstrahlanlage, die einen wohl kollimierten, transversal kalten (<10 Kelvin) H_2^+ -Strahl mit einer kinetischen Energie von 5 bis 10 keV erzeugt. Der Präparation der Ionen folgt die Wechselwirkung mit dem Laser, die die Dissoziation der H_2^+ -Moleküle $\text{H}_2^+ \rightarrow \text{H} + \text{H}^+ + E_{\text{KER}}$ bewirkt. Da E_{KER} mehrere Größenordnungen kleiner als die Ionenstrahlenergie ist, werden die Dissoziationsfragmente nur leicht abgelenkt und fliegen im Wesentlichen in Strahlrichtung weiter. 150 cm strahlabwärts

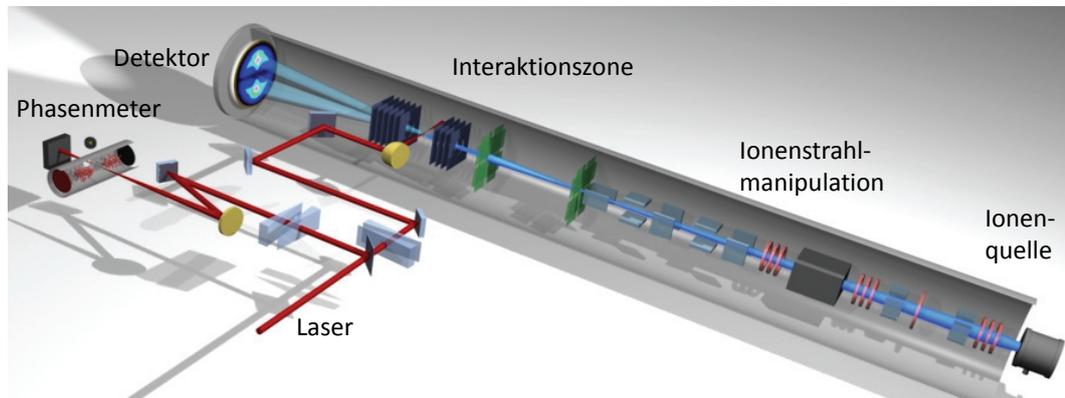


Abbildung 3.1: Schematische Gesamtansicht des Experiments mit dem Verlauf der Laserstrahlung (rot). 30 % der Laserstrahlung werden durch einen breitbandigen Strahlteiler in das Phasenmeter gelenkt. Die Glaskeile in beiden Armen dienen zur Dispersionskorrektur. Silberbeschichtete Hohlspiegel (Fokuslänge 25 cm) und Parabelspiegel (Brennweite $f=15$ cm) fokussieren die Laserstrahlen in die jeweiligen Apparaturen. Der Ionenstrahl (blau) wird in einer Ionenquelle erzeugt. Im Präparationsbereich wird der Ionenstrahl kollimiert und die gewünschte Massenzahl kann mit einem Wienfilter ausgewählt werden. Der Ionenstrahl wird dann im Interaktionsbereich mit der Laserstrahlung überlagert und von einem Detektor werden die neutralen und die geladenen Fragmente detektiert.

werden die Fragmente orts- und zeitaufgelöst detektiert, wodurch sich ihr Impuls und daraus E_{KER} vollständig rekonstruieren lässt. Die Verwendung schneller Moleküle hat außerdem den weiteren Vorteil, dass sich Hintergrundereignisse, die durch die Wechselwirkung des Lasers mit dem thermischen Hintergrundgas entstehen können, sehr effizient diskriminieren lassen. Außerdem können auch das neutrale Dissoziationsfragment, hier also H und D, nachgewiesen werden.

Die Laserpulslänge kann in einem Bereich von 4 bis 7 fs eingestellt werden, wobei die Pulsenergie rund $200 \mu\text{J}$ bei einer Repetitionsrate von 4 kHz beträgt. 70% der Laserleistung werden in die Ionenstrahlapparatur mit einem Parabelspiegel (Brennweite $f=15 \text{ cm}$) fokussiert und mit dem Ionenstrahl überlagert. Die restlichen 30% werden zur simultanen Bestimmung der absoluten Phase mit einem Hohlspiegel (Brennweite $f=25 \text{ cm}$) in ein Phasenmeter fokussiert. In beiden Strahlengängen befinden sich zur Dispersionkompensation Keile aus Quarzglas. Parallel zur Detektion der Dissoziationsfragmente werden mit derselben Digitalisierungseinheit die Flugzeitspektren aus dem Phasenmeter digitalisiert und mit den dazugehörigen Dissoziationseignissen gespeichert. Dadurch ist für jeden Laserschuss die absolute Phase bekannt. Allerdings erfolgt die Phasenmessung nicht am selben Ort wie die Wechselwirkung mit dem Ionenstrahl, sodass ein zwar konstanter, a priori nicht direkt messbarer, Phasenunterschied ϕ_{Offset} besteht. Nach der Messung werden die gemessenen Impulse der Dissoziationsprodukte nach den gemessenen Phasenwerten sortiert. Somit kann ein phasensensitives Experiment durchgeführt werden, ohne die absolute Phase des Lasers zu stabilisieren.

3.1 Das Lasersystem

Zur Erzeugung der ultrakurzen Einzelzyklenpulsen wird ein kommerzielles Ti:Saphir Verstärkersystem „Femtopower Compact Pro“ der Firma Femtolasers verwendet. Die mit diesem System mögliche Pulslänge beträgt 25 fs, mit einer Pulsenergie von 0,8 mJ bei einer Zentralwellenlänge von 795 nm und einer Repetitionsrate von 4 kHz. Zur Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen wird das Spektrum des 25 fs-Laserpulses mit Hilfe

einer mit Neon gefüllten Hohlaser auf eine Bandbreite von ca. 450 nm verbreitert [20]. Nach der Hohlaser erfolgt eine Korrektur der Dispersion im optischen Strahlengang mit dispersionskompensierenden „gechirpten“ Spiegeln. Die Anzahl der Reflexe auf diesen Spiegeln wird so gewählt, dass die Laserpulse schließlich eine negative Gesamtdispersion aufweisen, die unmittelbar vor dem Experiment mit Keilen aus Quarzglas (diese erzeugen positive Dispersion) kompensiert werden kann. Um die Anzahl der Reflexe auf den „gechirpten“ Spiegeln gering zu halten, können im gesamten Strahlengang nur reflektive Optiken zur Fokussierung (Parabel- und Hohlspiegel) eingesetzt werden. Die einzigen Ausnahmen sind breitbandige dispersionsoptimierte Strahlteiler der Firma Layertec und 0.5 mm dünne Vakuumfenster.

Zur Messung der spektralen Phase des Laserpulses kann ein FC-SPIDER der Firma APE benutzt werden. Mit dem Phasenmeter kann, wie gleich zu besprechen sein wird, zudem die Laserpulslänge optimiert werden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Dauer der ultra-kurzen Laserpulse durch Optimierung vieler verschiedener Bauteile von 7 fs nach der Installation des Lasers durch den Hersteller auf unter 4 fs verkürzt. Dieser Wert ist mit der optischen Zyklusdauer von ≈ 2.5 fs in Bezug zu setzen. Innerhalb der Halbwertbreite beträgt die Pulsdauer also nur etwa 1.5 optische Zyklen, so dass man sich tief im Einzelzyklenbereich befindet.

3.2 Messung der absoluten Phase

Um die Phasenabhängigkeit der Dissoziationsdynamik der Molekülonen untersuchen zu können, muss die Phase zwischen der Trägerwelle des elektrischen Feldes und der Laserpulseinhüllenden, die absolute Phase, bekannt sein (siehe Gleichung 2.3). In unserem Konzept wird auf die Stabilisierung der absoluten Phase auf einen vorgegebenen Wert verzichtet, da eine solche Stabilisierung die ohnehin beträchtliche Komplexität und damit die Störanfälligkeit des Experiments erhöhen würde. Bei den durch geringe Ereignisraten und hochdifferenzielle Datenanalyse bedingten langen Messdauern (z.T. mehr als 72 Stunden) ist dieser Aspekt von entscheidender Bedeutung. Statt einer

Phasenstabilisierung wird die von Puls zu Puls weitgehend zufällig variierende absolute Phase für jeden einzelnen Laserpuls mit einer Genauigkeit von besser als 100 mrad im Phasenmeter gemessen [50]. Die absolute Phase des Laserpulses in der Ionenstrahlanlage errechnet sich dann aus $\phi_{\text{Ion}} = \phi_{\text{Phasenmeter}} + \phi_{\text{offset}}$. Der Winkel ϕ_{offset} kann durch eine Kalibrierung mit theoretischen Berechnungen errechnet werden. Wie bereits erwähnt können die Dissoziationsereignisse dann nach absoluten Phase ϕ_{Ion} sortiert werden.

Die Messung der absoluten Phase beruht auf der asymmetrischen Starkfeld-Ionisation von Xenon-Atomen, die durch den für Einzelzyklenpulse typischen asymmetrischen Feldverlauf verursacht wird. Experimentell werden Unterschiede in den Spektren von Photoelektronen, die parallel zur Laserpolarisation in entgegengesetzte Richtung emittiert werden, ausgewertet. Das Phasenmeter stützt sich dabei auf die Effekte der absoluten Phase der hochenergetischen Photoelektronen. Sie werden durch das Laserfeld zum Mutteratom zurückbeschleunigt und können dort elastisch streuen. Die hier genutzten Effekte sind also eng verwandt mit den starken Phaseneffekten, die für neutrale Moleküle beobachtet wurden.

Eine detaillierte Beschreibung des Phasenmeters erfolgt in Kapitel 4. Hier sei noch darauf hingewiesen, dass unsere Methode der Phasenmessung eine für unser Experiment besonders vorteilhafte Kombination von Eigenschaften aufweist: Sie ist selbst im Einzelschussbetrieb sehr genau – die bekannten f - $2f$ -Interferometer beispielsweise erreichen für Verstärkersysteme kaum 250 mrad Genauigkeit –, sie benötigt eine vergleichsweise kleine Pulsenergie ($< 50 \mu\text{J}$) zum Betrieb, sie ist technologisch relativ einfach, und der Messwert steht innerhalb weniger Mikrosekunden nach dem Eintreffen des Laserpulses zur Verfügung.

Ein besonders nützlicher Aspekt des Phasenmeters basiert auf der Tatsache, dass die Asymmetrien der Photoelektronenspektren umso ausgeprägter sind, je kürzer und damit je asymmetrischer die Laserpulse sind. Diese Eigenschaft eignet sich in so hervorragender Weise zur Optimierung und Messung von Einzelzyklenpulslängen, dass dieser Nebenaspekt des Phasenmeters bereits eine mehr als hinreichende Existenzberechtigung darstellt.

3.3 Die Ionenstrahlanlage

Das zentrale Instrument dieses Experiments ist eine Ionenstrahlanlage, die ebenfalls im Rahmen dieser Arbeit entwickelt, aufgebaut und in Betrieb genommen wurde. In die Konstruktion des Gerätes flossen Erfahrungen mit der Apparatur von H. Figger ein [51]. Zweck dieser Anlage ist es, einen sehr gut definierten Ionenstrahl mit einer möglichst hohen Teilchendichte zu erzeugen, um die Ausbeute der detektierten dissoziierten Teilchen zu maximieren.

Der Aufbau der Ionenstrahlanlage untergliedert sich in vier Abschnitte. Als Ionenquelle wird ein Duoplasmatron verwendet, das sich durch die Erzeugung einer hohen Ionendichte im Teilchenstrahl auszeichnet. Mit dieser Quelle ist es z.B. möglich, bei der Verwendung von Wasserstoff einen Teilchenstrahl mit Protonen, H_2^+ und H_3^+ zu erzeugen. Im zweiten Teil der Anlage kann der Ionenstrahl durch Einzellinsen und Ablenkplatten fokussiert und kollimiert werden, um die Teilchendichte noch weiter zu erhöhen. Ebenso werden durch die Verwendung eines Wien-Filters die unerwünschten Ionen aus dem Teilchenstrahl herausgefiltert. Im dritten Abschnitt der Anlage befindet sich der Wechselwirkungsbereich, in dem die Laserstrahlung mit dem Ionenstrahl überlagert wird. In vierten Bereich der Anlage werden die Fragmente mit einem orts- und zeitauflösenden Detektor registriert. Die verwendeten Komponenten und weitere Details werden in Kapitel 5 ausführlich erläutert.

Die entwickelte Anlage zeichnet sich durch einen transversal kalten (<10 Kelvin) Ionenstrahl aus. Der Durchmesser des Ionenstrahls beträgt $300 \mu\text{m}$. Durch verschiedene variable Blenden kann dieser auf bis $50 \mu\text{m}$ verringert werden. Die Besetzung der Vibrationszustände der H_2^+ -Moleküle folgt der Franck-Condon-Verteilung [44] und ist somit sehr genau bekannt. Aufgrund der bereits erwähnten Vorteile des Messprinzips bzgl. der Diskriminierung von Hintergrundereignissen reicht ein Ultrahochvakuum von unter 5×10^{-9} mbar aus. Die Teilchendichte im Ionenstrahl beträgt bis zu $\rho \simeq 2 \times 10^5$ Moleküle/ cm^3 .

Kapitel 4

Das Phasenmeter

Das Phasenmeter wurde entwickelt, um die absolute Phase ϕ von ultrakurzen Laserpulsen zu messen. Der Messung liegt die Erwartung zugrunde, dass der für Einzelzyklenpulse typische asymmetrische Verlauf des elektrischen Felds zu räumlich asymmetrischer Photoionisation führen sollte. Die in entgegengesetzte Richtungen detektierte Photoelektronenspektren sollten also verschieden sein. Diese Erwartung findet ihre Entsprechung im unten beschriebenen experimentellen Aufbau des Instruments.

4.1 Starkfeld-Photoionisation

Die Funktion des Phasenmeters beruht auf den seit den 1990er Jahren bekannten Mechanismen der Starkfeld-Photoionisation oder Above-threshold Ionisation [2], die im folgenden kurz zusammengefasst werden. Zunächst soll hierzu festgestellt werden, dass die typischen Betriebsparameter eine Intensität im Bereich von 10^{14} W/cm^2 und einer Wellenlänge von 800 nm implizieren, sodass die ponderomotive Energie U_p größer als die Photonenenergie ist und die Oszillationsamplitude eines freien Elektrons die Größe von Atomen deutlich übertrifft. Dies legt die Verwendung klassischer Modelle nahe, in deren Rahmen die elektronische Dynamik durch *Trajektorien* beschrieben wird. Das elektrische Feld des Lasers ist bereits im Abstand von wenigen atomaren Ein-

heiten vom Atomkern größer als die Kernfelder. Dies begründet die Anwendbarkeit der Starkfeld-Approximation, die das Kernfeld für die Berechnung der Trajektorien schlicht vernachlässigt. Damit erhält man ein sehr einfaches Modell der Starkfeld-Ionisation, in dem das Atom lediglich noch eine Quelle von Elektronen darstellt, wobei die Quellstärke exponentiell von der Feldstärke des Lasers abhängt.

Bereits eine erste Betrachtung der Elektronentrajektorien führt zur Erkenntnis, dass es zwei Typen von Trajektorien zu unterscheiden gilt: Trajektorien, die sich vom Mutterion entfernen, ohne je wieder in seine Nähe zu kommen und Trajektorien, die ein- oder mehrmals zum Mutterion zurückkehren und dort die Gelegenheit zu einer zweiten Wechselwirkung mit ihm haben. Elektronen, deren Trajektorien das Atom ohne weitere Wechselwirkung verlassen, werden „direkt“ genannt. Ihre Driftenergie, die zugleich die kinetische Energie der Photoelektronen ist, lässt sich sehr einfach aus der Erhaltung des kanonischen Impulses berechnen. Mit der zusätzlichen Approximation, dass das Elektron das Atom zur Zeit t_0 mit vernachlässigbarer Geschwindigkeit verlassen hat, erhält man

$$E_{\text{drift,dir.}} = \frac{e^2}{2m} A(t_0)^2, \quad (4.1)$$

wobei $A(t)$ das Vektorpotential des Laserfeldes E ist ($E = -\partial_t A$), so dass sich U_p folgendermaßen berechnet $U_p = e^2 E^2 / (4m\omega)^2$. Zusammen mit der exponentiellen Abhängigkeit der Ionisation von der Feldstärke erklärt diese Beziehung den starken Abfall der Elektronenspektren mit zunehmender Photoelektronenenergie. Die im Rahmen des klassischen Modells maximale mögliche Energie direkter Elektronen beträgt bei Vielzyklenpulsen $2U_p$.

Wesentlich interessantere Effekte können auf zum Mutterion zurückkehrenden Elektronentrajektorien folgen; der Zeitpunkt der Rückkehr werde t_1 genannt. $t_1 - t_0$ beträgt typischerweise ca. 75% der optischen Periodendauer T . Die entsprechenden Elektronen können einerseits rekombinieren oder andererseits elastisch oder inelastisch streuen. Jede dieser Möglichkeiten führt zu einem charakteristischen Effekt der Starkfeld-Laserphysik, die Rekombination beispielsweise zur Erzeugung hoher Harmonischer und

Attosekunden-XUV-Pulse. Für das Phasenmeter relevant sind die elastisch um 180° gestreuten, also die „rückgestreuten“ Elektronen. Auch für diese kann die Driftenergie sehr einfach aus der Erhaltung des kanonischen Impulses berechnet werden [14] und es ergibt sich:

$$E_{\text{drift, rück.}} = \frac{e^2}{2m} (2A(t_1) - A(t_0))^2. \quad (4.2)$$

Im Energiespektrum formen diese Elektronen einen bis $10 U_p$ reichenden plateau-artigen Anhang an das Spektrum direkter Elektronen (siehe Abbildung 4.1a, b) [4]. Bei 800 nm und bei Verwendung von Xenonatomen beträgt die Zählrate dieser sogenannten Plateauelektronen nur etwa 1% der direkten Elektronen.

Die Gleichungen (4.1) und (4.2) sind bereits ausreichend für den Schluss, dass für direkte Elektronen eine wesentlich geringere Phasenempfindlichkeit als für rückgestreute Elektronen zu erwarten ist. Die erwarteten Unterschiede der Spektren in entgegengesetzter Richtung emittierter Elektronen werden demnach im ersten Fall deutlich kleiner als im zweiten Fall sein. Gl. (4.1) besagt nämlich, dass das Spektrum direkter Elektronen nur durch den Ionisationszeitpunkt t_0 gegeben ist. Dabei wird die Ionisationswahrscheinlichkeit durch $E(t_0)$ bestimmt, die Photoelektronenenergie dagegen durch $A(t_0)$. Aufgrund von $E = -\partial_t A$ sind beide Funktionen 90° außer Phase, was zu einer weitgehenden Auslöschung der Phaseneffekte führt, die man aufgrund der exponentiellen Abhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit von der Laserfeldstärke erwarten sollte.

Ganz anders ist der Fall bei den „rückgestreuten“ Elektronen. Hier wird die Photoelektronenenergie von den *zwei* Zeiten t_0 und t_1 bestimmt. Eine einfache numerische Auswertung ergibt, dass die höchsten Photoelektronenenergien für $t_1 - t_0 \approx 0.75T$ zu erwarten sind. Entsprechend benötigt man für eine hohe Zählrate hochenergetischer Photoelektronen eine möglichst große Feldamplitude bei t_0 und bei t_1 . Wäre sie klein bei t_0 , hätte man eine vernachlässigbare Ionisationswahrscheinlichkeit. Wäre sie klein bei t_1 dann wäre gemäß Gl. (4.2) $E_{\text{drift, resc.}}$ klein. Eine maximale Feldamplitude sowohl bei t_0 und wie auch bei t_1 ist aber unverträglich mit Einzelzyklenpulsen. Die Varia-

tion der absoluten Phase kann dazu benutzt werden, den „besten Kompromiss“ für eine maximale $E_{\text{drift, resc.}}$ zu finden, wodurch eine qualitative Erklärung für die starke Phasenabhängigkeit rückgestreuter Elektronen gefunden ist.

Experimentell wurde die Phasenabhängigkeit der ATI-Spektren erstmals 2003 untersucht [49]. Die soeben beschriebenen Erwartungen wurden dabei bestätigt.

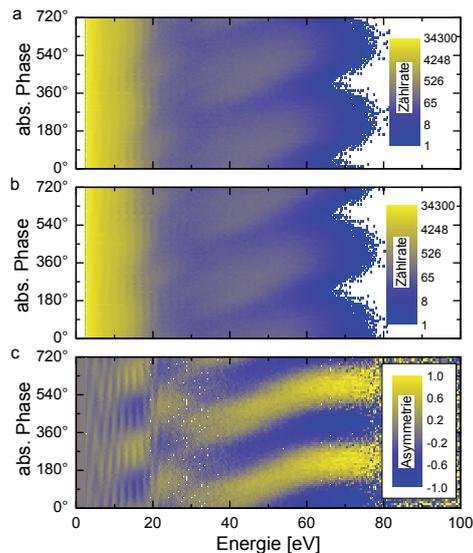


Abbildung 4.1: a und b, Abhängigkeit der Elektronenzählrate von der absoluten Phase für die Photoionisation von Xenonatomen mit ultra-kurzen Einzelzyklenpuls. a zeigt die Zählrate der Elektronen, die antiparallel („links“) und b parallel („rechts“) zur Laserpolarisation emittiert wurden. Der gelbe Bereich wird durch die direkten Elektronen erzeugt, der blaue Bereich durch die rückgestreuten Elektronen. c, Aus den Bildern a und b berechneter Kontrast zwischen der Ionisation in positiver (gelb) und negativer Richtung (blau).

In Abbildung 4.1c ist das spektral aufgelöste links-rechts Kontrastverhältnis der Photoelektronen über die absolute Phase wiedergegeben. Die blauen Bereiche korrespondieren zu stärkerer Ionisation in negativer („links“) als in positiver („rechts“) Richtung, bei den gelben ist es umgekehrt. Auffällig ist die *geneigte* streifenförmige Struktur der Asymmetrie für die rückgestreuten Elektronen zwischen 40–60 eV. Sie ist von wesentlicher Bedeutung für die Funktion des Phasenmeters.

4.2 Aufbau des Phasenmeters

Das Phasenmeter macht sich diese Phasenabhängigkeit der ATI Photoelektronen zunutze, um den Verlauf des elektrischen Feldes von Einzelzyklenpulsen zu vermessen [22]. Es ist ein Stereo-Flugzeit-Spektrometer und besteht aus zwei gegenüberliegenden Mikrokanalplattendetektoren am Ende jeweils einer feldfreien Flugzeitstrecke, die ent-

lang der Polarisationsrichtung der Laserstrahlung ausgerichtet sind (siehe Abbildung 4.2). Die Flugröhren bestehen aus μ -Metall, um magnetische und elektrische Felder

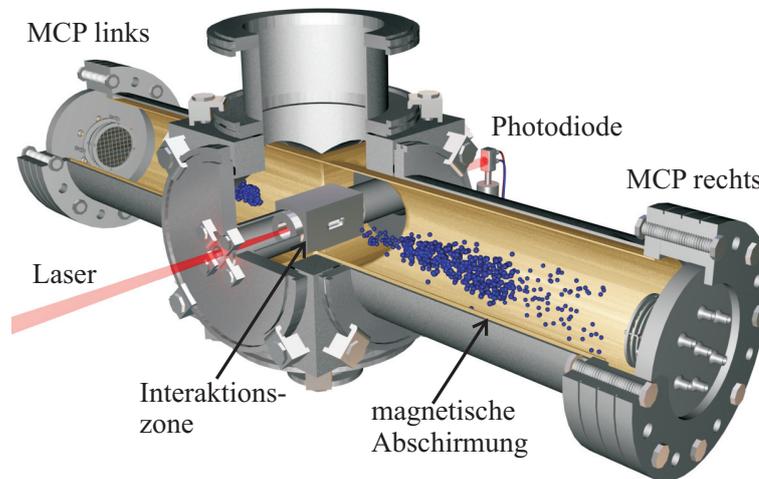


Abbildung 4.2: Aufbau des Stereo-Flugzeit-Spektrometers zur Messung der ATI-Photoelektronenspektren.

abzuschirmen. Der Laser wird in den Mittelpunkt zwischen den Spektrometern fokussiert. In der Interaktionszone herrscht ein Gasdruck von ca. 10^{-3} mbar. Dadurch können sehr hohe Photoelektronenzählraten mit rund 10.000 Elektronen pro Schuss, davon ca. 100 Elektronen im Plateaubereich, erreicht werden. In einem einzigen Laserschuss sind genügend Elektronen vorhanden, um die Form des ATI-Spektrums hinreichend genau zu bestimmen. Zur Diskriminierung von Photoelektronen aus unerwünschten Bereichen des Fokus befinden sich zwei Schlitze in Polarisationsrichtung der Laserstrahlung beidseitig an der Interaktionskammer. Diese Öffnungen dienen ebenfalls als differentielle Pumpstufe, um den Druck im restlichen Teil der Anlage auf 10^{-5} mbar zu reduzieren. Um die Lebenszeit der Detektoren zu verlängern, werden die niederenergetischen, direkten Elektronen durch eine negative Gegenspannung an der Vorderseite der Detektoren von denselben ferngehalten.

4.3 Wellenformcharakterisierung von Einzelzyklenpulsen

Das Phasenmeter bietet die Möglichkeit, die absolute Phase und die Länge eines ultrakurzen Laserpuls im Einzelschussbetrieb zu messen. Die Messprinzipien und die dazu durchgeführten Experimente werden im Folgenden erläutert.

4.3.1 Bestimmung der absoluten Phase

Messprinzip Die Phasenmessung beruht neben der bereits erwähnten starken Phasenabhängigkeit der Plateauelektronen auf einer weiteren charakteristischen Eigenschaft dieser Photoelektronen: Die Asymmetrie, die man aus eine Kontrastberechnung zwischen den linken und rechten Plateauelektronen bestimmen kann, ist von der Energie der Photoelektronen abhängig (siehe Abbildung 4.3). Die äußert sich in dem bereits erwähnten (s. Kap. 4.1) streifenförmigen Verlauf der Asymmetrie der Photoelektronenspektren. Für eine Phasenbestimmung reicht es aus, den Kontrast aus nur zwei Intervallen „hoch“ und „tief“ des Energiespektrums zu berechnen [52].

$$A_{\text{tief}} \equiv \frac{L_{\text{tief}} - R_{\text{tief}}}{L_{\text{tief}} + R_{\text{tief}}} \quad (4.3)$$

$$A_{\text{hoch}} \equiv \frac{L_{\text{hoch}} - R_{\text{hoch}}}{L_{\text{hoch}} + R_{\text{hoch}}} ,$$

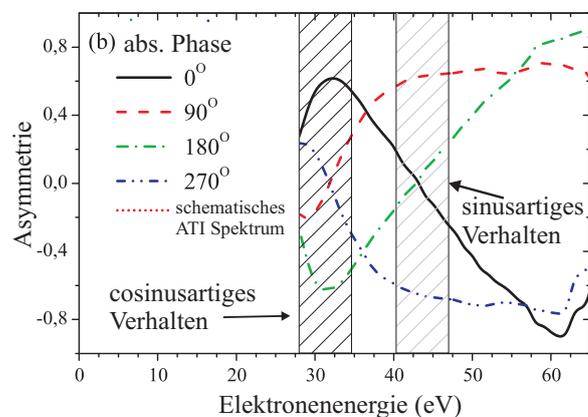


Abbildung 4.3: Darstellung des Kontrastverhaltens zwischen der Elektronenzählrate des linken und rechten Detektors über die Photoelektronenenergie. Zur Bestimmung der absoluten Phase ist eine Berechnung des Kontrastes in den zwei schraffierten Bereichen ausreichend. Die beiden Intervalle haben hier einen Phasenversatz von 90°.

L_x und R_x entsprechen den integrierten Photoelektronenzählraten des linken und rechten Detektors aus dem jeweiligen Energieintervall (s. Kap. 4.1). In erster Näherung ist für A_{tief} und A_{hoch} eine sinusförmige Abhängigkeit von der absoluten Phase ϕ zu erwarten. Aufgrund der Energieabhängigkeit der Asymmetrie existiert jedoch ein gewisser Phasenversatz α_{CEP} . Entsprechend ist $A_{\text{tief}} \sim \sin(\phi + \phi_0)$ und $A_{\text{hoch}} \sim \sin(\phi + \phi_0 + \alpha_{\text{CEP}})$ (ϕ_0 ist ein für dieses Experiment irrelevanter Phasenoffset). Durch Anpassung der Energiebereiche kann der Phasenversatz α_{CEP} auf rund 90° optimiert werden und es gilt:

$$A_{\text{tief}} \cong \sin(\phi + \phi_0) \tag{4.4}$$

$$A_{\text{hoch}} \cong \cos(\phi + \phi_0)$$

[49, 53, 54]. Als letztes werden die beiden Asymmetrieparameter ($x=A_{\text{tief}}$ and $y=A_{\text{hoch}}$) in einen parametrischen Asymmetriegraben gegeneinander aufgetragen, so dass ein parametrischer Asymmetriepplot entsteht. Der polare Winkel θ_{abs} entspricht dabei der absoluten Phase ϕ des jeweiligen Laserpulses, also

$$\theta_{\text{abs}} \cong \phi + \phi_0 \quad . \tag{4.5}$$

Abbildung 4.4 stellt ein typisches Messergebnis mit ca. 150.000 einzelnen Laserschüssen dar. Obwohl die Abhängigkeit von ϕ auf θ_{abs} nicht immer linear ist, kann dennoch $\phi(\theta_{\text{abs}})$ exakt aus einem Pulszug mit zufälliger und gleichverteilter absoluter Phase bestimmt werden [50].

Durch die Verwendung einer am Institut für Optik und Quantenelektronik (IOQ) entwickelten Elektronik können die Asymmetrieparameter in weniger als $20 \mu\text{s}$ nach dem Eintreffen des Laserpulses kontinuierlich mit einer Repetitionsrate von bis zu 10 kHz bestimmt werden. Die Position jedes Punktes im parametrischen Asymmetriegraben (entspricht je einem Laserpuls) wird dabei entweder in Echtzeit in kartesischen- (x und y) oder in Polarkoordinaten (r und θ_{abs}) ausgegeben. Dies kann entweder als Spannungsamplitude oder als zueinander verzögerte Spannungsimpulse geschehen. Zur Digitalisierung können deshalb „Amplituden zu Digital“- oder „Zeit zu Digital“- Umwandler benutzt werden, um die gemessenen Werte weiter zu verarbeiten.

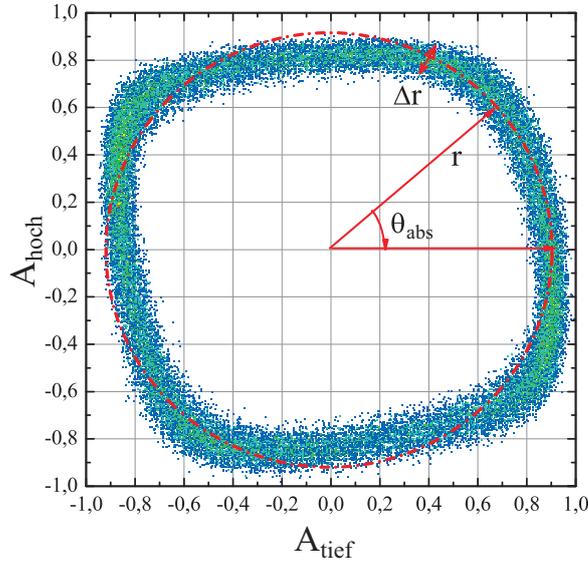


Abbildung 4.4: Phasenasymmetriograph als 2 dimensionales Histogramm über 150.000 Laserschüsse mit Radius r und relativen absoluten Phasenwinkel θ_{abs} .

Genauigkeit der Phasenmessung Im Jahr 2011 analysierten und berechneten wir die möglichen Messfehler bei einer Phasenmessung mit dem Phasemeter [50]. Die Messung der absoluten Phase wird zum größten Teil durch statistische Fehler beeinflusst. Dazu zählen Schrotrauschen der Elektronen und Intensitätsschwankungen des Lasersystems. Um einen möglichen Fehler bestimmen zu können, wurde in einem kleinen Phasenbereich über Referenz-ATI-Spektren gemittelt und der Fehler abgeschätzt. Mit dieser Technik wurde folgender statistischer Fehler für eine runde Verteilung des Parametrischenasymmetriplots bestimmt:

$$\Delta\phi \simeq \Delta\theta_{\text{abs}} \simeq \Delta r/r \quad . \quad (4.6)$$

Allgemein haben Intensitätsschwankungen nur einen kleinen Einfluss auf den Radius des Asymmetrigraphen r , dennoch erzeugen sie eine mehrheitliche Ungenauigkeit in ϕ . Für den Fall eines runden parametrischen Asymmetrigraphen beträgt diese Unsicherheit ~ 35 mrad pro 1% Intensitätsschwankung. Im Vergleich zu typischen f - $2f$ Interferometern in Kombination mit Verstärkersystemen ist dies um einen Faktor drei günstiger [55, 56]. Die Abschätzungen zeigen, dass die absolute Phase für einen einzelnen Laserschuss mit einer Genauigkeit von mindestens 100 mrad (6° oder 45 as bei 800 nm Zentralwellenlänge) gemessen werden kann. Der Messfehler wird dabei nur durch die Instabilitäten des Lasersystems beeinflusst.

4.3.2 Messung der Pulslänge

Messprinzip Während der Winkel θ_{abs} zur Bestimmung der absoluten Phase dient, kann die Pulslänge des Laserpulses aus dem Radius der Asymmetriplots bestimmt werden. Kürzere Laserpulse führen zu einer stärkeren links-rechts Asymmetrie im elektrischen Feld des Laserpulses. Dies führt zu stärkeren Phaseneffekten und deshalb zu größeren Asymmetrien im Photoelektronenstrom und somit zu einem größeren Radius der Asymmetrieparameter.

Kalibrierung der Pulslängenmessung Um diesen Zusammenhang quantitativ zu untersuchen, wurde die Pulslänge mit einem kommerziell erhältlichen SPIDER-System¹ (FC SPIDER von APE GmbH) gemessen und parallel der gleiche Puls mit einem Phasenmeter untersucht [58].

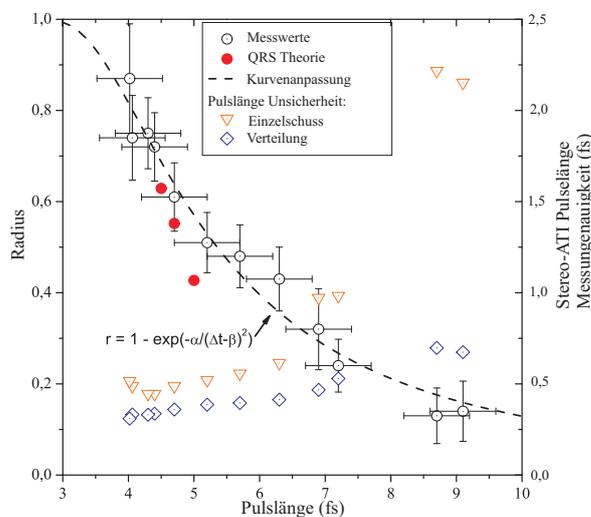


Abbildung 4.5: Radius des Phasenasymmetriplots, r , als Funktion der Pulslänge (FWHM), Δt , gemessen mit einem SPIDER. Die Fehlerbalken sind die Standardabweichung im Einzelschuss für die Radien- und Pulslängenmessung mit dem SPIDER, siehe Text für die Funktionsanpassung. Zusätzlich sind die Fehler für die Pulslängenmessung im Einzelschuss und für die Mittelung von Laserschüssen dargestellt. Die roten Punkte wurden mit der „Quantitativen-Rückstreu-Theorie“ (QRS) [59] für eine bestimmte Pulslänge berechnet.

In Abbildung 4.5 ist der Radius r des parametrischen Asymmetriplots über die Pulslänge Δt aufgetragen. Folgende Funktion kann an die Messwerte angepasst werden:

¹SPIDER steht für „spectral interferometry for direct electric-field reconstruction“ [57]

$$r = 1 - \exp\left(\frac{-\alpha}{(\Delta t - \beta)^2}\right) . \quad (4.7)$$

In dem gemessenen Bereich von 4 bis 9 fs steigt die Kurve zu kürzeren Pulslängen stark an, verbunden mit einer Verbesserung der Messgenauigkeit. Besonders zwischen 4 und 7 fs ist die Abhängigkeit sehr stark und der Messfehler sinkt auf einige 100 as.

Die für $r(\Delta t)$ vorgeschlagene Funktion basiert auf einem einfachen Gedanken. Das absolute Feldmaximum eines cosinusartigen Pulses ist durch $E_0 = E(t=0)$ gegeben. Im nächsten Halbzyklus beträgt das Feldmaximum $E(t=\pi/\omega) = E_0 \exp(-(\pi/\omega\tau)^2)$. Wenn in aufeinander folgenden Halbzyklen die Elektronenzählrate annähernd von den Maximalwerten des elektrischen Feldes abhängen, dann lässt sich die links-rechts Asymmetrie in der ATI-Zählrate in der Form $1 - \exp(-\alpha/\Delta t^2)$ abschätzen. Um einen besseren Fit zu ermöglichen, wurde ein weiterer Parameter β hinzugefügt, der sich als minimale Pulslänge für die Rückstreuung der Elektronen interpretieren lässt. Mit den Parametern $\alpha = 9.73 \pm 1.51$, $\beta = 1.60 \pm 0.26$, und $R^2 = 0.97$ beschreibt das Modell die Messwerte weitestgehend.

Diese Verbesserungen bei der Laserpulscharakterisierung beschleunigt die Justage von Einzelzyklenpuls-Lasersystemen. Besonders die Optimierung der Pulslänge wird durch das Phasenmeter erleichtert: es zeigt sich sofort, ob der Laserpuls die gewollte links-rechts Asymmetrie eines Einzelzyklenpulses besitzt.

Eine bemerkenswerte Eigenschaft dieser Art der Pulsmessung ist, dass die Genauigkeit mit kürzerer Pulsdauer zunimmt, während dies bei herkömmlichen Verfahren durch die endliche Bandbreite der erforderlichen nichtlinearen Kristalle umgekehrt ist. Ebenfalls vorteilhaft ist die Zuverlässigkeit, die dadurch begründet ist, dass der komplette Strahlquerschnitt an der Messung beteiligt ist.

4.4 Messung oder Stabilisierung der absoluten Phase

Im folgenden Abschnitt werden zwei verschiedene Techniken vorgestellt, um phasensensitive Experimente realisieren zu können. Zuerst wird die sogenannte Phase-Tagging-Technik vorgestellt. Sie eignet sich besonders für langwierige Experimente, bei der die Abhängigkeit eines gewissen Effektes von der absoluten Phase studiert werden soll. Sie ermöglicht eine hohe Genauigkeit bei der Phasenmessung im Einzelschussbetrieb. Die zweite Technik, Stabilisierung der absoluten Phase, muss bei Experimenten genutzt werden, bei denen eine bestimmte absolute Phase fest eingestellt werden muss. Ein Beispiel ist die Erzeugung isolierter Attosekundenpulsen, für die annähernd kosinusartige Einzelzyklenpulse erforderlich sind. Beiden Techniken gemein ist die Erfordernis einer schnellen und genauen Messung der absoluten Phase, die jeweils mit dem Phasenmeter durchgeführt wird.

4.4.1 Phase-Tagging Technik

Viele phasensensitive Prozesse erfordern trotz moderner kHz Einzelzyklen-Lasersysteme eine sehr lange Messzeit, um eine ausreichende Anzahl an Ereignissen zu erreichen. Es gibt Lasersysteme, die die absolute Phase aktiv stabilisieren, indem die Phase mit einem f - $2f$ Interferometer gemessen und die Phasenschwankung durch Änderung von dispersiven Material im Laserstrahl korrigiert wird [48, 60, 61, 62, 63]. Trotz der mittlerweile erreichten gewissen Reife moderner Lasersysteme gestaltet sich die Stabilisierung der absoluten Phase über mehrere Stunden als sehr schwierig. Somit ist es nicht verwunderlich, dass bislang nur wenige phasensensitive Experimente bekannt geworden sind, die nicht in einigen Stunden oder weniger zu beenden waren.

Eine parallele Messung der absoluten Phase eines jeden Laserschusses in Echtzeit mit einem Phasenmeter und die Kennzeichnung der dazugehörigen experimentellen Messungen aus einem phasensensitiven Experiment mit diesem Phasenwert kann eine aufwen-

dige Phasenstabilisierung des Lasersystems ersetzen (Phase-Tagging). Zeitaufwändige Experimente mit einer geringen Ereigniswahrscheinlichkeit können mit dieser Technik mit einem besseren Signal-Rausch-Verhältnis durchgeführt werden, da sich durch die größere Zahl der Ereignisse erstens der statistische Fehler verringert und zweitens systematische Fehler durch eine Drift der Phasenstabilisierung weitgehend vermieden werden.

Phase-Tagging ermöglicht somit die Verwendung von unstabilisierten Lasersystemen mit einer zufälligen und gleich verteilten absoluten Phase. Zur Steuerung der absoluten Phase wird kein dispersives Material benötigt, um die absolute Phase z.B für die Messungen zu variieren. Dies ist ebenfalls von Vorteil, da die ansonsten notwendige Veränderung des optischen Weges zu einer Änderung der Laserpulslänge und zu einer zusätzlichen Änderung der Spitzenintensität führt. Bei der Benutzung von Phase-Tagging kann dagegen von konstanten Laserparametern während der Messung ausgegangen werden.

Die Gesamtdauer einer Messung ist also nicht mehr von der Phasenstabilität des Lasersystems abhängig, sondern nur von der Gesamtstabilität des Lasersystems (z.B. Leistung, Strahlposition, Wellen- und Pulslänge). Diese Parameter können prinzipiell im Einzelschussverfahren aufgezeichnet werden. Ein typisches Lasersystem, wie es z.B. in [64] beschrieben wird, kann auf diese Weise phasensensitive Experimente über mehrere Tage durchführen, ohne dass dafür eine Phasenstabilisierung des Lasersystems benötigt wird.

Diese Technik wurde bereits in verschiedenen Kooperationen erfolgreich getestet [27, 65, 66, 67]. Der Schwerpunkt lag dabei auf der Ionisation von neutralen Atomen und der Dissoziation von neutralen polyatomaren Molekülen jeweils durch rückgestreute Photoelektronen. Dazu wurden Reaktionsmikroskope („reaction microscope“)[68] und COLTRIMS-Anlagen [39, 69] mit einem Phasenmeter parallel betrieben. Darüber hinaus wurden phasensensitive Messungen zur Ionisation von Xenon mit einem abbildenden Geschwindigkeits-Verteilung Spektrometer („velocity map imaging“, VMI) in Verbindung mit einem Phasenmeter erfolgreich durchgeführt [70].

4.4.2 Phasenstabilisierung mit einem Phasemeter

Mit Hilfe der Phase-Tagging Technik wird eine Stabilisierung der absoluten Phase nicht mehr zwingend benötigt. Trotz aller Vorteile ist diese Technik nur bei Einzelschussexperimenten einsetzbar. Wenn das Experiment nur mit einer bestimmten Phase funktioniert, wird eine Phasenstabilisierung für das Lasersystem benötigt. Deshalb bleibt die Verbesserung der Stabilisierungssysteme weiterhin Gegenstand aktueller Forschung [55, 63, 71, 72].

Typischerweise wird die absolute Phase mit zwei Korrekturschleifen stabilisiert.

Die erste Schleife wird zur Stabilisierung des Laseroszillators verwendet (fast-loop). Dafür wird beispielsweise das Spektrum des Laseroszillators mit Hilfe von Selbstphasenmodulation in einem PPLN (Periodical Poled Lithium Niobate) Kristall auf eine Oktave verbreitert. Durch Differenzfrequenzerzeugung entsteht ein $f-0f$ Interferometer im PPLN Kristall [73]. Die Korrektur der absoluten Phase geschieht dann durch eine Veränderung des intensitätsabhängigen optischen Brechungsindex im Ti:Sa Oszillatorkristall mittels einer Intensitätsmodulation des Pumpasers.

Die zweite Schleife korrigiert eine langsame Phasendrift (slow-loop), die durch den Multipassverstärker hinter dem Oszillator verursacht wird. Zur Korrektur dieser Phasendrift wird z.B. der Abstand der Glaskeile im Pulsstrecke vor dem Multipassverstärker angepasst. Das Korrektursignal kann z.B. mit Hilfe eines kommerziellen $f-2f$ Interferometers bestimmt werden, das normalerweise direkt am Ausgang des Verstärkers installiert wird. Für eine Phasenstabilisierung von Einzelzyklenlaserpulsen wird die Messung der absoluten Phase hinter dem frequenzverbreiternden Hohlfaserkompressor durchgeführt, um von diesem verursachte Phasenänderungen ebenfalls korrigieren zu können [63].

Messergebnisse In einem Testaufbau werden zwei Phasemeter parallel zu einem $f-2f$ Interferometer hinter dem Hohlfaserkompressor betrieben. Phasemeter Nr. 1 kann das $f-2f$ Interferometer (slow-loop) ersetzen. Zur „out-of-loop“-Messung wird Phasen-

meter Nr. 2 und alternativ das $f-2f$ Interferometer benutzt. Zur Korrektur der Phase mit dem piezo-kontrollierten Glas-Strecker im CPA System wird das Ausgangssignal von Phasenmeter 1 über mehrere Schüsse gemittelt und mit einer PID (proportional-integral-derivativ) Steuereinheit geregelt. Das Phasenmeter Nr. 2 wird zur unabhängigen Phasenmessung außerhalb des Regelkreises benutzt. Zusätzlich wird parallel die schnelle Korrektur der Phase des Oszillators gespeichert.

Im Jahr 2011 haben wir die Effizienz der Phasenstabilisierung mit einem Phasenmeter anstelle eines $f-2f$ Interferometer für ein Verstärkersystem vorgestellt [74]. Die Qualität der Phasenstabilisierung wird durch die Phasenschwankungen sowohl in kurzen (Minuten) als auch über lange Zeitbereiche (Stunden) gezeigt. Ein stabilisierter Oszillator

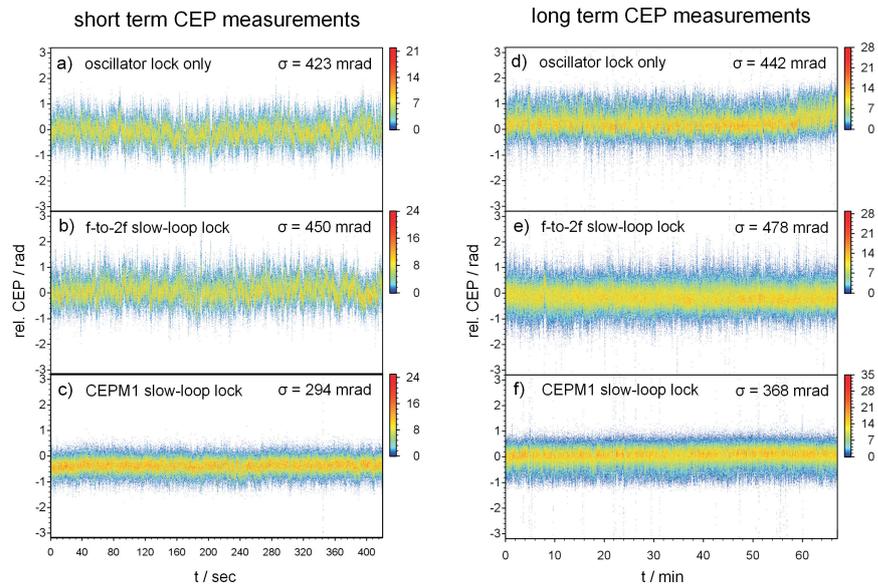


Abbildung 4.6: (a)-(c) Kurzzeitstabilisierung der absoluten Phase mit einem Phasenmeter. (d)-(f) Langzeitstabilisierung der absoluten Phase.

(fast-loop) erreicht eine Schwankung der absoluten Phase im Einzelschussbetrieb von ca. 190 mrad RMS (root-mean-square). Nach der Verstärkung, spektralen Verbreiterung und der zeitlichen Kompression erkennt man eine Phasenstabilität von 420 mrad RMS (siehe Abbildung 4.6 a), gemessen außerhalb des Regelkreises und ohne Stabilisierung des Verstärkers. Durch den Einsatz eines $f-2f$ Interferometer zur Stabilisierung

des Verstärkers kann keine Verbesserung erreicht werden, denn dieser Regelkreis kann nur langsame Veränderungen der Phase korrigieren (450 mrad RMS, siehe Abbildung 4.6 b). Wird dagegen das f - $2f$ Interferometer durch das Phasenmeter im Regelkreis ersetzt, konnte die Stabilisierung deutlich auf 294 mrad RMS reduziert werden (siehe Abbildung 4.6 c). Diese Verbesserung erklärt sich durch 3 Faktoren: (i) Typische f - $2f$ Interferometermessungen integrieren über mehrere Schüsse (8 oder mehr) und geben dann das Korrektursignal aus. Durch die Benutzung des Phasenmeters wird die absolute Phase zuerst für jeden Laserschuss bestimmt und erst danach wird als Korrektursignal ein gleitender Mittelwert ausgegeben. (ii) Die Phasenmetermessung hat eine um den Faktor 3 kleinere Intensitätsabhängigkeit im Vergleich zu einer f - $2f$ Interferometer Messung [50, 71]. (iii) Das Phasenmeter bestimmt die absolute Phase über das gesamte Spektrum des Laserpulses. Ein f - $2f$ Interferometer analysiert nur einen kleinen Teil des Laserspektrums und kann dadurch einen sehr großen relativen Fehler in der Phasenmessung verursachen [63].

Mit Hilfe des Phasenmeters kann auch die Langzeitstabilität der absoluten Phase über mehrere Stunden verbessert werden (siehe Abbildung 4.6 d–f). Bei einer Stabilität des Oszillators von 204 mrad RMS war die Phasenschwankung ohne weitere Stabilisierung nach dem Verstärkersystem 442 mrad RMS. f - $2f$ Interferometer und auch das Phasenmeter konnten langsame Schwankungen der Phase ausgleichen. Mit Hilfe der schnelleren und besseren Korrektur des Phasenmeters konnte auch die Langzeitstabilität durch das Phasenmeters von 480 mrad RMS (f - $2f$ Interferometer) auf 370 mrad RMS reduziert werden.

Das Phasenmeter ist zurzeit für den Betrieb mit ultrakurzen Einzelzyklenpulsen aus einem Ti:Sapphir Lasersystem bei einer Mittenwellenlänge von 800 nm und mit einer Wiederholrate von bis zu 10 kHz optimiert. In weiterführenden Arbeiten wird der Einsatz bei anderen Wellenlängen und höheren Wiederholungsraten getestet.

Somit eignet sich das Phasenmeter sehr gut zur vollständigen Pulscharakterisierung (absoluten Phase und Laserpulslänge) im Einzelschussbetrieb mit kHz Wiederholungsraten.

Kapitel 5

Die Ionenstrahlanlage

Neben dem Einzelzyklen-Lasersystem und einer Einrichtung zur Messung der absoluten Phase erfordert die Untersuchung der Phasenabhängigkeit der Dissoziation von H_2^+ und D_2^+ die Messung der 3-dimensionalen Geschwindigkeitsverteilung. Im Rahmen dieser Arbeit wurde am IOQ eine neue Ionenstrahlanlage konzipiert, aufgebaut und in Betrieb genommen, um einen transversal kalten und kollimierten Molekül-Ionenstrahl zu erzeugen. Die Molekülionen werden in einer Ionenquelle am Anfang des linearen Aufbaus erzeugt. Zur Trennung der verschiedenen Ionenmassen und Ladungszustände passieren die Ionen ein gekreuztes elektrisches und magnetisches Feld (Wienfilter) und werden dann mittels Ablenkplatten (xy-AP) und Einzellinsen (EL) kollimiert. In der

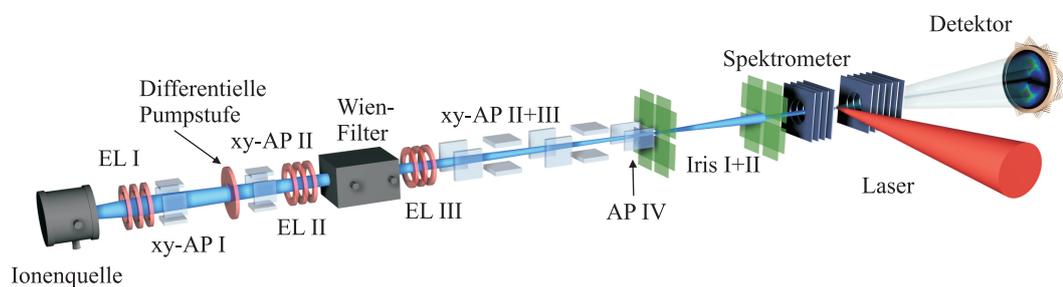


Abbildung 5.1: Schematische Darstellung des Ionenstrahls (blau) in der Apparatur (xy-AP: Ablenkplatten, EL: Einzellinse). Eine detaillierte Beschreibung findet sich im Text.

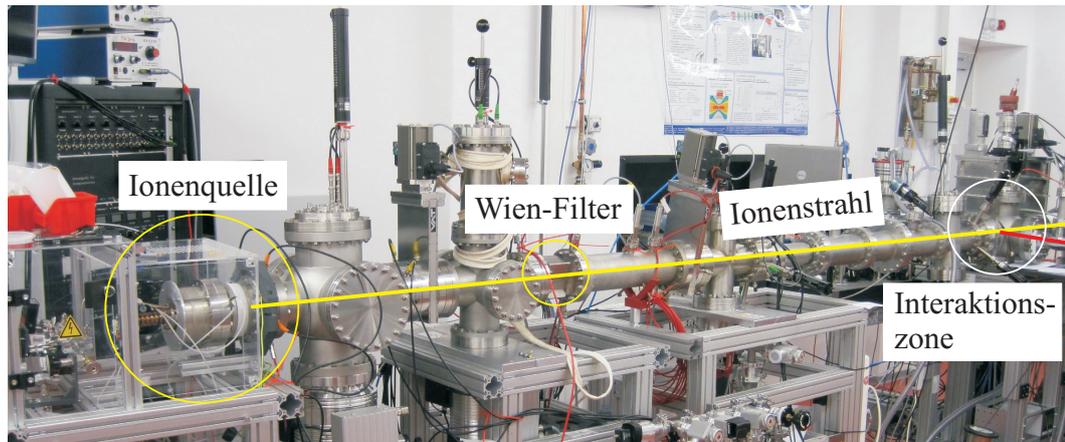


Abbildung 5.2: Fotografie der Ionenstrahlanlage mit einer Gesamtlänge von ca. 6 m

Interaktionszone wird die Laserstrahlung mit dem Ionenstrahl überlagert, und die Ionen werden mittels eines zeit- und positionsempfindlichen Detektors am Ende des Aufbaus registriert. In den folgenden Kapiteln werden alle wichtigen Teile der Apparatur detailliert beschrieben.

5.1 Gesamtaufbau

Die Abbildung 5.1 gibt einen Überblick über die wichtigsten Teile der Apparatur. Nach der Erzeugung der Ionen in einer Ionenquelle werden sie auf 8 keV beschleunigt und mit einer Einzellinse EL I in ein 1 mm großes Loch in einer differentiellen Pumpstufe fokussiert. Diese Pumpstufe trennt den Quellenbereich mit einem Druck von ca. 3.0×10^{-6} mbar von der restlichen Anlage mit einem Druck von ca. 2.0×10^{-9} mbar. Dies wird durch vier 500l Turbopumpen erreicht, die gleichmäßig an der Anlage verteilt angebracht sind. Zur Strahlagenjustage stehen in der gesamten Apparatur mehrere elektrostatische Ablenkplattensysteme (xy-AP) zur Verfügung. Ebenso kann der Ionenstrom mit beweglichen Faradaybechern an mehreren Punkten in der Anlage bestimmt werden.

Zur Massen- und Ladungsselektion wird der Ionenstrahl durch eine Einzellinse EL II

in einem Wienfilter fokussiert. Die dritte Einzellinse EL III erzeugt dann einen kollimierten Ionenstrahl. Zur Verbesserung der Kollimation und Reduktion des Strahlendurchmessers auf maximal $300\ \mu\text{m}$ beschneiden zwei variable Schlitzblenden (Iris I + II) mit einem Abstand von 1.5 m den Ionenstrahl. In der Interaktionskammer wird der fokussierte Laserstrahl mit dem Ionenstrahl im Winkel von 90° überlagert. Der Interaktionsbereich wird von einem longitudinalen elektrischen Feld ($200\ \text{V}/\text{cm}$) überlagert, um die verschiedenen Dissoziationsprodukte (z.B. H und H^+) zusätzlich zu beschleunigen. So wird eine zeitliche Differenz zwischen dem geladenen und neutralen Teilchen am Ende der Driftstrecke auf dem Detektor erzeugt. Der Detektor ist ein Mikrokanalplatten-Sekundärelektronenvervielfacher (MCP) mit Delay-Line Anode [75, 76]. Ort und Zeitpunkt von auf die MCP auftreffenden Teilchen kann durch Auswertung der von dem Delay-Lines gelieferten Spannungsimpulsen gewonnen werden. Zu ihrer Digitalisierung werden schnelle Analog-zu-Digital Wandler benutzt. Durch die hohe Abtastrate von bis zu $2.5\ \text{GSample}/\text{s}$ kann eine sehr gute räumliche ($<100\ \mu\text{m}$) und zeitliche (100 ps) Auflösung erreicht werden. Mit diesem Aufbau ist es möglich, die Impulsverteilung der Dissoziationsprodukte in alle drei Raumrichtungen im Einzelschussverfahren zu bestimmen.

5.2 Ionenquelle

Das verwendete Duoplasmatron ist ein Nachbau einer Ionenquelle aus den 80er Jahren, die von der Firma „Garching Instruments“ entwickelt und vertrieben wurde. Das Funktionsprinzip dieser Ionenquellenart wurde 1965 von Manfred v. Ardenne angegeben [77]. Mit einem Duoplasmatron können Ionenströme bis zu $15\ \mu\text{A}$ erzeugt werden. Deshalb ist es sehr gut für dieses Experiment geeignet, um hohe Ionendichten im Teilchenstrahl zu generieren. Es besteht aus einer Kathode (Edelstahl), einer Zwischenelektrode (Weicheisen) und einer Anode (Edelstahl). Zusätzlich ist die Quelle von einem Elektromagneten umgeben. Der Innenraum ist mit dem zu ionisierenden Gas bei einem Druck von ca. 1 mbar gefüllt. Durch Anlegen einer Spannungsdifferenz von ca. 400

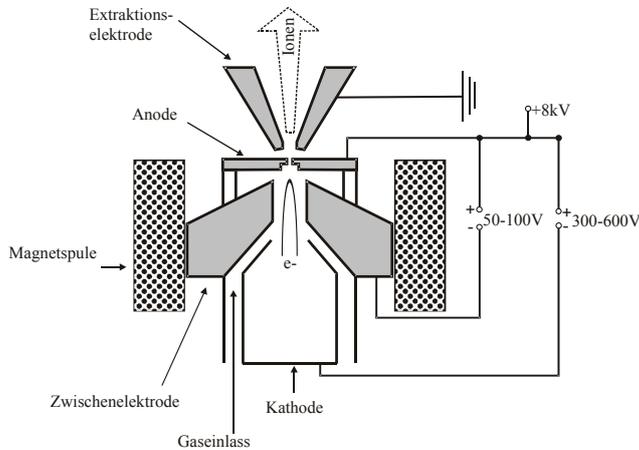


Abbildung 5.3: Schematische Zeichnung des Duoplasmatrons. Zwischen Kathode und Anode wird durch einen Überschlag eine konstante Gasentladung erzeugt. Durch ein zusätzliches magnetisches (Magnetspule) und elektrisches Feld (Zwischenelektrode) wird das Plasma gebündelt. In diesem Bereich wird das Gas ionisiert. Der Aufbau besitzt zum Rest der Anlage eine Spannungsdifferenz von einigen kV. Dadurch werden die Ionen aus der Apparatur durch die Extraktionselektrode hinaus beschleunigt.

– 800 Volt zwischen Kathode und Anode wird eine konstante Gasentladung zwischen diesen beiden Bauteilen erzeugt. Die Gesamtlänge beträgt 7 mm und führt durch die Zwischenelektrode hindurch. Zur Effizienzverbesserung wird das erzeugte Plasma elektrostatisch durch eine negative Spannung an der Zwischenelektrode von rund 100 Volt relativ zur Anode gebündelt (ähnlich einem Wehnelt-Zylinder bei einer Elektronenquelle). Zusätzlich wird durch das axiale magnetische Feld des Elektromagneten der Aufenthalt der Elektronen im Plasma verlängert. Dies ermöglicht eine Erhöhung des Ionisationsgrades des Gases. Zur Beschleunigung der im Plasma erzeugten Ionen aus der Quelle durch die Anode liegt das gesamte Duoplasmatron (inkl. Kathode, Zwischenelektrode, Anode, Magnet und Gasversorgung) auf einem positiven Potential von 8 kV elektrisch isoliert zur geerdeten Ionenstrahlanlage. Bei einer Austrittsöffnung von ca. $150 \mu\text{m}$ werden damit Ionenströme von bis zu $5 \mu\text{A}$ erreicht. Die Anode dient gleichzeitig als differentielle Pumpstufe. Sie trennt die Plasmakammer mit einem Druck von ca. 1 mbar vom Extraktionsbereich. In diesem wird mit einer 500 l Turbopumpe ein Druck von max. 3.0×10^{-6} mbar unter Gaslast erreicht. 10 mm hinter der Anode befindet sich die geerdete Extraktionselektrode mit einem Durchmesser von 2 mm. Die Kühlung der Ionenquelle erfolgt über einen Kühlkörper an der Kathode.

Die H_2^+ Moleküle werden hauptsächlich durch Molekül-Elektronenstöße im Plasma erzeugt [78]. Diese befinden sich im Grundzustand, da die Temperatur in der Ionenquelle nur rund $100^\circ C$ beträgt [79]. Die Besetzung der Vibrationszustände des H_2^+ -Moleküls folgt der Franck-Condon Verteilung [80].

5.3 Flugstrecke und Interaktionszone

5.3.1 Ladungs- und Massenselektion

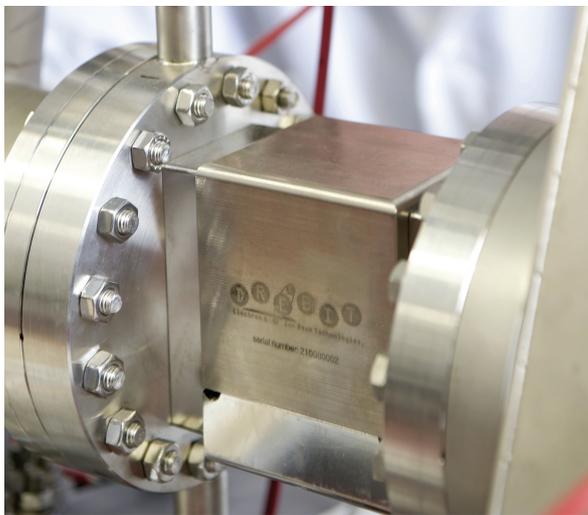


Abbildung 5.4: Fotografie des Wienfilters, gehalten in einem CF 100 Flange mit einer Gesamtlänge von 150 mm. Durch ein gekreuztes magnetisches und elektrostatisches Feld dient er als Massen- und Energie-Filter. Entwickelt und gebaut von der Firma DREEBIT, Dresden

Beim Betrieb einer Ionenquelle entstehen unterschiedliche Ladungszustände des eingelassenen Gases und zusätzlich werden Ionen aus dem Hintergrundgas erzeugt. Um aus diesem Ionengemisch das gesuchte Atom oder Molekül mit dem richtigen Ladungszustand herauszufiltern, wurde der Ionenstrahlanlage ein Wienfilter der Firma DREEBIT, Dresden, hinzugefügt. Im Vergleich zu herkömmlichen Sektormagneten oder Quadrupolen bietet ein Wienfilter eine sehr kompakte Lösung. Seine Länge beträgt nur 150 mm und wird in einem CF-100-Flansch gehalten.

Der Wienfilter besteht aus einem gekreuzten elektrostatischen und magnetischen Feld. Das magnetische Feld besitzt eine konstante Stärke von 0,14 Tesla und die Spannung zur Erzeugung des elektrostatischen Feldes kann von 0 bis 250 Volt variiert werden.

Nur Teilchen, deren Ausbreitungsgeschwindigkeit die Wienbedingung $v_0 = E/B$ mit $\vec{v} \perp \vec{E} \perp \vec{B}$ erfüllen, können den Filter gradlinig durch zwei Blenden passieren. Die Flugbahnen der übrigen Teilchen im Wienfilter treffen die Blendenöffnungen nicht und werden deshalb herausgefiltert.

5.3.2 Strahljustage, Strahlmanipulation

Einzellinse Zur Fokussierung des Ionenstrahls werden in der Anlage elektrostatische Ionenlinsen, sog. Einzellinsen, verwendet. Typischerweise bestehen sie aus drei zylindrischen Elektroden, die axial hintereinander angeordnet sind. Der Ionenstrahl passiert diese Anordnung zentriert. So vermeidet man, ähnlich in der Optik, astigmatische und andere Aberrationen, die den Strahl verformen. Abbildung 5.5 stellt eine mögliche Spannungsconfiguration dar. Die mittlere Elektrode ist positiv geladen, während die ersten und letzten Elektroden geerdet sind. Eine Variation der Spannung von 0 bis ca. 10 kV verschiebt den Fokus in longitudinaler Richtung. Dabei kann eine Fokuslänge von ca. 10 cm bis einige Meter erreicht werden.

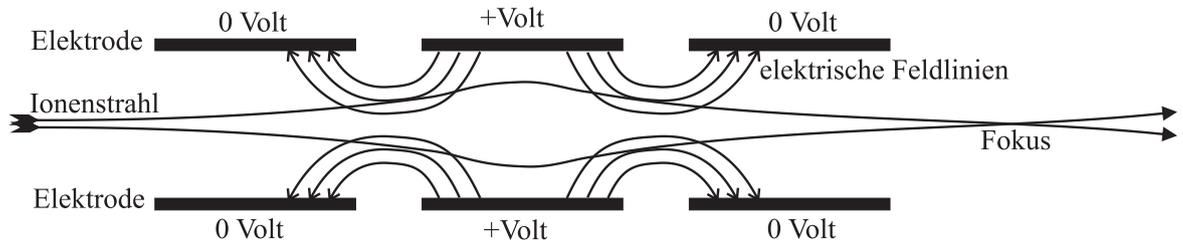


Abbildung 5.5: Schematische Zeichnung einer Einzellinse. Dargestellt ist ein typischer Verlauf der elektrischen Feldlinien zwischen den drei zylindrischen Elektroden und ein exemplarischer Ionenstrahl mit einem resultierenden Fokus. Die Fokusposition wird durch die Spannung an der mittleren Elektrode festgelegt.

xy-Ablenkplattensystem. Zur Korrektur von kleinen Winkelabweichungen des Ionenstrahls sind Ablenkplattensysteme in die Ionenstrahlanlage eingebaut. Sie bestehen

aus zwei Plattenkondensatoren, die um 90° gegeneinander verdreht sind. Der Ionenstrahl durchläuft senkrecht die homogenen elektrischen Felder der Plattenkondensatoren und wird abhängig von der angelegten Spannung transversal abgelenkt. Diese Systeme sind notwendig, da der Ionenstrahl nie absolut koaxial aus der Ionenquelle austritt. Außerdem ist diese Justage des Ionenstrahls für die Positionierung in der Interaktionskammer und auf dem Detektor wichtig. Mit dem verwendeten System konnte der Strahl mit einer Genauigkeit von wenigen 10 Mikrometern durch die 8 m lange Anlage justiert werden.

Da das Duoplasmatron eine kontinuierliche Ionenquelle ist, würden ohne weitere Vorkehrungen eine große Zahl von H_2^+ -Ionen den MCP-Detektor belasten, die nicht mit dem Laser in Wechselwirkung getreten sind. Um diesen Teilchenstrom zu reduzieren, wird an das letzte Ablenkplattensystem eine Rechteckspannung von 4 Volt angelegt. Dies führt zu einem gepulsten Ionenstrom mit einer Ionenpulsdauer von nur einigen Mikrosekunden.

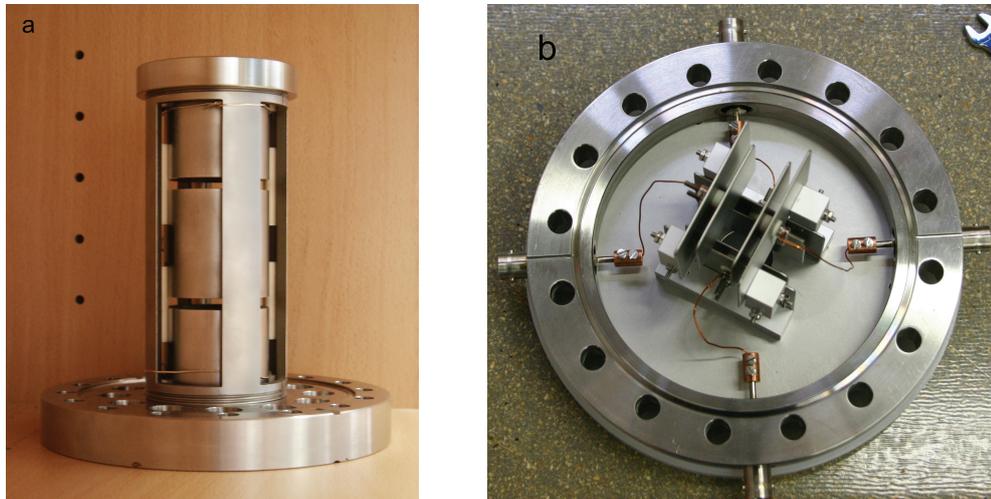


Abbildung 5.6: a, Fotografie einer kommerziellen Einzellinse, gehalten in einem CF-100-Flansch der Firma DREEBIT, Dresden (Foto ©DREEBIT). b, Fotografie eines Ablenkplattenpaares in einem CF-100-Vakuumdurchgangsflansch, Entwicklung und Herstellung am IOQ, Jena im Rahmen dieser Arbeit.

Schlitzblendensystem. Um die Kollimation des Ionenstrahls weiter zu verbessern, befinden sich in der Anlage vor der Interaktionskammer zwei Schlitzblendensysteme. Mit ihnen kann der Ionenstrahl auf einen Durchmesser von unter $50\ \mu\text{m}$ reduziert werden. Durch den Abstand zwischen den beiden Schlitzblendensystemen von $1,5\ \text{m}$ wird ein transversal kalter Strahl mit einer Divergenz deutlich unter $0,1\ \text{mrad}$ erzeugt. Die Lochgröße der Schlitzblenden ist variabel einstellbar, wodurch die Justage des Ionenstrahls in der Anlage deutlich erleichtert wird.

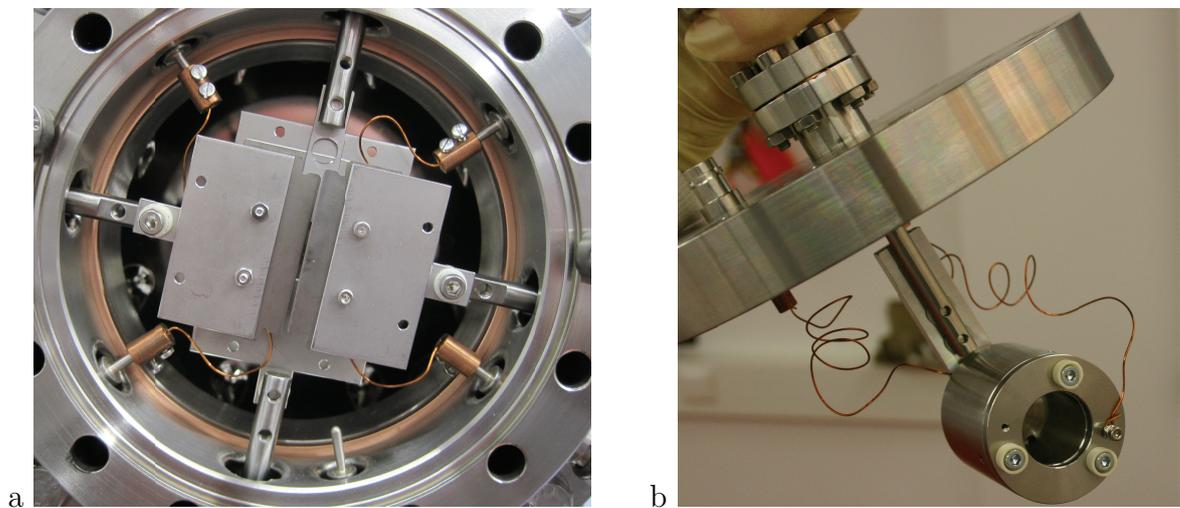


Abbildung 5.7: a, Fotografie der einstellbaren Schlitzblenden, Entwicklung und Herstellung am IOQ, Jena im Rahmen dieser Arbeit. b, Fotografie eines Faraday-Behchers zur Messung der Ionenströme, Entwicklung und Herstellung am IOQ, Jena im Rahmen dieser Arbeit.

Faradaybecher. Zu Bestimmung des Ionenstroms und zur Justage des Ionenstrahls sind Faradaybecher jeweils hinter Bauteilen mit kleinen Durchgangsblenden wie z.B. dem Wienfilter angebracht. Die Ionen treffen in diese Becher auf und erzeugen dadurch einen Strom. Ihr Akzeptanzdurchmesser beträgt $2\ \text{cm}$. Durch den Einschlag der Ionen auf der Oberfläche werden zusätzlich Elektronen herausgelöst. Diese werden durch ein elektrostatisches Gegenfeld an der Eintrittsöffnung des Faradaybechers wieder eingefangen, um die Strommessung nicht zu verfälschen. Mit diesen Faradaybechern können Ionenströme im pA -Bereich gemessen werden. Vor dem Detektor am Ende der Ionen-

strahlanlage befindet sich ein spezieller Faradaybecher mit einem Durchmesser von 3 mm, um den Hauptstrahl zu blocken und die Dissoziationsprodukte passieren zu lassen. Ebenso kann damit während einer Messung in Echtzeit der Ionenstrom überwacht werden.

Alle Faradaybecher sind beweglich gelagert, sodass sie während der Strahljustage für Strommessungen in den Strahl bewegt werden können. Nach der Justage werden sie, abgesehen vom 3-mm Faraday-Becher wieder aus dem Ionenstrahl entfernt.

5.3.3 Interaktionszone

Im Zentrum der Interaktionszone wird die Laserstrahlung mit dem Ionenstrahl überlagert. Als Eintrittsfenster für den Laserstrahl dient ein 1 mm starkes Quarzglasfenster mit einem Durchmesser von 18 mm. In der Interaktionszone ist ein mehrstufiger Plattenkondensator (im Weiteren „Spektrometer“ genannt, siehe Abbildung 5.8 a) aufgehängt, dessen elektrisches Feld von rund 200 V/cm parallel zur Richtung des Ionenstrahls ausgerichtet ist. Zusätzlich sind Ein- und Austrittslöcher für den Ionenstrahl in die Kondensatorplatten gebohrt. Das angelegte elektrostatische Feld verändert die kinetische Energie der geladenen Dissoziationsprodukte und erzeugt so eine Zeitdifferenz zwischen verschiedenen geladenen oder unterschiedlich schweren Fragmenten, die mit dem Detektor gemessen wird (siehe Abbildung 5.8 b). Dadurch ist es möglich, den Teilchen eindeutig ihre Ladung und Masse zuzuordnen.

Das Spektrometer ist in 5 Raumrichtungen (x,y,z , Drehung und Verkippung) beweglich gelagert und kann vollständig von außerhalb der Anlage justiert werden.

In der Mitte des Spektrometers muss zwischen den beiden Strahlen sowohl eine zeitliche als auch räumliche Überlappung erreicht werden. Die zeitliche Überlagerung erfolgt durch eine variable zeitliche Steuerung der Ionenstrahlpulse und einer Kontrolle der Signale durch ein Oszilloskop. Da der Ionenstrahl nicht sichtbar ist, wird folgende Technik für die räumlich Justage verwendet: Unter dem Spektrometer befindet sich eine kleine Metallspitze, die in den Ionenstrahl bewegt werden kann. Der Schatten der

Spitze kann auf dem Detektor beobachtet werden. Ebenso wird mit Hilfe der Spitze ein Schatten im Laserfokus erzeugt. Dies garantiert die räumliche Überlagerung. Nach der Überlagerung der beiden Strahlen wird das Spektrometer in seine nominelle Position bewegt (siehe Abbildung 5.8a).

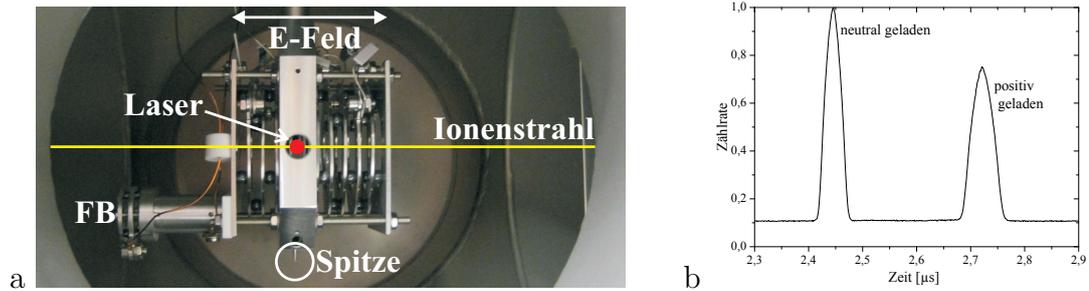


Abbildung 5.8: a, Fotografie des Ionenspektrometers inkl. Faradaybecher (FB) und Spitze zur Überlagerung des Ionenstrahls mit dem Laserfokus. Das Spektrometer ermöglicht eine zeitlich getrennte Detektion der geladenen und ungeladenen Fragmente. b, Typisches Flugzeitspektrum der Dissoziationsprodukte auf dem Detektor. Die geladenen Fragmente sind durch ein negatives longitudinales Feld im Interaktionsgebiet verlangsamt worden.

Bei der Verwendung von ultrakurzen Einzelzyklenlaserpulsen ist es wichtig, die Dispersion im Laserstrahlengang zu optimieren, da ansonsten der Laserpuls nicht seine minimale Pulslänge im Fokus in der Vakuumanlage erreichen kann. Zur Dispersionskontrolle und Optimierung wird die Zählrate der Photoionisation von Edelgasen gemessen. Dazu wird Neon oder Xenon in die Interaktionszone gelassen, und der Laser wird in das Gas fokussiert. Die Zählrate der erzeugten Photoelektronen der Photoionisation hängt nichtlinear von der Spitzenintensität des Laserpulses ab und kann mit dem Detektor gemessen werden. Die Dispersion im optischen Strahl wird durch eine Variation der Dicke von Glaskeilen gesteuert. Ein Maximum in der Zählrate bedeutet eine maximale Spitzenintensität, so dass eine minimale Pulslänge in der Interaktionskammer eingestellt ist.

5.4 Detektor

Detektor. Zur Detektion der Dissoziationsprodukte ist am Ende der Ionenstrahl-anlage ein sog. „Delay-Line“ Detektor der Firma Roentdek eingebaut [75, 76]. Der effektive Durchmesser beträgt 80 mm. Zur Verstärkung der einzelnen detektierten Teilchen befindet sich auf der Vorderseite des Detektors eine Mikrokanalplattenanordnung. Beim Auftreffen eines Teilchens erzeugt es in den oberen Schichten der Anordnung eine Elektronenwolke, die beim Durchlaufen der Mikrokanalplatten weiter verstärkt wird. Die Vorderseite der Mikrokanalplatten liegt auf Erdpotential, um die Flugbahn der Ionen nicht zu beeinflussen. An der Rückseite der Platte wird eine Spannung von ca. 2 kV angelegt. An der Vorderseite der Plattenanordnung kann ein elektronischer Signalpuls für jedes Teilchen gemessen werden. Dieses Signal wird zur Berechnung der Flugzeit der Molekülfragmente verwendet. Hinter der Mikrokanalplatte treffen die Elektronenwolken auf drei hexagonal angeordnete Detektionsebenen. Die Verwendung von drei statt zwei Detektionsebenen gestattet eine Konsistenzprüfung der Fragmentkoordinaten, die prinzipiell bereits mit zwei Detektionsebenen rekonstruiert werden können. Außerdem können Ereignisse mit nahezu gleichen Koordinaten besser unterschieden werden (bessere Multi-Hit-Fähigkeit). Jede Detektionsebene besteht aus zwei Lecher-Leitungen. Die auftreffende Elektronenwolke erzeugt ein elektronisches Signal in beiden Drähten, das sich in beide Richtungen ausbreitet. Am Ende der Leitung wird der Zeitpunkt des Eintreffens erfasst. Daraus lässt sich die Auftreffposition in einer Dimension bestimmen. Insgesamt hat der Detektor 7 Kanäle, zwei Kanäle pro Ebene und einer für das Zeitsignal der Mikrokanalplatte.

Digitalisierung. Die Digitalisierung der Daten erfolgt über einen 8-bit Analog-zu-Digital-Wandler (ADC) der Firma Roentdek mit einer Abstattete von 2,5 GS/s für das Mikrokanalplattensignal und 1,25 GS/s für die Signale der Detektionsebenen. Mit diesem System kann eine räumliche Auflösung von unter 100 μm und eine zeitliche Auflösung von unter 100 ps erreicht werden. Der Detektor kann mit einer Laserwieder-

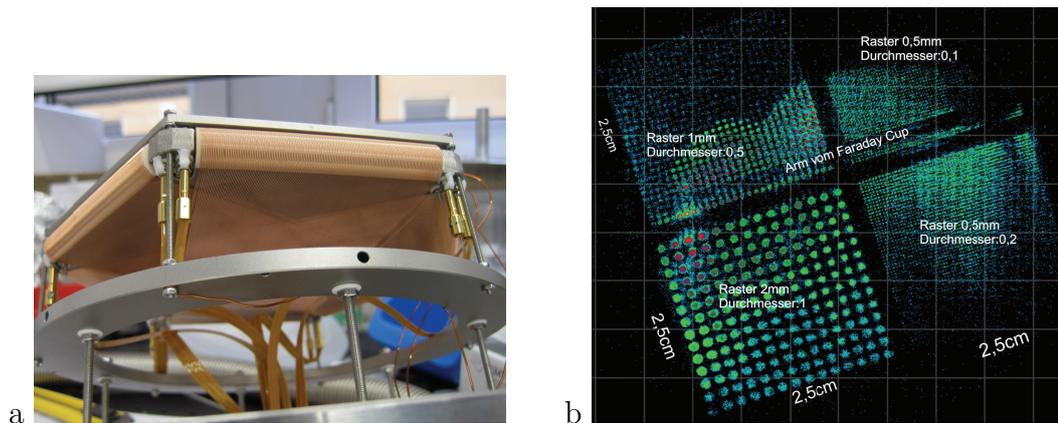


Abbildung 5.9: a, Fotografie des hexagonalen „Delay-Line“ Detektors, Roentdek, Frankfurt. b, Abbild einer Maske, die vor den Delay-Line Detektor in den Ionenstrahl geklappt werden kann. Die Maske besitzt verschiedene Lochdurchmesser von 1 mm bis 0,1 mm. Die detektierten Signale werden durch einen Analog-zu-Digital-Wandler registriert und dann gespeichert. Mit einer Samplingrate von bis zu 2,5 GS/s wird eine Auflösung von unter 100 μm erreicht.

holrate von bis zu 5 kHz kontinuierlich betrieben werden, ohne dass Daten aufgrund von vollen Speicherplätzen etc. verloren gehen und dadurch eine Leerlaufzeit auftritt. Dies wird durch eine Verringerung der Datenströme ermöglicht: Bereits während des Digitalisierungsprozesses werden nur Messwerte gespeichert, die von Null verschieden sind. Diese digitalisierten Signalverläufe werden mit einem Zeitstempel versehen und dann an den Computer zu Speicherung und Auswertung weitergeleitet.

Zur Auswertung der Rohdaten und zur Bestimmung der Positions- und Zeitwerte wird die Software CopoldPC der Firma Roentdek verwendet, die im Rahmen dieser Arbeit an unsere Anforderungen (Koinzidenzmessung der Dissoziationsfragmente und Phase-Tagging) angepasst wurde.

Kapitel 6

Ergebnisse und Diskussion

Dieses Kapitel bildet den Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit und beinhaltet die Auswertung und Analyse der durchgeführten Messungen. Für eine Koinzidenzauswertung müssen zuerst die Impulse der Dissoziationsfragmente aus den Zeit- und Positionsdaten ausgerechnet und passende Ereignispaare gefunden werden. Aus den 3-dimensionalen Impulsen wird dann die E_{KER} berechnet und die E_{KER} -Spektren werden nach dem Orientierungswinkel θ zwischen der Molekülachse und der Laserpolarisation sortiert. Anschließend werden die Effekte der Asymmetrie/ Elektronenlokalisierung abhängig von der absoluten Phase bestimmt und mit den theoretischen Berechnung und mit den bisherigen Messungen mit H_2 verglichen. Abschließend folgt ein Vergleich zwischen den Messungen mit H_2^+ - und D_2^+ -Molekülen.

6.1 Rohdatenauswertung

6.1.1 Von den Rohdaten zum E_{KER} Spektrum

Während einer Messung werden bei jedem Laserschuss für jedes detektierte Ereignis die elektrischen Signale aus dem Delay-Line-Detektor (6 Kanäle), ein Zeitsignal von der Vorderseite der Mikrokanalplatte (1 Kanal), zwei Elektronenspektren aus dem Phasemeter (2 Kanäle) und das Photodiodensignal (1 Kanal) digitalisiert und gespeichert.

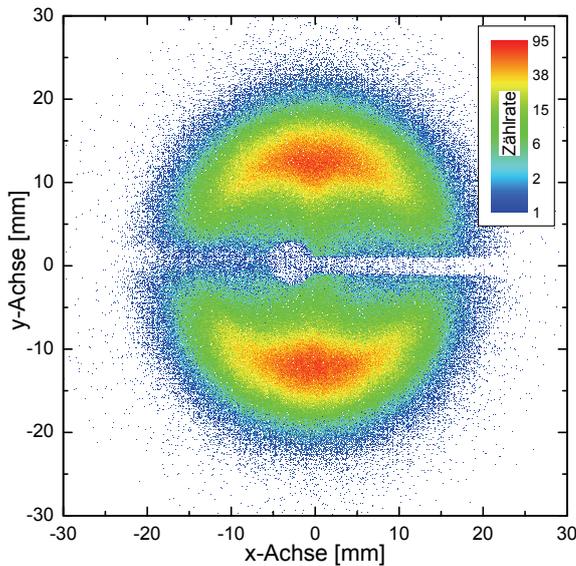


Abbildung 6.1: Rohdaten der Positionsverteilung der Fragmente auf dem Detektor, ausgewertet mit dem Koinzidenzfilter für die H_2^+ -Messung. Der weiße Schatten in der Mitte des Bildes wird durch den Faraday-Becher hervorgerufen, der den Hauptstrahl herausfiltert. Die gemessenen Zeitsignale sind in Abbildung 5.7 b dargestellt.

Diese Rohsignal-Speicherung hat den Vorteil, dass die Messungen unter verschiedenen Fragestellungen unbegrenzt wiederholt ausgewertet werden können. Mit den ersten 7 Kanälen werden die Position (x,y) und der Zeitpunkt (t) der Detektion auf dem Detektor der Fragmente rekonstruiert. Die letzten drei Kanäle werden zur Berechnung der absoluten Phase benutzt. Das gemessene Detektorbild in Abbildung 6.1 stellt zwei charakteristische Hemisphären der Dissoziationsfragmente dar. Die Ionen treffen senkrecht auf den Schirm und die Laserpolarisation ist parallel zur y -Achse ausgerichtet.

Mit drei verschiedenen Tests können die Dissoziationsereignisse von den Hintergrundereignissen unterschieden und das Rauschen stark gesenkt werden: (i) Der Ionenstrahl der nicht-dissoziierten Moleküle wird mit einem Faradaybecher herausgefiltert, der direkt vor dem Detektor angebracht ist. Dieser ist auf der Abbildung 6.1 a als runder Schatten in der Mitte zu erkennen. (ii) Durch das Ionenflugzeitspektrometer (siehe Kapitel 5.3.3) treffen die verschiedenen Dissoziationsfragmente Wasserstoffatom (H) und Proton (p) zu unterschiedlichen Zeiten den Detektor (siehe Abbildung 5.7 b). So können die Ereignisse eindeutig einem H oder einem p zugeordnet werden. Dies macht eine Koinzidenzmessung möglich. (iii) Aufgrund der Impulserhaltung muss die Summe der Impulse für jedes Ereignispaar bei null liegen. Ist dies nicht der Fall, handelt es sich um ein falsches Paar und das Ereignis wird ebenfalls verworfen.

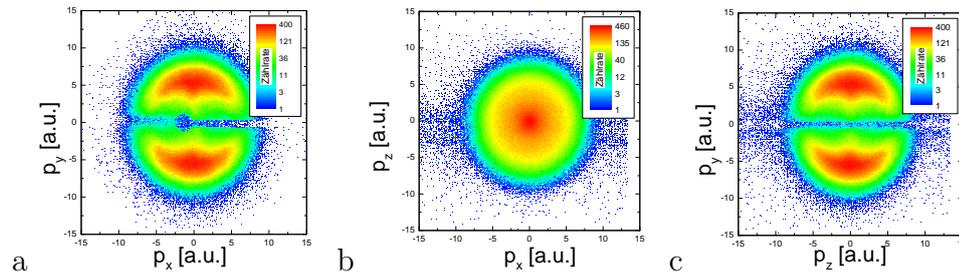


Abbildung 6.2: a-c, Darstellung der Impulse p_x , p_y , p_z für das neutrale Wasserstoffatom. Dabei sind jeweils 2 Impulse gegeneinander aufgetragen. Die y-Achse steht parallel zur Laserpolarisation, die x-Achse in k-Vektor Richtung der Laserstrahlung und z steht senkrecht zu beiden, also parallel zum Ionenstrahl. Der Schatten für $p_y = 0$ entsteht durch den Faradaybecher vor dem Detektor.

Nach der Anwendung dieser Tests können die zwei detektierten Fragmente einem Dissoziationsereignis eindeutig zugeordnet werden. Nur diese Ereignisse werden für die weitere Analyse verwendet.

Aus der Position (x,y) und dem zeitlichen Eintreffen (t) können die Komponenten der Impulse für alle drei Raumrichtungen für die Dissoziationsfragmente berechnet werden. Dazu müssen die Null-Position und der Zeitpunkt der Dissoziation bekannt sein. Aufgrund der Impulserhaltung kann diese Null-Position für jedes Ereignispaar individuell bestimmt werden. In Abbildung 6.2 sind jeweils 2 Impulsrichtungen gegeneinander aufgetragen. Die Achsenbezeichnung für die drei Raumrichtungen ergibt sich folgendermaßen: Die y-Achse steht parallel zur Laserpolarisation, die x-Achse in k-Vektor Richtung der Laserstrahlung und z steht senkrecht zu beiden.

Aus den nun bekannten Impulsen der beiden Dissoziationsfragmente kann der Ausrichtungswinkel θ des Moleküls zur Laserpolarisation und E_{KER} berechnet werden. Wie in Abschnitt 2.2 beschrieben, werden diese beiden Werte typischerweise in einem Falschfarbendiagramm dargestellt (siehe Abbildung 2.2 a).

6.1.2 Überwachung der Laserstabilität

Für eine optimale Auswertung der Messergebnisse müssen die Laserparameter ständig überwacht werden. Die Laserpulslänge, das Wellenlängenspektrum und die spektrale Phase werden mit einem FC-SPIDER der Firma APE, Berlin vermessen. Zusätzlich wird die Laserpulslänge und die Spitzenintensität während der Messung kontinuierlich mit einem Phasenmeter kontrolliert (siehe Kapitel 4.3.2). Messwerte aus Messreihen mit zu großen Laserschwankungen können während der Analyse nachträglich entfernt werden. Die Spitzenintensität im Laserfokus wird vor dem Messbeginn bestimmt. Dazu wird der Durchmesser des Laserfokus entlang der Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls bestimmt. Mit der kontinuierlichen Laserleistung, der Laserrepetitionsrate und der Fokusfläche kann daraus die Spitzenintensität abgeschätzt werden. Die Genauigkeit schätzen wir auf 50%.

6.1.3 Phasenkorrektur

Für eine korrekte Zuordnung der absoluten Phase zu den Dissoziationsereignissen muss eine lineare Abhängigkeit zwischen dem polaren Winkel θ_{abs} in der parametrischen Darstellung und dem Winkel ϕ der absoluten Phase erreicht werden (siehe Gleichung 4.5).

Als erstes werden mit Hilfe der Laserstabilitätsmessung die auszuwertenden Messbereiche festgelegt. Als zweites werden die Integrationsgrenzen der Energiebereiche so angepasst, dass ein möglichst runder parametrischer Phasenplot entsteht. Dies ist möglich, da für jeden Laserschuss das komplette Elektronenspektrum gespeichert ist. Als drittes werden die Laserpulse entsprechend ihrer gemessenen absoluten Phasen in 36 Phasenklassen gruppiert, siehe Abbildung 6.3. Bei einer linearen Abhängigkeit von θ_{abs} zu ϕ sollten alle Klassen dieselbe Anzahl von Laserschüssen enthalten. Ist dies nicht der Fall wird die Breite $\Delta\theta_{\text{abs}}$ der einzelnen Phasenklassen so angepasst, dass sich am Ende in jeder der 36 Klassen der absoluten Phase dieselbe Anzahl an Laserschüssen befindet. Diese neuen Phasenklassen werden den jeweiligen Dissoziationsereignissen zugeordnet

und dann nach ϕ sortiert.

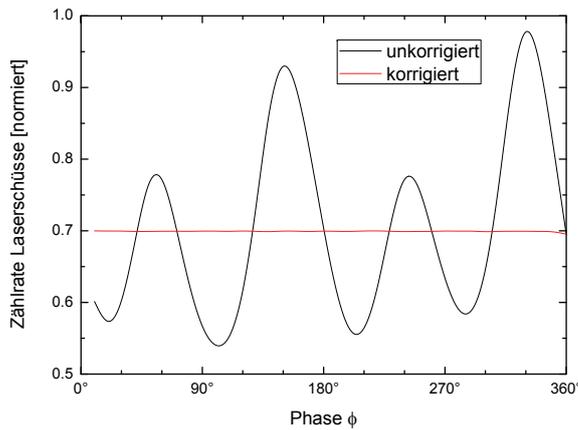


Abbildung 6.3: Dargestellt ist der Vergleich zwischen unkorrigiertem und korrigiertem Phasenhistogramm gemessen mit dem Phasenmeter. Im unkorrigierten Histogramm besitzen alle Phasenklassen dasselbe Intervall θ_{abs} . Die Anzahl der Laserschüsse ist nicht konstant für alle Klassen. Aufgrund der Gleichverteilung der absoluten Phasen muss jedoch jede Phasenklasse die gleiche Anzahl an Laserschüssen enthalten. Um dies zu erreichen, kann die Breite θ_{abs} der Phasenklassen angepasst werden. Bei der korrigierten Kurve haben die Klassen keine konstante Breite, sondern die Breite wurde so variiert, dass eine konstante Zählrate in jeder Klasse gegeben ist. Die jeweilige Phasenklasse wird dann dem Messwert der Dissoziationsereignisse zugeordnet.

6.2 Messung der Winkelverteilung der E_{KER}

Die Messungen der Photodissoziation von H_2^+ -Molekülen werden mit einem ultrakurzen Laserpuls von 4,5 fs und einer spektralen Mittenwellenlänge von 670 nm durchgeführt. In Abbildung 6.4 a ist die Zählrate über dem Ausrichtungswinkel des Moleküls zur Laserpolarisation und der E_{KER} für eine Spitzenintensität von $(4 \pm 2) \times 10^{14}$ Watt/cm² dargestellt. Ereignisse mit einem Winkel von $\cos \theta = \pm 1$ sind parallel zur Laserpolarisation ausgerichtet. In den E_{KER} -Bereichen von 0 bis 0.6 eV und über 1,5 eV bilden sich für $\cos \theta = \pm 1.0$ deutliche Spitzen heraus, d.h. Ereignisse mit $\cos \theta = \pm 1$ sind deutlich häufiger als solche mit $\cos \theta \ll \pm 1$. Diese Effekte verschwinden bei Vergleichsmessungen mit einer geringeren Intensität von $(3 \pm 2) \times 10^{13}$ Watt/cm² (siehe 6.4b). Als Erklärung für dieses Verhalten kann der geometrische Effekt ausgeschlossen werden, da dieser

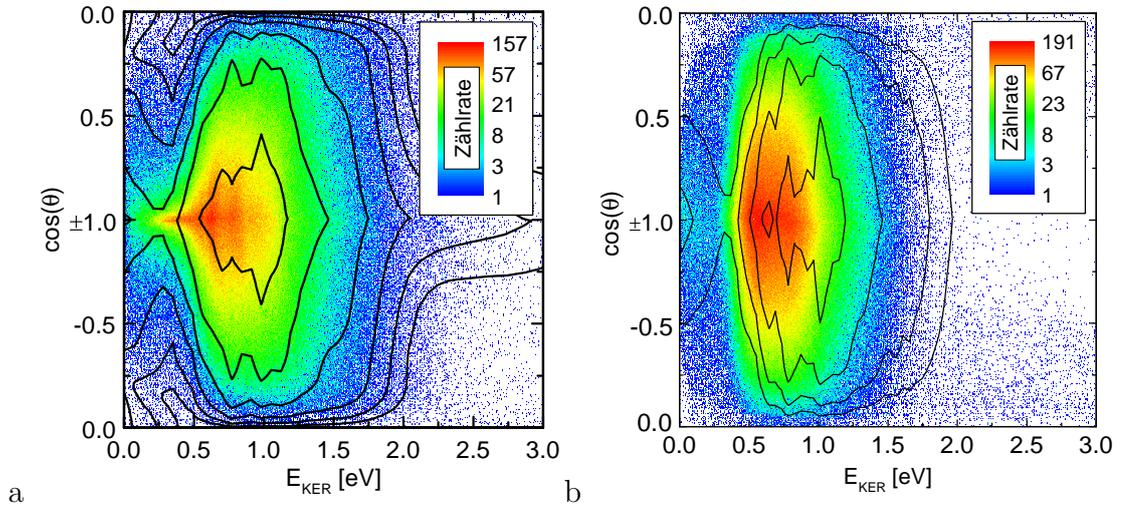


Abbildung 6.4: E_{KER} Spektrum der Dissoziationsfragmente H und p, aufgetragen über den Orientierungswinkel θ zwischen der Molekülachse und der Laserpolarisation für eine Laserpulslänge von 4.5 fs und zwei Spitzenintensitäten (a, $(4 \pm 2) \times 10^{14} \text{ Watt/cm}^2$ und b, $(3 \pm 2) \times 10^{13} \text{ Watt/cm}^2$). Die schwarzen Linien sind die Höhenlinien der theoretischen Zählrate, berechnet durch Lösung der 3-dimensionalen zeitabhängigen Schrödingergleichung mit vergleichbaren Laserparametern.

durch die gewählte Achsenskalierung bereits kompensiert ist (siehe Abbildung 2.2 und Erklärungen dazu). Die höheren Zählraten treten nur bei Molekülen auf, die parallel zur Laserpolarisation ausgerichtet sind und dadurch eine größere effektive Laserintensität erfahren. Diese effektiv größere Laserintensität koppelt die Übergänge zwischen den Molekülpotentialen stärker und durch „Bond-Softening“ und „Bond-Slopping“ Effekte können mehr Moleküle aus anderen Vibrationszuständen dissoziiert werden (siehe Kapitel 2.4). Fragmente mit einer $E_{\text{KER}} < 0.5 \text{ eV}$ werden durch den $0-\omega$ -Übergang erzeugt. Ereignisse aus der Spitze von über 1.5 eV werden dagegen durch die 2- und 3- ω -Absorption dissoziiert.

Im Rahmen einer Kooperation mit Brett Esry von der Kansas State University, USA, sind durch Lösung der 3-dimensionalen zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung (TDSE) die Messungen mit vergleichbaren Laserparametern nachgerechnet worden. Sie beinhalten sowohl die im Experiment unvermeidbare Intensitätsmittelung im Gaußschen Fokus, als auch nukleare Vibrationen und Rotationen des Moleküls. Die Berechnung

wurde für die verschiedenen Vibrationszustände des Moleküls einzeln durchgeführt und nach der Franck-Condon Verteilung aufaddiert. Dadurch konnten winkelabhängige (Ausrichtung des Moleküls zur Laserpolarisation) Dissoziationsspektren berechnet werden.

In Abbildung 6.4 ist das berechnete Spektrum durch schwarze Höhenlinien gekennzeichnet. In Abbildung 6.4 a zeigt sich eine sehr gute Übereinstimmung mit den gemessenen Werten für eine Spitzenintensität von $(4 \pm 2) \times 10^{14}$ Watt/cm². Für die Messung bei einer Intensität von $(3 \pm 2) \times 10^{13}$ Watt/cm² in Abbildung 6.4 b scheint es einen Versatz in der E_{KER} der Fragmente zwischen den berechneten und gemessenen Werten zu geben: Die E_{KER} der gemessenen Werte ist kleiner als die der berechneten Energien. Diese Abweichung ist vermutlich darauf zurückzuführen, dass im Experiment im Mittel effektiv längere Wellenlängen verwendet wurden als für die Rechnung. Kurzwelligere Photonen führen in der Simulation dann zu Fragmenten mit einer größeren E_{KER} . Der Effekt tritt auf, obwohl für die Berechnungen die gemessenen Laserspektren verwendet wurden, allerdings unter der Voraussetzung einer konstanten spektralen Phase (bandbreitebegrenzter Puls). Während der Messungen konnte der Puls jedoch nicht immer vollständig komprimiert werden. Unsere Erfahrung mit dem Lasersystem legt nahe, dass sich die langwelligen Anteile zeitlich besser überlagern als die kurzwelligigen Anteile. Es ergibt sich also eine effektive Rotverschiebung des Spektrums der Laserpulse, die den Versatz in der E_{KER} erklären. Im Fall der Messung mit hoher Pulsenergie (Abbildung 6.4 a) war es dagegen möglich, den Laserpuls besser zu komprimieren. Die Abweichung zwischen Messung und Simulation fällt entsprechend geringer aus.

Die gemessenen feinen Strukturen im Energiebereich zwischen 0.5 und 1.2 eV (besonders deutlich zu sehen bei $\theta \approx 0^\circ$) stehen in keinem Zusammenhang mit den Vibrationszuständen des Moleküls, sondern entstehen durch das nicht gaußförmige Laserspektrum. Da den Berechnungen gemessene Wellenlängenspektren zu Grunde liegen, können diese Strukturen reproduziert werden. Bei der Verwendung von gaußförmigen Laserspektren treten diese Strukturen in den berechneten E_{KER} -Spektren nicht auf.

6.3 Phasenabhängige Effekte der Elektronenlokalisierung im H_2^+ Molekül

6.3.1 Parallel zur Laserpolarisation ausgerichtete Moleküle

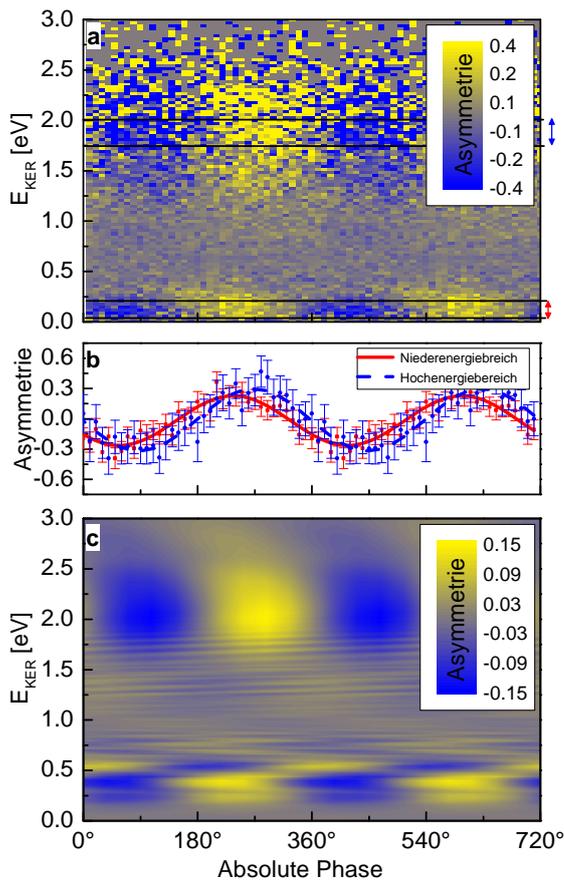


Abbildung 6.5: a, Darstellung der Elektronenlokalisierung abhängig von der absoluten Phase und der E_{KER} für eine Pulslänge von 4,5 fs und eine Spitzenintensität von $(4 \pm 2) \times 10^{14}$ Watt/cm². b, Schnitt durch die Asymmetrieverteilung für 2 Energiebereiche. c, Theoretische Berechnung der Asymmetrien durch Lösung der 3-dimensionalen zeitabhängigen Schrödinger-Gleichung für eine Laserpulslänge von 4,5 fs und eine Spitzenintensität von $1,0 \times 10^{14}$ Watt/cm². Der Winkel der absoluten Phase $\phi = 0^\circ$ entspricht einem kosinusartigen Puls

Für die Bestimmung der Phaseneffekte der Elektronenlokalisierung werden die Dissoziationsereignisse in die zugehörigen 36 Phasenklassen eingeteilt und daraus 36 E_{KER} Spektren bestimmt. Die Summe dieser 36 Spektren ist in Abbildung 6.4 dargestellt. In diesem Abschnitt werden nur Ereignisse betrachtet, die sich in einem Kegel parallel zur Laserpolarisationsrichtung mit einem maximalen Öffnungswinkel von 25° befinden ($\pm 0.9 < \cos \theta < \pm 1.0$). Zwischen den Regionen „Oben“ ($0.9 < \cos \theta < 1.0$) und „Unten“ ($-0.9 < \cos \theta < -1.0$) wird daraufhin der Kontrast berechnet, um die Asymmetrie

bestimmen zu können, ob z.B. für einen kosinusartigen Puls mehr Protonen oder mehr Wasserstoffatome in positiver y-Richtung detektiert werden.

Die Asymmetrien und damit die Elektronenlokalisierung ist in Abbildung 6.5 für die H_2^+ Messung als Falschfarbendiagramm über E_{KER} und die absolute Phase aufgetragen. Für die E_{KER} zwischen 0 und 0,25 eV (Niederenergiebereich) und 1,4 und 2,4 eV (Hochenergiebereich) sind deutliche Phasenabhängigkeiten mit Asymmetrien von 40 % sichtbar (siehe Abbildung 6.5 b). Zwischen diesen beiden Bereichen scheint der Kontrast zu verschwinden und nur sehr schwache Asymmetrien sind sichtbar. Der Vergleich mit den berechneten Spektren zeigt wieder eine sehr gute Übereinstimmung (siehe Abbildung 6.5 c). Trotzdem sind kleine Unterschiede zu erkennen. Am auffälligsten sind die voneinander abweichenden maximalen Amplituden, die wahrscheinlich durch die unterschiedlichen Spitzenintensitäten zwischen Messung und Berechnung hervorgerufen werden. Dieser Unterschied war nicht vermeidbar, da die Asymmetrieeffekte in der Messung mit höheren Intensitäten aufgrund von größeren Zählraten besser hervortreten, und die Berechnungen jedoch bei niedrigeren Intensitäten durchgeführt werden mussten, um die mit dem Computercode unverträgliche Ionisation zu vermeiden. Mit Hilfe dieser Rechnungen kann nun auch ϕ_{offset} bestimmt werden und die gemessenen Werte entsprechend in der absoluten Phase kalibriert werden. Bei der Berechnung entspricht eine absolute Phase von $\phi = 0^\circ$ einem kosinusartigen Puls.

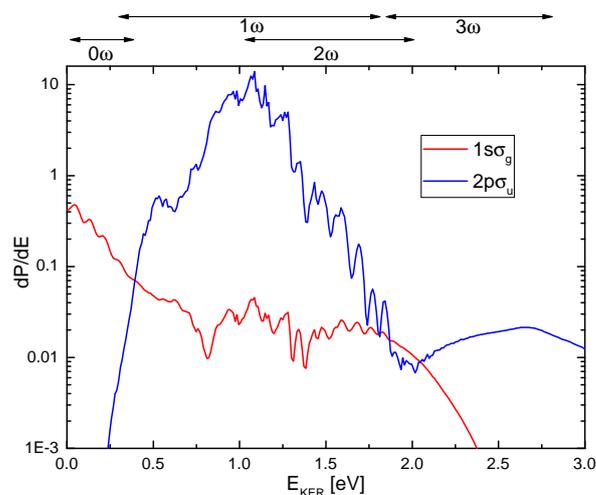


Abbildung 6.6: Berechnete Population für die $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ Potentiale nach der Dissoziation für den 8. Vibrationszustand. In Bereichen mit vergleichbarer Populationswahrscheinlichkeit können die beiden Zustände interferieren und Asymmetrien hervorrufen. Hier im Bereich um 0,3 und 2,0 eV

Die beobachtete Elektronenlokalisierung kann zumindest qualitativ als Interferenz von Zuständen gerader und ungerader Parität verstanden werden. Es ist unmittelbar einsichtig, dass die Addition der Wellenfunktionen eines geraden und ungeraden Zustandes zu einer nicht-inverssymmetrischen Elektronenverteilung führt. Für die Above-threshold Ionisation (ATI) von Atomen durch Einzelzyklenpulse haben darauf zuerst Cormier und Lambropoulos 1998 hingewiesen [81]. Sie haben in diesem Zusammenhang die ATI-Spektren von Alkaliatomen im störungstheoretischen Intensitätsbereich ($\gamma \gg 1$ und $U_p \ll \hbar\omega$) berechnet und festgestellt, dass die Photoelektronenzählrate zwischen den ATI-Maxima, also in den Minima, eine deutliche Phasenabhängigkeit zeigt, im Gegensatz zu den Photoelektronen bei den ATI-Maxima. Diese Beobachtung erklärt sich dadurch, dass in den Minima der ATI-Spektren die Beiträge der benachbarten ATI-Maxima etwa gleich stark sind. Entsprechend interferieren dort die Anteile der Wellenfunktion unterschiedlicher Parität mit maximalem Kontrast.

Ganz analog kann dies bei H_2^+ betrachtet werden. In Kapitel 2.4 haben wir ausgeführt, dass die Dissoziation über den $2p\sigma_u - 1\omega$ -Zustand zu einem sehr breiten E_{KER} -Spektrum führt, das von ca. 0,25 eV bis über 2 eV reicht. Außerdem ist Dissoziation aus dem $1s\sigma_g - 0\omega$ - und dem $1s\sigma_g - 2\omega$ -Zustand durch Bond-Slopping bzw. Doppel-Resonanzen möglich. Die entsprechenden Dissoziationsenergien liegen zwischen 0 und 0,4 eV bzw. 1,0 und 2,1 eV, also an den Rändern des E_{KER} -Bereichs, aus dem Dissoziation über den $2p\sigma_u - 1\omega$ -Zustand möglich ist. Damit hat man diesbezüglich in der Tat eine zur ATI von Alkaliatomen analoge Situation: Ein gegebener Dissoziationszustand kann mit vergleichbarer Wahrscheinlichkeit über zwei unterschiedliche Zustände entgegengesetzter Parität erreicht werden. Dies wird durch die berechneten Populationen für die $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ Zustände in Abbildung 6.6 beispielsweise für den 8. Vibrationszustand bestätigt. In dem niedrigen (0,4 eV) und hohen (1,7 eV) Energiebereich erreichen die Populationen vergleichbare Zählraten mit daraus resultierenden großen Asymmetrien in diesen Regionen. Dagegen dominiert in dem Zwischenbereich nur der $2p\sigma_u$ Zustand und die Asymmetrien sind verschwindend gering.

Eine theoretische Beschreibung für die Phasenabhängigkeit der Asymmetrie $A(E_{\text{KER}}, \phi)$

wurde in Hua *et al.* [82] durch die Berechnung des Hamiltonoperators für die TDSE wie folgt angegeben:

$$A(E_{\text{KER}}, \phi) = 2 \sum_{\substack{n \text{ gerade} \\ n' \text{ ungerade}}} \text{Re} \left(\underbrace{e^{i(n-n')\phi}}_{\cos \phi} \underbrace{e^{i(\delta_g - \delta_u)}}_{\text{Streuphase}} \underbrace{\langle gE_{\text{KER}}|F_n\rangle \langle uE_{\text{KER}}|F_{n'}\rangle^*}_{\text{Projektion auf Eigenzustände}} \right) \quad (6.1)$$

mit n als Anzahl der absorbierten Photonen, $\delta_{g,u}$ als energieabhängige Streuphase und $\langle gE|F_n\rangle$ und $\langle uE|F_{n'}\rangle$ als Projektion auf die Eigenzustände für die beiden Potentiale $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$. Eine Phasenabhängigkeit der Asymmetrie kann nur existieren, wenn n und n' eine ungerade Differenz ergeben. Im einfachsten Fall bedeutet dies eine Differenz von 1 (1 Photon) und es ergibt sich eine $\cos \phi$ Abhängigkeit. Wie oben bereits beschrieben, ist dies der Fall, wenn ein Dissoziationszustand mit vergleichbarer Wahrscheinlichkeit über zwei unterschiedliche Zustände entgegengesetzter Parität erreicht werden kann. Größere Differenzen sind prinzipiell auch möglich, nur experimentell sehr schwer zu messen. Ein zusätzlicher Phasenversatz wird durch die E_{KER} -abhängig Streuphase erzeugt.

Es muss allerdings auch auf Unterschiede hingewiesen werden. Im vorliegenden Fall erfolgt die Dissoziation aus einer inkohärenten Mischung von Vibrationsanfangszuständen. Interferieren können daher nur Dissoziationsereignisse, die aus dem gleichen Anfangszustand erfolgt sind. Die Dissoziation aus verschiedenen Vibrationsniveaus wird im Allgemeinen eine unterschiedliche Phasenabhängigkeit aufweisen, wie bereits Gleichung 6.1 vermuten lässt. Entsprechend führt die Mittelung über verschiedene Vibrationszustände zu einer Reduktion der Asymmetrie.

6.3.2 Vergleich mit H_2

Die Eigenschaft der Photodissoziation von H_2 ist bereits in Kapitel 2 beschrieben worden. Wie bereits diskutiert, sind H_2 -Experimente für diese Arbeit vor allem deswegen relevant, weil angenommen wird, dass die initiale Photoionisation von H_2 zu H_2^+ von der nachfolgenden Dissoziation von H_2^+ getrennt werden kann.

Dass dieses Paradigma der meisten H_2 -Arbeiten fragwürdig ist, zeigt bereits die Arbeit von Kling *et al.* [25]. Dort ist es der inelastische Stoß durch das vom Laserfeld während des Ionisationsprozesses zurückgeschleuderte Elektron, das die Dissoziation bewirkt. Die starke Phasenabhängigkeit der Dissoziation ist also der bekannten Phasenabhängigkeit der Photoionisation geschuldet, wie übrigens in [25] korrekt dargestellt. Interessanterweise wird jedoch nicht darauf hingewiesen, dass diese Erklärung das Paradigma einer Faktorisierung der Photoionisation und Dissoziation von H_2 zumindest für diesen speziellen Prozess ausschließt. Man könnte nun einwenden, dass der in [25] untersuchte Effekt nur ein Randaspekt sei, was sich auch in den hohen Dissoziationsenergien äußere, die im H_2^+ -Experiment gar nicht auftreten.

Relevanter für die fundamentale Physik der Photodissoziation von H_2^+ wären dann die Arbeiten von Kremer *et al.* [48]. Tatsächlich werden dort Dissoziationsenergien beobachtet, die mit den hier gemessenen vergleichbar sind. Trotzdem weisen die Phasenabhängigkeiten erhebliche Unterschiede auf. In [48] ändert sich die Asymmetrie $A(\phi)$ als Funktion der E_{KER} deutlich. Zu erkennen ist dies am fast diagonalen Streifenmuster der Asymmetriedarstellungen zwischen 0,5 und 2,5 eV (siehe Figure 2.7b).

Demgegenüber zeigen unsere Messungen der Asymmetrie zumindest zwischen 1,5 und 2,5 eV keine erkennbaren Abhängigkeiten von der Energie. Zwischen 0,5 und 1,5 eV lässt sich zwar eine Energieabhängigkeit erahnen. Allerdings ist der Kontrast in diesem Energiebereich so gering, dass dadurch nicht eine Ähnlichkeit mit den H_2 -Messungen aus [48] erkennbar ist. Ein ähnlicher Befund ergibt sich für die von uns beobachtete Asymmetrie für E_{KERS} zwischen 0 und 0,25 eV. Dieser Effekt ist in der Literatur zu H_2 nicht existent. Allerdings kann man hier einwenden, dass Bond-Slopping eine relative starke Besetzung höherer Vibrationszustände erfordert, um experimentell beobachtbar zu sein. Der Effekt könnte also durch die Präparation des H_2^+ durch eine Hochspannungsentladungsquelle begünstigt sein.

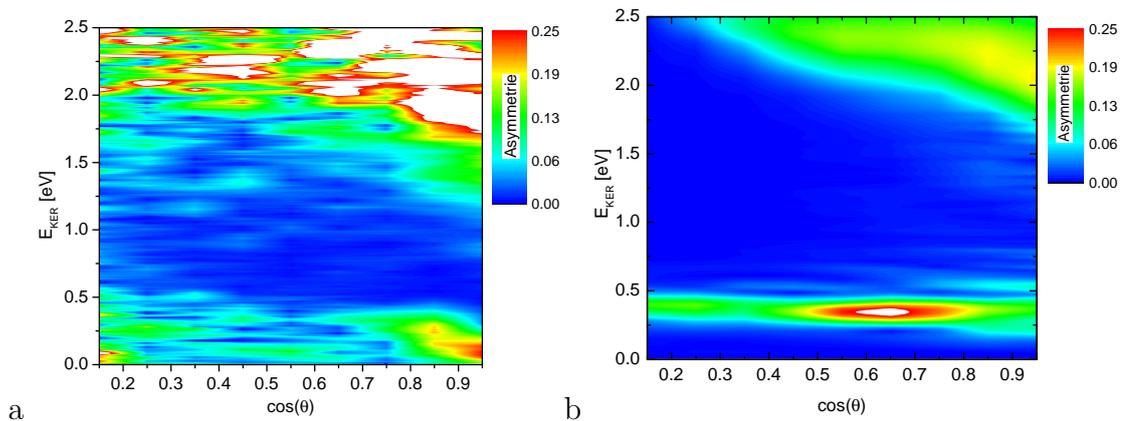


Abbildung 6.7: Falschfarbendarstellung der Asymmetrieamplitude über die Molekülausrichtung θ und E_{KER} von H_2^+ . a, Gemessene Winkelverteilung für eine Laserintensität von $(4 \pm 2) \times 10^{14}$ Watt/cm². b, Berechnetes Spektrum für eine Laserintensität von $1,0 \times 10^{14}$ Watt/cm².

6.3.3 Winkelverteilung der absoluten Phaseneffekten

Mit dem verwendeten Messaufbau kann die Molekülausrichtung θ in Relation zur Laserpolarisation zum Zeitpunkt der Dissoziation bestimmt werden. Dadurch ist es möglich, die Asymmetrie winkelaufgelöst zu untersuchen und mit den winkelauflösenden Berechnungen zu vergleichen. Aufgrund der geringen Zählrate sind die Ergebnisse mit einem Winkel $\cos(\theta) < 0.4$ und mit $E_{\text{KER}} > 2.0$ eV nicht aussagekräftig. Zur Vollständigkeit sind sie aber in Abbildung 6.7 dargestellt. Für die Messung als auch für die Berechnung lassen sich ähnliche Tendenzen erkennen. Für große Ausrichtungswinkel von $\cos(\theta) < 0.6$ besitzen die beiden Asymmetriegebiete einen großen E_{KER} Abstand. Bei der Reduktion des Ausrichtungswinkels nähern sich diese beiden Asymmetriegebiete aneinander an. Die effektive Laserintensität, die auf das Molekül einwirkt, ist quadratisch proportional zu dem Ausrichtungswinkel θ . Bei kleineren Ausrichtungswinkeln erfährt das Molekül also eine größere Intensität und dadurch ändern sich die Kopplungseigenschaften zwischen den $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ Zuständen.

Mit diesem Messaufbau können also verschiedene Laserintensitäten parallel untersucht werden, ohne dass Parameter im Messaufbau verändert werden müssen. Für eine aus-

sagekräftige Analyse reichen die vorhandenen Zählraten jedoch noch nicht aus.

6.3.4 Phaseneffekte der totalen Dissoziationswahrscheinlichkeit

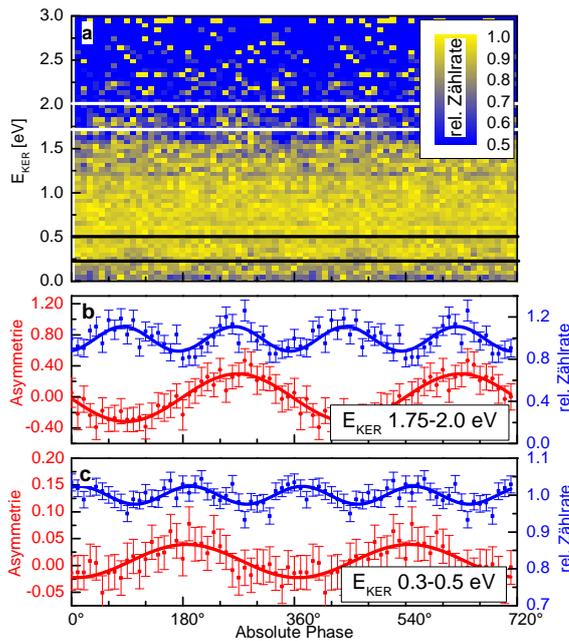


Abbildung 6.8: a, Darstellung der relativen Zählrate der Dissoziation von H_2^+ für 4,5 fs-Laserpulse mit einer Spitzenintensität von $(4 \pm 2) \times 10^{14}$ Watt/cm². Die Zählrate ist auf die jeweils maximale Rate in jeder E_{KER} Zeile normiert. b und c, Verlauf der Zählrate für zwei verschiedene Energiebereiche und Vergleich mit dem dazugehörigen Verlauf der Asymmetrie aus Abbildung 6.5. Der Winkel $\phi = 0$ entspricht wie in der vorherigen Abbildung einem kosinusartigen Laserpuls.

Zusätzlich zu den Asymmetrien kann auch die Zählrate für die Dissoziationsereignisse ausgewertet werden (siehe Abbildung 6.8). In zwei Energiebereichen (0,3 – 0,5 eV und 1,75 – 2,0 eV) ist eine Schwingung in der Dissoziationsrate zu erkennen mit Amplituden von bis zu 10%. Wie in [82] berechnet, schwingt die Zählrate im Vergleich zur Asymmetrien mit der doppelten Frequenz $\cos(2\phi)$. Um dieses Verhalten zu erzeugen, müssen n- und (n-2)-Photonen Übergängen überlagert werden [82].

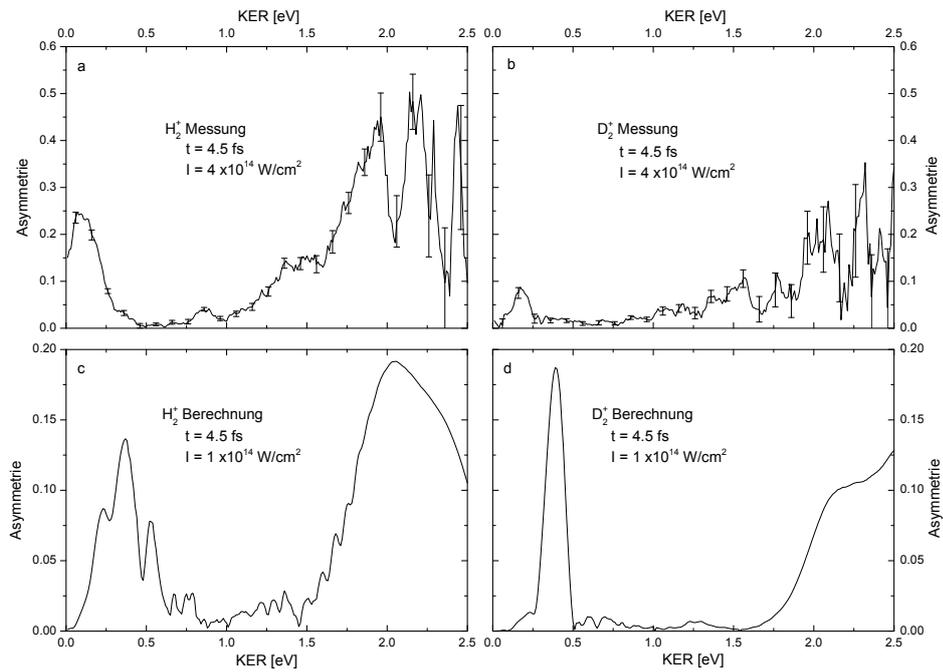


Abbildung 6.9: Darstellung der Asymmetrieamplitudenverteilung über die E_{KER} für die H_2^+ und D_2^+ Messung (a und b). Für E_{KER} über 1,8 eV sinkt die Ereigniszählrate sehr stark ab, sodass die Messwerte nur bedingt aussagekräftig sind. In Abbildung c und d sind die berechneten Amplituden aus den dazugehörigen TDSE Rechnungen dargestellt.

6.4 Vergleich der Lokalisierungseffekte zwischen H_2^+ und D_2^+

Im Rahmen dieser Arbeit wird ebenfalls das Verhalten der Asymmetrie abhängig von der Molekülmasse untersucht. Dazu werden die Messungen mit positiv geladenen Deuterium-Molekülen D_2^+ wiederholt und mit den H_2^+ -Messungen verglichen. Zur besseren Übersicht wird nur die Amplitude der Asymmetrie in Abhängigkeit von der E_{KER} aufgetragen (siehe Abb. 6.9 a und b). Bei der H_2^+ Messung sind sehr deutlich die zwei E_{KER} Bereiche mit einer kräftigen Asymmetrie zu erkennen. Zwischen diesen Bereichen verschwindet der Kontrast dagegen völlig (Vergleich dazu Abb. 6.5). Ein ähnliches Verhalten ist auch für das D_2^+ Molekül in Abb. 6.9 b zu beobachten und bestätigt die Erklärung, dass zur Erzeugung von Asymmetrien eine kohärente Überlagerung der $1s\sigma_g$ und $2p\sigma_u$ Zustände benötigt wird. Deutlich ist die Abnahme der Amplitude von H_2^+ zu D_2^+ um den Faktor 2,5 zu erkennen. Diese Tendenz wurde bereits von Hua *et al.* im Jahr 2009 [82] berechnet. Ein mögliche Erklärung ist der kleinere Energieabstand zwischen den Vibrationsniveaus im $1s\sigma_g$ Potential. Dadurch können mehr verschiedene Vibrationsniveaus dissoziieren, die Asymmetrien werden dadurch stärker verwaschen, und der Kontrast verringert sich.

In Abb. 6.9 c und d sind die dazugehörigen Kurven aus den berechneten Spektren dargestellt. Vergleichbar zu den Messungen sind wieder 2 Bereiche mit großen Amplituden zu erkennen, die von einer Region mit verschwindend kleinen Amplituden unterbrochen wird und somit sehr gut das gemessene Verhalten reproduziert. Das Abfallen der Asymmetrieamplitude mit zunehmender Molekülmasse lässt sich aber in den berechneten Kurven nicht reproduzieren. Nur das Integral über Kurven wird mit schwererem Molekül kleiner. Die E_{KER} Bereiche mit einer Asymmetrie werden also mit zunehmender Masse kleiner, die Amplituden bleiben aber weitestgehend konstant. Ein Grund für die Abweichung in diesem Verhalten in den berechneten Spektren kann die Verwendung der gemessenen nichtgaußförmigen Wellenlängenspektren in Verbindung mit

einer glatten spektralen Phase sein. Aufgrund von Problemen in der Simulation konnten in der theoretischen Berechnung nicht die gemessene schwach oszillierende spektrale Phase verwendet werden. Somit gibt es eine Abweichung zwischen dem gemessenen Laserpuls und dem Laserpuls in den Berechnungen. Wird dagegen die gleiche Rechnung mit gaußförmigen Spektren durchgeführt, kann die Verringerung der Amplitude mit steigender Masse gezeigt werden.

Kapitel 7

Zusammenfassung

Das zentrale Ziel dieser Arbeit war, die Photodissoziation des einfachsten Moleküls (H_2^+ bzw. D_2^+) durch einen, möglichst nur einen optischen Zyklus langen, Puls zu untersuchen, um so zum fundamentalsten Szenario der Dissoziation zu gelangen. Erstmals konnte die „reine“ Dissoziation von H_2^+ und D_2^+ mit dem gekoppelten Dissoziation-Ionisations Prozess von neutralem H_2 und D_2 verglichen werden. Dabei wurde festgestellt, dass sich die Abhängigkeit der Dissoziation von der absoluten (oder carrier-envelope, CE-) Phase der Einzelzyklenpulse in beiden Fällen deutlich unterscheidet. Die bislang vielfach angenommene weitestgehende Unabhängigkeit des Ionisations- und Dissoziationsschrittes bei H_2^+ bzw. D_2^+ ist damit in Frage gestellt.

Experimentell waren drei wesentliche Voraussetzungen zum Erreichen dieses Ziels zu schaffen: Erstens die Erzeugung eines transversal kalten (<10 Kelvin) und kollimierten Teilchenstrahls aus H_2^+ oder D_2^+ Molekülen. Dazu wurde eine Ionenstrahlanlage konzipiert, aufgebaut und in Betrieb genommen. Durch die Detektion sowohl der *geladenen* (Proton) als auch der *ungeladenen* (Wasserstoff) Dissoziationsfragmente konnte eine Koinzidenzauswertung durchgeführt werden. Dadurch verbesserte sich die Energieauflösung auf <1 meV.

Zweitens ist in dieser Arbeit ein Phasenmeter zur Messung der absoluten Phase weiterentwickelt und charakterisiert worden. Die Messgenauigkeit zur Bestimmung der

absoluten Phase eines ultrakurzen Laserpulses konnte im Vergleich zu konventionellen Techniken um den Faktor 4 auf ~ 100 mrad im Einzelschussbetrieb verbessert werden. An dritter Stelle wurden die Spezifikationen des kommerziellen Lasersystems „Femto-power“ verbessert, sodass die Erzeugung von ultrakurzen Einzelzyklenpulse mit einer Pulslänge von 4,0 fs möglich wurde.

Diese Kombination von ultrakurzen Laserpulsen zur Photodissoziation mit H_2^+ und D_2^+ Molekülen im Zusammenhang mit einer hochauflösenden Messung der absoluten Phase für jeden Laserschuss ist weltweit einzigartig, sodass die phasenaufgelöste Messung der Photodissoziation von H_2^+ und D_2^+ im Rahmen dieser Arbeit erstmals geglückt ist.

Die Messungen wurden mit einer Pulslänge von 4,5 fs, einer Zentralwellenlänge von 670 nm und einer Spitzenintensität von bis zu $(4 \pm 2) \times 10^{14}$ Watt/cm² durchgeführt. Zur Darstellung der Asymmetrie wurden „Kinetic-energy-release“ (E_{KER})-Spektren abhängig von der absoluten Phase bestimmt. In den beiden E_{KER} -Bereichen 0 – 0,25 eV (Niederenergiebereich) und 1,4 – 2,4 eV (Hochenergiebereich) konnten ausgeprägte Asymmetrien in der Elektronenlokalisierung von bis 40 % gemessen werden.

Diese Asymmetrien entstehen durch Interferenzen zwischen den Wellenfunktionen von Molekülzuständen mit ungleichen Paritäten. Im Hochenergiebereich werden die Asymmetrien durch Interferenzen zwischen den $2p\sigma_u - 1\omega$ und $1s\sigma_g - 2\omega$ Zuständen hervorgerufen. Erstmals konnten auch Asymmetrien im Niederenergiebereich gezeigt werden, die Interferenzen zwischen den $1s\sigma_g - 0\omega$ und $2p\sigma_u - 1\omega$ Zuständen zuzuordnen sind. Zwischen diesen beiden Bereichen ist keine Asymmetrie messbar, da sich dort keine Wellenfunktionen unterschiedlicher Parität mit vergleichbarer Amplitude überlagern. Des Weiteren wurde festgestellt, dass die Dissoziationswahrscheinlichkeit phasenabhängig ist. Die theoretischen Vorhersagen [82], dass diese Phasenabhängigkeit doppelt so schnell wie die Asymmetrie oszilliert, konnten bestätigt werden. Außerdem wurde die Phasenabhängigkeit abhängig von der Ausrichtung des Moleküls gemessen.

Die Messungen wurden mit D_2^+ Molekülen mit vergleichbaren Laserparametern wiederholt, um die Massenabhängigkeit zu zeigen. Die dabei gemessenen Asymmetrien

reduzierten sich um einen Faktor 2,5 im Vergleich zu H_2^+ .

Zur Charakterisierung und Analyse der Experimente wurden innerhalb einer Kooperation mit B. Esry von der Kansas State Universität, USA, die Messergebnisse mit einer vollständigen quantenmechanischen Lösung der 3-dimensionalen zeitabhängigen Schrödingergleichung nachvollzogen. Die beobachteten Asymmetrien wurden durch diese Berechnungen gut reproduziert.

Die Arbeit hat auch Ansatzpunkte für die nächsten Schritte aufgezeigt: Die Ionenquelle erzeugt Moleküle in unterschiedlichen Vibrationszuständen, die sich inkohärent in der Messung überlagern und dadurch deren Analyse erschweren. Für zukünftige Experimente könnten Lösungen zur möglichen Reduktion der verwendeten Vibrationszuständen gefunden werden. Ebenso sind Untersuchungen über die Photodissoziation asymmetrischer Moleküle wie Deuterium Hydrid (HD^+) und Helium Hydrid (HHe^+) geplant, um die Ursache der Elektronenlokalisierung detaillierter zu untersuchen. Letzteres kann mit der vorhandenen Ionenquelle leicht realisiert werden.

Literaturverzeichnis

- [1] T. Maiman, *Nature* **187**, 493 (1960). 4
- [2] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. Rahman, *Physical Review Letters* **42**, 1127 (1979). 4, 9, 34
- [3] M. Ferray, A. L’Huillier, X. F. Li, L. A. Lompre, G. Mainfray, and C. Manus, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **21**, L31 (1988). 4
- [4] G. Paulus, W. Nicklich, H. Xu, P. Lambropoulos, and H. Walther, *Physical Review Letters* **72**, 2851 (1994). 4, 36
- [5] K. Kulander, *Physical Review A* **36**, 2726 (1987). 4
- [6] F. H. M. Faisal, *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics* **6**, L312 (1973). 4
- [7] H. Reiss, *Physical Review A* **22**, 1786 (1980). 4
- [8] W. Becker, R. R. Schficher, M. O. Scully, and K. Wódkiewicz, *Journal of the Optical Society of America B* **4**, 743 (1987). 4
- [9] L.V. Keldysh, *Sov. Phys. JETP* , 1307 (1965). 4
- [10] M. Lewenstein, P. Salieres, and A. L’Huillier, *Physical Review A* **52**, 4747 (1995). 5
- [11] H. van Linden van den Heuvell and H. G. Muller, *Cambridge Studies in Modern Optics* **8**, 25 (1988). 5

-
- [12] K. Kulander, K. Schafer, and J. Krause, Super-Intense Laser-Atom Physics, in *NATO ASI Series B 316*, page 95, New York, 1993. 5
- [13] P. Corkum, *Physical Review Letters* **71**, 1994 (1993). 5
- [14] G. G. Paulus, W. Becker, W. Nicklich, and H. Walther, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **27**, L703 (1994). 5, 36
- [15] W. Becker, F. Grasbon, R. Kopold, D. Milošević, G. Paulus, and H. Walther, *Advances in Atomic, Molecular and Optical Physics* **48**, 35 (2002). 5
- [16] G. Farkas and C. Tóth, *Physics Letters A* **168**, 447 (1992). 5
- [17] P. M. Paul, E. S. Toma, P. Breger, G. Mullot, F. Audebert, P. Balcou, H. G. Muller, and P. Agostini, *Science (New York, N.Y.)* **292**, 1689 (2001). 5
- [18] M. Hentschel, R. Kienberger, C. Spielmann, G. A. Reider, N. Milosevic, T. Brabec, P. Corkum, U. Heinzmann, M. Drescher, and F. Krausz, *Nature* **414**, 509 (2001). 5
- [19] M. Nisoli, S. De Silvestri, and O. Svelto, *Applied Physics Letters* **68**, 2793 (1996). 5
- [20] M. Nisoli, S. De Silvestri, O. Svelto, R. Szipöcs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz, *Optics Letters* **22**, 522 (1997). 5, 31
- [21] J. Reichert, R. Holzwarth, T. Udem, and T. Hänsch, *Optics Communications* **172**, 59 (1999). 6
- [22] G. G. Paulus, F. Grasbon, H. Walther, P. Villoresi, M. Nisoli, S. Stagira, E. Priori, and S. De Silvestri, *Nature* **414**, 182 (2001). 6, 25, 37
- [23] J. D. Buck, D. H. Parker, and D. W. Chandler, *The Journal of Physical Chemistry* **92**, 3701 (1988). 6, 10

-
- [24] K. Sändig, H. Figger, and T. W. Hänsch, *Physical Review Letters* **85**, 4876 (2000).
[6](#), [10](#), [11](#)
- [25] M. F. Kling, C. Siedschlag, a. J. Verhoef, J. I. Khan, M. Schultze, T. Uphues, Y. Ni, M. Uiberacker, M. Drescher, F. Krausz, and M. J. J. Vrakking, *Science* (New York, N.Y.) **312**, 246 (2006). [6](#), [9](#), [11](#), [25](#), [72](#)
- [26] G. Sansone, F. Kelkensberg, J. F. Pérez-Torres, F. Morales, M. F. Kling, W. Siu, O. Ghafur, P. Johnsson, M. Swoboda, E. Benedetti, F. Ferrari, F. Lépine, J. L. Sanz-Vicario, S. Zherebtsov, I. Znakovskaya, A. L’Huillier, M. Y. Ivanov, M. Nisoli, F. Martín, and M. J. J. Vrakking, *Nature* **465**, 763 (2010). [6](#)
- [27] T. Rathje, N. G. Johnson, M. Möller, F. Süßmann, D. Adolph, M. Kübel, R. Kienberger, M. F. Kling, G. G. Paulus, and A. M. Sayler, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **45**, 074003 (2012). [7](#), [45](#)
- [28] P. H. Bucksbaum, A. Zavriyev, H. G. Muller, and D. W. Schumacher, *Physical Review Letters* **64**, 1883 (1990). [10](#), [16](#)
- [29] L. Frasinski, J. Posthumus, J. Plumridge, K. Codling, P. Taday, and A. Langley, *Physical Review Letters* **83**, 3625 (1999). [10](#)
- [30] 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, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **33**, 2743 (2000). [10](#), [11](#)
- [31] W. R. Newell, I. D. Williams, and W. A. Bryan, *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular and Optical Physics* **26**, 99 (2003). [10](#)
- [32] D. Pavičić, A. Kiess, T. W. Hänsch, and H. Figger, *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular and Optical Physics* **26**, 39 (2003). [10](#)

-
- [33] D. Pavičić, *Coloumb Explosion and Intense-Field Photodissociation of Ion-Beam $H2+$ and $D2+$* , Dissertation, München, 2004. [10](#), [11](#)
- [34] D. Pavičić, a. Kiess, T. Hänsch, and H. Figger, *Physical Review Letters* **94**, 1 (2005). [10](#)
- [35] P. Wang, A. Sayler, K. Carnes, J. Xia, M. Smith, B. Esry, and I. Ben-Itzhak, *Physical Review A* **74** (2006). [10](#), [20](#), [21](#)
- [36] A. M. Sayler, *Measurements of ultrashort intense laser-induced fragmentation of simple molecular ions*, Dissertation, Kansas Universtiy, 2008. [10](#), [11](#), [13](#)
- [37] J. McKenna, A. Sayler, F. Anis, B. Gaire, N. Johnson, E. Parke, J. Hua, H. Mashiko, C. Nakamura, E. Moon, Z. Chang, K. Carnes, B. Esry, and I. Ben-Itzhak, *Physical Review Letters* **100** (2008). [10](#)
- [38] J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, and L. Spielberger, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **30**, 2917 (1997). [10](#)
- [39] R. Dörner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ullrich, R. Moshhammer, and H. Schmidt-Böcking, *Physics Reports* **330**, 95 (2000). [10](#), [45](#)
- [40] E. Gagnon, P. Ranitovic, X.-M. Tong, C. L. Cocke, M. M. Murnane, H. C. Kapteyn, and A. S. Sandhu, *Science (New York, N.Y.)* **317**, 1374 (2007). [10](#)
- [41] X. Urbain, B. Fabre, E. M. Staicu-Casagrande, N. de Ruelle, V. M. Andrianarijaona, J. Jureta, J. H. Posthumus, E. Baldit, and C. Cornaggia, *Physical Review Letters* **92**, 1 (2004). [11](#)
- [42] X. Fabre, B Posthumus, JH Adrianarijaona, V Jureta, J Urbain, *Laser Phys* **13**, 964 (2003). [11](#)
- [43] T. K. Kjeldsen and L. B. Madsen, *Physical Review Letters* **95**, 1 (2005). [11](#)

- [44] W. Ketterle, *Spektroskopie an Heliumhydrid und am dreiatomigen Wasserstoffmolekül*, Dissertation, München, 1986. [12](#), [33](#)
- [45] A. Giusti-Suzor, X. He, and O. Atabek, *Physical Review Letters* **64**, 515 (1990). [16](#)
- [46] A. Zavriyev, P. H. Bucksbaum, H. G. Muller, and D. W. Schumacher, *Physical Review A* **42**, 5500 (1990). [16](#)
- [47] A. Baltuska, T. Udem, M. Uiberacker, M. Hentschel, E. Goulielmakis, C. Gohle, R. Holzwarth, V. S. Yakoviev, A. Scrinzi, T. W. Hansch, F. Krausz, and F. Table, *Nature* **421**, 611 (2003). [25](#)
- [48] M. Kremer, B. Fischer, B. Feuerstein, V. L. B. de Jesus, V. Sharma, C. Hofrichter, A. Rudenko, U. Thumm, C. D. Schröter, R. Moshhammer, and J. Ullrich, *Physical Review Letters* **103**, 213003 (2009). [25](#), [26](#), [44](#), [72](#)
- [49] G. Paulus, F. Lindner, H. Walther, A. Baltuška, E. Goulielmakis, M. Lezius, and F. Krausz, *Physical Review Letters* **91**, 253004 (2003). [26](#), [37](#), [40](#)
- [50] A. M. Sayler, T. Rathje, W. Müller, K. Rühle, R. Kienberger, and G. G. Paulus, *Optics Letters* **36**, 16 (2011). [32](#), [40](#), [41](#), [48](#)
- [51] H. Figger, W. Ketterle, and H. Walther, *Z. Physik D: Atoms, Molecules and Clusters* **13**, 129 (1989). [33](#)
- [52] T. Wittmann, B. Horvath, W. Helml, M. G. Schätzel, X. Gu, a. L. Cavalieri, G. G. Paulus, and R. Kienberger, *Nature Physics* **5**, 357 (2009). [39](#)
- [53] D. Milošević, G. Paulus, and W. Becker, *Optics Express* **11**, 1418 (2003). [40](#)
- [54] S. Chelkowski and A. Bandrauk, *Physical Review A* **71**, 053815 (2005). [40](#)
- [55] A. Baltuska, M. Uiberacker, E. Goulielmakis, R. Kienberger, V. Yakovlev, T. Udem, T. Hansch, and F. Krausz, *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* **9**, 972 (2003). [41](#), [46](#)

-
- [56] C. Li, E. Moon, H. Wang, H. Mashiko, C. M. Nakamura, J. Tackett, and Z. Chang, *Optics Letters* **32**, 796 (2007). [41](#)
- [57] C. Iaconis and I. Walmsley, *Optics Letters* **23**, 792 (1998). [42](#)
- [58] A. M. Sayler, T. Rathje, W. Müller, C. Kürbis, K. Rühle, G. Stibenz, and G. G. Paulus, *Optics Express* **19**, 4464 (2011). [42](#)
- [59] Z. Chen, T. Wittmann, B. Horvath, and C. D. Lin, *Physical Review A* **80**, 061402 (2009). [42](#)
- [60] X. Liu, H. Rottke, E. Eremina, W. Sandner, E. Goulielmakis, K. Keeffe, M. Lezius, F. Krausz, F. Lindner, M. Schätzel, G. Paulus, and H. Walther, *Physical Review Letters* **93** (2004). [44](#)
- [61] Y. Liu, X. Liu, Y. Deng, C. Wu, H. Jiang, and Q. Gong, *Physical Review Letters* **106** (2011). [44](#)
- [62] B. Fischer, M. Kremer, T. Pfeifer, B. Feuerstein, V. Sharma, U. Thumm, C. Schröter, R. Moshhammer, and J. Ullrich, *Physical Review Letters* **105** (2010). [44](#)
- [63] M. Kremer, C. Hofrichter, B. Fischer, V. Sharma, N. Camus, T. Pfeifer, R. Moshhammer, and J. Ullrich, *Optics Letters* **36**, 1455 (2011). [44](#), [46](#), [48](#)
- [64] M. Schultze, A. Wirth, I. Grguras, M. Uiberacker, T. Uphues, A. Verhoef, J. Gagnon, M. Hofstetter, U. Kleineberg, E. Goulielmakis, and F. Krausz, *Journal of Electron Spectroscopy and Related Phenomena* **184**, 68 (2011). [45](#)
- [65] N. Johnson, O. Herrwerth, A. Wirth, S. De, I. Ben-Itzhak, M. Lezius, B. Bergues, M. Kling, A. Senftleben, C. Schröter, R. Moshhammer, J. Ullrich, K. Betsch, R. Jones, A. M. Sayler, T. Rathje, K. Rühle, W. Müller, and G. Paulus, *Physical Review A* **83**, 1 (2011). [45](#)

-
- [66] B. Bergues, M. Kübel, N. G. Johnson, B. Fischer, N. Camus, K. J. Betsch, O. Herrwerth, A. Senftleben, A. M. Sayler, T. Rathje, T. Pfeifer, I. Ben-Itzhak, R. R. Jones, G. G. Paulus, F. Krausz, R. Moshhammer, J. Ullrich, and M. F. Kling, *Nature communications* **3**, 813 (2012). [45](#)
- [67] X. Xie, K. Doblhoff-Dier, S. Roither, M. S. Schöffler, D. Kartashov, H. Xu, T. Rathje, G. G. Paulus, A. Baltuška, S. Gräfe, and M. Kitzler, *Physical Review Letters* **109**, 243001 (2012). [45](#)
- [68] J. Ullrich, R. Moshhammer, A. Dorn, R. Dörner, L. P. H. Schmidt, and H. Schmidt-Böcking, *Reports on Progress in Physics* **66**, 1463 (2003). [45](#)
- [69] L. Zhang, S. Roither, X. Xie, D. Kartashov, M. Schöffler, H. Xu, A. Iwasaki, S. Gräfe, T. Okino, K. Yamanouchi, A. Baltuska, and M. Kitzler, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **45**, 085603 (2012). [45](#)
- [70] F. Suessmann, S. Zherebtsov, J. Plenge, N. G. Johnson, M. Kübel, A. M. Sayler, V. Mondes, C. Graf, K. Rühle, G. G. Paulus, D. Schmischke, P. Swrschek, and M. F. Kling, *The Review of Scientific Instruments* **82**, 093109 (2011). [45](#)
- [71] H. Wang, M. Chini, E. Moon, H. Mashiko, C. Li, and Z. Chang, *Optics Express* **17**, 12082 (2009). [46](#), [48](#)
- [72] S. Koke, C. Grebing, H. Frei, A. Anderson, A. Assion, and G. Steinmeyer, *Nature Photonics* **4**, 462 (2010). [46](#)
- [73] T. Fuji, J. Rauschenberger, A. Apolonski, V. S. Yakovlev, G. Tempea, T. Udem, C. Gohle, T. W. Hänsch, W. Lehnert, M. Scherer, and F. Krausz, *Optics Letters* **30**, 332 (2005). [46](#)
- [74] D. Adolph, A. M. Sayler, T. Rathje, K. Rühle, and G. G. Paulus, *Optics Letters* **36**, 3639 (2011). [47](#)

-
- [75] R. Moshhammer, M. Unverzagt, W. Schmitt, J. Ullrich, and H. Schmidt-Böcking, *Nuc. Instrum. Methods Phys. Res. B* **108**, 425 (1996). [51](#), [59](#)
- [76] I. Ali, R. Dörner, O. Jagutzki, S. Nüttgens, V. Mergel, L. Spielberger, K. Khayyat, T. Vogt, H. Bräuning, K. Ullmann, R. Moshhammer, J. Ullrich, S. Hagmann, K.-O. Groeneveld, C. Cocks, and H. Schmidt-Böcking, *Nuc. Instrum. Methods Phys. Res. B* **149**, 490 (1999). [51](#), [59](#)
- [77] M. v. Ardenne, *Tabellen der Elektronenmikroskopie und Übermikroskopie Band II*, Deutscher Verlag der Wissenschaften Berlin, 1965. [51](#)
- [78] H.Zhang, *Ion Sources*, Science Press, Beijing, 1999. [53](#)
- [79] P. Wustelt, *Erzeugung eines Ionenstrahls mittels einer Duoplasmatron-Ionenquelle*, Bachelor Arbeit, Jena, 2011. [53](#)
- [80] F. von Busch and G. Dunn, *Physical Review A* **5**, 1726 (1972). [53](#)
- [81] E. Cormier and P. Lambropoulos, *The European Physical Journal D - Atomic, Molecular and Optical Physics* **2**, 15 (1998). [70](#)
- [82] J. J. Hua and B. D. Esry, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **42**, 085601 (2009). [71](#), [74](#), [76](#), [79](#)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich all jenen danken, die durch ihre fachliche und persönliche Unterstützung zum Gelingen meiner Doktorarbeit beigetragen haben.

Besonders danke ich Prof. Dr. Gerhard Paulus für die Unterstützung meiner Promotion und die Möglichkeit, diese Arbeit am Institut für Optik und Quantenelektronik in Jena durchführen zu können, und für die zahlreichen hilfreichen Hinweise, Anregungen und Antworten.

I am grateful for the opportunity to work with Max Saylor. His experience and his ideas for ion beam set-ups helped me tremendously in figuring out the tricks and shortcuts for the daily lab work. Thank you very much for all the answers to my questions. I am so sorry, that I told you, that it never snows in Jena.

Des Weiteren bedanke ich mich bei:

- Peter Hansinger für die Pflege des Oszillators unseres Lasersystems.
- Wolfgang Ziegler und Thomas Weber für die ausführliche Beratung und professionelle Konstruktion der Bauteile und Koordination der Werkstätten.
- Den Elektronik- und Mechanikwerkstätten für den Bau der Einzelteile für die Ionenanlage und für die Möglichkeit, schnelle Änderungswünsche zu realisieren.
- Den Mitarbeitern der NLO-Arbeitsgruppe für die nette Zusammenarbeit in- und außerhalb des Labors.

Abschließend danke ich meinen Eltern und meiner Familie für ihren freundlichen Rückhalt. Ganz besonders dankbar bin ich meiner Frau für ihre Unterstützung während der gesamten Promotionszeit und für Verständnis und Rücksicht während der langen Messperioden.

Tim Rathje

Jena im Juni 2013

Lebenslauf

Rathje, Tim

Geburtsdatum 31.07.1979

Geburtsort Leverkusen

07/1990-06/1999 Gymnasium Brunsbüttel (Abitur)

06/1999-05/2000 Zivildienst in der KITA „Noahs Arche“ Brunsbüttel

05/2000-04/2001 Assumption University, Bangkok, Thailand (BWL Studium)

10/2001-10/2003 Christian-Albrechts-Universität, Kiel (Physik Vordiplom)

10/2003-03/2007 Friedrich-Schiller-Universität Jena (Physik Diplom)

Seit 03/2007 wiss. Mitarbeiter der Friedrich-Schiller-Universität Jena

Ort, Datum

Unterschrift

Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Andere Personen waren an der inhaltlich-materielle Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalischen-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Ort, Datum

Unterschrift d. Verfassers