

# Orientierungseffekte bei der Doppelionisation von kleinen Molekülen

---

H<sub>2</sub>, N<sub>2</sub>, O<sub>2</sub> in ultrakurzen, hochintensiven Laserpulsen

Diplomarbeit

Stefan Voss

Kansas State University  
Manhattan, KS, USA

und

Institut für Kernphysik  
der Johann Wolfgang Goethe Universität  
Frankfurt am Main, Deutschland

Juni 2004

Ich versichere hiermit, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig verfaßt, keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel verwendet und sämtliche Stellen, die benutzten Werken im Wortlaut oder dem Sinne nach entnommen sind, mit Quellen bzw. Herkunftsangaben kenntlich gemacht habe.

Referent: Prof. Dr. Reinhard Dörner

Koreferent: Prof. Dr. Horst Schmidt-Böcking

### Naturkonstanten

$c$	Lichtgeschwindigkeit	299792458	$\text{m s}^{-1}$
$G$	Gravitationskonstante	$6.6726 \cdot 10^{-11}$	$\text{m}^3 \text{kg}^{-1} \text{s}^{-2}$
$e$	Elementarladung	$1.60218 \cdot 10^{-19}$	$\text{C} = \text{A s}$
$m_e$	Elektronenmasse	$9.10938 \cdot 10^{-31}$	$\text{kg}$
$m_p$	Protonenmasse	$1836.15 \cdot m_e$	$\text{kg}$
$h$	Planck-Konstante ( $\hbar = 2\pi\hbar$ )	$6.6260755 \cdot 10^{-34}$	$\text{J s}$
$F$	Faraday-Konstante	96485.309	$\text{A s mol}^{-1}$
$N_A$	Avogadro-Konstante	$6.02214 \cdot 10^{23}$	$\text{mol}^{-1}$
$k_B$	Boltzmann-Konstante	$1.38065 \cdot 10^{-23}$	$\text{J K}^{-1}$
$R$	Molare Gaskonstante ( $R = N_A k_B$ )	8.31447	$\text{J mol}^{-1} \text{K}^{-1}$
$\epsilon_0$	Dielektrizitätskonstante	$8.8544 \cdot 10^{-12}$	$\text{A s V}^{-1} \text{m}^{-1}$
$\mu_0$	Magnetische Feldkonstante	$4\pi \cdot 10^{-7}$	$\text{V s A}^{-1} \text{m}^{-1}$

### Atomare Einheiten

Masse	$m_e$	Elektronenmasse	$9.10938 \cdot 10^{-31} \text{ kg}$
Ladung	$e$	Elementarladung	$1.60218 \cdot 10^{-19} \text{ C}$
Drehmoment	$\hbar$	Planck-Konstante/ $2\pi$	$1.05457 \cdot 10^{-34} \text{ J s}$
Länge	$a_0$	Bohrradius (H-Atom)	$5.29177 \cdot 10^{-11} \text{ m}$
Geschwindigkeit	$v_0$	Elektron im H-Atom (Kreisbahnradius $a_0$ )	$2.18769 \cdot 10^6 \text{ m s}^{-1}$
Impuls	$p_0$	$= m_e v_0$	$1.99285 \cdot 10^{-24} \text{ kg m s}^{-1}$
Zeit	$t_a$	$= a_0/v_0$	$2.41888 \cdot 10^{-17} \text{ s}$
Frequenz	$\nu_a$	$= v_0/(2\pi a_0)$	$6.57969 \cdot 10^{15} \text{ s}^{-1}$
Energie	$E_A$	$= e^2/(4\pi\epsilon_0 a_0) = \alpha^2 m c^2$ $= 2I_p$ (H-Atom)	$4.35974 \cdot 10^{-18} \text{ J}$ $27.2 \text{ eV}$
Wellenzahl	$k_a$	$= \alpha/(2\pi a_0) = 2\tilde{R}(\infty)$	$2.19475 \cdot 10^7 \text{ m}^{-1}$
elektr. Feldstärke	$E_a$	$= e/(4\pi\epsilon_0 a_0^2)$	$5.14221 \cdot 10^{11} \text{ V m}^{-1}$
magn. Feldstärke	$H_a$	$= \hbar/(e a_0^2)$	$2.35052 \cdot 10^5 \text{ T}$

### Nützliches

Energie	$\epsilon_0 \mu_0$	$= c^{-2}$ $1 \text{ eV} = 1.602 \cdot 10^{-12} \text{ erg} = 1.602 \cdot 10^{-19} \text{ J} = 1.96 \cdot 10^{-6} \text{ m}_0 c^2$ $= 2.418 \cdot 10^{14} \text{ Hz Frequenz}$ $= 1240 \text{ nm Wellenlänge}$ $= 11605 \text{ K Temperatur}$
Ladung	$1 \text{ e}$	$= 1.602 \cdot 10^{-19} \text{ C} = 4.8 \cdot 10^{-19} (\text{erg cm})^{-1/2}$
Spannung	$1 \text{ V}$	$= \text{J C}^{-1} = \text{kg m}^2 \text{A}^{-1} \text{s}^{-3}$
Druck	$1 \text{ mbar}$	$= 100 \text{ Pa} \approx \frac{3}{4} \text{ Torr}$

### Vorsätze für dezimale Vielfache und Teile von Einheiten

Exa	$10^{18}$	E	Dezi	$10^{-1}$	d
Peta	$10^{15}$	P	Zenti	$10^{-2}$	c
Tera	$10^{12}$	T	Milli	$10^{-3}$	m
Giga	$10^9$	G	Mikro	$10^{-6}$	$\mu$
Mega	$10^6$	M	Nano	$10^{-9}$	n
Kilo	$10^3$	k	Pico	$10^{-12}$	p
Hekto	$10^2$	h	Femto	$10^{-15}$	f
Deka	10	da	Atto	$10^{-18}$	a



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Hintergrund</b>	<b>5</b>
2.1	Atome im Laserfeld . . . . .	5
2.1.1	Multiphoton-Ionisation (MPI) . . . . .	5
2.1.2	Tunnelionisation (TI) . . . . .	6
2.2	Freies Elektron im Laserfeld . . . . .	8
2.3	Doppelionisation . . . . .	11
2.3.1	Sequentielle Ionisation (SI) . . . . .	11
2.3.2	Nicht-sequentielle Ionisation (NS) . . . . .	14
2.4	Weitere Effekte im Laserfeld . . . . .	16
2.4.1	Bond Softening (BS) . . . . .	16
2.4.2	High Harmonic Generation (HHG) . . . . .	17
2.5	Orbitale und Konfigurationen . . . . .	17
2.6	Potentialkurven . . . . .	21
<b>3</b>	<b>Versuchsaufbau</b>	<b>25</b>
3.1	Vakuumsystem . . . . .	25
3.2	Jet-System . . . . .	27
3.3	Spektrometer . . . . .	28
3.4	Detektor . . . . .	29
3.5	Signalverarbeitung und Datenaufnahme . . . . .	31
<b>4</b>	<b>Lasertechnik</b>	<b>33</b>
4.1	Bandbreite der Frequenzen . . . . .	33
4.2	Aufbau des Lasers . . . . .	35
4.2.1	Oszillator . . . . .	36
4.2.2	Verstärker . . . . .	36
4.2.3	Hohlfasermodulation . . . . .	38
4.3	Laserfokus . . . . .	38
<b>5</b>	<b>Analyse- und Meßmethoden</b>	<b>43</b>
5.1	Flugzeiten . . . . .	43
5.2	Ortsspektrum . . . . .	45
5.3	Datenaufbereitung . . . . .	46
5.3.1	Pipico-Spektrum . . . . .	46
5.3.2	Energie und Impuls . . . . .	48
5.3.3	Winkelverteilungen . . . . .	48
5.4	Bestimmung der Intensität . . . . .	49

<b>6</b>	<b>Meßergebnisse</b>	<b>55</b>
6.1	Energiespektren . . . . .	55
6.1.1	35 fs . . . . .	55
6.1.2	8 fs . . . . .	59
6.2	Orientierungseffekte . . . . .	63
6.2.1	35 fs . . . . .	67
6.2.2	8 fs . . . . .	71
6.3	Auf einen Blick . . . . .	77
<b>7</b>	<b>Diskussion</b>	<b>79</b>
7.1	Interpretation . . . . .	79
7.1.1	Energiespektren . . . . .	79
7.1.2	Orientierungseffekte . . . . .	83
7.2	Fehlerbetrachtung . . . . .	87
<b>8</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>91</b>
<b>A</b>	<b>Glossar</b>	<b>I</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>III</b>
	<b>Abbildungsverzeichnis</b>	<b>V</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

*Nur der Irrtum ist unser Teil,  
und der Wahn ist unsere Wissenschaft.*

G. E. Lessing

Fast 99% der uns umgebenden Luft besteht aus den Elementen Sauerstoff und Stickstoff, wobei uns der Sauerstoff als häufigstes auf der Erde auftretendes Element durch jeden Atemzug am Leben hält. Der Stickstoff erhielt seinen Namen aufgrund seiner Eigenschaft, Verbrennungen zu ersticken und wird mit dem chemischen Symbol N (von lat. Nitrogenium) abgekürzt, während das chemische Symbol für den Sauerstoff das O (von lat. Oxygenium) ist. In den erdnahen Luftschichten kommen beide Elemente vorwiegend gebunden in diatomaren Molekülen vor und sind in dieser Form auch Gegenstand der hier durchgeführten Untersuchungen.

Folgende Idee liegt dabei den im Rahmen dieser Diplomarbeit durchgeführten Experimenten zugrunde:

Unter bestimmten Voraussetzungen muß es möglich sein, die untersuchten diatomaren Moleküle durch Laserbeschuß zweifach zu ionisieren, so daß der Verlust abschirmender Ladungen Coulombsche Kernabstoßungskräfte freisetzt, die Molekülbindungen aufbrechen lassen (Coulomb-Explosion). Mit dem Wissen über die Impulse der entstehenden Fragmente kann die ursprüngliche Lage der Molekülachse im Laborsystem bestimmt werden. Auf diese Weise läßt sich ermitteln, ob es Vorzugsrichtungen bezüglich der Molekülachsenorientierung solcher Doppelionisationen gibt, wobei die Laserpolarisationsachse eine Koordinate im Laborsystem auszeichnet.

Darüberhinaus soll durch Variation der Laserparameter wie Pulslänge, Intensität und Polarisation ein umfangreiches Bild der Doppelionisationsprozesse für  $H_2$ ,  $N_2$  und  $O_2$  gewonnen werden.

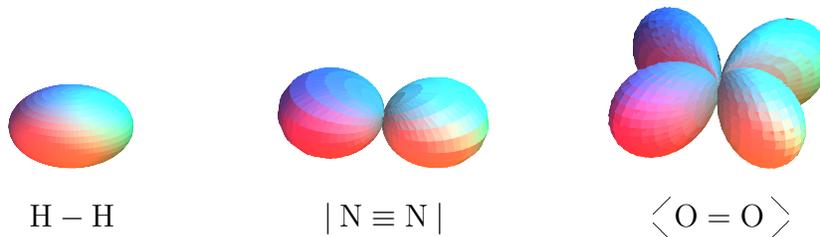
Zur Realisierung dieses Vorhabens wird demnach erstens ein Apparat zur Messung der Impulse und zweitens ein Laser zur Ionisation der Moleküle benötigt:

- 1) In dem speziellen Versuchsaufbau werden die jeweiligen Moleküle in Form eines Gasstrahls (**COLd Target**) durch eine Vakuumkammer gelenkt, wobei sie an einem Punkt den Fokus eines gepulsten Laserstrahls kreuzen. Treten dabei Ionisationen auf, lenkt ein elektrisches Extraktionsfeld die positiv geladenen Teilchen (**Recoil Ions**) auf den Detektor, so daß der vollständige Impuls (**Momentum**) eines jeden detektierten Teilchens berechenbar wird. Diese spektroskopische Versuchsmethode (**Spectroscopy**) wird daher auch kurz als **COLTRIMS** bezeichnet.

2) Ein ultrakurzer Laserpuls, wie er bei den Experimenten verwendet wurde, weist eine zeitliche Ausdehnung von etwa zehn Femtosekunden auf ( $10 \cdot 10^{-15}$  s). Bei typischerweise 1000 Laserpulsen pro Sekunde liegen zwei aufeinander folgende Pulse eine Millisekunde auseinander, was bei Multiplikation mit der Lichtgeschwindigkeit einer Entfernung von etwa 300 km entspricht. Auf dieser Skala nimmt ein ultrakurzer Laserpuls ca.  $3 \mu\text{m}$  ein, also weniger als ein zehntel Haaresbreite. Folglich ist der benutzte „Laserstrahl“ eigentlich kaum existent und die durchschnittliche Leistung des Lasers von etwa 6 W steckt hochkomprimiert in den ultrakurzen Pulsen (ca. 6 mJ Energie pro Puls, wobei lediglich 5% der Energie benutzt worden ist). Wird ein solcher Laserstrahl zudem stark gebündelt, können problemlos Intensitäten von  $10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  erreicht werden, ohne daß eine Million Großkraftwerke, die bei einer kontinuierlichen Leistungsabgabe auf einem tatsächlichen Quadratzentimeter, vonnöten wären. Die Kunst liegt in der Kompression, wie auch die vielen Teilchen des Universums kunstvoll komprimierte Felder und Kräfte darstellen. Mit den beschriebenen ultrakurzen, hochintensiven Laserpulsen ist es möglich geworden, in die Dimensionen der inneratomar wirksamen elektrischen Felder vorzudringen. Gleichzeitig ist die Belichtungszeit so klein, daß zumindest von Atomkernbewegungen Momentaufnahmen gemacht werden können und auf diese Weise Orientierungseffekte bei der Doppelionisation von den kleinen Molekülen Stickstoff und Sauerstoff untersucht werden können. Werden in absehbarer Zukunft Laserpulse im Attosekundenbereich erfolgreich angewendet, können durch die noch kürzeren Belichtungszeiten selbst Elektronenbewegungen durch Momentaufnahmen dargestellt werden.

Mit Beginn der ultrakurzen Laserphysik ist anfänglich ihr Einfluß auf Atome untersucht worden und sukzessiv erfolgte der Übergang zu zunehmend komplizierteren Molekülen. Diesem Prozeß schließt sich die vorliegende Arbeit an, indem das Wissen über Verhaltensweisen des Wasserstoffmoleküls in Laserfeldern, und der ständige Vergleich zu diesen, eine Ausweitung der Erkenntnisse auf Stickstoff und Sauerstoff ermöglicht.

Plausibel erscheint dabei die Vorstellung, daß ein unterschiedlicher Molekülaufbau sich unter den richtigen Bedingungen auf Ionisationsmechanismen auswirken könnte. Das im Molekülverband am schwächsten gebundene Elektron ist im Mittel am weitesten vom Zentrum entfernt und daher am leichtesten zu ionisieren. Seine orbitale Struktur prägt das äußere Erscheinungsbild der molekularen Elektronenwolken und ist für die drei untersuchten Moleküle in untenstehender Abbildung skizziert.



(Jeder Strich zwischen zwei Atomen repräsentiert ein bindendes Elektronenpaar; außen liegende Striche können als freie Elektronenpaare betrachtet werden.) In der vorliegenden Arbeit wird gezeigt, unter welchen Bedingungen der molekulare Symmetrieeinfluß am größten ist und durch welche Mechanismen die jeweiligen Moleküle doppelionisiert werden.

Im weiteren Verlauf werden zunächst die theoretischen Aspekte beleuchtet. Dabei steht allgemein das Verhalten von Atomen, Molekülen und Elektronen in Laserfeldern im Vordergrund, so daß die dabei gewonnenen Erkenntnisse über verschiedene Phänomene in das Verständnis und die Interpretation der Meßresultate einfließen können.

In Kapitel 3 befindet sich eine Übersicht und Erläuterung einzelner Teile des benutzten Versuchsaufbaus und der verwendeten Elektronik, wie sie bei einer klassischen **COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy** erforderlich ist.

Anschließend erfolgt eine Darstellung der Grundlagen von ultrakurzen, hochintensiven Laserpulsen und ihrer Erzeugung durch ein Titan:Saphir-Lasersystem, wie es bei diesen Versuchen benutzt worden ist. Mit einbezogen sind Betrachtungen über das Volumenverhalten des Fokus bei variierender Laserintensität.

Eine Zusammenstellung der wichtigsten Kalibrierungs- und Analysemethoden zur Datenaufbereitung befindet sich in Kapitel 5, bevor die erzielten Resultate im darauffolgenden Kapitel 6 vorgestellt werden. Die abschließende Diskussion der Meßergebnisse beinhaltet eine Interpretation der Daten sowie eine Betrachtung und Abschätzung verschiedener Fehlerquellen und Problematiken.

Nach einer kurzen Zusammenfassung in Kapitel 8 befindet sich im Anhang das Glossar der verwendeten Abkürzungen, das Literaturverzeichnis sowie die Übersicht aller Abbildungen mit ihren Texterläuterungen.

Der lange Prozeß von der Idee über die Durchführung der ersten Experimente bis hin zur Erlangung der hier präsentierten Ergebnisse ist rückblickend als einzigartige Erfahrung zu bewerten. Das Lernen aus Experimenten und die Suche nach Analogien ist besonders in der Grundlagenforschung ein ausgesprochen spannender und interessanter Prozeß, der Wissen schafft.

Die Versuchsdurchführungen erfolgten im:



**James R. Macdonald Laboratory**

Department of Physics  
Cardwell Hall  
Kansas State University  
Manhattan, Ks 66506-2604  
785-532-6782

unter der Direktion von Prof. Patrick Richard

und ab Februar 2004 von Prof. C. Lewis Cocke.



# Kapitel 2

## Hintergrund

*Es gibt nichts Praktischeres als eine gute Theorie.*

I. Kant

### 2.1 Atome im Laserfeld

Wird ein Laser ausreichender Stärke hinreichend fokussiert, so spielen für Atome und Moleküle im Fokusbereich Prozesse höherer Ordnung eine zunehmend wichtigere Rolle als die einfache Absorption oder Emission eines Photons. Um die Bedingungen ein wenig zu konkretisieren, kann folgende Abschätzung zur Anzahl der Photonen im kohärenten Volumen  $V = \lambda^3$  vorgenommen werden. Wird eine Intensität im Laserfokus von  $I = 1 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  bei einer Laserwellenlänge von  $\lambda = 800 \text{ nm}$  angenommen, so berechnet sich die Photonenzahl auf [8]

$$N = \frac{IV\lambda}{c^2 h} \simeq 7 \cdot 10^9, \quad (2.1)$$

wobei  $c$  die Lichtgeschwindigkeit und  $h$  die Planck-Konstante darstellt. Bei Photonendichten dieser Größenordnung dominieren Multiphotonprozesse, das heißt, es werden mehrere Photonen gleichzeitig absorbiert oder emittiert, was im Falle der Absorption zu Ionisationen und bei Molekülen auch zu Dissoziationen führen kann.

#### 2.1.1 Multiphoton-Ionisation (MPI)

Wird durch die Absorption vieler niederenergetischer Photonen ein Elektron von einem gebundenen Zustand ins Kontinuum befördert, so wird von einer Multiphoton-Ionisation gesprochen (MPI). Geschieht dieses bei geringeren Intensitäten  $I$  und Photonendichten als in obiger Abschätzung Gl. 2.1, so kann die Störungstheorie niedrigster Ordnung recht gute Vorhersagen über entsprechende Ionisationsraten  $\Gamma$  machen

$$\Gamma_n = \sigma_n I^n. \quad (2.2)$$

Dabei ist  $n$  die zu einer Ionisation minimal benötigte Anzahl an Photonen und  $\sigma$  der Wirkungsquerschnitt. So sind beispielsweise Ionisationen von Helium mit einer Absorption von bis zu 22 Photonen beobachtet worden [28]. Schwierig gestaltet sich die Berechnung des Wirkungsquerschnitts, da Prozesse höherer Ordnung nicht länger vernachlässigbar sind. Erfolgreich angewandt ist die störungstheoretisch berechnete MPI bei relativ einfachen, nicht resonanten, wasserstoffähnlichen Atomen für Intensitäten bis  $10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ .

### ***Above Threshold Ionisation (ATI)***

Neben Multiphoton-Ionisationen sind auch *Above Threshold*-Ionisationen möglich, bei denen ein Elektron mehr Photonen als die zur Ionisation minimal benötigte Anzahl  $n$  aufnimmt. Ein Elektron gelangt dann nicht nur knapp ins Kontinuum, sondern gewinnt zusätzliche Energie oberhalb der Kontinuumsschwelle (*Above Threshold*). Dieser Zugewinn an Energie durch Photonenabsorption kann allerdings lediglich geschehen, solange das Elektron noch unter dem Einfluß des Kernpotentials steht, da ansonsten Impuls- und Drehimpulserhaltung verletzt wären. Für niedrige Intensitäten läßt sich das störungstheoretische Modell der MPI einfach erweitern

$$\Gamma_{n+s} \propto I^{n+s}, \quad (2.3)$$

wobei sich die Anzahl der absorbierten Photonen aus den minimal zur Ionisation nötigen  $n$  und den zusätzlich gewonnenen  $s$  zusammensetzt. Die Energie solcher Photoelektronen kann durch eine Erweiterung der von Einstein aufgestellten Beziehung  $E = h\nu$ , beschrieben werden durch

$$E_{kin} = (n + s) h\nu - W_0 \quad (2.4)$$

mit der Ionisationsenergie  $W_0$ . Zu erwarten wäre demnach ein Energiespektrum der Elektronen mit Maxima in  $h\nu$ -Abständen. Beobachtet wurden solche ATI-Spektren seit den frühen 80ern und später auch hochauflösender und bei höheren Laserintensitäten (z.B. 1993 [25]). Die Resultate solcher Messungen zeigen, daß das erste Maximum verlorenggeht und auch die folgenden Maxima nicht der Beziehung aus Gl. 2.4 folgen. Gründe für diese Diskrepanzen können im AC-Stark-Effekt gefunden werden. Laserfelder größerer Intensitäten beeinflussen nämlich auch gebundene Zustände, wobei der Einfluß zunehmend von innen nach außen wächst, so daß hochangeregte Rydbergzustände am meisten gegenüber Grundzuständen innerer Orbitale verschoben sind. Ein freies Elektron als Näherung eines sehr hoch angeregten Zustandes oszilliert mit dem Laserfeld und besitzt dabei die Schwingungsenergie

$$U_p = \frac{1}{m_e} \left( \frac{e E}{2 \omega} \right)^2, \quad (2.5)$$

die auch als ponderomotive Energie bezeichnet wird. Hierbei bedeutet  $e$  die Elementarladung,  $E$  die lokale Feldstärke,  $m_e$  die Masse des Elektrons und  $\omega$  die Winkelgeschwindigkeit zur Frequenz des Laserfeldes. Durch die ungleiche Verschiebung der gebundenen gegenüber den quasi-gebundenen Zuständen erhöht sich praktisch das Ionisationspotential  $I_p$  um etwa  $U_p$ , wodurch sich die Gleichung 2.4 modifiziert

$$E_{kin} = (n + s) h\nu - (W_0 + U_p). \quad (2.6)$$

#### **2.1.2 Tunnelionisation (TI)**

Für Intensitäten im Laserfokus, bei denen das elektrische Feld die Nähe der Größenordnung  $E_a$  erreicht, also die Feldstärke, die ein Elektron im Grundzustand des Wasserstoffatoms erfährt

$$I_a = \frac{\epsilon_0 c}{2} E_a^2 = 3.5 \cdot 10^{16} \text{ W cm}^{-2}, \quad (2.7)$$

kann zu einer klassischen Beschreibung des Laserfeldes übergegangen werden, da die Einflüsse so groß werden, daß nicht mehr von einem störungstheoretischen Standpunkt aus argumentiert werden kann. Ist, verglichen mit den Abmessungen eines Atoms, die Wellenlänge des Laserlichtes groß, so kann für kurze Zeiteinheiten ein über die Dimensionen des Atoms konstantes felderzeugendes Potential angenommen werden, welches sich zum Kernpotential addiert. Ein eindimensionales Beispiel

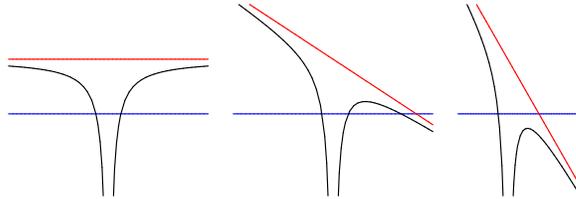
solcher Potentialüberlagerungen entlang der Polarisationsachse eines linear polarisierten Laserfeldes ist in Abbildung 2.1 skizziert. Durch die Superposition entsteht eine Potentialbarriere, die ein gebundenes Elektron mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit zu durchtunneln vermag (Abb. 2.1 Mitte).

### *Over Barrier Ionisation (OBI)*

Mit steigender Intensität wird ab einem gewissen Punkt die bei der Tunnelionisation betrachtete Barriere die potentielle Energie des gebundenen Elektrons unterschreiten, so daß das Elektron ungehindert den Atomverband verlassen kann (Abb. 2.1 rechts). Die Quantenmechanik ist dabei der Einfachheit halber etwas außer acht gelassen, handelt es sich doch genau genommen um Aufenthaltswahrscheinlichkeiten und Wellenpakete, die auch noch an einer unterdrückten Barriere teilweise reflektiert werden. Klassisch läßt sich der Punkt berechnen, an dem die Barriere anfängt, einen gebundenen Zustand zu unterschreiten und dadurch eine *Over Barrier Ionisation* möglich wird. Es gilt [34]

$$I_{OBI} = \frac{\pi^2 \epsilon_0^3 c I_p^4}{2 Z^2 e^6} = 4 \cdot 10^9 \frac{I_p^4}{Z^2} \quad (2.8)$$

mit der elektrischen Feldkonstante  $\epsilon_0$ , der Lichtgeschwindigkeit  $c$ , dem Ionisationspotential  $I_p$ , der Kernladungszahl  $Z$  und der Elementarladung  $e$ . Wird das Ionisationspotential  $I_p$  [eV] eingesetzt, so ergibt sich unter Benutzung des konstanten Vorfaktors von  $4 \cdot 10^9$  die entsprechende Intensität  $I_{OBI}$  [ $\text{W cm}^{-2}$ ]. Für das Wasserstoffatom ergibt sich auf diese Weise ein Wert von  $1.4 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ .



**Abb. 2.1.** Eindimensionales Modell eines gebundenen Elektrons (links), einer Tunnelionisation (Mitte) und einer *Over Barrier Ionisation* (rechts). Die rote Linie stellt die potentielle Energie des Laserfeldes dar. Die schwarze zeigt, wie sich das Kernpotential durch das überlagerte Laserfeld verändert und sich eine Potentialbarriere endlicher Breite bildet.

### ADK-Theorie

Ammosov, Delone und Krainov entwickelten auf der Basis der KFR-Theorie (1965 Keldysh, Faisal und Reiss) ein nützliches Modell, das die instantanen Tunnelionisationsraten für ein durch das Ionisationspotential charakterisiertes Atom angibt [4]. In der ADK-Theorie wird, wie schon bei der Tunnelionisation erwähnt, ein quasistatisches elektrisches Feld angenommen (Tieffrequenzmethode), das sich mit dem Coulomb-Potential überlagert, ohne dabei Einfluß auf die gebundenen Zustände zu nehmen. Daher findet die ADK-Theorie ihren Gültigkeitsbereich im Regime der Tunnelionisation für Intensitäten  $I < I_{OBI}$  und liefert zuverlässige Ionisationsraten. Sie beschreibt die Formation von Elektronen-Wellenpaketen, die jeweils nahe der maximalen elektrischen Feldstärke das Molekül verlassen, wodurch sich dann die Ionisationswahrscheinlichkeit ergibt.

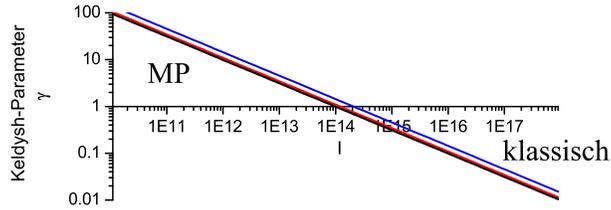
### Keldysh-Parameter

Der Keldysh-Parameter hilft, die beiden genannten Intensitätsregime gegenüber der Intensität einzuschätzen. Für niedrige Intensitäten waren Multiphoton-Prozesse (MP) das geeignetere Modell zur Deutung physikalischer Vorgänge im Laserfokus, wohingegen bei größeren Intensitäten das klassische Modell von Potentialüberlagerungen angelegt wurde. Einmal mehr offenbart sich an dieser Stelle der Welle-Teilchen-Dualismus des Lichts. Der Keldysh-Parameter definiert sich gemäß

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{2U_p}} = \frac{2\pi}{e\lambda} \sqrt{m_e \epsilon_0 c^3 \frac{I_p}{I}} \quad (2.9)$$

mit dem Ionisationspotential  $I_p$  des entsprechenden Atoms, der ponderomotiven Energie  $U_p$  (Gl. 2.5), der Maximalintensität im Fokus  $I$  und der Wellenlänge des Laserlichtes  $\lambda$  sowie einiger Fundamentalkonstanten.

Für Werte von  $\gamma$  größer als eins, kann ein System besser mit multiphotonen-Prozessen beschrieben werden; für  $\gamma < 1$  empfiehlt sich die klassische Betrachtung, wobei der Übergang beider Regime fließend verläuft. Bei Werten in der Nähe eins sind beide Betrachtungen adäquat. Abbildung 2.2 zeigt den Verlauf des Keldysh-Parameters für drei unterschiedliche Ionisationspotentiale in Abhängigkeit von der Intensität des Laserfeldes in einem doppellogarithmischen Diagramm.



**Abb. 2.2.** Der Keldysh-Parameter in Abhängigkeit von der Maximalintensität  $I$  [ $\text{W cm}^{-2}$ ] im Laserfokus für atomaren Wasserstoff (rot),  $\text{O}_2$  (schwarz) und  $\text{O}_2^+$  (blau) bei einer Laserwellenlänge von 800 nm.

## 2.2 Freies Elektron im Laserfeld

Wird das Laserfeld durch ein räumlich homogenes Vektorpotential  $\vec{A}(t)$  als Dipol approximiert, so gilt für das zeitabhängige elektrische Feld  $\vec{E}(t) = -d\vec{A}(t)/dt$ , während das magnetische Feld  $\vec{H} = \vec{\nabla} \times \vec{A}$  verschwindet. Ein linear polarisiertes Laserfeld kann beispielsweise durch folgendes elektrisches Feld beschrieben werden

$$\vec{E}(t) = \hat{\epsilon} E_0 f(t) \sin(\omega t + \delta), \quad (2.10)$$

wobei  $\hat{\epsilon}$  der normierte Polarisationsvektor,  $E_0$  die Maximalamplitude der elektrischen Feldstärke,  $f(t)$  die zeitliche Pulsform,  $\omega$  die Frequenz des Laserlichtes und  $\delta$  die Phase repräsentieren. Wird der zeitliche Verlauf eines Laserpulses außer acht gelassen, können Laserfelder mit beliebiger Polarisation als zweikomponentiges elektrisches Feld dargestellt werden

$$\vec{E} = E_{0,x} \vec{e}_x \cdot \cos \omega_0 t + E_{0,y} \vec{e}_y \cdot \sin \omega_0 t. \quad (2.11)$$

Wird weiterhin angenommen, daß nach einer Ionisation das Elektron im Abstand Null vom Ion freigesetzt wird, es keinen Anfangsimpuls besitzt und vom Coulombpotential des Ions gänzlich unbeeinflusst bleibt, so können die Bewegungsgleichungen

für das dann freie Elektron im Laserfeld klassisch (nach  $F = m a = e E$ ) aufgestellt werden

$$v_x = \frac{e E_0}{m_e \omega_0} \sin \omega_0 t \Rightarrow x = -\frac{e E_0}{m_e \omega_0^2} \cos \omega_0 t \quad (2.12)$$

$$v_y = -\alpha \frac{e E_0}{m_e \omega_0} \cos \omega_0 t \Rightarrow y = -\alpha \frac{e E_0}{m_e \omega_0^2} \sin \omega_0 t. \quad (2.13)$$

Über den Parameter  $\alpha$  kann die Polarisierung festgelegt werden, wobei  $\alpha = 0$  lineare,  $\alpha = \pm 1$  zirkuläre und Werte für  $\alpha$  zwischen 0 und 1 elliptische Polarisierungen ergeben.

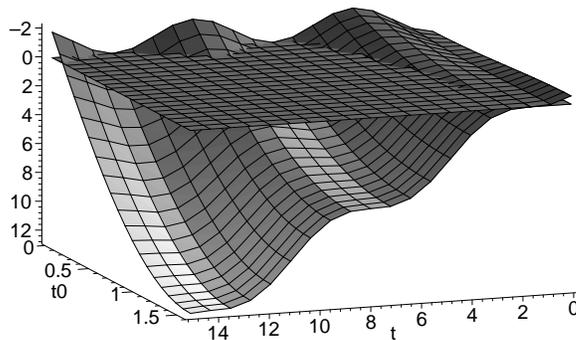
Besonders interessant sind Fälle, in denen ein Elektron vom Feld so beschleunigt wird, daß es sich zwar zunächst vom Ion fortbewegt, dann aber zu seinem Ausgangsort zurückkehrt, um dort mit seinem Mutterion wechselwirken zu können. Es soll demnach zu einem gewissen Zeitpunkt  $x(t)$  und  $y(t)$  gleichzeitig null werden, was lediglich für linear polarisiertes Licht möglich ist, da die jeweils ersten Gleichungen aus Gl. 2.12 und Gl. 2.13 voneinander linear unabhängig sind und nur für  $\alpha = 0$  beide gleichzeitig Null werden können. Mit Beschränkung auf den linearen Fall und unter Berücksichtigung der Integrationsgrenzen ( $t_0 \dots t$ ) des eigentlich bestimmten Integrals für  $a_x(t)$ , folgt für die Geschwindigkeit zum Zeitpunkt  $t$

$$v_x(t) = \frac{e E_0}{m_e \omega_0} (\sin \omega_0 t - \sin \omega_0 t_0). \quad (2.14)$$

Die Integration dieser Gleichung liefert den Ort des Elektrons zum Zeitpunkt  $t$

$$x(t) = -\frac{e E_0}{m_e \omega_0^2} (\cos \omega_0 t + t \omega_0 \sin \omega_0 t_0 - \cos \omega_0 t_0 - \omega_0 t_0 \sin \omega_0 t_0). \quad (2.15)$$

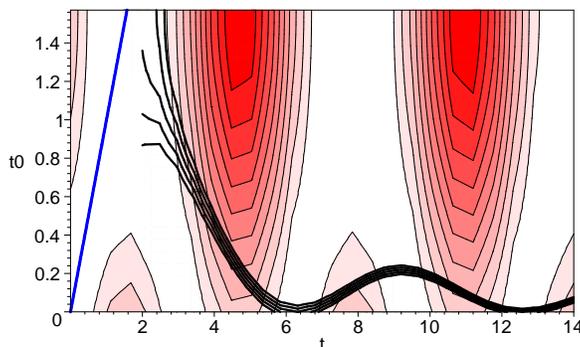
In Abbildung 2.3 ist die Trajektoriengleichung (Gl. 2.15) in Abhängigkeit von der Zeit  $t$  und der Phase  $\omega_0 t_0$  graphisch dargestellt. (Da bei den willkürlichen Einheiten  $\omega_0 = 1$  gewählt ist, wird im Folgenden die Phase lediglich mit  $t_0$  bezeichnet.)



**Abb. 2.3.** Eindimensionales Modell verschiedener Elektronentrajektorien im Laserfeld (willkürliche Einheiten). Durch Ionisation entstehen freie Elektronen zur Zeit  $t = 0$  und Phase  $t_0$  des elektrischen Feldes. Die  $z$ -Richtung beschreibt die zeitabhängige eindimensionale Entfernung zum Startpunkt ( $z = 0$ ). Die Trajektorie zur Phase  $t_0 = 0$  weist z.B. Umkehrpunkte auf, an denen die Geschwindigkeit null bei  $z = 0$  wird, wohingegen ein Elektron auf der Trajektorie mit Phase  $t_0 = \pi/2$  sich schnell vom Startpunkt wegbewegt, ohne ihn jemals wieder zu erreichen.

Linien parallel zur Zeitachse beschreiben die eindimensionale Gleichung  $x(t)$ , wobei die Entfernung vom Startpunkt in Abb. 2.3 in vertikaler Richtung entlang

der  $z$ -Achse simuliert ist. Die eingezeichnete Ebene  $z = 0$  repräsentiert den Ausgangspunkt des Elektrons, welche immer dann auch tatsächlich erreicht wird, wenn die „Trajektorienfläche“ diese schneidet. Bei einem Start zur Phase  $t_0 = \pi/2$  entfernt sich beispielsweise das Elektron sehr schnell und gelangt nicht mehr zum Startpunkt zurück. Für Phasen  $0.22 < t_0 < \pi/2$  gelangt das Elektron einmal kurz nach dem Start zurück, bei  $t_0$  kleiner als etwa 0.22 sogar zweimal, generell mit kleiner werdenden Startphasen zunehmend öfter und sogar unendlich oft im Falle eines immerwährenden elektrischen Feldes und einer Startphase von exakt Null.



**Abb. 2.4.** Der farbige Konturenplot beschreibt die kinetische Energie eines Elektrons zu einer bestimmten Zeit  $t$ , nachdem es bei einer Phase  $t_0$  ionisiert worden ist, wobei die blaue Linie den phasenabhängigen Ionisationszeitpunkt widerspiegelt. Die überlagerten schwarzen Konturlinien geben Bedingungen an, bei denen das Elektron zum Startpunkt ( $z = 0$ ) bzw. in seine Nähe ( $z = 0.1, z = 0.2$ ) zurückgelangt (entspricht dem Durchtreten der Ebene aus Abb. 2.3). Daraus wird ersichtlich, daß das Elektron die maximale kinetische Energie am Startpunkt bei der ersten Rückkehr und einer Startphase von etwa  $t_0 = 0.3 = 17^\circ$  aufweist. Bei den größten Energien (rote Bereiche) ist das Elektron bereits weit vom Startpunkt entfernt (vergleiche Abb. 2.3).

Mit dem Wissen über die Geschwindigkeit des Elektrons kann leicht auch die dazugehörige kinetische Energie bestimmt und weiter untersucht werden, wieviel Energie das Elektron bei einer eventuellen Rückkehr zum Ausgangspunkt aufweist. Zur Veranschaulichung dieser Untersuchung ist in Abb. 2.4 zum Einen die kinetische Energie ( $1/2 mv^2$ ), abhängig von der Zeit  $t$  und dem Phasenparameter  $t_0$ , als Konturplot von weiß (niedrige Energie) nach rot (hohe Energie) und zum Anderen die Überschneidung der ( $z = 0$ )-Ebenen mit der Trajektorienfläche aus Abb. 2.3, welche den Gebieten nahe dem Ausgangspunkt entsprechen, dargestellt. Es ist gut zu erkennen, daß die kinetische Energie stetig mit der Anzahl der Startpunktdurchquerungen abnimmt und lediglich im Falle der Startphase  $t_0 = 0$  die Geschwindigkeit, und damit auch die kinetische Energie, am Startpunkt für jede Wiederkehr die gleiche bleibt, nämlich Null. Es zeigt sich, daß die maximal mögliche Energie bei einer Startphase von  $17^\circ$  zum Ion zurückgetragen wird. Normiert auf die ponderomotive Energie

$$U_p = \frac{1}{m_e} \left( \frac{eE}{2\omega} \right)^2 \quad (2.16)$$

ergibt sich mit  $\omega = 1$

$$\frac{E_{kin}}{U_p} = 2(\sin t - \sin t_0)^2. \quad (2.17)$$

Diese Gleichung liefert einen Wertebereich zwischen null und acht und für den oben dargelegten speziellen Fall einer Phase von etwa 0.3 zur Zeit von etwa 4.5 den für

das Elektron am Ausgangsort maximalen Wert von  $3.17 U_p$ . Um abschließend ein Beispiel mit typischen Zahlenwerten zu geben, kann zunächst noch mit

$$E = \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}} \quad \text{und} \quad \omega = 2\pi \frac{c}{\lambda} \quad (2.18)$$

die Gleichung 2.18 für  $U_p$  umgeformt werden zu

$$U_p = \frac{e^2}{8\pi^2 m_e \epsilon_0 c^3} I \lambda^2 = 0.934 \cdot I \lambda^2 \approx \frac{I \lambda^2}{10}. \quad (2.19)$$

Dabei ist der konstante Vorfaktor so angepaßt worden, daß lediglich die Intensität  $I$  [ $\text{W cm}^{-2}$ ] und die Wellenlänge  $\lambda$  [m] eingesetzt werden müssen und  $U_p$  [eV] resultiert. Bei einer Intensität von  $10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  und einer Laserwellenlänge von 800 nm errechnet sich demnach  $U_p$  zu etwa 6 eV, wobei die maximale Elektronenenergie bei einer Wiederkehr zum Startpunkt 19 eV ergibt.

Trotz dieser einfachen klassischen Betrachtungsweise können die erzielten Ergebnisse hilfreich in die Interpretation eingehen. Bei detaillierteren Argumentationen muß hingegen auf adäquatere und kompliziertere Theorien zurückgegriffen werden.

## 2.3 Doppelionisation

Nachdem einige Ionisationsprozesse und Elektronenbewegungen in intensiven Laserfeldern vorgestellt worden sind, kann nun deren Zusammenspiel im Falle einer zweifachen Ionisation untersucht werden. Bei den durchgeführten Versuchen sind einfach positiv geladene Fragmente von Coulomb-explodierenden Molekülen in Koinkidenz untersucht worden, die in allen Fällen auf doppelionisierte Moleküle zurückzuführen sind. Waren die vorangegangenen Betrachtungen der Einfachheit halber vornehmlich auf Atome bezogen, werden jetzt ausschließlich die im Rahmen dieser Diplomarbeit untersuchten Moleküle ins Auge gefaßt, obgleich viele Effekte auch auf zunehmend kompliziertere Moleküle als diatomare homonukleare übertragbar sind. Die Übertragung der behandelten atomaren Effekte auf eine einfache molekulare Ebene kann meist direkt durchgeführt werden, obwohl die zusätzlichen Freiheitsgrade die Dimension der Probleme erhöht und die unterschiedlichen Zeitskalen, von Attosekunden ( $10^{-18}$  s) bis Femtosekunden ( $10^{-15}$  s) für Elektronen und von Femtosekunden bis Pikosekunden ( $10^{-12}$  s) für Kerne, von großer Bedeutung sind.

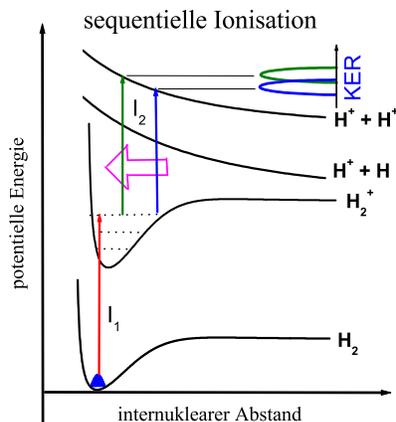
Im Gegensatz zu einem doppelionisierten Wasserstoffmolekül, bei welchem sich zwei Protonen unabgeschirmt gegenüberstehen und sich daher unaufhaltsam voneinander abstoßen, können größere Moleküle, wie beispielsweise Sauerstoff und Stickstoff, aufgrund ihrer verbleibenden Elektronen auch zweifach ionisiert gebunden bleiben. Moleküle, die in einen solchen metastabilen Zustand gelangen und nicht innerhalb weniger Mikrosekunden in zwei positiv geladene Fragmente zerfallen, werden nicht in die Analyse einbezogen. Doppelionisationsprozesse können zunächst in zwei Gruppen unterteilt werden: die sequentielle Ionisation (SI) und die nicht-sequentielle Ionisation (NS). Im Folgenden sollen die beiden Prozesse näher erläutert werden.

### 2.3.1 Sequentielle Ionisation (SI)

Bei einer sequentiellen Doppelionisation werden unabhängig voneinander zwei Elektronen nacheinander ionisiert. Es sind, vom theoretischen Standpunkt aus, zwei Einfachionisationen, welche zwar unterschiedliche Anfangsbedingungen aufweisen, sich jedoch gegenseitig unbeeinflusst lassen. Die einzelnen Ionisationsmechanismen sind,

abhängig vom Intensitätsregime, auf die oben beschriebenen zurückzuführen (MPI, ATI, TI, OBI). Bei den durchgeführten Experimenten ist die sequentielle Ionisation des molekularen Wasserstoffs lediglich bei sehr kurzen Pulsen ( $\tau < 10$  fs) hoher Intensität beobachtet worden, wobei mit steigender Intensität die zweite Ionisation zunehmend früher erfolgt, was eine Verschiebung der kinetischen Energieverteilung zur Folge hat.

Hilfreich zur Veranschaulichung verschiedener Ionisationsmodelle sind eindimensionale Potentialdiagramme, welche die effektiven Potentiale verschiedener Zustände beschreiben (Abb. 2.5). Dabei wird angenommen, daß bei der Änderung des Abstands zweier (es werden in dieser Arbeit lediglich diatomare Moleküle betrachtet) Kerne zueinander, sich die Elektronenwolken schnell genug anpassen, so daß sie gegenüber Kernbewegungen als instantane Änderungen angesehen werden können. Demnach setzen sich die Potentialdiagramme aus einzelnen Berechnungen der Energie eines molekularen Zustands für variierende Kernabstände zusammen. Molekulare Zustandswechsel werden folglich als senkrechte Übergänge zwischen den entsprechenden Potentialkurven dargestellt, weil elektronische Anregungen oder Ionisationen wesentlich schneller als Kernbewegungen erfolgen (*Franck-Condon-Prinzip*).



**Abb. 2.5.** Skizzierter Prozeß der sequentiellen Ionisation im  $H_2$ . Nach der ersten Ionisation  $I_1$  befindet sich das Molekül im einfach ionisierten Zustand, von dort aus erfolgt die Doppelionisation durch  $I_2$ . Mit größer werdender Intensität des Laserfeldes steigt die Wahrscheinlichkeit für  $I_2$ , so daß sich Doppelionisationen zunehmend schneller vollziehen, was durch den magentafarbenen Pfeil angedeutet werden soll.

Eine sequentielle Doppelionisation der besonderen Art ist die *Charge Resonant Enhanced Ionisation*, kurz CREI, oder einfacher nur *Enhanced Ionisation*, kurz EI, welche bei längeren Pulsen und höheren Intensitäten zum dominierenden Prozeß wird.

### (CR)EI

Berechnungen (z.B. [6, 5]) und frühe Messungen an Molekülen in intensiven Laserfeldern zeigten, daß die kinetischen Energien Coulomb-explodierender Fragmente geringer als erwartet ausfielen. Die vorangegangene Überlegung war, daß beispielsweise bei einer Doppelionisation die beiden geladenen Kerne aus dem Gleichgewichtsabstand im Grundzustand  $r_0$  anfangen sich abzustößen, wobei nach dem

Coulombschen Kraftgesetz gilt

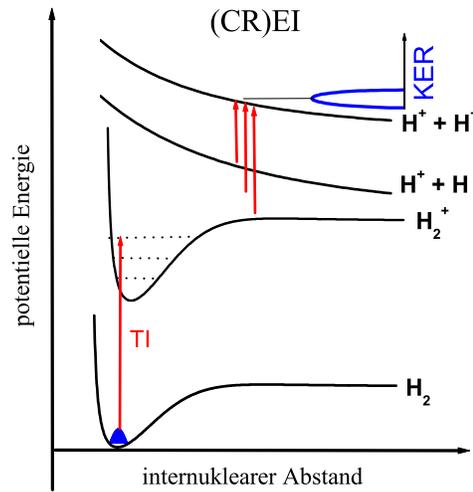
$$F = \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{q^2}{r_0^2}. \quad (2.20)$$

Die durch die Abstoßung verrichtete Arbeit in Form des Zugewinns an kinetischer Energie ergibt sich durch Integration über  $r$ , in den Grenzen von  $r_0$  bis unendlich. Es resultiert

$$E_{kin} = \frac{q^2}{4\pi\epsilon_0 r_0} = \frac{E_A [\text{eV}]}{r} \approx \frac{27.2}{r}. \quad (2.21)$$

Bei der Faustformel ergibt sich die freigesetzte kinetische Energie KER [eV] (*Kinetic Energy Release*) für beliebige internukleare Abstände  $r$  [a.u.] als Ausgangspunkt einer Coulomb-explodierenden Doppelionisation.

Die gemessenen niedrigeren Energien weisen auf größere internukleare Abstände unmittelbar vor einer Explosion hin, was bedeutet, daß sich das Molekül zunächst ausgedehnt haben muß.

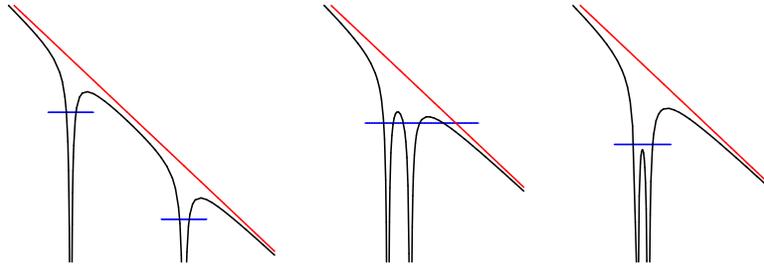


**Abb. 2.6.** Schematisierter Mechanismus der (*Charge Resonant*) *Enhanced Ionisation* für  $\text{H}_2$ .

In der skizzierten Schematik aus Abbildung 2.6 erfolgt zunächst eine Einfachionisation durch einen Tunnelionisationsprozeß (TI), welcher einem senkrechten Übergang von der entsprechenden Potentialkurve des Grundzustands auf die des einfach ionisierten Moleküls (innerhalb des Frank-Condon-Bereiches) entspricht und die bereits eine Ausdehnung des Moleküls initiiert. Dabei zeigt sich, daß es einen kritischen internuklearen Abstand gibt, bei dem eine zweite Tunnelionisation sehr wahrscheinlich wird, falls das Laserfeld weiterhin präsent ist. Verschiedene Kopplungsprozesse im Laserfeld werden dafür verantwortlich gemacht, wobei von ladungsresonanten (*charge resonant*) Paaren von Zuständen die Rede ist, bei denen die Ladungsverteilung und Energie zweier Zustände praktisch gleich ist.

Eine einfache Vorstellung dieses Prozesses kann durch den Vergleich des Systems für sehr kleine und sehr große internukleare Entfernungen gewonnen werden. Das zweite Elektron wird, bei zwei weit voneinander entfernten Protonen, mit hoher Wahrscheinlichkeit in einem der beiden Kernpotentiale gebunden bleiben (Abb. 2.7 links), so daß die zweite Ionisation unwahrscheinlich wird. Sind im Gegensatz dazu beide Protonen sehr dicht beieinander, so ist das Elektron mit großer Wahrscheinlichkeit im Potential beider Protonen gebunden (Abb. 2.7 rechts), was ebenfalls

hemmend auf die Doppelionisation wirkt. Bei der kritischen Distanz hingegen werden die Barrieren am kleinsten, so daß ein tunneln des zweiten Elektrons verstärkt möglich wird (Abb. 2.7 Mitte).



**Abb. 2.7.** Einfaches Modell zur (*Charge Resonant*) *Enhanced Ionisation*. Rot dargestellt ist die potentielle Energie des Laserfeldes, schwarz die der Kernpotentiale im Laserfeld und blau die des verbleibenden Elektrons in  $H_2^+$ .

Im Falle des Wasserstoffmoleküls erzeugt der CREI-Prozeß ein Maximum im Spektrum der freigesetzten kinetischen Energiesumme zweier Coulomb-explodierender Protonen (KER-Spektrum) bei etwa 5 eV, was nach Gl. 2.21 einer kritischen internuklearen Distanz von 5.4 a.u. entspricht. Dieser Wert ist der in den durchgeführten Messungen vielfach gefundene und bestätigte, obwohl theoretische Untersuchungen zwei kritische Abstände bei 7 und 10 a.u. vorhersagen [6]. Auch zeigt sich experimentell, daß bei hohen Intensitäten der Wert der Energiesumme für den CREI-Prozeß größer werden kann (bis zu etwa 7 eV  $\rightarrow$  4 a.u.).

### 2.3.2 Nicht-sequentielle Ionisation (NS)

Bei einer nicht-sequentiellen Doppelionisation können die beiden Ionisationsschritte als nicht voneinander unabhängig betrachtet werden. Verschiedene Elektron-Elektron-Korrelationseffekte sorgen für höhere Ionisationsraten, als sie durch einfache Modelle vorhergesagt werden. Mögliche Mechanismen zur nicht-sequentiellen Doppelionisation seien hier kurz vorgestellt:

1. *Two Step One* (TS1)

Bei einem TS1-Prozeß wird ein Elektron durch Photonenaufnahme ionisiert. Beim Verlassen des Kernpotentials kollidiert es jedoch mit einem zweiten gebundenen Elektron, welches durch den Energieübertrag eines inelastischen Stoßes ebenfalls ins Kontinuum gehoben wird.

2. *Shake-Off*

Durch die plötzliche Photoionisation eines Elektrons wird sich das Kernpotential durch den Verlust der abschirmenden Ladung verändern. Geschieht diese Veränderung sehr schnell, so kann es passieren, daß ein gebundenes Elektron mit einem Mal Aufenthaltswahrscheinlichkeiten im Kontinuum aufweist und auf diese Weise ionisiert werden kann. Die Zeitskala der Potentialveränderung ist zu klein, als daß sich gebundene Elektronen adiabatisch dem Wechsel ihrer Zwangsbedingungen anpassen könnten [11].

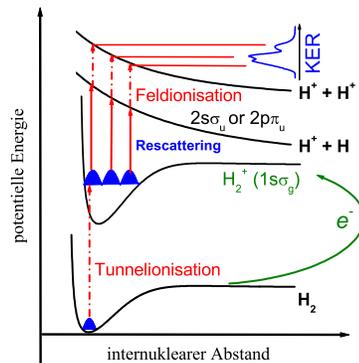
3. *Collective Tunneling Ionisation*

Dieses Modell beschreibt eine gemeinsame Ionisation zweier Elektronen durch einen Tunnelionisationsprozeß, welcher, Berechnungen zufolge, unter besonderen Gleichgewichtsbedingungen eintreten kann [16]. Er gilt jedoch mittlerweile weitläufig als widerlegt.

4. *Rescattering* (RES)

Bei einem Rescattering-Prozeß [10, 26, 38, 39] wird zunächst ein freies Elektron durch eine Tunnelionisation erzeugt. Im linear polarisierten Laserfeld ist die Wahrscheinlichkeit dafür am größten, wenn die elektrische Feldkomponente maximal ist. Unter diesen Bedingungen wird das Elektron ohne Driftgeschwindigkeit geboren (siehe Gleichung 5.16) und kann vom Laserfeld so beschleunigt werden, daß es bei einer Rückkehr zum Mutterion ein zweites Elektron inelastisch stößt (Kapitel 2.2). Je nach Intensität des Laserfeldes und Art des Moleküls kann das zweite Elektron direkt oder über einen angeregten Zustand als Zwischenstufe und den weiteren Einfluß des Laserfeldes ionisiert werden (Abb. 2.8).

Abbildung 2.8 zeigt einen Rescattering-Prozeß an einem Wasserstoffmolekül. Aus dem Grundzustand des  $H_2$ -Moleküls erfolgt ein Transit durch Tunnelionisation in den einfach geladenen  $H_2^+$ -Zustand ( $1s\sigma_g$ ). Das vom Feld beschleunigte und rückgeführte freie Elektron der ersten Ionisation stößt inelastisch mit dem noch gebundenen, wodurch dieses in einen angeregten Zustand ( $2s\sigma_u$  oder  $2p\pi_u$ ) des  $H_2^+$ -Moleküls gerät und von dort aus leicht, unter dem Einfluß des Laserfeldes, ins Kontinuum gelangt.



**Abb. 2.8.** Schematisierter Mechanismus des Rescatteringprozesses für  $H_2$ .

Wie bereits im Unterkapitel 2.2 („Freies Elektron im Laserfeld“) gezeigt, ist es für bestimmte Geburtsphasen des ersten Elektrons möglich, mehrfach zum Mutterion wiederzukehren. Da sich zwischen den beiden Ionisationen das einfach ionisierte Wasserstoffmolekül ausdehnt, stehen die Rückkehrzeiten des ersten Elektrons im Zusammenhang mit dem internuklearen Abstand und damit verbunden auch mit der durch die Doppelionisation verursachten freigesetzten kinetischen Energie der Fragmente einer Coulomb-Explosion (KER-Spektrum). Wie in der Skizze (Abb. 2.8) angedeutet, können daher verschiedene Maxima im KER-Spektrum beobachtet werden, die im Zusammenhang mit den festen Rückkehrzeiten des im Laserfeld oszillierenden Rescattering-Elektrons stehen [1, 31]. Vermessen wird demnach der zeitliche Ablauf der Ausdehnung des einfach ionisierten Moleküls, wobei im übertragenen Sinn das oszillierende Elektron eine Art Unruh des molekularen Uhrwerks darstellt.

## 2.4 Weitere Effekte im Laserfeld

### 2.4.1 Bond Softening (BS)

Das Resultat eines *Bond Softening*-Prozesses ist die Dissoziation eines einfach ionisierten Moleküls in ein neutrales Atom und ein geladenes Ion. Da es sich dabei nicht um eine Doppelionisation handelt, taucht in dieser Diplomarbeit *Bond Softening* lediglich in den Flugzeitspektren auf. Im Falle des Wasserstoffmoleküls erzeugen die freigesetzten Protonen in der Flugzeit ein charakteristisches Nebenmaximum, welches hilfreich zur Intensitätsbestimmung ist (Kapitel 5.4). Daher soll kurz dargestellt werden, worum es sich bei diesem Vorgang handelt.

Die Potentiale der verschiedenen Zustände in einem Molekül bleiben vom Laserfeld nicht unbeeinflusst, was durch das Floquet Bild [18, 9] deutlich gemacht werden kann. Zentrale Rolle bei dieser Betrachtung spielen sogenannte *dressed states*, die durch die Ankopplung von  $n$  Photonen an die jeweiligen Zustände entstehen, falls die Polarisierung entlang der molekularen Achse zeigt. Ein ungestörter Zustand verschiebt sich dadurch, abhängig von der Anzahl der koppelnden Photonen, um den Energiebetrag  $n \cdot h\nu$ . Durch die Erzeugung dieser verschobenen Zustände treten zunehmend Kreuzungen der Potentialkurven untereinander auf, die Elektronen, unter Beachtung verschiedener Auswahlregeln, zu adiabatischen Zustandswechseln bewegen können (Abb. 2.9). Während ein ungestörtes  $H^+$ -Ion metastabil in verschiedenen Vibrationszuständen existieren kann, verschwindet diese Möglichkeit zunehmend mit stärkeren Laserfeldern, da die beschriebenen Kreuzungen die Potentialbarrieren der Zustände kleiner werden lassen (*Bond Softening*). Auch gewinnt das Molekül zusätzliche Dissoziationswege über verschiedene Kopplungsvarianten, die Protonen in kinetischen Energieabständen von  $1/2 h\nu$  (Impulserhaltung) erzeugen können (Abb. 2.9, Energieskala rechts).

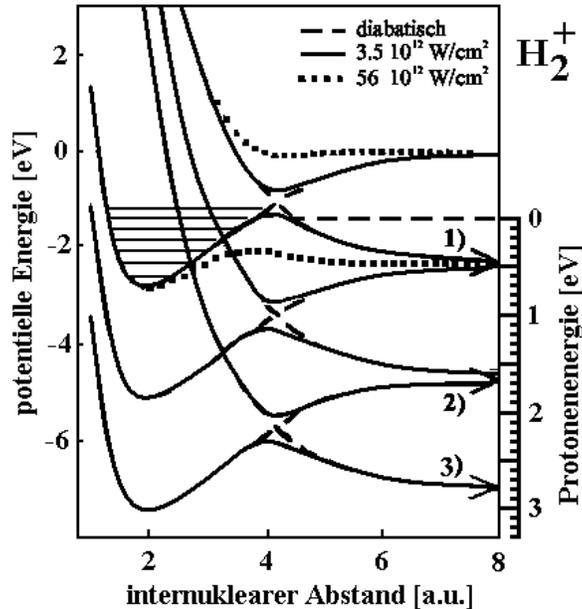


Abb. 2.9.  $H_2^+$  im Laserfeld bei 532 nm Wellenlänge. Der Floquet-Theorie nach werden verschiedene Kopplungszustände (*dressed states*) erzeugt, über die das Ion dissoziieren kann. Entnommen aus [34].

### 2.4.2 High Harmonic Generation (HHG)

Im Laserfeld können verschiedene Effekte zur Emission von Photonen durch Atome und Moleküle im Fokusbereich beitragen. Ein durch Absorption mehrerer Photonen angeregtes Elektron (MP), kann beispielsweise durch einen Quantensprung in den Grundzustand ein einziges Photon entsprechender Wellenlänge emittieren. Für ein Laserfeld mit relativ beschränkter Frequenzbandbreite werden sich in der Frequenz des emittierten Photons ganzzahlige Vielfache der Laserfrequenz widerspiegeln (siehe Abb. 2.10). Darüberhinaus können durch Multiphoton- oder *Above Threshold*-Ionisation bereits freie Elektronen rekombinieren, wodurch ebenfalls höhere Harmonische (*high harmonics*) der Laserwellenlänge produziert werden. Doch auch die für den Rescattering-Prozeß (Kapitel 2.3) verantwortlichen tunnelionisierten Elektronen können, anstelle eines inelastischen Stoßes mit einem gebundenen Elektron, rekombinieren und dabei eine maximale Energie von  $3.17 U_p + I_p$  (Kapitel 2.2) in die Emission eines Photons umsetzen. Viel Aufwand wird bei der Erzeugung solcher höheren Harmonischen mancherorts betrieben, da bei kurzen Laserpulsen auf diese Weise kürzere und höherenergetische Röntgenpulse generiert werden können, die sich beispielsweise zu *pump-probe*-Experimenten eignen, bei denen zunächst wenig Energie in ein System gepumpt wird, bevor es dann mit einem energiereichen Puls getestet werden kann.

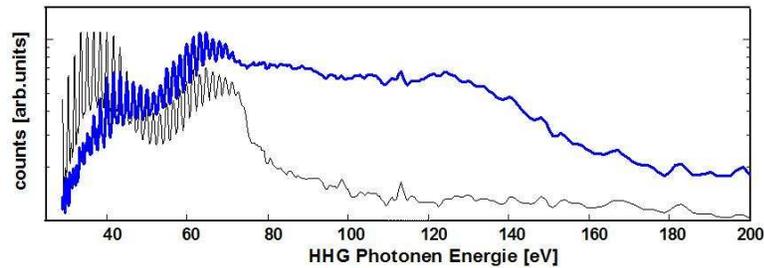


Abb. 2.10. High Harmonic Generation der KLS-Arbeitsgruppe

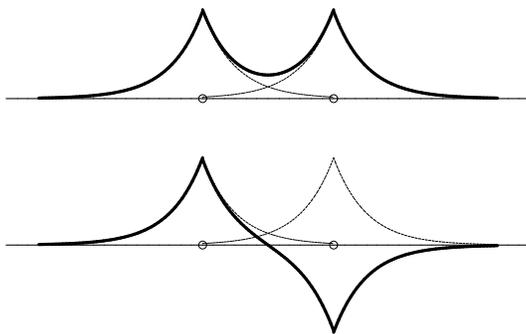
## 2.5 Orbitale und Konfigurationen

Die Spektroskopie von Molekülen ist im Vergleich zur Spektroskopie von Atomen mindestens so interessant, aber auch komplizierter. Das zeigt sich sofort am Hamiltonoperator für ein System von Kernen ( $K^+$ ) und Elektronen ( $e^-$ ), selbst unter dem Einschluß von nur ein- und zwei-Elektronen-Termen und ohne Berücksichtigung des Spins:

$$\hat{H} = \underbrace{-\frac{\hbar^2}{2m} \sum_i \nabla_i^2}_{E_{kin}(e^-)} - \underbrace{\sum_A \frac{\hbar^2}{2M_A} \nabla_A^2}_{E_{kin}(K^+)} - \underbrace{\sum_{A,i} \frac{Z_A e^2}{r_{Ai}}}_{e^- \rightarrow \leftarrow K^+} + \underbrace{\sum_{A>B} \frac{Z_A Z_B e^2}{R_{AB}}}_{K^+ \leftrightarrow K^+} + \underbrace{\sum_{i>j} \frac{e^2}{r_{ij}}}_{e^- \leftrightarrow e^-}$$

Zur Berechnung der Energielevel von Molekülen muß die Schrödinger-Gleichung zu diesem Hamiltonoperator gelöst werden, was üblicherweise unter Benutzung der Born-Oppenheimer Näherung geschieht, so daß die Wellenfunktion in Kern- und Elektronenbewegungen separiert werden kann. Dabei wird der Massenunterschied zwischen Elektronen und Kernen ausgenutzt, aufgrund dessen sich die jeweiligen Geschwindigkeiten in Molekülen um Größenordnungen unterscheiden.

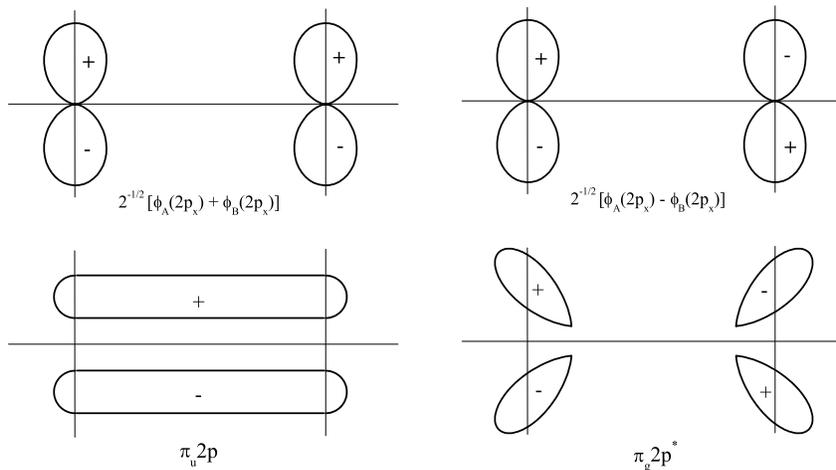
Quantenzahlen, Eigenfunktionen, effektive Potentiale und andere Eigenschaften und Effekte bei Molekülen zeigen viele Analogien zu Atomen; diesbezüglich sei an dieser Stelle auf die einschlägige Literatur verwiesen. Dennoch sollen hier einige Beispiele zu molekularen Bindungen gegeben werden. In Abbildung 2.11 ist zunächst eine bindende und eine antibindende Orbitalprojektion für ein einzelnes Elektron im Wasserstoff dargestellt.



**Abb. 2.11.** Symmetrische (oben) und anti(sym)metrische (unten) Wellenfunktion. Aufgrund der Überlappung der einzelnen Wellenfunktionen für die beiden Kernpotentiale wird im oberen Bild die Aufenthaltswahrscheinlichkeit zwischen den beiden Kernen erhöht, wodurch im Gegensatz zum unteren Bild die Bindung zustande kommt.

Im oberen Bild ist das  $\sigma_g 1s$ -Orbital zu sehen. Eine gerade Überlagerung der beiden Wellenfunktionen  $\frac{1}{\sqrt{2}}(\phi_A + \phi_B)$  ergibt ein bindendes Orbital, wohingegen die ungerade Kombination dieser beiden Wellenfunktionen  $\frac{1}{\sqrt{2}}(\phi_A - \phi_B)$  im unteren Bild das antibindende  $\sigma_u 1s^*$ -Orbital beschreibt.

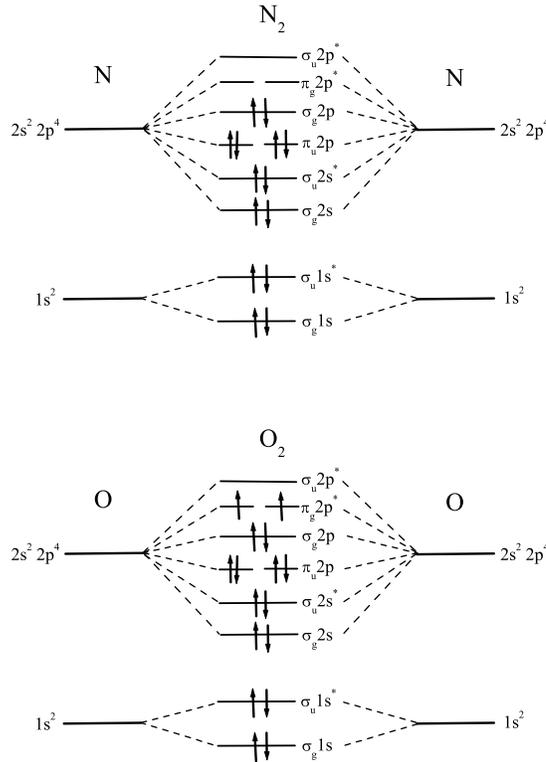
Auch die atomaren p-Orbitale können gerade und ungerade kombiniert werden und es entsteht beispielsweise das bindende  $\pi_u 2p$ -Molekülorbital (skizziert in Abb. 2.12 links) oder das antibindende  $\pi_g 2p^*$ -Orbital (rechts).



**Abb. 2.12.** Schematisierte  $\pi 2p$ -Orbitale

Abbildung 2.13 zeigt die Orbitalbesetzung der Elektronen in Stickstoff und Sauerstoff für den Grundzustand. Dabei stehen außen die atomaren Zustände, welche

sich zu den in der Mitte aufgelisteten molekularen zusammensetzen. Orbitale Besetzungen durch Elektronen unterschiedlicher Spins werden durch die eingezeichneten Pfeile wiedergegeben.



**Abb. 2.13.** Grundzustand von Stickstoff und Sauerstoff

Aus diesen Besetzungen kann der folgende molekulare Grundzustand abgeleitet werden

$$\text{N}_2 : \quad (1\sigma_g^2 1\sigma_u^{2*} 2\sigma_g^2 2\sigma_u^{2*}) \quad 1\pi_u^4 3\sigma_g^2 \quad {}^1\Sigma_g^+$$

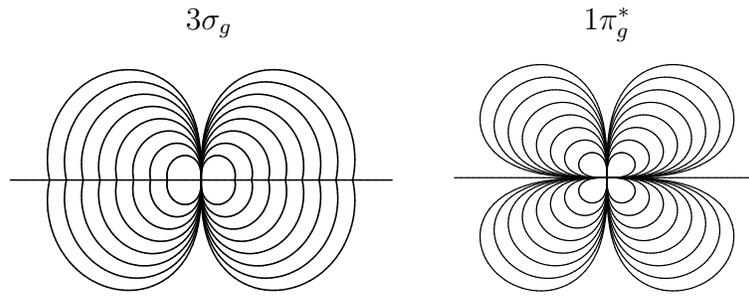
$$\text{O}_2 : \quad (1\sigma_g^2 1\sigma_u^{2*} 2\sigma_g^2 2\sigma_u^{2*}) \quad 1\pi_u^4 3\sigma_g^2 1\pi_g^{2*} \quad {}^3\Sigma_g^-.$$

Die jeweils äußeren Orbitale sind in Abbildung 2.14 skizziert. Im bildlichen Vergleich mit [35] sind dabei die folgenden zwei empirisch gefundenen Funktionen für ein polares Koordinatensystem verwendet worden:

$$3\sigma_g \approx \sqrt{(x+a) \sin(x+a)} + \sqrt{(x-a)^2 \sin(x-a)}$$

$$1\pi_g^* \approx (x+a)^2 \sqrt{|\sin(x+a) \cos(x+a)|} + \sqrt{|(x+a)^2 \sin(x+a) \cos(x+a)|},$$

wobei  $a = \frac{\pi}{2}$  gewählt ist. Die betreffenden Elektronen dieser im Grundzustand jeweils zuletzt besetzten, weit außen liegenden Orbitale sind erwartungsgemäß am schwächsten gebunden und werden daher am ehesten von einwirkenden Laserfeldern beeinflusst.



**Abb. 2.14.** Äußeres Orbital von Stickstoff (links) und Sauerstoff (rechts).

Einige ausgewählte Orbitalenergien sind in untenstehender Tabelle aufgelistet, wobei verschiedene angeregte Zustände mit einbezogen sind. Es ist zum Beispiel zu erkennen, daß für Stickstoff im Grundzustand die Bindungsenergie der Elektronen im  $3\sigma_g$ -Orbital auch tatsächlich am geringsten von den aufgelisteten und besetzten ist, da das  $1\pi_g$ -Orbital im Grundzustand unbesetzt bleibt.

[eV]	$2\sigma_u$	$3\sigma_g$	$1\pi_u$	$1\pi_g$	$3\sigma_u$
$N_2$	18.07	14.21	17.68	8.16	
$N_2^+$	29.06	24.97	28.74	18.90	
$N_2^{2+}$	41.87	38.04	41.82	32.27	
$O_2$	25.39	17.27	17.61	11.61	
$O_2^+$	38.33	30.37	30.43	24.71	
$O_2^{2+}$	52.34	44.40	44.32	38.98	28.06

## 2.6 Potentialkurven

Der Vollständigkeit halber und für spätere Betrachtungen sich als nützlich erweisend sind hier Potentialkurven für Stickstoff und Sauerstoff wiedergegeben.

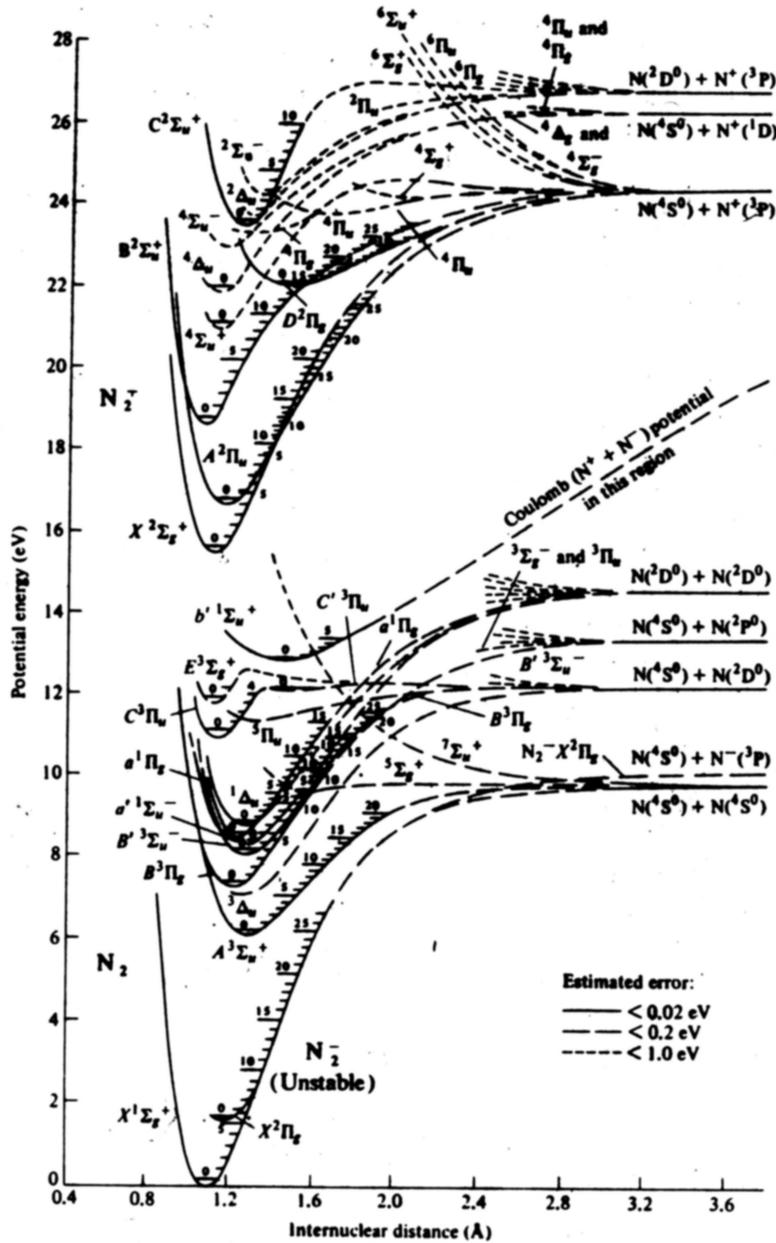


Abb. 2.15. Potentialkurven für N<sub>2</sub> und N<sub>2</sub><sup>+</sup>. Entnommen aus [35].

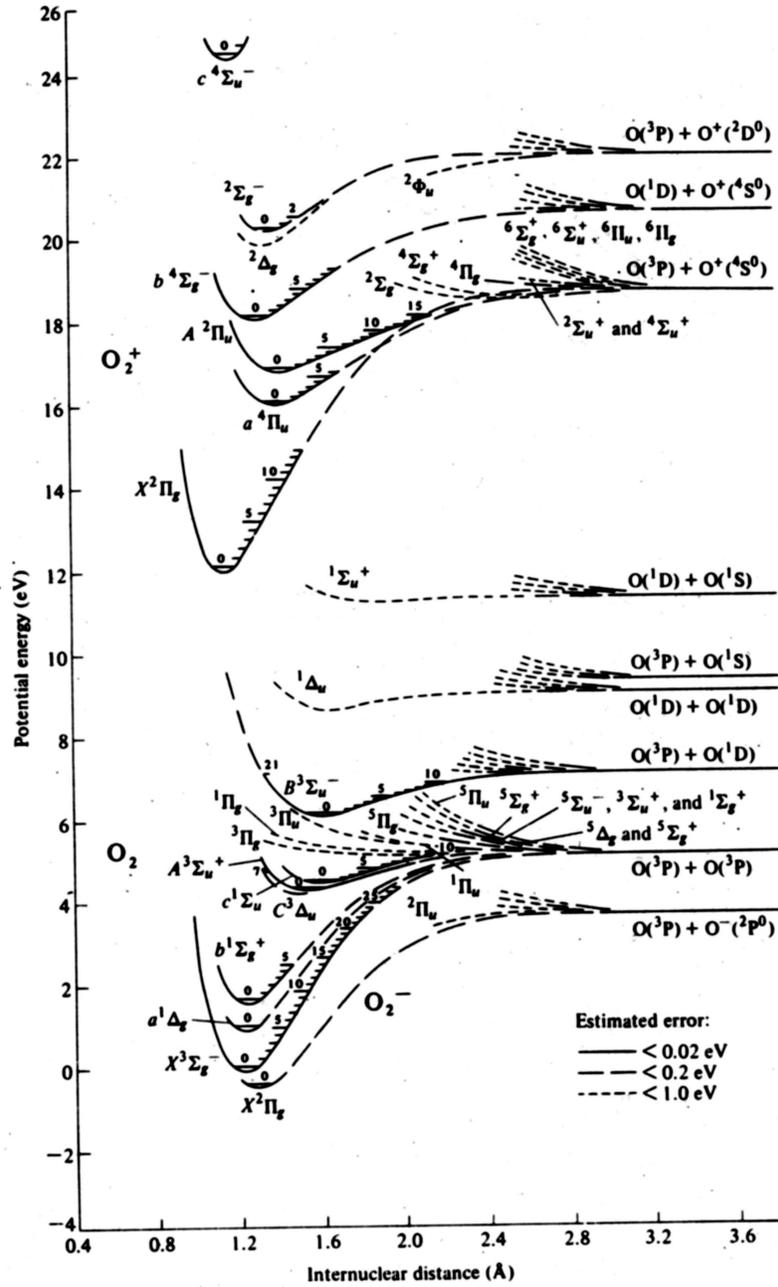


Abb. 2.16. Potentialkurven für  $O_2$  und  $O_2^+$ . Entnommen aus [35].

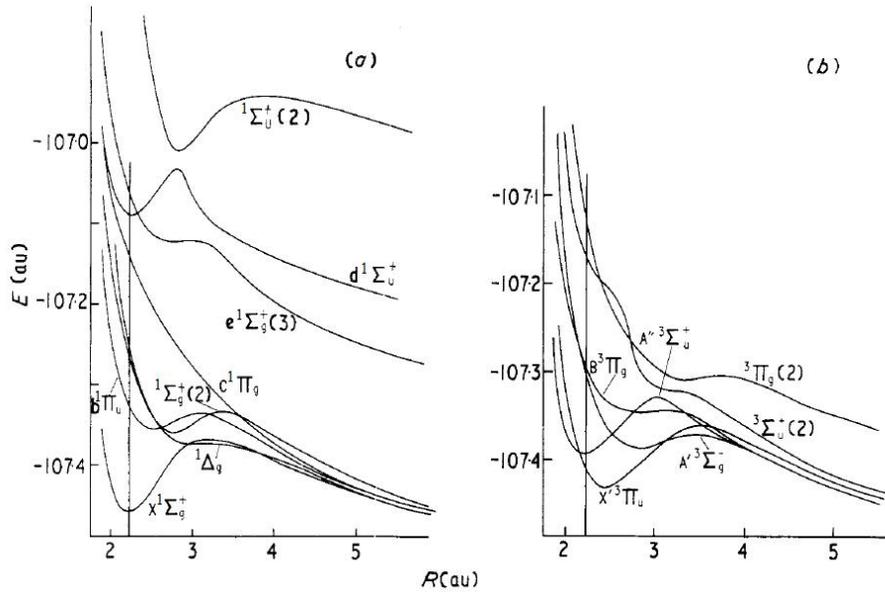


Abb. 2.17. Berechnete Potentialkurven für ausgewählte (a) Singlet-, (b) Triplet-Zustände von  $N_2^{2+}$ . Die vertikalen Linien deuten den internuklearen Abstand der Kerne im Gleichgewicht an. Entnommen aus [36].

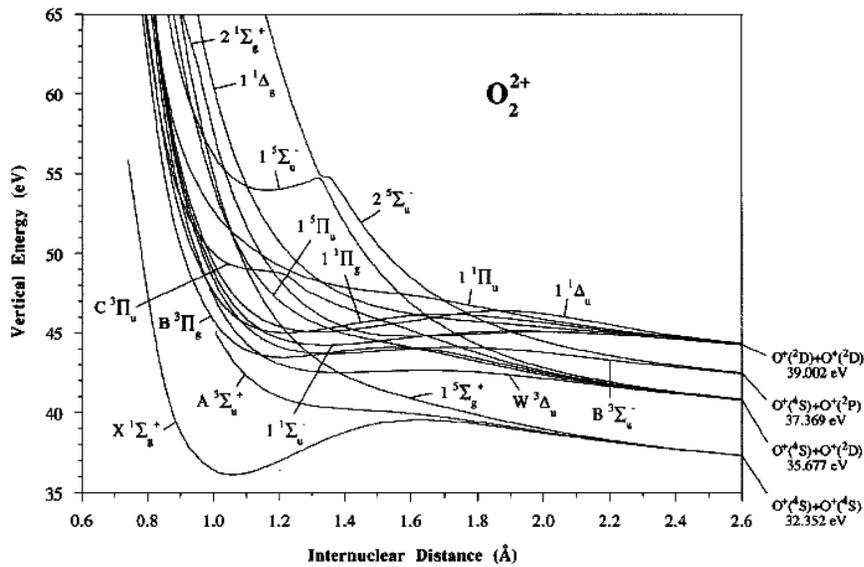


Abb. 2.18. Potentialkurven für  $O_2^{2+}$ . Entnommen aus [29].



# Kapitel 3

## Versuchsaufbau

*Let's push on with this experiment!*

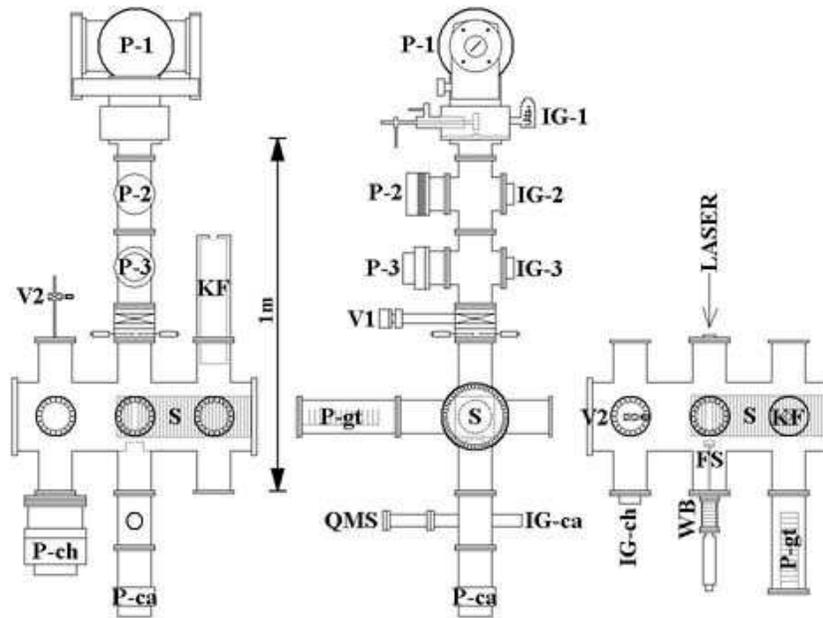
C. Lewis Cocke

Die COLTRIMS von Reaktionen mit intensiven Laserpulsen stellt hohe Anforderungen an die Qualität des Restgasvakuums, da bei hohen Intensitäten praktisch jedes Atom oder Molekül im Laserfokus ionisiert wird. Bei gegebenem fokalem Volumen ist die Anzahl der Target- und Restgasteilchen für die Anzahl der produzierten geladenen Teilchen pro Laserpuls ausschlaggebend. Werden zu viele geladene Teilchen pro Laserpuls erzeugt, können nicht mehr alle Reaktionsprodukte detektiert werden und zudem unterliegt jedes dieser geladenen Teilchen einer zusätzlichen, nicht erfaßbaren elektromagnetischen Wechselwirkung durch Raumladungseffekte. In diesem Kapitel sollen die verschiedenen Teile des Vakuumaufbaus, die Detektion der erzeugten Teilchen und der Lauf ihrer Signale durch die Elektronik und Datenerfassung erläutert werden.

Der experimentelle Aufbau befindet sich im James R. Macdonald Laboratory an der Kansas State University, Manhattan, Kansas. Dabei werden die ultrakurzen Laserpulse von der KLS-Arbeitsgruppe (Kansas Light Source) unter Führung von Prof. Zenghu Chang zur Verfügung gestellt.

### 3.1 Vakuumsystem

Die Edelstahl-Vakuummkammer besteht wie bei üblichen COLTRIMS-Aufbauten im wesentlichen aus drei Teilen. Neben der Hauptkammer, welche das Spektrometer (S) enthält, wird außerdem eine Sektion zur Formung des Jet-Targets benötigt und eine Kammer, der Catcher (ca), die den Jet nach Durchqueren der Hauptkammer, um das Vakuum dieser möglichst unbeeinflußt zu lassen, auffängt und abpumpt. Die Kammer ist zum Erreichen besonders niedriger Enddrücke konzipiert, weshalb ausschließlich Kupferdichtungen und ein dreistufiger Jet zur Formung des Targets verwendet werden. Die Hauptkammer weist zwölf angeschweißte identische Flansche auf, drei in einer Reihe oben, drei unten und je drei zu beiden Seiten. Angebracht sind an den oberen ein Nadelventil (V2) zum Fluten der Kammer, die Kühlfalle (KF) und in der Mitte das Jetsystem; die unteren sind mit einer 260 l/s Turbomolekularpumpe (P-ch) (Pfeiffer TMU 260) und in der Mitte mit dem Catcher (ca) verbunden; eine Seite ist lediglich mit einem Fenster, durch welches der Laser in die Kammer eintritt, bestückt und auf der gegenüberliegenden Seite befindet sich schließlich eine Vakuummeßzelle (IG-ch), eine Getterpumpe und mittig die Montierung des fokussierenden Spiegels (FS).



**Abb. 3.1.** Maßstabsgetreue Skizze des Versuchsaufbaus: von vorne (links), von der rechten Seite (Mitte) und, die Hauptkammer herausgenommen, von oben (rechts). Fokus-Spiegel FS, Ion Gauge IG (Vakuummeßzellen), Kühlfalle KF, Pumpen P-, Quadrupol-Massenspektrometer QMS, Spektrometer S, Ventile V, Wellbalg WB.

Die Getterpumpe basiert auf dem Kondensationsprinzip und besitzt eine große gerippte Oberfläche (etwa  $0.3 \text{ m}^2$ ) aus einer Zirkonium-Vanadium-Eisen-Legierung (Zr-V-Fe). Diese Oberfläche bindet permanent aktive Gase (wie  $\text{O}_2$ ,  $\text{N}_2$ ,  $\text{CO}$ ) mit Ausnahme von Wasserstoff, welcher durch Erhitzen wieder ausgedampft werden kann. Wird die Getterpumpe mit einem Gleichstrom aufgeheizt, es wird dabei von einer Aktivierung (bzw. Reaktivierung) gesprochen, so dringen die an der Oberfläche gebundenen Atome und Moleküle tiefer in die Masse der Zr-V-Fe-Legierung ein, Wasserstoff verdampft und nach Abkühlen der Pumpe steht eine saubere Kondensationsfläche zur Verfügung. Da das Material der Getterpumpe eine Sättigung erreichen kann, ist eine Aktivierung der Pumpe unter Atmosphäre zu vermeiden.

	ohne Jet	$\text{O}_2$ -Jet	$\text{H}_2$ -Jet
1. Stufe	$1.4 \cdot 10^{-7}$	$4.4 \cdot 10^{-4}$	$6.0 \cdot 10^{-4}$
2. Stufe	$1.4 \cdot 10^{-7}$	$5.4 \cdot 10^{-6}$	$3.4 \cdot 10^{-5}$
3. Stufe	$9.4 \cdot 10^{-10}$	$6.9 \cdot 10^{-9}$	$8.8 \cdot 10^{-8}$
Kammer	$< 1 \cdot 10^{-10}$	$1.2 \cdot 10^{-10}$	$4.6 \cdot 10^{-10}$
Catcher	$< 1 \cdot 10^{-10}$	$1.3 \cdot 10^{-9}$	$1.4 \cdot 10^{-9}$

Typische Drücke der Vakuumbereiche [Torr].

## 3.2 Jet-System

Eine der Grundideen der COLTRIMS ist die Verwendung eines kalten Targets. Da für gasförmige Atome und Moleküle die Maxwell-Verteilung der thermischen Bewegungsenergie bei Zimmertemperatur bereits Impulse in der Größenordnung von einigen atomaren Einheiten aufweist, ist es für manche Experimente unerlässlich, einen Überschall-Gas-Jet zu verwenden. Nicht zuletzt bietet die Verwendung eines Jets den Vorteil, daß wesentlich weniger Teilchen in die Hauptkammer gelangen als bei einem alternativen Fluten der Kammer, was zum Beispiel bei Experimenten mit aggressiven Gasen entscheidend sein kann, um die Detektorlebenszeit nicht stark zu verkürzen. Zur Formung des Gas-Jets wird eine Düse mit einer Öffnung von  $30\ \mu\text{m}$  Durchmesser verwendet. Diese Düse wird vom jeweiligen Target-Gas mit einigen Bar Druck gespeist und befindet sich inmitten einer Expansionskammer, die einen zehnmillionenfach geringeren Druck aufweist. Eine Turbomolekularpumpe (500 l/s Pfeiffer TPH 510) sorgt für die Aufrechterhaltung des niedrigen Drucks, so daß das aus der Düse austretende Gas charakteristische Zonen ausbildet (siehe Abb. 3.2).

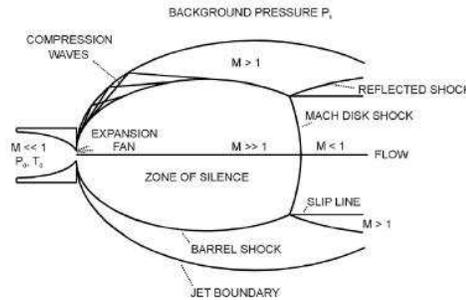


Abb. 3.2. Querschnittsskizze durch einen Überschalljet. Entnommen aus [40].

Das Kernstück der Expansionswolke bildet die sogenannte *zone of silence*, in der die Gasteilchen mit  $M \gg 1$  große Überschallgeschwindigkeiten erreichen (die Machzahl  $M = 1$  markiert die druckabhängige Grenzgeschwindigkeit des Schalls). In diese Zone taucht, mit der Spitze voran, ein oben im Durchmesser  $0.5\ \text{mm}$  offener Hohlkegel, der sogenannte Skimmer, welcher im Abstand von etwa  $7\ \text{mm}$  von der Düse entfernt fixiert ist. Die Länge der *zone of silence* kann durch den Durchmesser der Düsenöffnung  $d$  und mit dem Druckverhältnis in der Düse ( $p_0$ ) zum Umgebungsdruck der Expansionskammer ( $p_1$ ) berechnet werden [12]

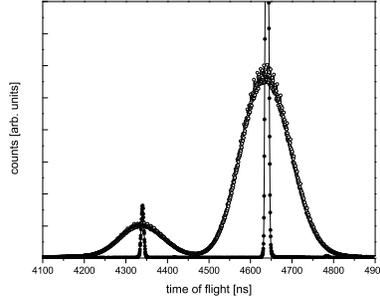
$$L = \frac{2}{3}d\sqrt{\frac{p_0}{p_1}}. \quad (3.1)$$

In diesem Experiment variiert diese Länge zwischen  $3\ \text{cm}$  und  $6\ \text{cm}$ , abhängig vom benutzten Gas und gewählten Vordruck.

Der Skimmer trennt gleichzeitig die Expansionskammer, als erste differentielle Pumpstufe, von der zweiten Pumpstufe, so daß lediglich ein im Anfang  $0.5\ \text{mm}$  breiter Überschall-Gasstrahl in die zweite Stufe gelangt, welche von einer zweiten Turbomolekularpumpe (Leybold VAC 50) im Druckbereich  $10^{-6}\ \text{mbar}$  gehalten wird. Durch eine  $1\ \text{mm}$  große Öffnung gelangt der Jet anschließend in die dritte differentielle Pumpstufe, in der ein Vakuum von  $10^{-9}\ \text{mbar}$  herrscht und erreicht weiter durch eine  $2\ \text{mm}$  im Durchmesser betragende Öffnung die Hauptkammer. Über Mikrometerschrauben bewegliche Blenden kann der Jet zuvor noch zusätzlich verdünnt werden.

Die Expansion des Gases bewirkt eine Abkühlung in Ausbreitungsrichtung des sich formenden Gasstrahls, während die geometrischen Bedingungen für den Jet

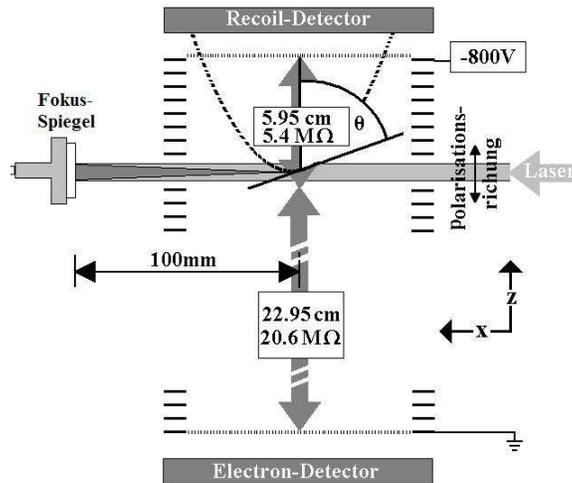
eine starke Abkühlung in der Ebene, senkrecht zu seiner Ausbreitungsrichtung, bewirken, so daß insgesamt von einem kalten Target gesprochen werden kann. In Abb. 3.3 sind zum Vergleich die Flugzeitspektren von  $N_2^+$  und  $O_2^+$  für ein warmes Target (geflutete Kammer) und ein kaltes (Jet) dargestellt.



**Abb. 3.3.** Flugzeitverteilung für  $N_2^+$  (erster peak) und  $O_2^+$  (zweiter peak) für ein warmes diffuses Target (breite Verteilung) und zum Vergleich vom kalten Jet. In beiden Fällen ist ein Gasgemisch benutzt worden.

### 3.3 Spektrometer

Das Spektrometer dient dazu, ionisierte Atome und Moleküle nachzuweisen und ihre jeweiligen Anfangsimpulse zu erfassen. Zur Realisierung dieses Vorhabens wird ein homogenes elektrisches Feld erzeugt, entlang welchem geladene Teilchen aus dem Fokus extrahiert werden. Ähnlich einem schiefen Wurf im homogenen Gravitationsfeld der Erde kann die vom Anfangsimpuls abhängige Trajektorie eines jeden detektierten Teilchens rekonstruiert werden, sofern der Auftreffpunkt, die Flugzeit und der Startpunkt bekannt sind. Daher ist ein sowohl orts- wie auch zeitauflösender Detektor notwendig, welcher sich im festen und bekannten Abstand vom Reaktionsherd befindet.



**Abb. 3.4.** Maßstabsgetreue Spektrometerskizze (die Elektronenseite ist verkürzt dargestellt)

Das benutzte Spektrometer ist etwa 30 cm lang, wobei der Fokus rund fünf Zentimeter nahe an der Recoil-Seite liegt (genauere Angaben siehe Abb. 3.4). Zum

Abschluß des homogenen elektrischen Feldes befindet sich an den beiden Enden sowie in der Mitte des Spektrometers ein feinmaschiges Metallgitter. Mit dem Gitter in der Mitte des Spektrometers kann die Elektronen-Seite in eine Beschleunigungs- und Driftstrecke unterteilt werden, worauf in diesen Versuchen jedoch verzichtet worden ist, da lediglich positive Ionen untersucht worden sind. Bei den durchgeführten Versuchen variiert die über das gesamte Spektrometer angelegte Spannung von 60 V, zur Intensitätsbestimmung anhand der  $\text{H}_2^+$ -Impulse (Kapitel 5.4), über 290 V bei höherauflösenden Energiespektren, bis zu häufig verwendeten 800 V (Abb. 3.4) oder 1000 V für Experimente mit Sauerstoff und Stickstoff.

### Bewegungsgleichungen

Die erzeugten Ionen der Masse  $m$  und Ladung  $q$  werden vom elektrischen Feld extrahiert. Dabei werden sie entlang der Spektrometerachse gleichförmig beschleunigt durch

$$\vec{a} = \vec{E} \frac{q}{m}, \quad (3.2)$$

wobei  $v_0$  die Startgeschwindigkeit ist, und fliegen die Distanz zum Detektor  $D_0$  in der Zeit

$$t_1 = \frac{v_0 \pm \sqrt{v_0^2 + 2aD_0}}{a}. \quad (3.3)$$

Senkrecht zur Spektrometerachse wirken keine Kräfte auf die Ionen, die Geschwindigkeiten (und damit die Impulse) sind abhängig vom Auftreffort auf dem Detektor

$$v_{x,0} = \frac{x}{t_{ges}} \quad \text{und} \quad v_{y,0} = \frac{y}{t_{ges}}. \quad (3.4)$$

## 3.4 Detektor

Das Spektrometer ist mit zwei Detektoren ausgestattet, von denen bei diesen Experimenten jedoch lediglich der Recoil-Detektor zur Impulsbestimmung positiver Ionen verwendet worden ist. Beide baugleichen orts- und zeitauflösenden Detektoren bestehen im wesentlichen aus zwei Einheiten: den Micro-Channel-Plates und den Delaylines. Im folgenden werden die beiden Einheiten separat und etwas detaillierter betrachtet.

### Micro-Channel-Plates

Ein Micro-Channel-Plate (MCP) besteht üblicherweise aus einer Bleiglasplatte, die von vielerlei winzigen Kanälen (den *Channels*) durchzogen ist. Diese weisen einen Durchmesser von  $25 \mu\text{m}$  auf und liegen so dicht beieinander, daß auf einem Quadratzentimeter etwa hunderttausend dieser Kanäle Platz finden. Über eine dünne Chrom-Nickel-Schicht auf der Oberfläche beider Seiten kann eine Spannung von etwa 1000 V an das MCP angelegt werden, was jeden einzelnen Kanal zu einem Verstärker werden läßt, der ähnlich einem Photomultiplier funktioniert. Trifft dann ein geladenes Teilchen auf eine Kanalwand, so löst es Elektronen aus dieser, welche durch die anliegende Spannung beschleunigt werden und ihrerseits weitere Elektronen auslösen können, so daß einige tausend Elektronen den Kanal auf der Rückseite verlassen. Die Produktion einer solchen Elektronenlawine hat einen kleinen Einbruch der am MCP anliegenden Spannung zur Folge, welcher jedoch schnell wieder wie bei einer Kondensatoraufladung über einen Widerstand kompensiert wird. Parallel zur permanenten Aufladung und Aufrechterhaltung der MCP-Spannung über

den Widerstand ist ein Kondensator geschaltet, welchen das kurze Spannungseinbruchsignal ungehindert passieren kann, um dann verstärkt und erfaßt werden zu können. Die in diesem Versuch eingesetzten Micro-Channel-Plates sind kreisförmig mit einem Durchmesser von 80 mm und einer Dicke von einem Millimeter. Zur Vergrößerung der Verstärkung werden zwei Micro-Channel-Plates hintereinandergeschaltet, sprich übereinandergelegt, so daß die Gesamtverstärkung bei etwa  $10^7$  bis  $10^8$  liegt.

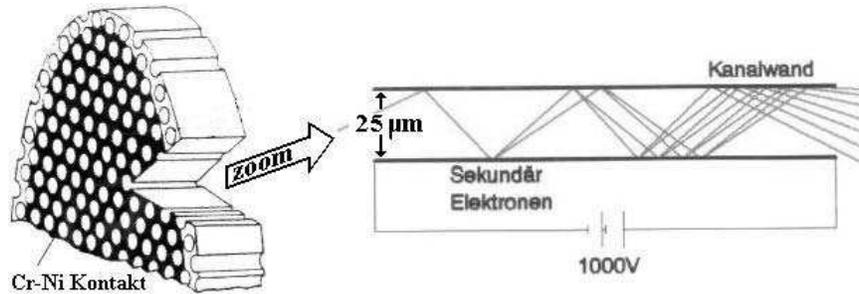


Abb. 3.5. Skizze eines Micro-Channel-Plates. Aufbauend auf [23].

### Delay-Line Anoden

Der ortsauflösende Teil des Detektors befindet sich hinter den Micro-Channel-Plates und ist sensitiv auf deren Elektronenschauer. Er besteht aus jeweils zwei Drähten in x- und y-Richtung, die senkrecht zueinander und parallel untereinander gewickelt sind, so daß die Anordnung ein Gitter bildet (siehe Abb. 3.6). Ein Elektronenschauer erzeugt in allen vier Anodendrähten ein kurzes, hochfrequentes Signal, das sich entlang dieser zu beiden Enden hin ausbreitet. Der Zeitvergleich zwischen der Ankunft eines Signals an den beiden Enden einer Anode liefert den Ort der Erzeugung des Signals. Durch die Benutzung jeweils zweier Drähte, einem Signaldraht und einem Referenzdraht, wobei der Signaldraht auf einem um etwa 50 V höheren Potential liegt und dadurch bevorzugt Elektronen aufnimmt, können Influenzsignale durch Vergleich beider Drahtanodensignale minimiert werden. Ein Delay-Line-Drahtpaar für eine Richtung stellt mit seinen parallel geführten Leitern demnach eine Lecherleitung dar, die eine geringe Signalabstrahlung für differentielle Signale aufweist und damit eine dispersionsfreie Hochfrequenzleitung ist. Ähnlich wie bei den Micro-Channel-Plates werden auch hier die Signale über ein RC-Glied ausgekoppelt, um dann verstärkt und erfaßt werden zu können.

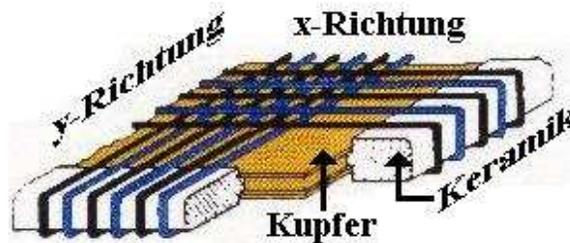


Abb. 3.6. Skizze eines Delay-Line Anodenausschnitts. Aufbauend auf [23]

### 3.5 Signalverarbeitung und Datenaufnahme

Zum Erfassen detektierter Signale mit Computern (VAX-System mit der Software „XSYS“) müssen diese zunächst in digitale Form gebracht werden, was bei diesem Experiment ein TDC (*Time to Digital Converter*, LeCroy) übernimmt. Der TDC ist so konzipiert, daß er bis zu 16 Ereignisse pro Laserpuls registrieren kann. Dazu wird für jeden Puls mit elektronischen Signalen ein Zeitfenster definiert, in welchem alle zu erwartenden Ereignisse liegen (Größenordnung  $10 \mu\text{s}$ ). Da zwei aufeinanderfolgende Laserpulse zeitlich etwa 1 ms voneinander getrennt sind, verbleibt in diesem Falle dem TDC hundert mal mehr Zeit zur Kommunikation mit dem *Front End*. Abgesehen von einem analogen Signal, müssen alle anderen Signale zunächst aufbereitet und in sogenannte NIM-Signale (*Nuclear Instrumentation Method*) umgewandelt werden, damit sie der TDC verarbeiten kann, was im einzelnen wie folgt geschieht (siehe auch Abb. 3.7):

Bevor ein Laserpuls in die Vakuumkammer eintritt, löst ein winziger Bruchteil seiner Energie auf einer Photodiode ein Signal aus, welches zum einen die relative Startzeit ( $t_0$ ) aller folgenden Ereignisse widerspiegelt und zum andern dazu benutzt werden kann, die Energie des Lasers mit aufzuzeichnen. Das Signal der Photodiode wird zunächst verstärkt (*fast risetime Amp*) und dann mit Hilfe eines *Constant Fraction Discriminator* (CFD) in einen NIM-Puls verwandelt, der unabhängig von der Pulshöhe stets am gleichen Bruchteil des Pulses zeitlich generiert wird und auf diese Weise die Startzeit ( $t_0$ ) definiert. Ein identischer NIM-Puls wird außerdem verzögert (mit dem delay eines *Gate Generators*) und als Stoppsignal für den TDC benutzt. Da der TDC alle registrierten Ereignisse kontinuierlich speichert, wobei das aktuellste Ereignis stets vorne im Speicher liegt, liest dieser nach Eingang eines Stoppsignals (*common*) den aktuelleren Speicher aus, so daß lediglich Ereignisse innerhalb eines bestimmten vergangenen Zeitraums weitergegeben werden.

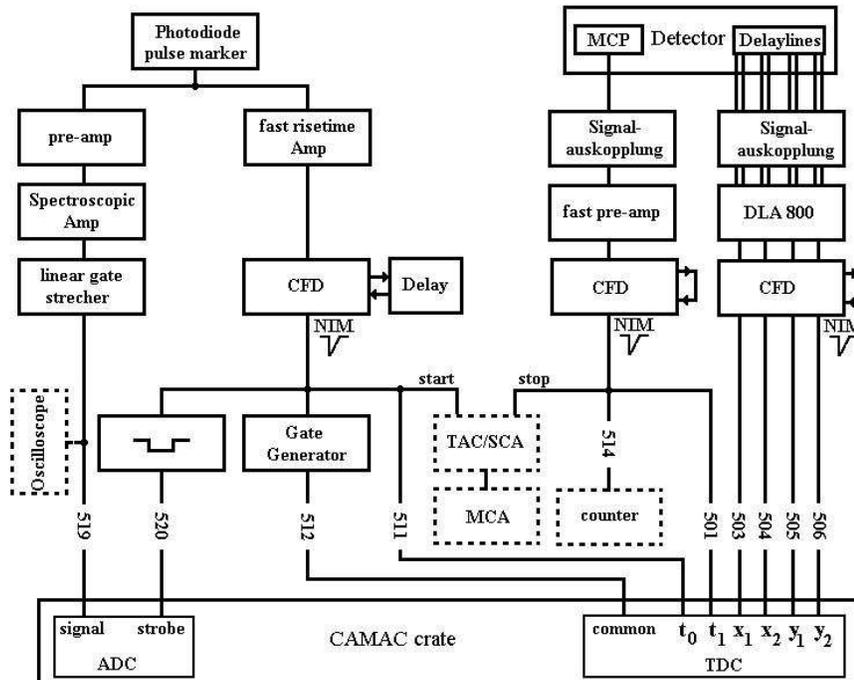


Abb. 3.7. Schaltskizze der Signalverarbeitung

Zum Mitverfolgen der Energie des Lasers wird zusätzlich dasselbe Ausgangssignal der Photodiode mit dem *Spectroscopic Amp* verstärkt und vom *linear gate*

*and stretcher* gedehnt, bevor es mit einem ADC (*Analog to Digital Converter*) digitalisiert wird. Je größer die Energie des Lasers, desto höher die von der Photodiode erzeugte Spannung und umso größer ist der vom ADC zugeordnete digitale Kanal. Da der ADC wie der TDC ebenfalls mit einem Zeitfenster arbeitet, jedoch nicht mit einem durch zwei Pulse definierten, sondern mit lediglich einem der Fensterbreite entsprechend langen, wird ein dritter zu den vorher beschriebenen zwei identischen Pulsen in einen solchen verwandelt (*strobe*). Nachdem der Laserpuls den Fokus in der Kammer durchquert und Ionen erzeugt hat, lösen die vom elektrischen Feld auf den Detektor projizierten Teilchen dort Signale aus. Die ausgekoppelten MCP-Signale werden wie das Photodiodensignal verstärkt (*fast pre-amp*), mit einem CFD in NIM-Pulse umgewandelt und schließlich vom TDC als Flugzeiten ( $t_1$ ) digitalisiert.

Die Signale der Delay-Line Anoden durchlaufen den gleichen Prozeß mit der Ausnahme, daß nach der Verstärkung noch die Differenz zwischen Signal- und Referenzleitung gebildet wird. Auch wird durch eine Schwerpunktbildung der Wellenzüge im Differenzverstärker (DLA 800) eine Ortsauflösung erzielt, die besser ist als die Abstände zweier Drahtreihen. Sie beträgt etwa 0.1 mm bei einem Wicklungsabstand von 1.5 mm. Diese Verbesserung der Auflösung ist möglich, da stets eine ganze Wolke von Elektronen die Anoden trifft, wodurch charakteristische Signale generiert werden. Um ein schnelles Analysemittel am Experiment zur Verfügung zu haben, ist weiterhin ein MCA (*Multi Channel Analyser*) angeschlossen. Dieser benutzt eine weitere identische Kopie des NIM-Startsignals ( $t_0$ ) und das jeweils erste NIM-Signal vom MCP als Stoppzeit. Gemessen wird also die Flugzeit des ersten Ereignisses für jeden Puls. Dazu wird ein TAC/SCA (*Time to Amplitude Converter/Single Channel Analyser*) benutzt, welcher längeren Zeitintervallen größere Spannungen zuordnet, die dann letztendlich der MCA im entsprechenden Kanal als Count registriert.

# Kapitel 4

## Lasertechnik

*Das Licht hat die größte G'schwindigkeit in der Natur;  
drum hat auch das üble Licht, das auf ein Wesen fällt,  
so eine schnelle Verbreitung.*

J. N. Nestroy

Zur Erzeugung eines ultrakurzen Laserpulses bedarf es einiger optischer Kunstgriffe, die in diesem Kapitel im groben erläutert werden, so daß Grenzen, Möglichkeiten und Schwierigkeiten angedeutet werden können. Einer der grundlegenden Unterschiede zu „herkömmlichen“ Lasern ist das Frequenzspektrum des emittierten Lichtes. So existieren einerseits Laser, die kontinuierlich Licht einer bestimmten Frequenz (mit einer äußerst schmalen spektralen Linienbreite) erzeugen, wobei diese Frequenz eindeutig einem bestimmten Niveauübergang der Elektronen bei der spontanen und induzierten Emission im Resonatormedium zugeordnet werden kann. Im Realfall weisen solche Laser jedoch meist mehrere unterschiedliche Frequenzen (mit schmaler Linienbreite) auf, da mehrere Moden des Resonators schwingen können (abhängig von der Güte des Resonators) und gegebenenfalls verschiedene Übergänge verstärkend wirken. Folgende Abschätzung soll zeigen, daß auf der anderen Seite, nämlich zur Erzeugung ultrakurzer Laserpulse, Laser mit einem breiten Frequenzband benötigt werden.

### 4.1 Bandbreite der Frequenzen

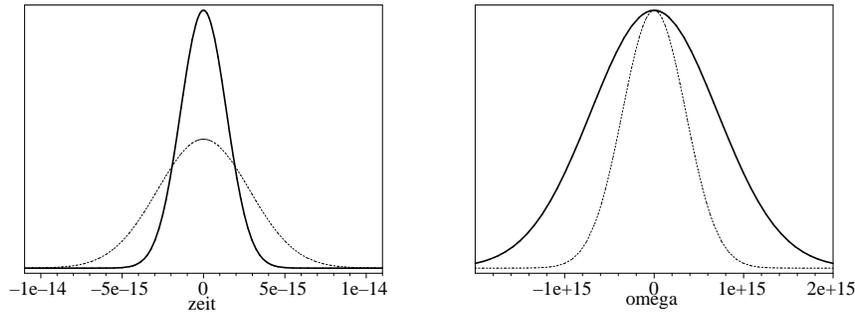
Die Heisenbergsche Unschärferelation erlaubt es, den Zusammenhang zwischen der Pulslänge eines Laserpulses und seiner spektralen Bandbreite zu erkennen und abzuschätzen. Es gilt

$$\Delta\omega \Delta t \geq \frac{1}{2}. \quad (4.1)$$

Wird die zeitliche Abhängigkeit des die Oszillationen einhüllenden elektrischen Feldes eines Laserpulses als normierte Gaußfunktion beschrieben

$$E(t) = \frac{E_0}{a\sqrt{\pi}} \cdot \exp\left(-\frac{t^2}{a^2}\right) \quad (4.2)$$

mit der Halbwertsbreite  $a\sqrt{\ln 2}$ , so kann durch Fourier-Transformation die zugehörige Gaußfunktion der Winkelgeschwindigkeit  $\omega$  ermittelt werden. Abbildung 4.1 (links) zeigt als Beispiel einen normierten Puls mit vier bzw. acht Femtosekunden Halbwertsbreite, dessen Fourier-transformierte Funktion in Abbildung 4.1 (rechts) dargestellt ist. Durch Vergleich der jeweiligen Halbwertsbreiten, die der Bedingung

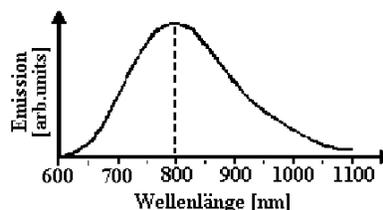


**Abb. 4.1.** In der Halbwertsbreite 4 fs bzw. 8 fs langer Puls, dargestellt mit der einhüllenden Gaußfunktion als zeitliche Abhängigkeit des elektrischen Feldes (links) und Fourier-transformiert zur Winkelgeschwindigkeit (rechts).

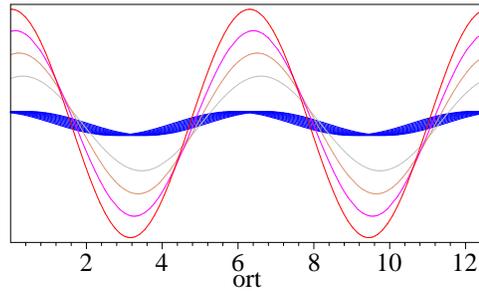
$\sigma_\omega \sigma_t \geq 1$  genügen, ist zu erkennen, daß zur Erzeugung kürzerer Pulse größere Frequenzbandbreiten erforderlich sind. Für einen 4 fs langen Puls wird eine Bandbreite von mehr als  $2 \cdot 10^{15} \text{ rad s}^{-1}$  benötigt. Das entspricht bei einer mittleren Wellenlänge von 800 nm (375 THz) dem Bereich von weniger als 560 nm (535 THz) bis über 1400 nm (214 THz).

Es zeigte sich Mitte der 80iger Jahre, daß mit Titan dotierte Saphir-Kristalle (Ti:Sa oder Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>) eine lichtverstärkende Wirkung über einen weiten Spektralbereich aufweisen, der bis heute von keinem anderen Festkörpermateriale in seiner Breite übertroffen werden konnte. Abbildung 4.2 zeigt das verstärkende Emissionsspektrum eines Ti:Sa-Kristalls, es reicht von 680 nm bis 1100 nm und weist ein Emissionsmaximum bei etwa 800 nm auf. Im Vergleich zu den erstgenannten Lasertypen, bei denen beispielsweise ein Argon-Laser als Vertreter 12 Moden aufweist, sind zur Erzeugung eines Spektrums dieser Breite über  $10^6$  Moden notwendig [13]. Obiger Abschätzung gemäß reicht dennoch dieses bemerkenswert breite Frequenzband zur Hervorbringung eines 4 fs langen Pulses nicht aus, was insbesondere bei einem Puls mit 800 nm zentraler Wellenlänge zutrifft. 20 fs hingegen sind erreichbar und können als Ausgangspuls zur Verkürzung eines solchen in einem unabhängigen zweiten Schritt verwendet werden, um bestenfalls die Grenze von 4 fs zu erreichen, bei welcher der Laserpuls aus nur noch einer einzigen Periode mit quasi-kontinuierlicher Wellenlänge besteht.

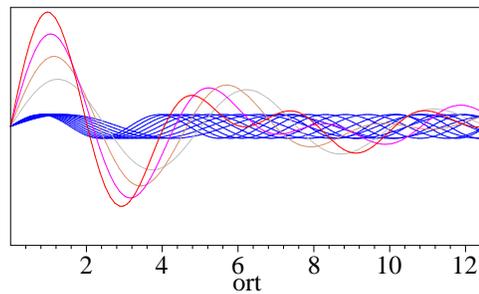
Die Existenz einer Vielzahl von Moden verschiedener Frequenzen alleine schafft jedoch noch keinen ultrakurzen Laserpuls, sie müssen vielmehr in der richtigen Weise kombiniert werden. Abbildung 4.3 zeigt die Überlagerung von bis zu zehn Wellenzügen gleicher Periodendauer, die lediglich phasenverschoben sind und daher nicht das gewünschte Ergebnis erzielen. Im Raum fixierte (oder zueinander fixe) Wellen mit unterschiedlichen Frequenzen können hingegen in der Art interferieren, daß sie sich beinahe überall nivellieren und sich lediglich an bestimmten Punkten konstruktiv überlagern, wie in Abbildung 4.4 angedeutet ist.



**Abb. 4.2.** Fluoreszenz-Emissionsspektrum für einen Titan:Saphir-Kristall.



**Abb. 4.3.** Superposition von 10 (rot), 8 (magenta), 6 (orange) und 4 (grau) phasenverschobenen Wellen gleicher Periodendauer (blau).



**Abb. 4.4.** Formung eines kurzen Pulses durch konstruktive Interferenz mehrerer phasengekoppelter Wellen mit unterschiedlicher Periodendauer. Die Ausgangswellenzüge sind blau dargestellt, in unterschiedlichen Rottönen ist die Superposition verschieden vieler Ausgangswellen zu sehen (je kräftiger das Rot, desto mehr Ausgangswellen wurden überlagert).

In der Praxis gewährleistet bei dem verwendeten Laser der optische Kerr-Effekt die beschriebene Phasenkopplung (*passive mode locking*). Er beschreibt das Phänomen, daß bei hohen Lichtintensitäten und damit auch bei starken elektrischen Feldern der refraktive Brechungsindex eines Mediums abhängig wird von der vorherrschenden Intensität selbst. Der Kerr-Effekt ( $n_2$ ) ist nicht-linear

$$n(I) = n_0 + n_2 I + \dots \quad (4.3)$$

und im Vergleich zum normalen Brechungsindex  $n_0$  sehr klein. Auf einen Laserpuls genügend hoher Intensität wirkt er fokussierend auf Zeit und Ort, da z.B. bei einem zeitlich gaußförmigen Puls (gemäß Gl. 4.2) die Phasengeschwindigkeiten in der Mitte des Pulses bei hohen Intensitäten im Medium langsamer sind als die an den beiden Enden des Pulses. Der Ti:Sa-Kristall wirkt unter bestimmten Voraussetzungen zeitfokussierend, was die Selbstphasenmodulation bewirkt und sich selbst ortsfokussierend. Normalerweise genügt eine kleine Störung, wie etwa das Antippen eines Spiegels und die damit verbundene Resonatorlängenänderung, um zunächst einen zufälligen Störungsimpuls zu erzeugen, der sich anschließend wie beschrieben selbst modenkoppeln und ortsfokussieren kann und so den Übergang zum Puls-Modus initialisiert.

## 4.2 Aufbau des Lasers

Bei den durchgeführten Versuchen wird zwischen „langen“ und „kurzen“ Laserpulsen unterschieden, wobei beide den ultrakurzen Laserpulsen zuzuordnen sind. Mit „langen“ Pulsen sind etwa 35 fs zeitlich ausgedehnte Pulse gemeint, welche in

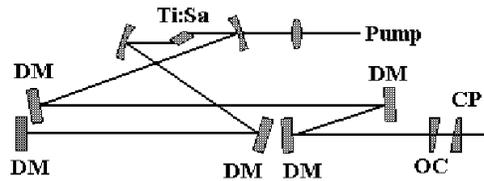


Abb. 4.5. Schematisierter Aufbau des Oszillators. Dispersionsspiegel (DM), Output Coupler (OC), Compensating Plate (CP).

zwei Schritten von dem Ti:Sa-System erzeugt werden. Ein zusätzlicher, das Spektrum frequenzverbreitender Prozeß erlaubt es, die Pulslänge auf etwa 8 fs herunterzuschrauben, um die hier als „kurz“ bezeichneten Pulse zu erzeugen. Diese drei Hauptschritte sollen im Folgenden kurz erläutert werden.

#### 4.2.1 Oszillator

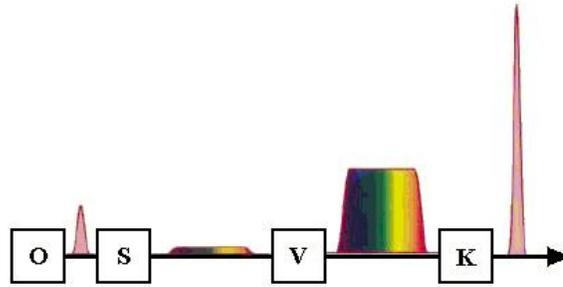
In Abbildung 4.5 ist der Oszillator (Femtolasers Femtosource PRO Ti:Sa-Laser) schematisiert dargestellt. Ein Dauerstrichlaser (*Continuous Wave*, CW-Laser, SpectraPhysics 800-456-2552 Millennia vs 110) pumpt kontinuierlich den etwa 2 mm langen Titan-Saphir-Kristall, der sich kollinear zur Laserachse zwischen zwei fokussierenden Hohlspiegeln befindet. Der Kristall ist an seinen Enden schräg geschnitten, so daß der Laserstrahl im Brewster-Winkel beidseitig eintreten kann, um den Verlust der Pumpleistung zu minimieren. Um einen zirkulierenden kurzen Puls im Oszillator stabil zu halten, muß die Laserkavität eine Nettodispersion nahe Null aufweisen, weshalb Maßnahmen zur Kompensation der positiven Dispersion des Ti:Sa-Kristalls erforderlich sind. Positive (oder auch abnormale) Dispersion bedeutet dabei, daß bei steigender Frequenz (sinkender Wellenlänge) der Brechungsindex kleiner wird. Zur Kompensation können beispielsweise Prismen verwendet werden, da bei diesen gerade umgekehrt steigende Frequenzen längere Wege haben und daher negativ dispersiv wirken.

Der verwendete Laseroszillator weist spezielle Spiegel (*Dispersive Mirrors*, DM) auf, welche die Benutzung von Prismen zur Dispersionskompensation überflüssig machen. Diese haben außerdem den Vorteil, daß sie weniger sensitiv auf Kavitätsänderungen reagieren und das System dadurch wesentlich stabiler machen. Der Oszillator liefert einen etwa 10 fs kurzen Puls mit 75 nm spektraler Halbwertsbreite, um die Schwerpunktswellenlänge von 800 nm verteilt. Bei einer Oszillationsfrequenz von 75 MHz liefert er im Durchschnitt 300 mW Ausgangsleistung (bei 5 W Pumpleistung mit 532 nm), was einer Pulsenergie von 45 nJ entspricht.

#### 4.2.2 Verstärker

Um die aus dem Oszillator ausgekoppelten schwachen Pulse vom Nano- in den Millijoulebereich millionenfach verstärken zu können, wird das Prinzip der *Chirped-Pulse*-Verstärkung (CPA) angewendet (Abb. 4.6), so daß eine Beschädigung oder Zerstörung des Verstärkermediums durch zu große Lichtintensitäten vermieden werden kann. In Abb. 4.7 ist die Strahlenführung durch diesen Verstärkungsprozeß skizziert.

Bevor ein kurzer Puls verstärkt werden kann, wird er vom *Stretcher* durch ein Paar von Gittern, welche sich inmitten eines einheitlichen Vergrößerungsteleskops befinden, verbreitert, so daß die Gesamtenergie eines Pulses über eine längere Zeitspanne (Größenordnung 100 ps) verteilt wird. Im Bild wird der Strahl zunächst auf das linke Gitter gelenkt, von welchem er aufgefächert reflektiert wird; ein Hohlspiegel schränkt anschließend diesen Prozeß ein und spiegelt gleichzeitig den Strahl

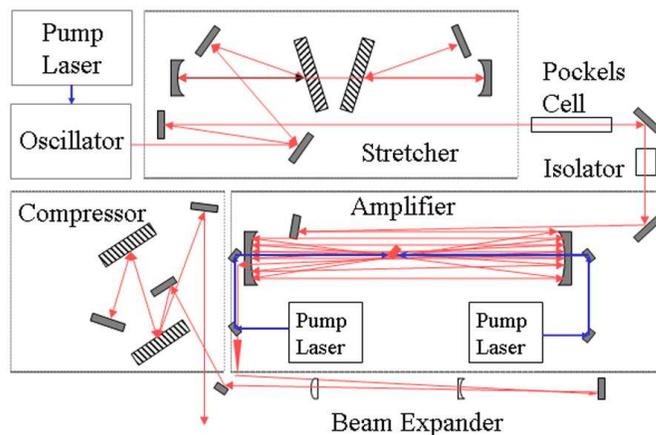


**Abb. 4.6.** Das Prinzip der *Chirped-Pulse-Amplification*. Die aus dem Oszillator (O) ausgekoppelten Pulse werden im *Stretch* (S) spektral gestreckt, vom Verstärker (V) intensiviert und schließlich durch den Kompressor (K) wieder gestaucht.

oberhalb des Gitterpaares auf die andere Seite, wo er fokussierend auf das zweite Gitter projiziert wird; das zweite Gitter reflektiert nun ein paralleles Strahlenspektrum auf den letzten Planspiegel, von diesem aus nimmt der Strahl den gleichen Weg zurück und wird dadurch letztenendes zeitlich gedehnt wieder in seine Ausgangsform gebracht.

Da der Verstärker lediglich mit einer Wiederholungsrate von einigen kHz arbeitet, passiert der Laserstrahl zunächst noch eine Kombination von *Pockels Cell* (PC) und *Isolator*. Die PC besteht aus einem elektro-optischen Kristall, der abhängig von der angelegten Spannung die Polarisationsachse der linear polarisierten Laserpulse zu drehen vermag. Zusammen mit einem Polarisator, der lediglich Pulse bestimmter Orientierungen der Polarisationsachse passieren läßt, können durch Spannungsvariationen von weniger als 10 ns Länge (das entspricht dem Abstand zweier aufeinanderfolgender Pulse), die einmal pro Mikrosekunde auftauchen, gerade 1000 Pulse pro Sekunde selektiert werden. Der Isolator entkoppelt die *Stretch*- von der *Amplifier*-Einheit, um das Zurücklaufen von Pulsen zu verhindern.

Die anschließende Verstärkung erfolgt durch einen zweiten Ti:Sa-Kristall, welcher von Pumplasern (Nd:YLF BMI 621 D/2, 527 nm, Positive Light 408-399-7744 Evolution-30) mit einer Frequenz von 1 kHz gepumpt wird. Die Pumplaser benutzen das gleiche Triggersignal wie die *Pockels Cell*, welches intern den Absorptionskoeffizienten der Kavität beeinflusst und dadurch höherenergetische Pulse, anstelle eines kontinuierlichen Strahles, erzeugt (*Q-switched*). Befindet sich der Ti:Sa-Kristall



**Abb. 4.7.** Laseraufbau der Kansas-Light-Source (KLS)

nach einem Pumpvorgang im hochbesetzten Inversionszustand, wobei die mittlere Lebensdauer dieser Zustände im Bereich von Mikrosekunden liegt, passiert der gedehnte Laserpuls innerhalb einiger Nanosekunden siebenmal den Kristall an verschiedenen Stellen und wird dabei durch induzierte Emission intensiviert (*multi pass*). Der so verstärkte Puls kann dann wieder mit einem Gitter-Paar komprimiert werden und erreicht auf diese Weise eine Energie von etwa 6 mJ.

### 4.2.3 Hohlfasermodulation

Wird ein wie beschrieben erzeugter 25 fs langer Laserpuls durch eine mit einem Edelgas (z.B. Argon) gefüllte Hohlfaser geleitet, so kann er zusätzlich um mehr als 250 nm spektral verbreitert werden [32]. Die benutzte Glas-Hohlfaser (*fused-silica*, Boitag ID 150  $\mu\text{m}$ , OD 2 mm, Länge 2 m) ist im Durchmesser 150  $\mu\text{m}$  dick, 150 cm lang und wird von einem Aluminium-Rohr gehalten, welches einen variierenden Innendurchmesser mit Minimum in der Mitte besitzt (*V-groove*-Form). Dieses Trägerrohr befindet sich in einem weiteren Metallzylinder, der an seinen beiden Enden mit 0.5 mm dicken Fenstern versehen ist und mit dem gewünschten Edelgas befüllt werden kann. Der Laserstrahl wird mit einer Linse in die Hohlfaser fokussiert, so daß diese als Resonator (in dem ersten Modus  $\text{EH}_{11}$ ) angeregt wird, weshalb hierbei auch von einer Ankoppelung gesprochen werden kann. Mit einer Transmissionrate von 0.5 bis 0.6 tritt der Laserstrahl am anderen Ende der Hohlfaser wieder aus, wo er durch das zweifache Passieren eines *chirped mirror*-Paares (alternativ kann auch ein Prismen-Paar verwendet werden) komprimiert wird. Außerdem können quadratische und kubische Phasenstörungen durch Reflexionen an einem weiteren breitbandigen *chirped mirror*-Paar kompensiert werden.

Da der so gebildete kurze Laserpuls auf seinem Weg in die Vakuumkammer beim Propagieren durch verschiedene Medien (Luft, Glasfenster,  $\lambda/4$ -Plättchen, ...) positive Dispersion erfährt, wird durch die benutzten *chirped mirrors* der Puls zuvor an negativer Dispersion überkompensiert, so daß am Ende, gegebenenfalls durch Hinzufügen weiterer Fenster entsprechender Dicke, eine Netto-Dispersion nahe Null erreicht werden kann.

## 4.3 Laserfokus

Um Experimente konzipieren zu können, ist es unter anderem wichtig, Genaueres über den Laserfokus zu wissen, da er die Ionisationsquelle der zu untersuchenden Objekte darstellt. Intensitäten der Felder und ihre eingrenzenden Volumina sind beispielsweise entscheidende Faktoren, die den Ertrag an ionisierten Teilchen pro Zeiteinheit mitbestimmen. In diesem Abschnitt sollen daher die Geometrie und die Abhängigkeiten der Intensitäten in der fokalen Region beschrieben werden.

Ein gaußförmiger Strahl besitzt im Fokus eine räumliche Intensitätsverteilung, die wie folgt ausgedrückt werden kann [33]

$$I(r, z) = \frac{I_{max}}{1 + (z/z_R)^2} \cdot \exp\left(\frac{-2r^2}{w_0^2 (1 + (z/z_R)^2)}\right) \quad (4.4)$$

mit

$I$	Intensität des Laserfeldes,
$r$	Abstand zur Strahlenachse,
$z$	Entfernung vom Brennpunkt auf der Strahlenachse,
$I_{max}$	Maximale Intensität des Laserfeldes im Fokus,
$z_R$	Rayleigh-Länge, Fokuserfernung bei der $I(r = 0, z = z_R) = \frac{1}{2}I_{max}$ ,
$w_0$	Radius an der engsten Stelle (waist).

Üblicherweise wird die z-Achse mit der Strahlenachse zusammengelegt und für die theoretischen Überlegungen soll dies auch so beibehalten werden. Wenn es hingegen um die Betrachtungen des Experiments geht, wird die Spektrometerachse die z-Richtung auszeichnen und der Laserstrahl propagiert entlang der x-Achse. In obiger Gleichung ist die gaußförmige Abhängigkeit der Intensität in der Ebene senkrecht zur Ausbreitungsrichtung zu erkennen, weshalb ein solcher Strahl auch als Gaußscher Strahl bezeichnet wird

$$I(r) = I_{max} \cdot \exp\left(\frac{-2r^2}{w^2}\right). \quad (4.5)$$

In dieser Gleichung taucht nun  $w$  als Radius (Parameter) des Strahles auf, bei dem die Intensität auf  $I = I_{max} \cdot e^{-2}$  gesunken ist, wobei die Variable  $r$  wieder die radiale Entfernung zur Strahlenachse beschreibt. Die Gleichung gilt für alle Bereiche entlang des Laserstrahles, auch für den unfokussierten frei propagierenden Laserstrahl. Wenn an diesen Stellen von Gaußschen Strahlen die Rede ist, so ist dies nicht zu verwechseln mit den zeitlich gaußförmigen Pulsen, die zu Beginn des Kapitels erwähnt worden sind (Gl. 4.2). Die hier aufgeführten Betrachtungen gelten sowohl für einen konstanten Laserstrahl als auch für einen gepulsten.

Zwischen dem Radius des unfokussierten Strahles  $w$  und dem des kleinstmöglichen im Fokus  $w_0$  besteht der Zusammenhang

$$w_0 = \frac{\lambda f}{\pi w}, \quad (4.6)$$

wobei  $\lambda$  die Wellenlänge des Lichtes und  $f$  die Brennweite der Linse oder des Hohlspiegels bedeutet. Für die bereits erwähnte Rayleigh-Länge gilt

$$z_R = \frac{\pi w_0^2}{\lambda} = \frac{\lambda}{\pi} \left(\frac{f}{w}\right)^2, \quad (4.7)$$

wobei  $w$  der Radius des Strahles vor der Fokussierung ist (das Verhältnis  $f/w$  wird auch als *f-number* bezeichnet).

Wird die Leistung  $P$  eines Laserpulses durch seine Energie  $E$  und zeitliche Länge  $\tau$  abgeschätzt

$$P [W] = \frac{E}{\tau} \left[\frac{J}{s}\right], \quad (4.8)$$

so gilt für die Maximalintensität

$$I_{max} = \frac{P}{\pi w_0^2} = \pi P \left(\frac{w}{\lambda f}\right)^2. \quad (4.9)$$

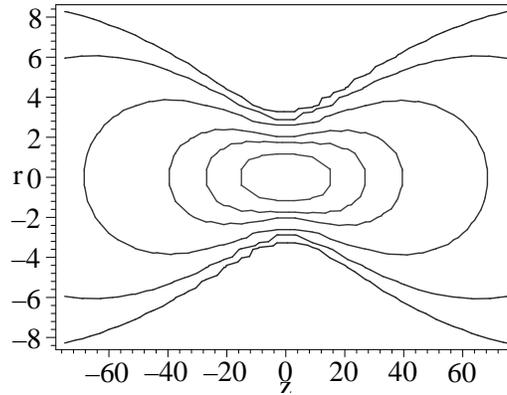
Gl. 4.4 kann nun weiter nach der Variablen

$$r = \sqrt{-\frac{w_0^2}{2} \left(1 + \frac{z^2}{z_R^2}\right) \ln\left(\frac{I}{I_{max}} \left(1 + \frac{z^2}{z_R^2}\right)\right)} \quad (4.10)$$

aufgelöst,  $I_{max}$  einmal fest gewählt und  $I$  als Parameter verwendet werden, so daß mit  $r(z)$  und  $-r(z)$  Iso-Intensitäten des Laserfokus berechnet werden können (Abb. 4.8).

Das durch eine Iso-Intensität begrenzte Volumen des Fokus berechnet sich dann gemäß

$$\begin{aligned} V &= \int \int 2\pi r dr dz = \int \pi r^2 dz \\ &= -\frac{\pi w_0^2}{2} \int \left(1 + \frac{z^2}{z_R^2}\right) \ln\left(\frac{I}{I_{max}} \left(1 + \frac{z^2}{z_R^2}\right)\right) dz. \end{aligned} \quad (4.11)$$



**Abb. 4.8.** Der Laserfokus mit  $I(r [\mu\text{m}], z [\mu\text{m}])$  bei  $f = 2 \text{ cm}$ ,  $\lambda = 800 \text{ nm}$ ,  $z_R = 16 \mu\text{m}$ ,  $I_{max} = 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  und  $w_0 = 2 \mu\text{m}$ . Die verschiedenen Linien beschreiben von innen angefangen Iso-Intensitäten von  $I_{max}/(2, 4, e^2, 20, 50, 100)$ .

In dieser, wie auch in den folgenden Gleichungen ist  $I$  ein gewählter Parameter und keine Variable mehr. Die Integrationsgrenzen folgen aus Gleichung 4.4 für  $I(r = 0, z)$  und lauten

$$z = z_R \sqrt{\frac{I_{max}}{I}} - 1. \quad (4.12)$$

Damit läßt sich die allgemeine Lösung für das Volumen innerhalb einer gewissen Intensität durch Ausführen der Integration berechnen

$$V = \pi w_0^2 z_R \left( \frac{4}{3} \beta + \frac{2}{9} \beta^3 - \frac{4}{3} \arctan \beta \right), \quad (4.13)$$

mit

$$\beta = \sqrt{\left( \frac{I_{max} - I}{I} \right)}. \quad (4.14)$$

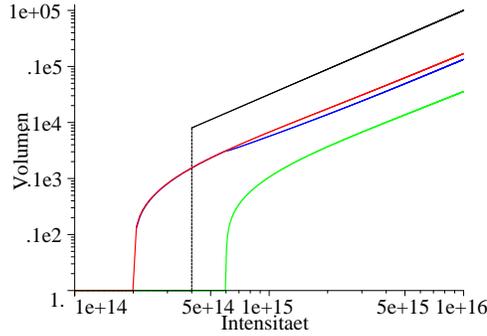
In Abbildung 4.9 ist das Volumen zweier solcher durch Iso-Intensitäten begrenzter Bereiche dargestellt, wobei jetzt die Maximalintensität  $I_{max}$  als Variable gewählt worden ist. Die rote Kurve beschreibt den Volumenzuwachs des durch  $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  begrenzten Intensitätsbereiches bei steigender Maximalintensität, das Volumen der grünen Funktion liegt innerhalb  $6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ .

Desweiteren kann noch die infinitesimale Änderung des Volumens abhängig von der Intensität betrachtet werden

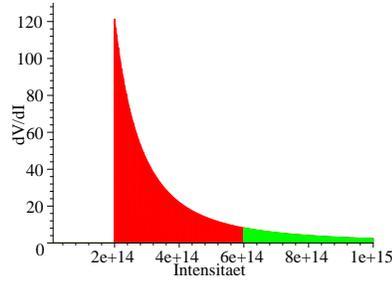
$$\frac{dV}{dI} = \frac{1}{3} \pi w_0^2 z_R (2I + I_{max}) (I_{max} - I)^{\frac{1}{2}} I^{-\frac{5}{2}}, \quad (4.15)$$

was in Abb. 4.10 grafisch dargestellt ist.

Wird nun eine Linse oder ein Hohlspiegel mit großer Brennweite betrachtet (z.B. 30 cm), so hat das zur Folge, daß die Iso-Intensitäten aus Abb. 4.8 stark in die Länge gezogen werden. Wird weiterhin aus diesem langgezogenen Fokus lediglich der mittlere Bereich betrachtet, was beispielsweise die Benutzung eines diesen Bereich kreuzenden dünnen Gas-Jets rechtfertigt, so können die gleichen Überlegungen wie oben unternommen werden, jedoch vereinfachen sich diese ausgesprochen,



**Abb. 4.9.** Das Volumen  $V$  [ $\mu\text{m}^3$ ] des durch  $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  (rot) und  $6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  (grün) begrenzten Laserfokus bei steigender Maximalintensität  $I$  [ $\text{W cm}^{-2}$ ], wobei wie gehabt  $z_R = 16 \mu\text{m}$  und  $w_0 = 2 \mu\text{m}$  gewählt worden ist. Die blaue Kurve ist die Differenz zwischen der roten und der grünen und beschreibt daher den Zuwachs des Volumens, in dem Intensitäten zwischen  $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  und  $6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  vorliegen. Die Funktion  $\sqrt{x^3}$  ist schwarz dargestellt (oberhalb  $4 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ). Sie stellt die Hauptabhängigkeit der Volumina für große Maximalintensitäten dar und resultiert aus dem  $\beta^3$ -Term in Gl. 4.13.



**Abb. 4.10.**  $dV [100 \mu\text{m}^3]/dI [10^{14} \text{ W cm}^{-2}]$  für  $I_{max} = 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  als Funktion der Intensität  $I$  [ $\text{W cm}^{-2}$ ]. Die Fläche unter der Kurve ist proportional zum fokalen Volumen eingeschlossen von der jeweiligen Intensität. Zu erkennen ist, daß das eingeschlossene Volumen der äußeren Schale (begrenzt durch  $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ , rote und grüne Fläche) wesentlich größer als das der inneren ( $I > 6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ , grüne Fläche) ist.

da die Abhängigkeit in  $z$ -Richtung vernachlässigt werden kann. Demnach gilt nach Gleichung 4.5 für die Iso-Intensitäten

$$r = \sqrt{-\frac{w_0^2}{2} \ln\left(\frac{I}{I_{max}}\right)} = \sqrt{\frac{w_0^2}{2} \ln\left(\frac{I_{max}}{I}\right)}. \quad (4.16)$$

Das Volumen ergibt sich einfach als

$$V = z \pi r^2 = z \pi \frac{w_0^2}{2} \ln\left(\frac{I_{max}}{I}\right), \quad (4.17)$$

und differentiell ausgedrückt

$$\frac{dV}{dI} = \frac{\pi z w_0^2}{2I}. \quad (4.18)$$

Abschließend soll noch der Einfluß dieser Intensitätsverteilungen auf den Ionen-ertrag betrachtet werden. Die Anzahl der ionisierten Teilchen pro Zeiteinheit  $Y$  (*yield*) ist abhängig vom Ionisationspotential der jeweiligen Teilchen, vom Volumen

und der Intensität in jedem Volumenelement. Er kann daher ausgedrückt werden als

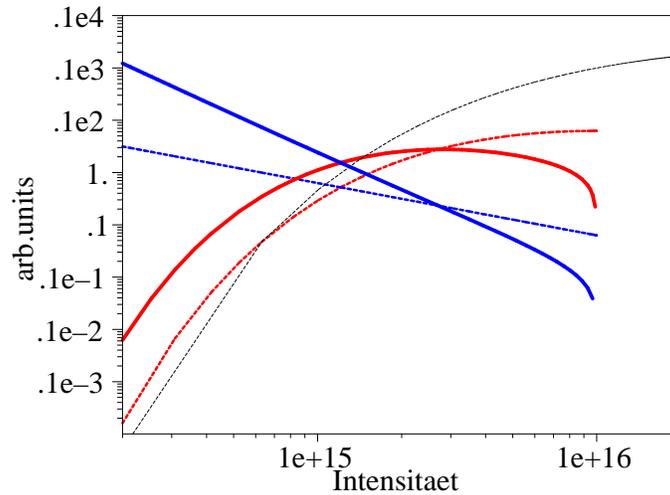
$$Y = \int w(I) \frac{dV}{dI} dI, \quad (4.19)$$

wobei  $w(I)$  einer Ionisationswahrscheinlichkeit entspricht, welche für bestimmte Intensitätsbereiche z.B. mit der ADK-Theorie abgeschätzt werden kann

$$w(I) \propto \frac{A}{\sqrt{I}} \exp\left(\frac{-B}{\sqrt{I}}\right), \quad (4.20)$$

mit den Parametern A und B.

Das Ergebnis ist in Abbildung 4.11 dargestellt. Die schwarze Kurve ist eine Abschätzung der Funktion  $w(I)$ , die beiden blauen Kurven stellen die Volumina pro Intensität dar, wobei die dicke durchgezogene Linie auf dem Modell mit der z-Abhängigkeit und die dünne gestrichelte auf dem der einfachen Zylindersymmetrie beruht. Die beiden roten Kurven beschreiben die Faltung aus der jeweiligen blauen mit der schwarzen Funktion und repräsentieren somit eine Funktion  $Y(I)$ .



**Abb. 4.11.**  $dV/dI$  für einen Fokus mit kleiner Brennweite (blau, dick, durchgezogen),  $dV/dI$  für einen Fokus mit großer Brennweite (blau, dünn, gestrichelt),  $w(I)$  (schwarz) und die jeweiligen Faltungen  $dV/dI \cdot w(I)$  (rot, gleiche Charakteristik wie  $dV/dI$  bei  $I_{max} = 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ ).

Zu erkennen ist, daß zwar mit steigender Intensität auch die Ionisationswahrscheinlichkeit zunimmt, daß dabei aber kleiner werdende Volumen der Ertragsrate in gewisser Weise entgegenwirkt. Die Vernachlässigung der z-Abhängigkeit (gestrichelte, dünne Kurven) verschiebt die Ertragsrate zu den hohen Intensitäten.

# Kapitel 5

## Analyse- und Meßmethoden

*Nichts hat der Mensch in sich  
so sehr zu bezähmen als seine Einbildungskraft,  
die beweglichste und zugleich die gefährlichste  
aller menschlichen Gemütsgaben.*

J. G. Herder

Gemessen wird mit der beschriebenen COLTRIMS-Apparatur, wobei zur Datenaufnahme das Programm XSYS (auf VAX-Computersystemen) benutzt worden ist. Die spätere Datenanalyse erfolgte mit der Software PAW. Es sind über einen längeren Zeitraum verschiedene Meßreihen durchgeführt worden, die unterschiedliche Versuchsbedingungen aufwiesen. So variieren beispielsweise das Extraktionsfeld, die Strahlenführung des Lasers oder die Qualität des Vakuums (besonders nach Hinzufügen der Getter-Pumpe), um einige Beispiele zu nennen. Es ist daher besonders darauf zu achten, daß eine kalibrierte Meßapparatur zur Verfügung steht, bevor Daten aufgenommen werden. Dabei besteht ein Vorteil der COLTRIMS darin, daß gewisse Kalibrationen aus den Messungen selber gewonnen werden können. Welche Anstrengungen im einzelnen unternommen werden müssen, soll in den nächsten Abschnitten aufgezeigt werden.

### 5.1 Flugzeiten

Der Datensatz einer COLTRIMS-Meßreihe besteht, einmal abgesehen vom zur Laserenergie proportionalen Photodiodensignal, ausschließlich aus Zeiten. Aus diesen gilt es dann, die Impulse eines jeden detektierten Ions zu berechnen. In Abbildung 5.1 und 5.2 sind zwei Flugzeitspektren dargestellt, deren Abszissen in Einheiten von Kanälen (*Channel*) angegeben sind, wobei die Ordinaten die registrierte Häufigkeit der entsprechenden Flugzeiten über den gemessenen Zeitraum repräsentieren. Um die Kanäle in echte Flugzeiten zu konvertieren, also in die Zeiträume zwischen einer Ionisation und dem Auftreffen auf das MCP, kann die Information über Teilchen, die identifizierte Maxima erzeugen, herangezogen werden. So sind beispielsweise im Flugzeitspektrum Abb. 5.1 die einfach ionisierten Moleküle  $\text{H}_2^+$ ,  $\text{N}_2^+$  und  $\text{O}_2^+$  sowie doppelionisierter Stick- und Sauerstoff identifiziert worden. Außerdem ist der in Abb. 5.2 markierte Mittelpunkt des Protonenspektrums, welches aus der Coulomb-Explosion von Wasserstoff resultiert, als weiterer Koordinatenpunkt ( $\text{H}^+$ ) herangezogen worden, da für diesen die Protonen keine z-Komponente der Anfangsgeschwindigkeit aufweisen und in Detektorrichtung wie nichtexplodierende Moleküle von null beschleunigt werden.

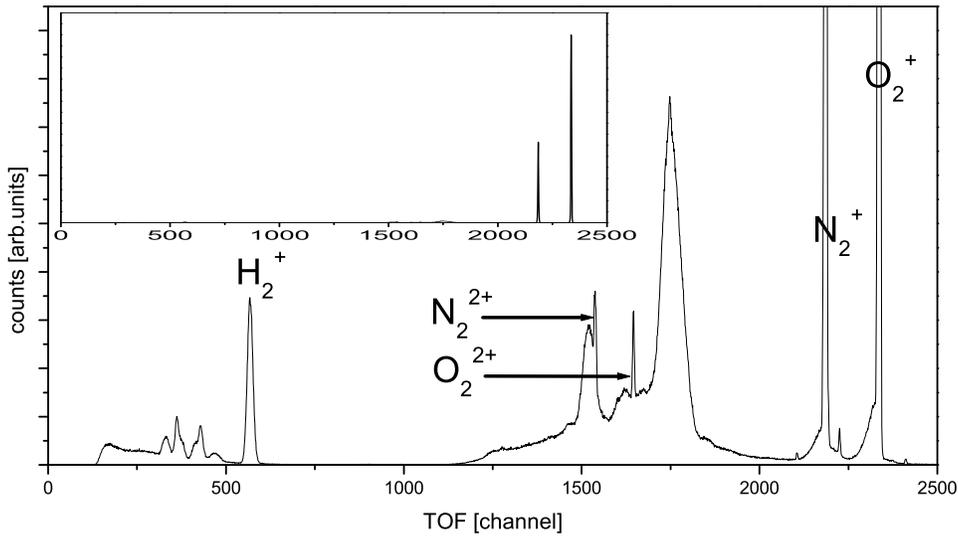


Abb. 5.1. Flugzeitspektrum mit einem Gasgemisch aus  $N_2$  und  $O_2$  als Jet-Target

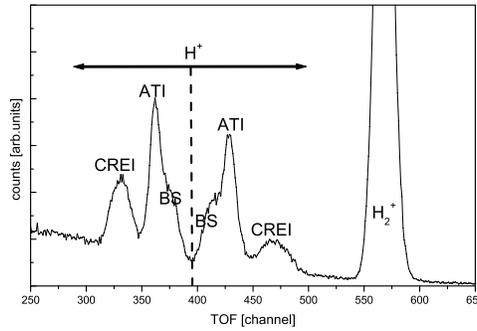


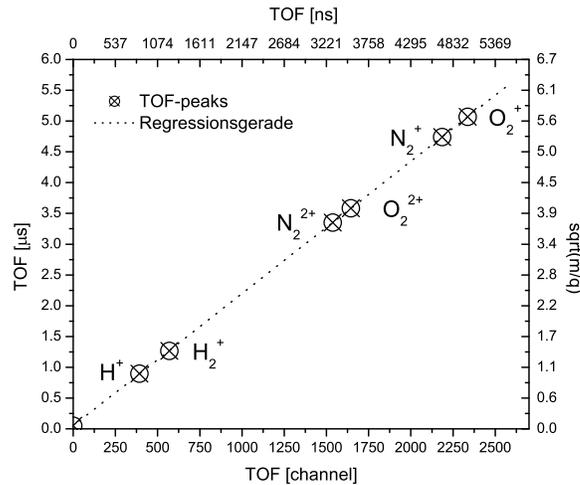
Abb. 5.2. Zoom aus Abb. 5.1 auf das  $H_2$ -Flugzeitspektrum des Restgases und seine Fragmente.

Da im Gegensatz zu ihren Fragmenten ionisierte Moleküle praktisch keinen Anfangsimpuls und damit keine Startgeschwindigkeit ( $v_0$ ) aufweisen, gilt für ihre Flugzeiten (nach Gleichung 3.3 und 3.2)

$$t = \sqrt{\frac{2D_0 m}{E q}}. \quad (5.1)$$

Neben dem elektrischen Feld  $E$  und der Flugstrecke  $D_0$  als feste Parameter bestimmt das Masse-Ladungs-Verhältnis die teilchencharakteristische Flugzeit.

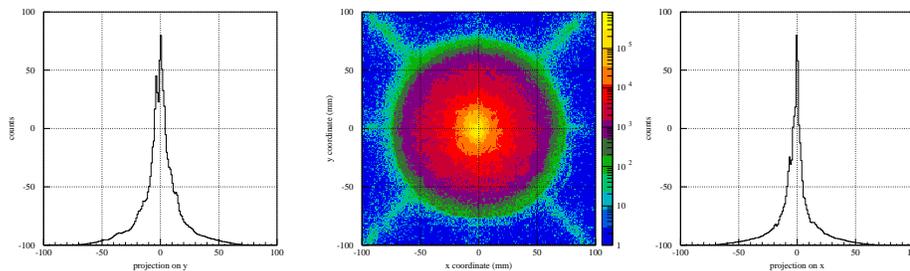
Der Regressionsgeraden zur Folge beträgt der y-Achsenabschnitt 50 ns mit einem Fehler von 2 ns. Er repräsentiert den tatsächlichen Ionisationszeitpunkt, welcher zunächst nicht direkt bekannt ist, da das Signal der Photodiode zu einer unbestimmten Zeit erzeugt wurde und durch Kabel und Elektronik verzögert wird. Es läßt sich weiterhin aus der Steigung der Geraden entweder die Flugstrecke oder die elektrische Feldstärke berechnen, wenn einer der beiden Parameter hinreichend bekannt ist. Die Kalibrierung des Feldes wird allerdings später mit Hilfe des zweidimensionalen Flugzeitspektrums, bei dem die Flugzeit des ersten gegen die des zweiten detektierten Teilchens aufgetragen wird (Pipico-Spektrum), durchgeführt.



**Abb. 5.3.** Ausgleichsgerade zur Konvertierung von Kanälen in Sekunden. Die Datenpunkte entsprechen den bestimmten Flugzeitmaxima aus Abb. 5.1 und Abb. 5.2. Auf der rechten Ordinate ist die Wurzel des Massen-Ladungs-Verhältnisses aufgetragen, welches für die Protonen gerade 1 und für  $O_2^{2+}$  genau 4 ist.

## 5.2 Ortsspektrum

Auch die beiden Ortskomponenten bedürfen einer Kalibration, um ein korrektes Berechnen eines kompletten Teilchenimpulses zu gewährleisten. Neben der Konversion von Nanosekunden in Millimeter, die durch den Vergleich der zeitlichen Größe des Detektors mit seinen realen Dimensionen erzielt werden kann, ist für die Analyse der Daten der jeweilige Ortsnullpunkt zu bestimmen. Dabei ist die Abweichung der detektierten Teilchen von der Detektormitte zu ermitteln. Die gefundenen Werte in x- und y-Richtung können bei der weiteren Auswertung in den Programmroutinen berücksichtigt werden, so daß ein Teilchen ohne Anfangsimpuls genau in der virtuellen Detektormitte landet. Da die Teilchen einen merklichen Impuls durch ihre Geschwindigkeit in der Jet-Propagation aufweisen, hängt es unter anderem von ihrer Flugzeit ab, wie weit entfernt sie von der Projektion des Fokus auf den Detektor landen und es bildet sich eine symmetrische Verteilung um den verschobenen Ortsnullpunkt. Doppelionisierte Ionen haben dadurch einen anderen Ortsnullpunkt als beispielsweise einfach ionisierte Teilchen. In Abbildung 5.4 ist eine Ortsverteilung detektierter Teilchen auf dem Detektor zu sehen, sowie deren Projektion auf die beiden Koordinatenachsen, in denen jeweils zwei Maxima zu erkennen sind, welche



**Abb. 5.4.** Beispiel eines Detektorbildes bei sehr hoher Ionisationsrate, mit den Projektionen auf die x-Achse (rechts) und auf die y-Achse (links).

der einfachen beziehungsweise der doppelten Ionisation von Sauerstoff entsprechen. Die jeweiligen Maxima können helfen, den Ortsnullpunkt zu bestimmen.

## 5.3 Datenaufbereitung

Mit kalibrierten Daten kann die Aufbereitung zur Analyse der Datensätze beginnen. Dabei sollen zunächst noch einmal die Flugzeiten im *Photo-Ion-Photo-Ion-Coincidence*-Spektrum (Pipico-Spektrum) genauer betrachtet werden, bevor die Impulse und Energien der gemessenen Teilchen berechnet werden.

### 5.3.1 Pipico-Spektrum

Für ein Paar Coulomb-explodierender Ionen gilt nach der Trajektoriengleichung  $x(t) = v_0 t + \frac{a}{2} t^2$ , mit den Flugzeiten  $t_{1,2}$ , den Massen  $m_{1,2}$  und den Ladungen  $q_{1,2}$ , sowie der Entfernung zum Detektor  $D_0$  folgende Beziehung

$$D_0 = v_0 t_1 + \frac{E}{2} \frac{q_1}{m_1} t_1^2 = -v_0 t_2 + \frac{E}{2} \frac{q_2}{m_2} t_2^2, \quad (5.2)$$

mit der Beschleunigung  $a = \frac{qE}{m}$  durch das elektrische Feld  $E$ . Die beiden Teilchen starten dabei mit derselben Anfangsgeschwindigkeit  $v_0$  in entgegengesetzter Richtung. Wird die Gleichung für das erste Teilchen mit  $\frac{m_1}{t_1}$  und die zweite mit  $\frac{m_2}{t_2}$  multipliziert, so kann der jeweilige Impuls wie folgt dargestellt werden

$$\begin{aligned} p_1 &= D_0 \frac{m_1}{t_1} - \frac{E}{2} q_1 t_1 \\ p_2 = -p_1 &= D_0 \frac{m_2}{t_2} - \frac{E}{2} q_2 t_2. \end{aligned} \quad (5.3)$$

Durch Addition der beiden Gleichungen und Multiplikation mit  $2 t_1 t_2$  resultiert

$$0 = 2 D_0 m_1 t_2 + 2 D_0 m_2 t_1 - E q_1 t_1^2 t_2 - E q_2 t_2^2 t_1, \quad (5.4)$$

oder umgeschrieben als quadratische Gleichung für  $t_2$

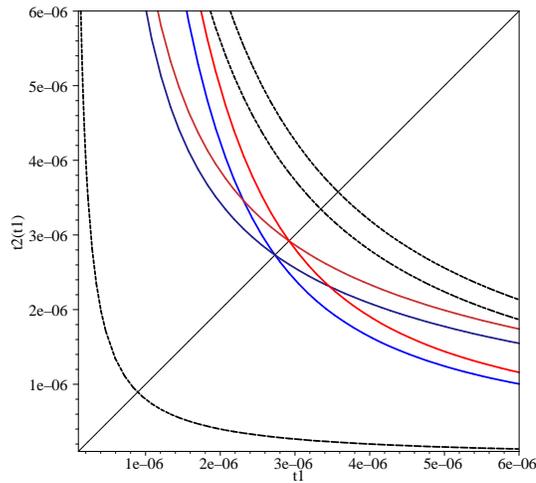
$$t_2^2 + \left( \frac{E q_1 t_1^2 - 2 D_0 m_1}{E q_2 t_1} \right) t_2 - \frac{2 D_0 m_2}{E q_2} = 0. \quad (5.5)$$

Die Lösung dieser quadratischen Gleichung ergibt für  $t_2$  eine hyperbolische Funktion in Abhängigkeit von der Variablen  $t_1$ , wobei die beiden Massen und Ladungen der Teilchen als Parameter einzusetzen sind (siehe Abb. 5.5)

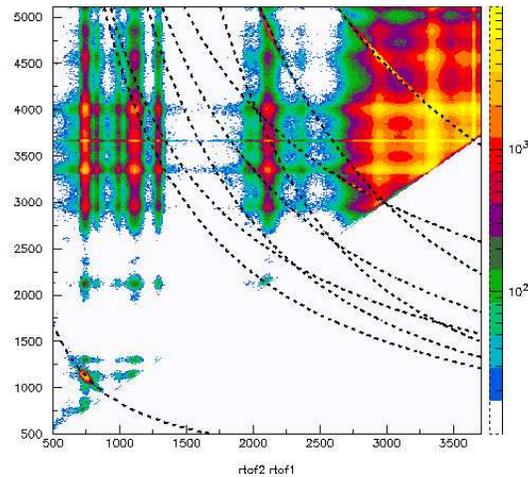
$$t_2 = \frac{2 D_0 m_1 - E q_1 t_1^2}{2 E q_2 t_1} + \sqrt{\left( \frac{2 D_0 m_1 - E q_1 t_1^2}{2 E q_2 t_1} \right)^2 + \frac{2 D_0 m_2}{E q_2}}. \quad (5.6)$$

Durch den Vergleich der experimentellen Daten mit diesen theoretischen Kurven kann beispielsweise das elektrische Feld kalibriert werden, falls die Entfernung vom Fokus zum Detektor hinreichend bekannt ist. Darüberhinaus ist leicht zu erkennen, wie weit ein Target ionisiert worden ist, wenn beispielsweise die verschiedenen Koinzidenzkurven im einzelnen vergrößert betrachtet werden, und es lassen sich Bedingungen oder Fenster (gates) auf die Umgebung einer berechneten Kurve definieren, so daß die weitere Analyse weitgehend frei von zufälligen Koinzidenzen bleibt.

Abbildung 5.6 zeigt ein Pipico-Spektrum bei relativ hohen Ereigniszahlen pro Puls (ca. 5 bis 6) und beinhaltet daher auch relativ viele zufällige Koinzidenzen. Bei



**Abb. 5.5.** Berechnete Koinzidenzkurven der Flugzeit  $t_1$  [s] und  $t_2$  [s] zweier Coulomb-explodierender Ionen. Die schwarzen Hyperbeln resultieren aus  $H^+ + H^+$ ,  $N^+ + N^+$  und  $O^+ + O^+$  (von links unten angefangen); die Kombination von  $O^{2+} + O^+$  bzw.  $O^+ + O^{2+}$  ergeben die roten Kurven und die blauen stehen für  $N^{2+} + N^+$  bzw.  $N^+ + N^{2+}$ .



**Abb. 5.6.** Die Flugzeit  $t_2$  [ $\mu\text{m}$ ], aufgetragen gegen die Flugzeit  $t_1$  [ $\mu\text{m}$ ] (Pipico-Spektrum) von Sauerstoff bei einem 35 fs langen Puls mit  $6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  Maximalintensität. Überlagert sind die berechneten Koinzidenzkurven der Kombinationen (von links unten nach rechts oben)  $H^+ + H^+$  (aus Restgas),  $O^{3+} + O^{3+}$ ,  $O^{3+} + O^{2+}$ ,  $O^{2+} + O^{3+}$ ,  $O^{2+} + O^{2+}$ ,  $O^+ + O^{3+}$ ,  $O^{2+} + O^+$ ,  $O^+ + O^{2+}$  und  $O^+ + O^+$ .

den späteren Experimenten ist jedoch auf wesentlich niedrigere Zählraten zurückgegriffen worden, so daß keine aufwendige Rekonstruktion sich vermischender Treffersignale erforderlich ist und über die Bedingung einer konstanten Zeitsumme, der jeweils zu einer Richtung gehörenden Positionssignale der zwei ersten Treffer, Coulomb-Explosionen rekonstruiert werden können (weitere Einzelheiten auch in Kapitel 7.2).

### 5.3.2 Energie und Impuls

Um den Impuls eines detektierten Teilchens zu berechnen, wird noch einmal von der Bewegungsgleichung  $r(t) = r_0 + v_0 t + \frac{1}{2} a t^2$  ausgegangen. Für die jeweiligen Komponenten gilt im einzelnen

$$x(t) = \frac{p_{0x}}{m} t \quad (5.7)$$

$$y(t) = \frac{p_{0y}}{m} t \quad (5.8)$$

$$z(t) = \frac{p_{0z}}{m} t + D_0 - \frac{q E}{2m} t^2 \quad (5.9)$$

Wie gehabt bedeutet dabei  $D_0$  die Distanz vom Fokus zum Detektor und  $a = \frac{qE}{m}$  die Beschleunigung, welche entlang der Spektrometerachse ( $z$ -Richtung) wirksam ist. Sie setzt sich aus der elektrischen Feldstärke  $E$ , der Ladung  $q$  und der Masse  $m$  zusammen. Aufgelöst nach den Impulskomponenten folgt zum Zeitpunkt  $t_1$  (Gl. 3.3) des Auftreffens eines Teilchens auf den Detektor ( $z = 0$ )

$$p_{0x} = m \frac{x(t_1)}{t_1} \quad (5.10)$$

$$p_{0y} = m \frac{y(t_1)}{t_1} \quad (5.11)$$

$$p_{0z} = \underbrace{m \frac{z(t_1)}{t_1}}_{=0} - m \frac{D_0}{t_1} + \frac{q E}{2} t_1. \quad (5.12)$$

Die Energie berechnet sich dann gemäß  $E = \frac{p^2}{2m}$ , bzw. folgt für die oft verwendete Energiesumme

$$E_{tot} = E_1 + E_2 = \frac{1}{2m} (\vec{p}_1^2 + \vec{p}_2^2). \quad (5.13)$$

### 5.3.3 Winkelverteilungen

Bei den winkelabhängigen Darstellungen wird der Einfachheit halber zuerst der Cosinus des Winkels  $\theta$  (siehe Abb. 5.7) berechnet durch

$$\cos \theta = \frac{p_z}{p}. \quad (5.14)$$

Eine Verteilung im Impulsraum wird folglich auf die Achse der Einheitskugel projiziert, wobei lediglich der erste Quadrant berechnet und anschließend gespiegelt wird, da aufgrund des Impulserhalts beide Kugelhälften einander entsprechen. Zusätzlich kann dann beispielsweise die Energie gegen diese Projektionen aufgetragen werden, so daß ein zweidimensionales Diagramm entsteht, in welchem die verschiedenen Winkelabhängigkeiten ihren Energien und dadurch ihren unterschiedlichen Entstehungsprozessen zugeordnet werden.

Weiterhin kann aus Häufigkeitsverteilungen bzgl. des Cosinus für bestimmte Energiebereiche der Winkel  $\theta$  selbst berechnet und die entsprechende Häufigkeitsverteilung in einem Polarkoordinatensystem doppelt gespiegelt dargestellt werden. Eine andere Möglichkeit besteht in der Verwendung von beispielsweise Kugelkoordinaten und einer damit verbundenen echten dreidimensionalen Darstellung, bei der die Symmetrie bezüglich des Winkels  $\phi$  nicht angenommen werden muß. Ein Nachteil solcher 3D-Analysen besteht in der wesentlich größeren Kanalanzahl bei gleicher Winkelauflösung von Raumwinkeln gegenüber Projektionen und den damit verbundenen Reduzierungen der Dimensionalität. Es bedarf demnach einer hohen Zahl an

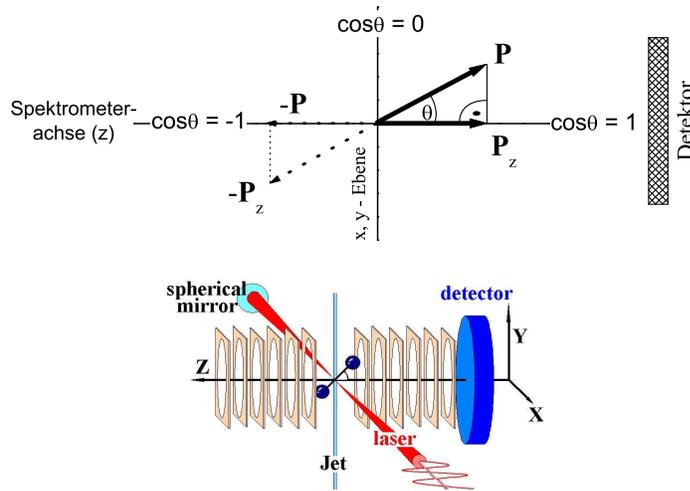


Abb. 5.7. Skizze der Geometrie

gemessenen Ereignissen, um 3D-Darstellungen mit ausreichender Winkelauflösung und hinreichend guter Statistik gewinnen zu können.

Wird eine als Kugeloberfläche genäherte Kugelschale mit bestimmtem Radius (-bereich) im dreidimensionalen Impulsraum betrachtet, so erinnert die Darstellung einer Häufigkeitsverteilung auf dieser an ein altbekanntes Problem: Die Kartierung der Erde und die damit verbundene Schwierigkeit, eine Kugeloberfläche auf einem Blatt Papier adäquat wiederzugeben. Aufgrund des  $\phi$ -Symmetrievorteils (unter korrekten Bedingungen) in diesen Versuchen kann, im Gegensatz zur Erdkartierung, problemlos auf Projektionen zurückgegriffen werden, die zwar ein wenig von der Qualität einer COLTRIMS-Methode verspielen, dadurch aber ungemein kürzere Meßzeiten erlauben.

## 5.4 Bestimmung der Intensität

Die Angabe der Maximalintensität für durchgeführte Versuche ist unablässlich, da diese den gemeinsamen Nenner darstellt und so den Vergleich zu anderen, unter den verschiedensten Bedingungen durchgeführten Experimenten erlaubt. Andere Parameter, wie beispielsweise die Pulslänge, sind ebenfalls von großer Bedeutung, werden verschiedene Experimente und deren Resultate miteinander verglichen.

Verschiedene Methoden sind zur ständigen Bestimmung der Intensität verwendet worden. Bei der anfänglichen Strahlenführung des Lasers ist ein Strahlteiler verwendet worden, der stets zehn Prozent der Laserenergie durch einen weiteren Filtersatz auf die Photodiode lenkt. Ist dann einmal die Photodiode kalibriert und der Strahlengang bleibt unverändert, kann die Spannung der Photodiode zur Intensitätsbestimmung benutzt werden. Nach der Einführung der kurzen Pulse (8 fs) ist darauf jedoch verzichtet worden, da sich der Puls durch jedes Passieren eines Mediums verändert. Stattdessen ist die Leistung mit einem Powermeter ermittelt worden, welches zum Messen in den Strahlengang eingefügt worden ist und so den kompletten Laserstrahl kurz vor Eintreten in die Vakuumkammer absorbiert. Die dabei aufgenommene Energie erwärmt einen *thermopile* und liefert eine zur Temperatur äquivalente Spannung (Peltier-Effekt). Auch hier muß eine Kalibration vor jeder neuen Meßreihe, oder zwischendurch bei Messungen, die über mehrere Tage gehen, durchgeführt werden. Dazu wird die Intensität mit Hilfe der Impulsverteilung

einfach ionisierter Wasserstoffmoleküle bei zirkular polarisiertem Licht bestimmt, worauf an dieser Stelle näher eingegangen werden soll.

Für linear polarisiertes Licht gilt für das E-Feld in Richtung der z-Achse (Spektrometerachse)

$$E = E_0 z \sin(\omega t). \quad (5.15)$$

Die Geschwindigkeit, die ein ionisiertes Elektron aufweist, kann mit  $F = ma$ , oder anders ausgedrückt  $m \frac{dv}{dt} = qE$ , abgeschätzt werden. In atomaren Einheiten ausgedrückt, folgt daraus  $dv = -E dt$  und integriert

$$v_{z,\infty} - v_{z,0} = \left[ \frac{-E_0}{\omega} \cos(\omega t) \right]_{t_0}^{\infty}. \quad (5.16)$$

Hier beschreibt  $v_{z,0}$  die Geschwindigkeit des Elektrons in z-Richtung zum Zeitpunkt  $t_0 = 0$ , was dem Verlassen der effektiven Potentialbarriere entspricht. Es kann angenommen werden, daß diese Geschwindigkeit gleich Null ist, da bei einer Tunnelionisation das Elektron ohne nennenswerte kinetische Energie jenseits der Potentialbarriere auftaucht. Ist das elektrische Feld zum Ionisationszeitpunkt  $t_0$  maximal, so gilt für seine Phase  $\omega = n\frac{\pi}{2}$  mit  $n = 0, 1, 2, 3, \dots$  womit der Cosinus zum selben Zeitpunkt Null wird, so daß die Elektronen für diesen Fall auch keine Driftgeschwindigkeit  $v_{z,0}$  in Detektorrichtung erhalten.

Im Falle von zirkular polarisiertem Licht in der y,z-Ebene hingegen gilt

$$E = E_0 (y \cos(\omega t) + z \sin(\omega t)) \quad (5.17)$$

und somit für die Geschwindigkeiten

$$v_{y,\infty} = \left[ \frac{-E_0}{\omega} \sin(\omega t) \right]_{t_0}^{\infty} = \frac{-E_0}{\omega} \sin(\omega t_0) \quad (5.18)$$

$$v_{z,\infty} = \left[ \frac{-E_0}{\omega} \cos(\omega t) \right]_{t_0}^{\infty} = \frac{-E_0}{\omega} \cos(\omega t_0). \quad (5.19)$$

Der Betrag der Geschwindigkeit ist

$$v = \sqrt{v_y^2 + v_z^2} = \frac{E_0}{\omega}, \quad (5.20)$$

und somit ist der Impuls der Elektronen, und aufgrund der Impulserhaltung auch der Betrag des Impulses  $p$  der Ionen, proportional zu  $E_0$  und damit auch zu  $\sqrt{I_{max}}$ . Es gilt

$$I = \omega^2 p^2. \quad (5.21)$$

Im Experiment wird der Ionenertrag  $Y$  für verschiedene Impulse  $\vec{p}$  gemessen, welcher wiederum von der Intensität abhängig ist

$$\frac{dY}{dp} = \frac{dY}{dI} \frac{dI}{dp}. \quad (5.22)$$

Mit Gleichung 5.21 folgt daraus

$$\frac{dY}{dp} = 2\omega^2 p \frac{dY}{dI}. \quad (5.23)$$

Anhand der Kenntnisse über den Laserfokus und der Ionisationsrate aus Kapitel 4, Gleichung 4.15 und 4.20, kann auch  $\frac{dY}{dI}$  abgeschätzt werden

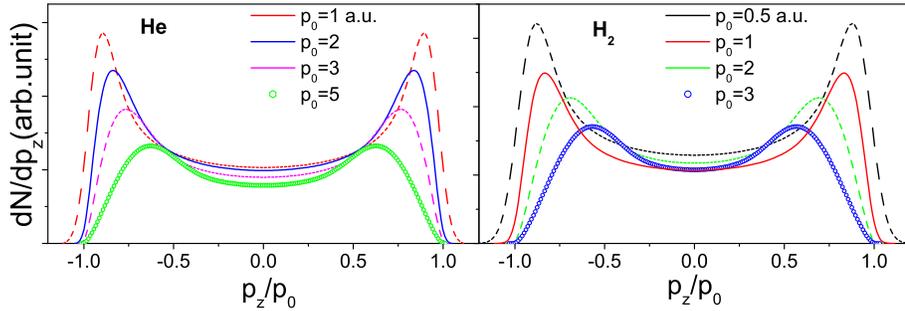
$$\frac{dY}{dI} = \frac{b}{I^3} (2I + I_{max}) (I_{max} - I)^{\frac{1}{2}} \exp\left(\frac{-B}{\sqrt{I}}\right), \quad (5.24)$$

wobei die Konstante  $b$  aus  $A \frac{1}{3} \pi w_0^2 z_R$  zusammengesetzt ist.

Da beim experimentellen Aufbau lediglich die  $z$ -Richtung, entlang der Spektrometerachse, und die  $x$ -Richtung, entlang welcher der Laser propagiert, des Targets hinreichend kalt sind ( $< 0.05$  K), die zirkulare Polarisation aber in der  $y,z$ -Ebene liegt, wobei die  $y$ -Achse mit der Ausbreitungsrichtung des Gas-Jets zusammenfällt, und in dieser das Target wesentlich wärmer ist als in seinen senkrechten Komponenten (27 K), kann letztendlich lediglich die Flugzeit zur Bestimmung der Intensität herangezogen werden. Für diese gilt dann für den zu erwartenden Ionenertrag

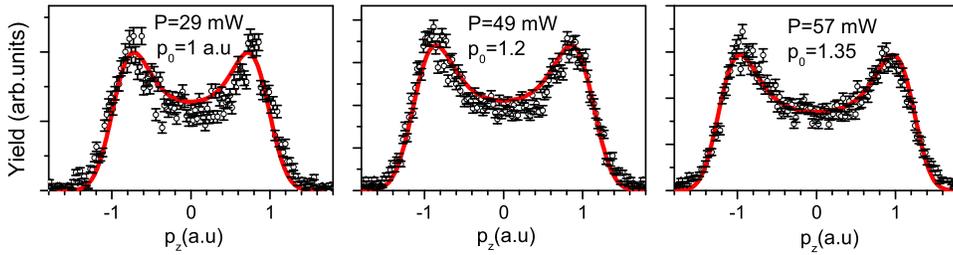
$$\frac{dY}{dp_z} = \frac{1}{2\pi} \int_0^{\sqrt{p_0^2 - p_z^2}} \frac{1}{p} \frac{dY}{dp} dp, \quad (5.25)$$

wobei die Funktion  $\frac{dY}{dp}$  durch Substitution von  $I = \omega^2 p^2$  in Gleichung 5.24 erhalten werden kann. Der Maximalimpuls  $p_0$  ist dabei lediglich von der Maximalintensität abhängig.



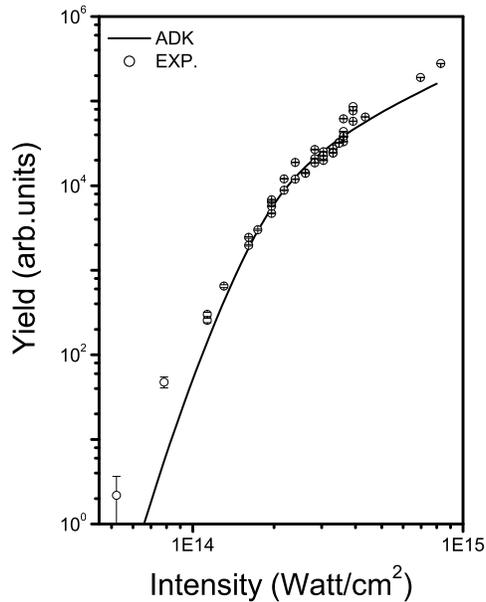
**Abb. 5.8.**  $\frac{dN}{dp_z}$  für  $H_2$  und  $He$ , berechnet nach Gleichung 5.25. Der Impuls, bei welchem die Ertragsrate maximal ist, ist abhängig vom Ionisationspotential.

In Abbildung 5.8 sind Beispiele dieser berechneten Funktion für Wasserstoff und Helium mit  $p_0$  als Parameter dargestellt. Zu erkennen ist, daß bei größerem Gesamtimpuls und folglich bei höheren Maximalintensitäten der Impuls in  $z$ -Richtung des maximalen Ertrages geringer wird. Bei steigender Maximalintensität rücken die beiden Maxima dichter zusammen, was auf die kleiner werdenden Volumenelemente größerer Intensitäten zurückzuführen ist (siehe auch Abb. 4.11). Bei weiter steigender Maximalintensität wird irgendwann der Annäherungsprozeß der Maxima zum Stillstand kommen, da bereits alle Einfachionisationen auf der Flanke der wachsenden Intensität eines Laserpulses und somit vor dem Erreichen der Maximalintensität stattfinden. Der Vergleich zwischen Wasserstoff und Helium in Abbildung 5.8 zeigt, daß diese Sättigung vom Ionisationspotential des Targets abhängig ist. Folglich ist diese Kalibrationsmethode, abhängig vom verwendeten Gas, auch nur innerhalb bestimmter Intensitätsbereiche anwendbar. Darüber hinausgehende Intensitäten können aber wie beschrieben mit den nach dieser Methode kalibrierten Instrumenten wie Photodiode oder Powermeter bestimmt werden. Abbildung 5.9 zeigt  $H_2^+$ -Impulsspektren bei zirkularer Polarisation für unterschiedliche Intensitäten, an welche die hergeleitete Formel 5.25 angepaßt worden ist.



**Abb. 5.9.** Zur Bestimmung der Intensität werden die experimentell gewonnenen Daten mit der Theorie verglichen.

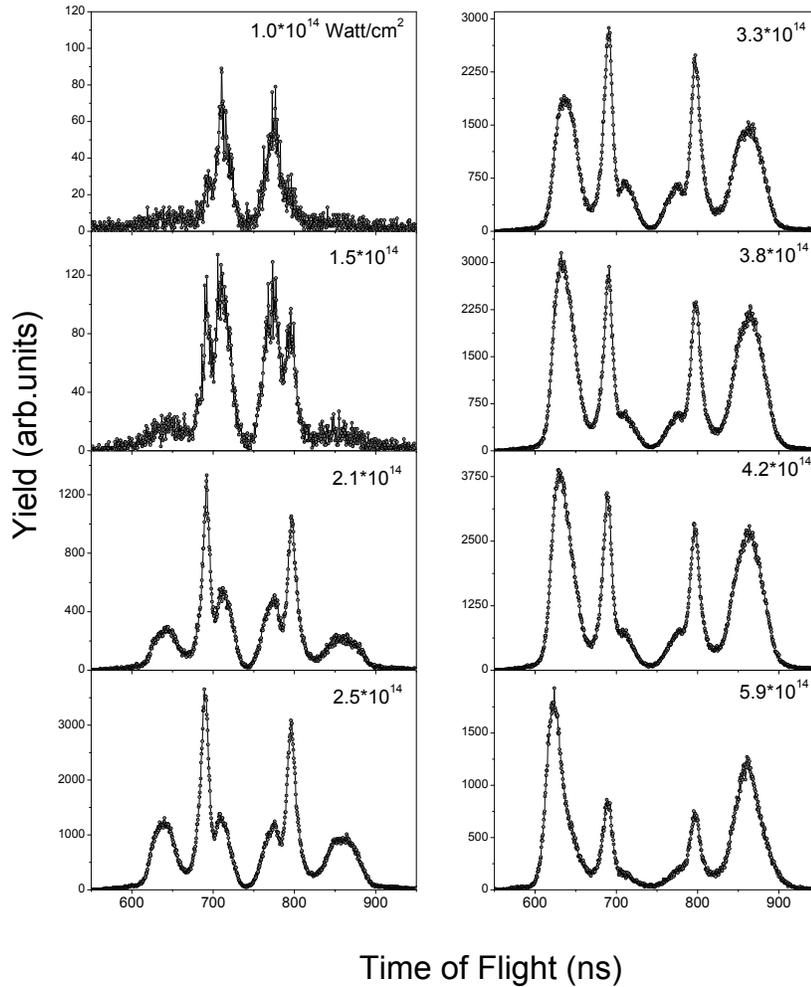
Eine weitere Möglichkeit zur Bestimmung der Maximalintensität bietet die Messung der Ionisationsrate ein- oder mehrfachionisierter Atome oder Moleküle. Um dabei einen ausreichend großen Intensitätsbereich abdecken zu können, ist für niedrige Intensitäten die Targetdichte durch Fluten der Kammer erhöht worden, um der sinkenden Ionisationsrate entgegenzuwirken. Die so ermittelte Ionisationsrate wird dann mit der theoretisch vorhergesagten aus der ADK-Theorie, welche sich für Intensitätsbereiche des Tunnelregimes gut bewährt hat, verglichen. Abbildung 5.10 zeigt eine solche Meßreihe mit angepaßter ADK-Funktion.



**Abb. 5.10.** Ionisationsrate für  $\text{H}_2^+$  als Funktion der Maximalintensität. Durch den Vergleich der experimentell gewonnenen Daten mit Berechnungen des Tunnelionisations-Modells kann ebenfalls die Maximalintensität bestimmt werden.

Außer den genannten Methoden kann zudem auch das Flugzeitspektrum der aus  $\text{H}_2$ -Fragmentation resultierenden Protonen betrachtet werden (siehe Abb. 5.11). Die verschiedenen und im Falle des Wasserstoffs auch gut verstandenen Doppelionisationsmechanismen liefern dabei ein äußerst intensitätssensitives charakteristisches Bild des Flugzeitspektrums. Der große Vorteil hierbei besteht darin, daß  $\text{H}_2$  in jedem Flugzeitspektrum aufgrund der Restgaszusammensetzung vertreten ist und ein geschultes Auge auf diese Weise schnell die Intensität abschätzen kann. Vorsicht ist geboten, sollte beispielsweise der Fokus knapp außerhalb des Gas-Jets liegen, da

somit die Maximalintensität für Wasserstoff aus dem Restgas eine andere ist als die maximale Intensität im Jet. Zur quantitativeren Intensitätsbestimmung können die Flächen unter den den verschiedenen Ionisationsmechanismen zugeordneten Maxima ermittelt, sowie deren Verhältnisse zueinander verglichen werden.



**Abb. 5.11.** Flugzeitspektren der Protonen aus Coulomb-explodierendem Wasserstoff für unterschiedliche Laserintensitäten. Die relativen Häufigkeiten der verschiedenen Reaktionskanäle können zur Bestimmung der maximalen Laserintensität herangezogen werden. Im Bild jeweils oben rechts ist die entsprechende Maximalintensität in  $\text{W cm}^{-2}$  angegeben.

Generell ist es einfacher mit den jeweils verschiedenen Methoden relative Intensitäten zu messen und dadurch beispielsweise eine Intensitätsverdopplung zu erreichen, als die absolute Intensität zu bestimmen. Neben einer einfachen und wenig genauen Berechnung der Intensität nach Gleichung 4.9, die eine Vermessung des Fokus mit einer CCD-Kamera einbeziehen kann, bietet die experimentelle Bestimmung von Ionisationsraten und der Vergleich mit den entsprechenden ADK-Funktionen eine für verschiedenen Experimente zugängliche Möglichkeit zur absoluten Intensitätsbestimmung. Liefert eigentlich die Methode der Impulsverteilung einfach ionisierter Wasserstoffmoleküle Genauigkeiten bei der Intensitätsbestimmung von wenigen Prozent, können sich zuweilen die absoluten Werte verglichen zu anderen Experimenten doch noch um einen Faktor zwei unterscheiden (Einzelheiten [2]).



# Kapitel 6

## Meßergebnisse

*Der Blick des Forschers  
fand nicht selten mehr,  
als er zu finden wünschte.*

G. E. Lessing

Bevor näher auf die Orientierungseffekte bei der Doppelionisation von kleinen Molekülen eingegangen wird, soll zuvor versucht werden, in den Meßdaten verschiedene Ionisationsprozesse zu identifizieren. Eine Schwierigkeit bei der Interpretation der Meßergebnisse dieser Versuchsreihe besteht darin, daß lediglich Coulomb-explodierende Fragmente von doppelionisierten Molekülen untersucht wurden. Der Weg vom neutralen Molekül im Grundzustand zum zweifach ionisierten Molekül im angeregten Zustand ist zunächst unbekannt. Zu erwarten sind verschiedene Wege, die jeweils aus mehreren Prozessen bestehen, da auf alle Fälle zwei Elektronen ionisiert werden müssen. Um eine Brücke vom Experiment zu den theoretischen Betrachtungen aus Kapitel 2 zu schlagen, werden zunächst Messungen am Wasserstoffmolekül präsentiert, da dieser einfachste Vertreter aller Moleküle in der Vergangenheit bereits viel untersucht worden ist und verschiedene Modelle aufgezeigt worden sind. Einen, wenn auch nicht immer eindeutigen, Fingerabdruck der gemessenen Reaktionen hinterläßt beispielsweise das Energiespektrum (KER-Spektrum, *Kinetic Energy Release*) der in Koinzidenz gemessenen Ionen. Dabei wird die Summe der kinetischen Energie zweier Fragmente ermittelt und deren Häufigkeitsverteilung gemessen. Mit Hilfe dieses KER-Spektrums sollen nun die Messungen charakterisiert werden, bevor dann Orientierungseffekte zusätzlich betrachtet werden. Die einzelnen Meßresultate werden dann am Ende des Kapitels schematisch zusammengefaßt (6.3).

### 6.1 Energiespektren

#### 6.1.1 35 fs

Begonnen wird mit den Resultaten aus Messungen mit einem etwa 35 fs langen Laserpuls bei verschiedenen Intensitäten und unterschiedlichen Polarisierungen. Fehlen in Diagrammen Informationen über die Polarisation, so ist von einer linearen Polarisation auszugehen.

#### **H<sub>2</sub> (Wasserstoff)**

In Abbildung 6.1 ist zum Vergleich noch einmal ein Flugzeitspektrum von molekularem Wasserstoff dargestellt. Die Flugzeit  $t_1$  ist abhängig von der Energie der

detektierten Ionen

$$E = \frac{m}{2} \left( \frac{a}{2} t_1 - \frac{D_0}{t_1} \right)^2 \quad (6.1)$$

und es können die verschiedenen Maxima der symmetrischen Verteilung, Prozesse wie *Bond Softening* BS, *Above Threshold Ionisation* ATI, (*Charge Resonant Enhanced Ionisation* (CR)EI und *rescattering* RES zugeordnet werden (Kapitel 2). Da bei einer Ionenextraktion über den gesamten Raumwinkel ( $4\pi$ ) die Flugzeit lediglich eine Impulskomponente repräsentiert, vermischt die Dimensionsreduktion energetisch getrennte Fragmente durch winkelabhängige Coulomb-Explosionen oder Dissoziationen. Unter verschiedenen Koinzidenzbedingungen und durch Berechnung ihrer Energie aus den einzelnen Impulsen kann diese Vermischung aufgehoben und im Spektrum der freigesetzten kinetischen Energie (KER) dargestellt werden (Abb. 6.1).

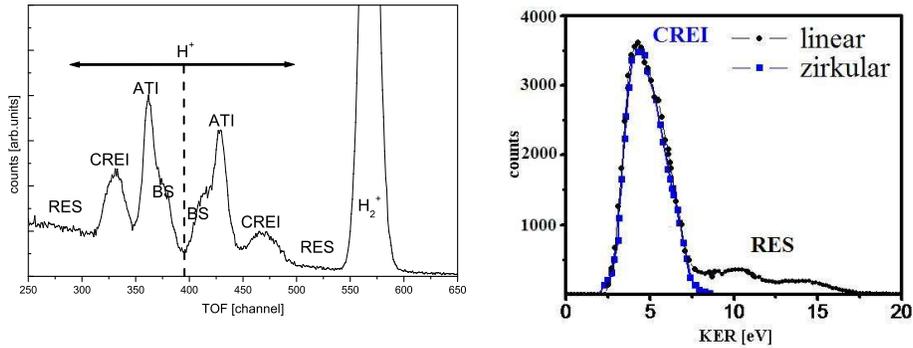


Abb. 6.1. H<sub>2</sub>-Flugzeitspektrum aus Restgas (links) und KER-Spektrum (rechts).

Es ist gut zu erkennen, daß das KER-Spektrum frei von Einfachionisationen ist und folglich lediglich der *Enhanced Ionisation*- und *Rescattering*-Prozeß übriggeblieben ist. Bei zirkularer Polarisation verbleibt allein die *Enhanced Ionisation*, da es einem tunnelionisierten Elektron unmöglich ist, durch Laserfeldbeschleunigungen zu seinem Ausgangspunkt zurückzugelangen (Kapitel 2.2).

Bei genauerer Betrachtung des Rescatteringbereiches durch den Ausschluß kleiner Winkel  $\theta$ , unter denen die *Enhanced Ionisation* wesentlich stärker vertreten ist, wird eine bereits erwähnte (Kapitel 2.3.2) Feinstruktur deutlich. In Abbildung 6.2

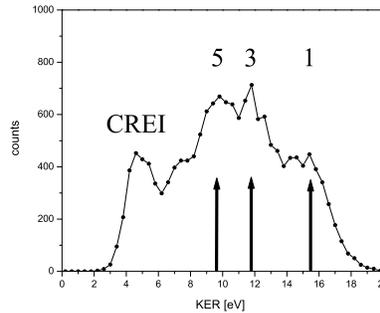


Abb. 6.2. H<sub>2</sub>-KER-Spektrum

sind drei Maxima durch senkrechte Pfeile angedeutet, die durch das zu bestimm-

ten Zeiten wiederkehrende oszillierende Rescattering-Elektron verursacht werden. Im Falle der schnellsten Rescattering-Doppelionisation, ausgehend vom Zeitpunkt der Einfachionisation, weist das eben erst ionisierte Wasserstoffmolekül noch sehr kleine Protonenabstände auf, so daß bei einer anschließenden Coulomb-Explosion große Energien freierwerden (Gl. 2.21). Dies geschieht durch eine Doppelionisation bei der ersten Elektronrückkehr, weshalb der Pfeil bei der höchsten Energie (etwa 16 eV) mit einer 1 gekennzeichnet ist. Dementsprechend resultieren Rescattering-Ionisationen zu späteren Wiederkehren in kleineren freigesetzten kinetischen Energien. Aus den Flugzeitspektren in Abbildung 5.11 geht bereits hervor, daß (CR)EI mit steigenden Intensitäten zunehmend dominanter gegenüber dem Rescattering-Mechanismus wird.

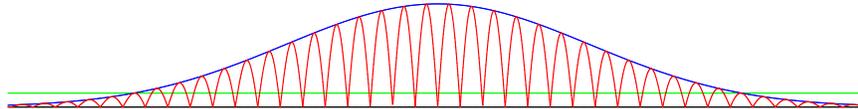
**O<sub>2</sub> (Sauerstoff)**

In Abbildung 6.4 ist das KER-Spektrum von Sauerstoff dargestellt. Dabei sind Ergebnisse von linearer und zirkularer Polarisation einander zeitlich normiert gegenübergestellt, unter der berechtigten Annahme gleicher Target-Dichten und einer Intensitätsverdoppelung bei zirkularer Polarisation, um die gleiche maximale elektrische Feldstärke zu garantieren

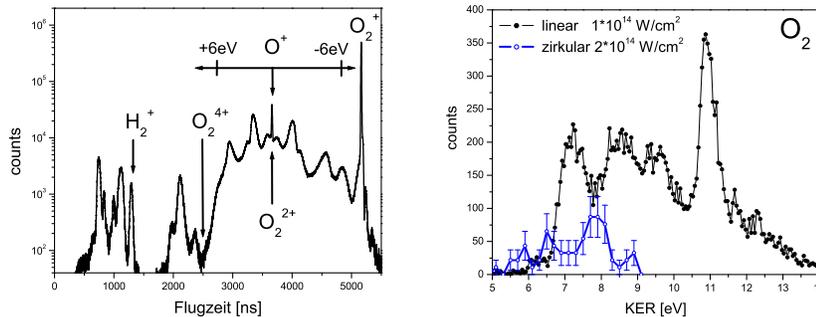
$$E = \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}} \propto \sqrt{I}$$

$$E_{max}(linear) = \sqrt{2} E_{max}(zirkular) \propto \sqrt{2I_{max}(zirkular)}.$$

Im Unterschied zur linearen Polarisation, bei welcher der Betrag der elektrischen Feldstärke oszilliert (Abb. 6.3 rot), folgt sie bei der zirkularen Polarisation der einhüllenden Gaußfunktion (Gl. 4.2, Abb. 6.3 blau), weshalb dann insgesamt ein Molekül unter längerem Feldeinfluß steht, was einen Vergleich absoluter Anzahlen von Ionisationen pro Zeiteinheit zusätzlich erschwert.



**Abb. 6.3.** Skizzierter Verlauf der elektrischen Feldstärke bei einem 35 fs langen Puls mit 800 nm Wellenlänge (ohne Bandbreite). Grün entspricht dem Wert  $1/e^2$ , über den sich die Pulslänge definiert.



**Abb. 6.4.** O<sub>2</sub>-Flugzeitspektrum (höhere Intensität) und KER-Spektrum im Rescattering-Regime.

Trotzdem geht aus Abbildung 6.4 gut hervor, daß bei zirkularer Polarisation kaum noch Doppelionisationen stattfinden, woraus zu folgern ist, daß für Intensitäten von  $1 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  bei linearer Polarisation der Rescattering-Prozeß dominiert.

Die Diagramme in Abbildung 6.5 zeigen das KER-Spektrum bei größeren Intensitäten (rot) einmal im Vergleich zum vorangegangenen Spektrum (links) und zum anderen in der Gegenüberstellung mit zirkularer Polarisation (rechts). Die Meßdaten sind nicht normiert und sollen lediglich veranschaulichen, daß bei hohen Intensitäten bevorzugt niedrigere kinetische Energien freigesetzt werden (um etwa 8 eV). Die zwei Maxima bei etwa 9.5 eV und 11 eV sind noch in der abklingenden Flanke zu höheren Energien zu erkennen, verschwinden aber unter zirkularer Polarisation.

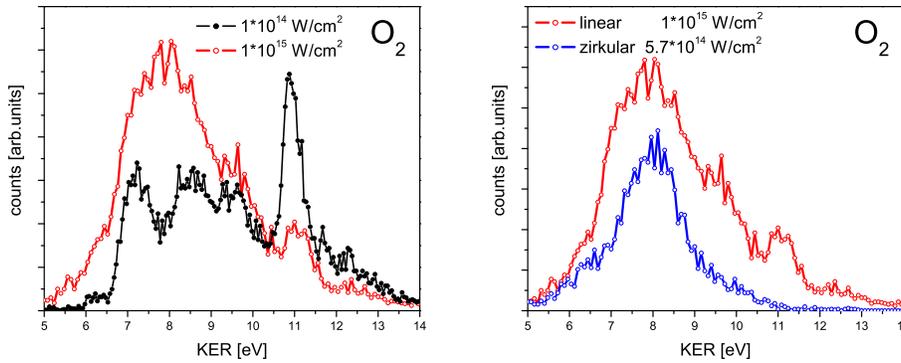


Abb. 6.5. O<sub>2</sub>-KER-Spektren bei größeren Intensitäten

Eine frühe Messung mit etwa gleicher Pulslänge und noch größerer Intensität bestätigt den Trend zur bevorzugten Emission von Fragmenten niedriger Energien. Das bei niedrigen Intensitäten strukturreiche Spektrum verwandelt sich mit steigender Intensität allmählich zu einem breiten Maximum. Auffällig ist außerdem, daß schon bei zirkularer Polarisation im Rescattering-Regime (Abb. 6.4) zwar erwartungsgemäß beinahe keine Doppelionisation auftritt, sich aber der gemessene minimale Ertrag ebenfalls bei etwa 8 eV maximiert.

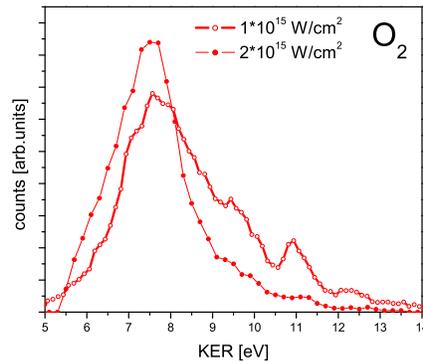
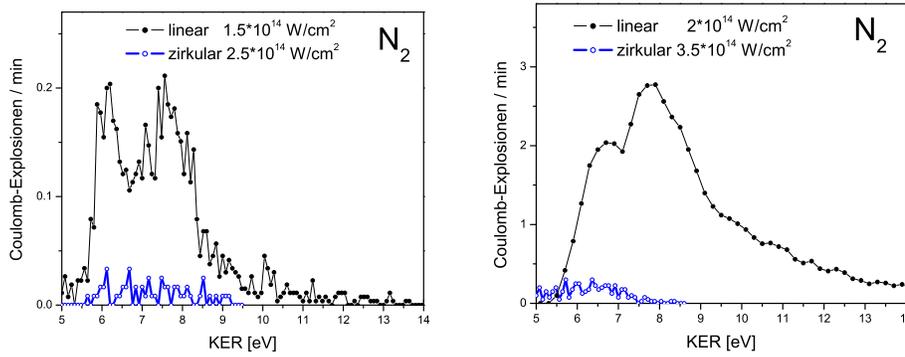


Abb. 6.6. O<sub>2</sub>-KER-Spektrum großer Intensitäten

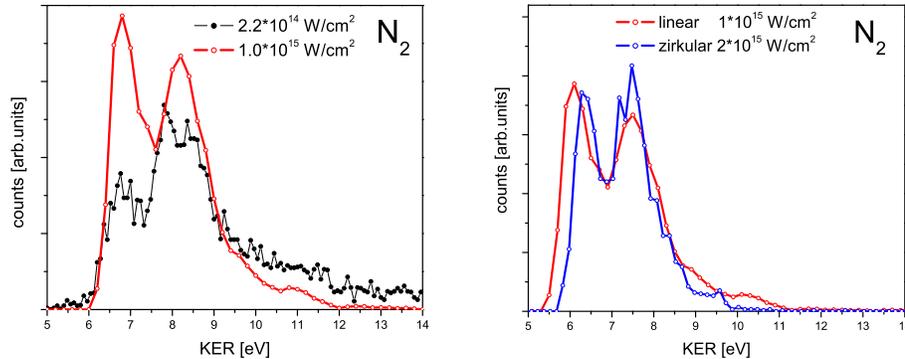
**N<sub>2</sub> (Stickstoff)**

Im weiteren Verlauf sollen vergleichbare Energiespektren für den Stickstoff dargestellt werden. Zunächst sind in Abbildung 6.7 zwei unterschiedliche Meßreihen mit niedrigen Intensitäten gezeigt, wobei wie gehabt lineare und zirkulare Polarisationen miteinander verglichen werden. Die Intensität ist für die zirkulare Polarisation annähernd verdoppelt worden und eine Normierung auf Coulomb-Explosionen/min läßt erkennen, daß bei derartigen Intensitäten der Rescattering-Mechanismus gegenüber anderen Doppelionisationsmechanismen bei weitem überwiegt.



**Abb. 6.7.** N<sub>2</sub>-KER-Spektren im Rescattering-Regime

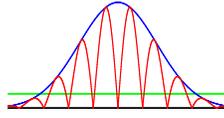
Im Gegensatz zum Sauerstoff verändert sich auch mit größeren Intensitäten das KER-Spektrum von Stickstoff kaum (Abb. 6.8) und es bleibt bei zirkularer Polarisation durch seine zwei Maxima charakterisiert.



**Abb. 6.8.** N<sub>2</sub>-KER-Spektren

**6.1.2 8 fs**

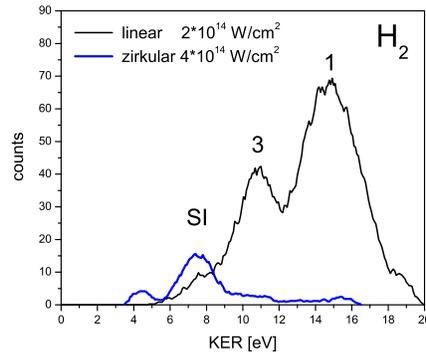
Im Vergleich zur Abbildung 6.3 ist hier (Abb. 6.9) ein idealisierter Laserpuls mit 8 fs zeitlicher Dauer dargestellt. Die Tatsache, daß das elektrische Feld in dieser Zeit nur etwa drei Oszillationen durchläuft und die ansteigende Pulsflanke der einhüllenden Gaußfunktion wesentlich steiler wird, läßt einige Veränderungen erwarten, die anhand der Meßergebnisse am Wasserstoffmolekül demonstriert werden sollen.



**Abb. 6.9.** Skizzierter Verlauf der elektrischen Feldstärke bei einem 8 fs langen Puls mit 800 nm Wellenlänge (ohne Bandbreite). Grün entspricht dem Wert  $1/e^2$ , über den sich die Pulslänge definiert.

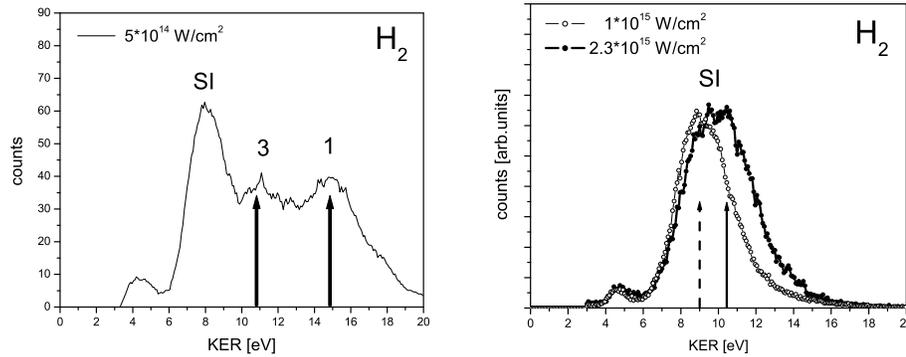
## H<sub>2</sub> (Wasserstoff)

Bei niedriger Intensität und dem normierten Vergleich zwischen linearer und bei doppelter Intensität zirkularer Polarisation, ist in Abbildung 6.10 zum ersten Mal die sequentielle Ionisation (SI), wenn auch nicht sehr ertragreich, zu beobachten. Aufgrund des starken Rückgangs an Doppelionisationen bei zirkularer Polarisation gegenüber linear polarisiertem Laserlicht kann davon ausgegangen werden, daß in diesem Intensitätsbereich der Rescattering-Prozeß am effektivsten molekularen Wasserstoff doppelionisiert. Weiterhin ist zu beobachten, daß die dritte Rückkehr des oszillierenden Rescattering-Elektrons (Abb. 6.10 „3“) an Wirksamkeit gegenüber 35 fs langen Pulsen verloren hat und die fünfte aufgrund der zu kurzen Pulslänge vollständig unterdrückt ist. Das kleine Nebenmaximum unterhalb 5 eV könnte auf einen (CR)EI-Prozeß zurückzuführen sein, der durch schwache zeitlich verzögerte Pulsnebenläufer eines nicht ganz optimierten kurzen Laserpulses verursacht wird.

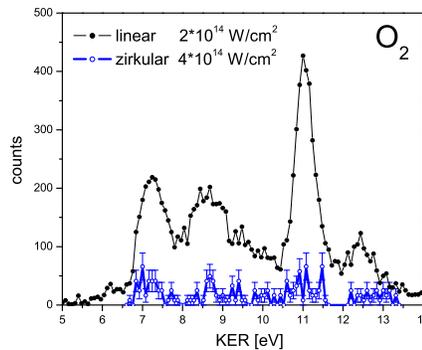


**Abb. 6.10.** H<sub>2</sub>-KER-Spektrum, 8 fs, Rescattering-Regime

Mit steigender Intensität gewinnt die sequentielle Ionisation zunehmend an Bedeutung, so daß sie bei etwa  $5 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  mit dem Doppelionisationsertrag des Rescattering-Mechanismus vergleichbar ist (Abb. 6.11 links) und mit weiterer Intensitätszunahme schließlich als Doppelionisations-Prozeß dominiert (Abb. 6.11 rechts). Ebenfalls zu erkennen ist, daß sich das Maximum der SI-Verteilung mit wachsender Intensität zu größeren freigesetzten kinetischen Energien verschiebt (von unter 8 eV Abb. 6.10 bis über 10 eV Abb. 6.11), da die ebenfalls steigenden Ionisationswahrscheinlichkeiten eine schnellere Doppelionisation bewirken und dadurch die Wasserstoffmoleküle bei geringeren internuklearen Abständen Coulombexplodieren.

Abb. 6.11. H<sub>2</sub>-KER-Spektren, 8 fsO<sub>2</sub> (Sauerstoff)

Im folgenden sollen die Ergebnisse für Sauerstoff in sehr kurzen Laserpulsen im Rescattering-Regime vorgestellt werden. Dazu wird der normierte Ertrag an Doppelionisationen bei niedrigen Intensitäten unterschiedlicher Polarisierungen miteinander verglichen (Abb. 6.12). Es zeigen sich auf den ersten Blick keine großen Veränderungen im KER-Spektrum bei linearer Polarisierung und es werden die gleichen Maxima wie bei einem längeren Puls beobachtet. Der beinahe verschwindende Ertrag bei zirkularer Polarisierung und doppelter Intensität läßt wieder auf einen Rescattering-Mechanismus als Quelle der Doppelionisationen schließen.

Abb. 6.12. O<sub>2</sub>-KER-Spektrum, 8 fs, Rescattering-Regime

Während bei den längeren Pulsen (35 fs) mit steigenden Intensitäten das KER-Spektrum von Sauerstoff zu einer Verteilung mit einem Höchstwert zusammenschrumpfte, bleibt bei den kürzeren Pulsen der strukturierte Charakter erhalten (Abb. 6.13). Auch unter zirkularen Polarisierungen sind im Vergleich zu den längeren Pulsen keine so gravierenden Unterschiede zu registrieren und das Spektrum behält die Form, die sich bereits in dem minimalen Ertrag im Rescattering-Regime angedeutet hat, wie es auch bei den längeren Pulsen schon der Fall gewesen ist.

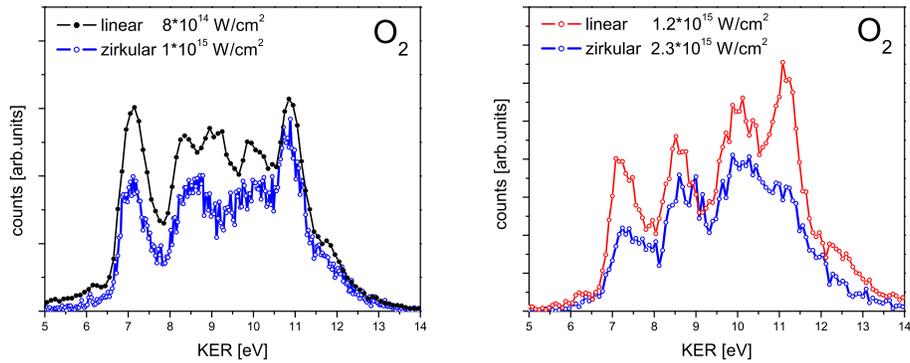


Abb. 6.13. O<sub>2</sub>-KER-Spektren, 8 fs

## N<sub>2</sub> (Stickstoff)

Das Spektrum im Rescattering-Regime verändert sich wie beim Sauerstoff nicht wesentlich beim Übergang zu kürzeren Pulsen. Es zeigt ebenso keine gravierenden

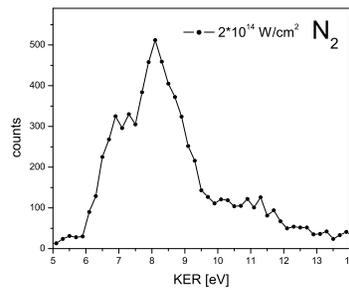


Abb. 6.14. N<sub>2</sub>-KER-Spektrum, 8 fs, Rescattering-Regime

Unterschiede zwischen zirkularer und linearer Polarisation bei höheren Intensitäten und bleibt, wie schon bei den längeren Pulsen beobachtet, durch zwei jeweils unterschiedlich gewichtete Hauptmaxima bestimmt.

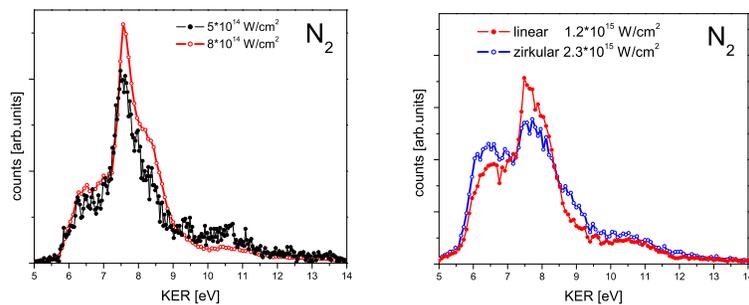


Abb. 6.15. N<sub>2</sub>-KER-Spektren, 8 fs

## 6.2 Orientierungseffekte

In diesem Abschnitt sollen abschließend die Resultate zur Abhängigkeit der Molekülorientierung in Bezug auf die Polarisationsachse des linear polarisierten Laserlichtes gezeigt werden. Zu Beginn werden exemplarisch für zwei Meßreihen zweidimensionale Projektionen und Schnitte durch den Impulsraum dargestellt, während sich der Vergleich aller anderen Meßergebnisse später auf eindimensionale Polardigramme reduziert.

Um die Dimensionsreduktion etwas anschaulicher zu vermitteln, werden zunächst die auf Coulomb-explodierende Doppelionisationen gefilterten Daten in dreidimensionaler Form gezeigt. In Abbildung 6.16 sind die gemessenen Ereignisse im entsprechenden Impulsraum zu erkennen, wobei jedem Ereignis ein kleiner schwarzer Punkt entspricht. Diese Abbildungen auf Papier entsprechen Projektionen mit bestimmtem Blickwinkel, und durch Bildfolgen mit variierenden Blickwinkeln können in so entstehenden Filmsequenzen dreidimensionale Eindrücke der Ereignisverteilung im Impulsraum vermittelt werden. Später werden dann Projektionen auf die Koordinatenebenen betrachtet, welche den Würfelseiten des eingezeichneten Koordinatensystems entsprechen und demnach als Betrachtung des Würfels von unten ( $P_z P_x$ ) und von hinten links ( $P_y P_z$ ) angesehen werden können.

Obwohl aufgrund der unterschiedlichen Versuchsparameter in den beiden Bildern zugrunde liegenden Messungen kein direkter Vergleich der Orientierungseffekte zwischen Stickstoff und Sauerstoff möglich ist, veranschaulichen sie den prinzipiellen Unterschied zwischen einer breiten Verteilung (Abb. 6.16 links) und einer stark entlang der Laserpolarisationsachse ausgerichteten Verteilung (Abb. 6.16 rechts). Letztere bedeutet eine hohe Ionisationswahrscheinlichkeit für Moleküle, deren Achse, das ist die gedachte Verbindung zwischen beiden Atomkernen in den betreffenden diatomaren und homonuklearen Molekülen, mit der des linear polarisierten Laserfeldes zusammenfällt.

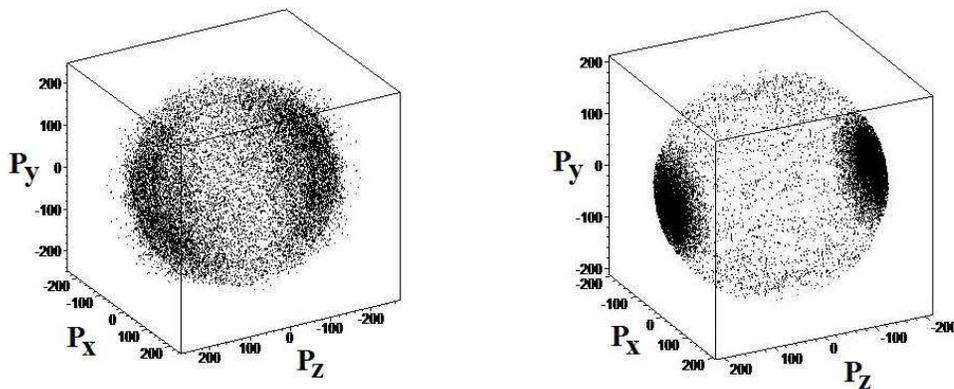
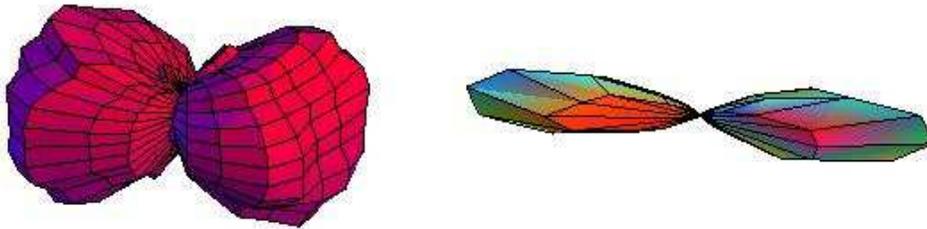


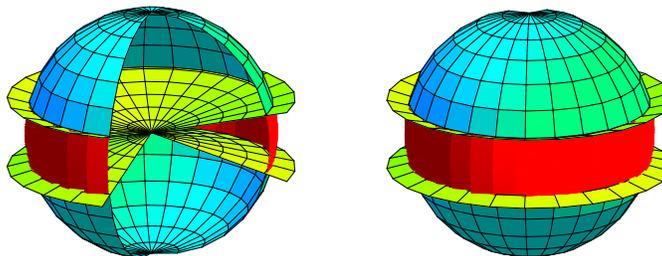
Abb. 6.16. Impulsraum für  $O_2$ , 35 fs, Rescattering-Regime,  $1 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  (links) und für  $N_2$ , 8 fs,  $8 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  (rechts).

Eine weitere Möglichkeit zur räumlichen Darstellung ist in Abbildung 6.17 gezeigt. Dabei sind aus dem Impulsraum Kugelschalen ausgeschnitten, so daß die in der Schale liegenden Impulse genau einem Maximum im Spektrum der freigesetzten kinetischen Energie (KER) entsprechen. Anschließend werden die Ereignisse über Raumwinkel integriert und aus der auf diese Weise gewonnenen Häufigkeitsverteilung ein Oberflächenendiagramm erstellt. Eine Gleichverteilung innerhalb der gewählten Kugelschale im Impulsraum ergäbe dabei wieder eine Kugeloberfläche. Auch hier dient der gewählte Vergleich beider Messungen lediglich der Veranschaulichung des prinzipiellen Unterschiedes zwischen breiteren und schmalen Ereignisverteilungen um die Polarisationsachse des Laserlichtes.



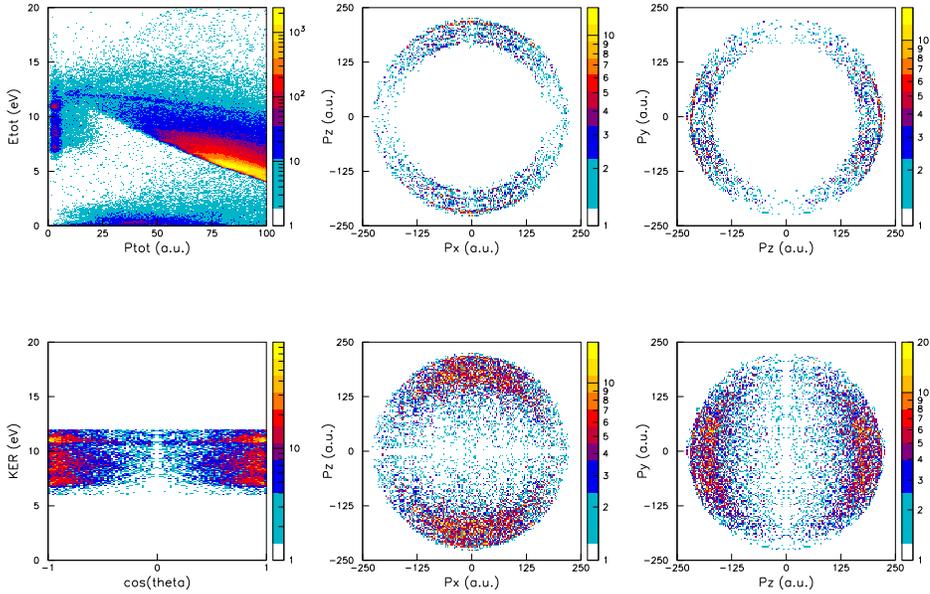
**Abb. 6.17.** 3D-Darstellung von O<sub>2</sub>, 8 fs,  $3 \cdot 10^{14}$  W cm<sup>-2</sup> (links) und N<sub>2</sub>, 8 fs,  $8 \cdot 10^{14}$  W cm<sup>-2</sup> (rechts)

Das Projizieren einer Ereignisverteilung im Impulsraum auf Koordinatenebenen ist ein schnelles und einfaches Analysemittel, verhüllt jedoch unter bestimmten Umständen wichtige Details, da der Betrag des Impulses abhängig vom Herauszeigen seines Vektors aus der jeweiligen Ebene wird. Unterschiedliche Kugelschalen, die teilweise verschiedenen Ionisationsmechanismen zugeordnet werden können, werden auf diese Weise miteinander vermischt, so daß die gesamte Projektion verwaschen erscheint. Um diesen Prozeß einzudämmen, können Projektionen von schmalen Volumina um die betreffende Koordinatenebene betrachtet werden. Abbildung 6.18 zeigt einen solchen Volumenausschnitt, der durch einen radial vom Ursprung ausgehenden spitzen Winkel entsteht. Je kleiner der Winkel, um so sauberer wird die verbleibende Projektion, allerdings mit dem Nachteil einer sich stetig verschlechternden Statistik.



**Abb. 6.18.** Skizze zur Veranschaulichung der Sphärenschnitte

In den folgenden zwei Abbildungen (6.19 und 6.20) sind jeweils oben mittig und rechts zwei solcher Ausschnittsprojektionen abgebildet, wobei ihr Öffnungswinkel etwa  $23^\circ$  beträgt. Zum Vergleich befinden sich in der zweiten Reihe die dazugehörigen Vollprojektionen. Die jeweiligen schmalen Lücken bei  $p_z = 0$  stammen von der elektronischen Totzeit, in der zwei schnell aufeinanderfolgende Ereignisse nicht mehr aufgelöst werden können und daher koinzidente Coulomb-Explosionen verloren gehen.

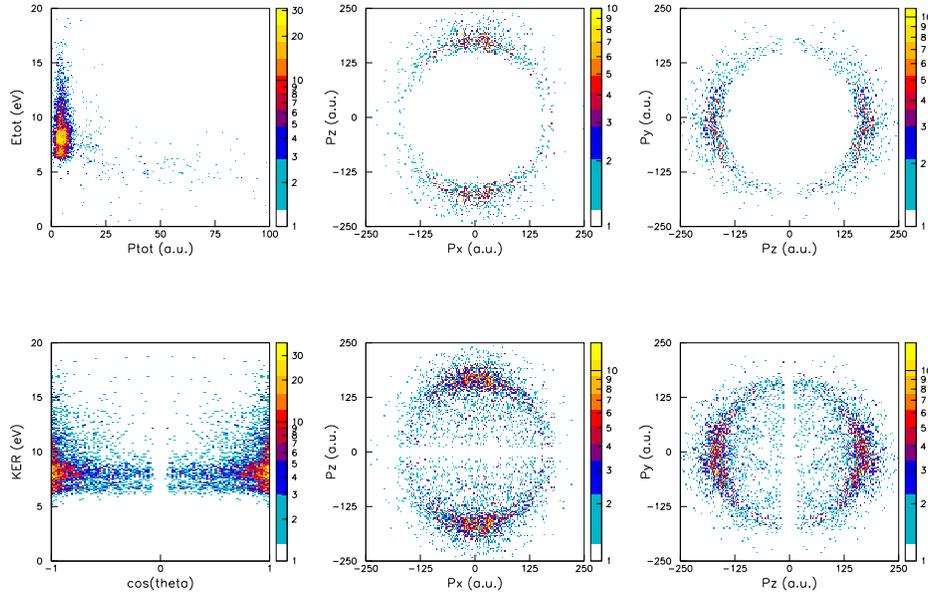


**Abb. 6.19.** O<sub>2</sub>, 35 fs,  $3 \cdot 10^{14}$  W cm<sup>-2</sup>. Ungefiltertes Energie-Impuls-Spektrum (oben links),  $P_z$ - $P_x$ -Teilprojektion (oben Mitte),  $P_y$ - $P_z$ -Teilprojektion (oben rechts), Energie- $\cos \theta$ -Spektrum (unten links),  $P_z$ - $P_x$ -Projektion (unten Mitte) und  $P_y$ - $P_z$ -Projektion (unten rechts).

In Abbildung 6.19 ist oben links die Gesamtenergie (GL. 5.13) zweier Teilchen gegen den Betrag der Vektorsumme ihrer Impulse ( $|\vec{P}_1 + \vec{P}_2|$ ) aufgetragen. In dieser Darstellung erscheinen erwartungsgemäß die realen Koinzidenzen, also die berechneten Werte für zwei Teilchen, die auch tatsächlich aus ein- und derselben Coulomb-Explosion stammen, am linken Bildrand, wo aufgrund des Impulserhalts sich der Gesamtimpuls zu Null addiert. Diese echten Koinzidenzen sind dann in den verschiedenen Projektionen zu sehen. Unten links sind die Winkelverteilungen für Energien zwischen 6 eV und 12 eV in einem Bild in Abhängigkeit des  $\cos \theta$ , einer nicht-linearen Achse, abgebildet.

Es ist beispielsweise an der  $P_z$ - $P_x$ -Teilprojektion (oben Mitte) zu erkennen, daß, abgesehen vom äußeren Ring, die Inneren ein Minimum für Molekülachsenorientationen entlang der Spektrometerachse (z-Richtung) aufweisen, welcher durch die Vollprojektionen verdeckt wird. Im Gegensatz dazu ist dieser Effekt bei Stickstoff in der folgenden Abbildung 6.20 nicht zu beobachten.

In der Bildfolge 6.20 ist oben links, anders als zuvor, das Gesamtenergie-Impuls-Spektrum weitgehend frei von zufälligen Koinzidenzen, sowie das Diagramm der Energie in Abhängigkeit des Cosinus von theta ohne Begrenzungen abgebildet. Beide Meßreihen sind unter vergleichbaren Versuchsbedingungen durchgeführt, bei denen der Rescattering-Prozeß die Quelle der Doppelionisationen darstellt.



**Abb. 6.20.**  $N_2$ , 35 fs,  $2.2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ . Gefiltertes Energie-Impuls-Spektrum (oben links),  $P_z$ - $P_x$ -Teilprojektion (oben Mitte),  $P_y$ - $P_z$ -Teilprojektion (oben rechts), Energie- $\cos \theta$ -Spektrum (unten links),  $P_z$ - $P_x$ -Projektion (unten Mitte) und  $P_y$ - $P_z$ -Projektion (unten rechts).

Nach diesen einleitenden Darstellungen und Vergleichen wird im folgenden eine Auswahl an Meßergebnissen für verschiedene Versuchsparameter präsentiert. Dabei beschränken sich die Analysen zur winkelabhängigen Doppelionisation auf den Gebrauch von eindimensionalen Diagrammen in Polarkoordinaten, die aus entsprechenden Projektionen des Energie- $\cos \theta$ -Spektrums auf die  $\cos \theta$ -Achse gewonnen werden.

## 6.2.1 35 fs

 $O_2$  (Sauerstoff)

Beginnend mit der in Abbildung 6.19 bereits gezeigten Meßreihe wird zunächst, wie auch im folgenden, noch einmal das dazugehörige KER-Spektrum zusammen mit den Polardiagrammen dargestellt. Darin sind die unterschiedlichen Maxima mit Buchstaben gekennzeichnet, um die Identifizierung mit ihren Winkelverteilungen zu erleichtern. In der anschließenden Diskussion der Ergebnisse sind die gekennzeichneten Höchstwerte durch den Vergleich mit bestehenden Resultaten aus der Literatur näher erläutert.

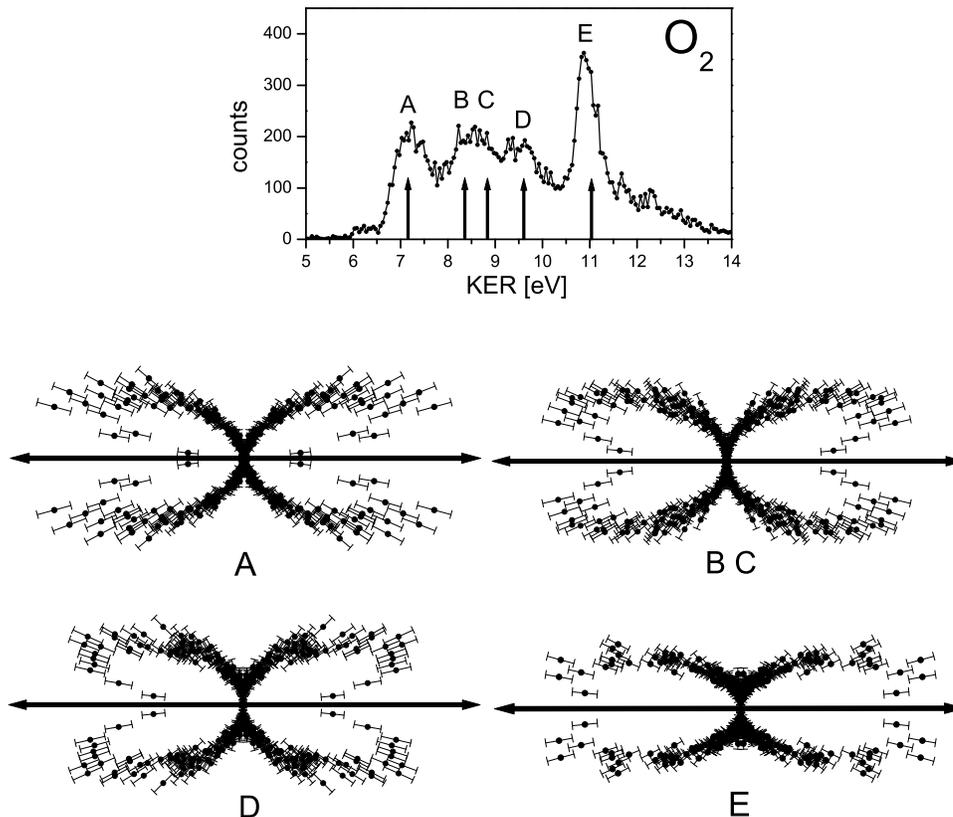


Abb. 6.21.  $O_2$ , 35 fs,  $1 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$

Auch hier ist wieder das bereits erwähnte Minimum für Ausrichtungen entlang der Laserpolarisationsachse zu erkennen, was für das Maximum mit der größten Energie (E), entsprechend dem äußeren Ring der Impulsteilprojektionen, nicht zutreffend ist.

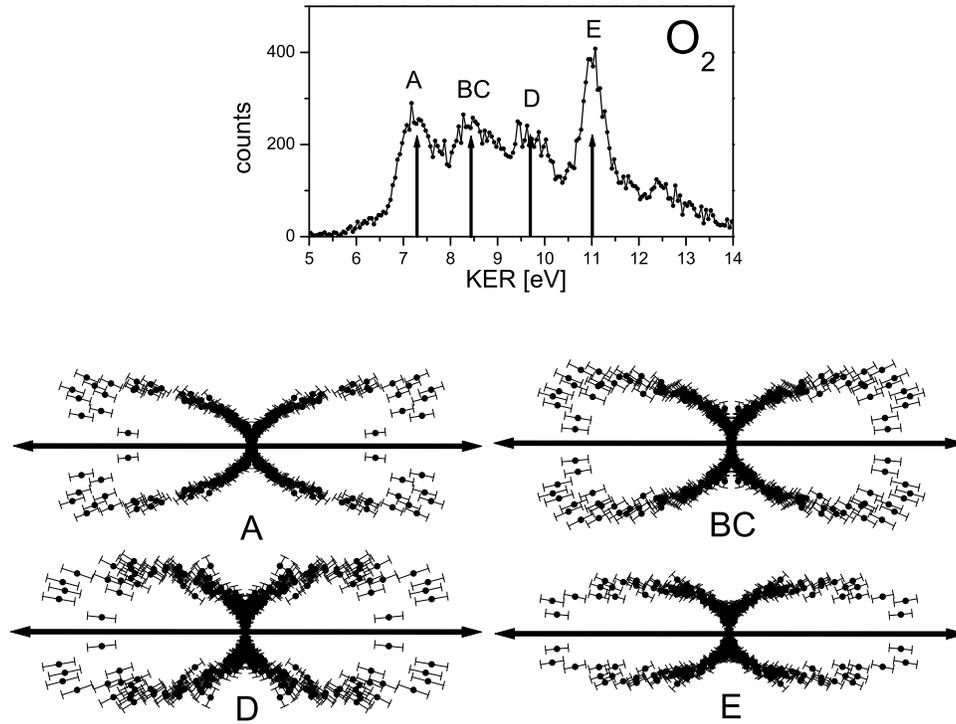


Abb. 6.22. O<sub>2</sub>, 35 fs,  $2.2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$

Mit steigender Intensität verliert das beobachtete Minimum seine Ausprägung, bis bei ganz hohen Intensitäten das zu niedrigen Energien zusammengeschrumpfte Maximum zu einer schmalen Verteilung für Orientierungen der molekularen Achse entlang der linearen Laserpolarisationsrichtung wird.

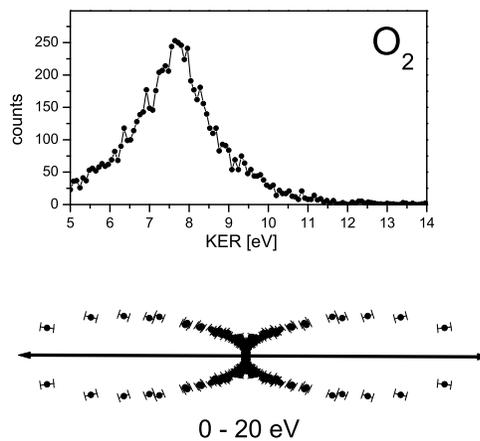


Abb. 6.23. O<sub>2</sub>, 35 fs,  $5.4 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$

**N<sub>2</sub> (Stickstoff)**

Wie im Falle des Sauerstoffs bereits verfahren, wird gleichermaßen beim Stickstoff mit der bereits in Abbildung 6.20 präsentierten Meßreihe begonnen.

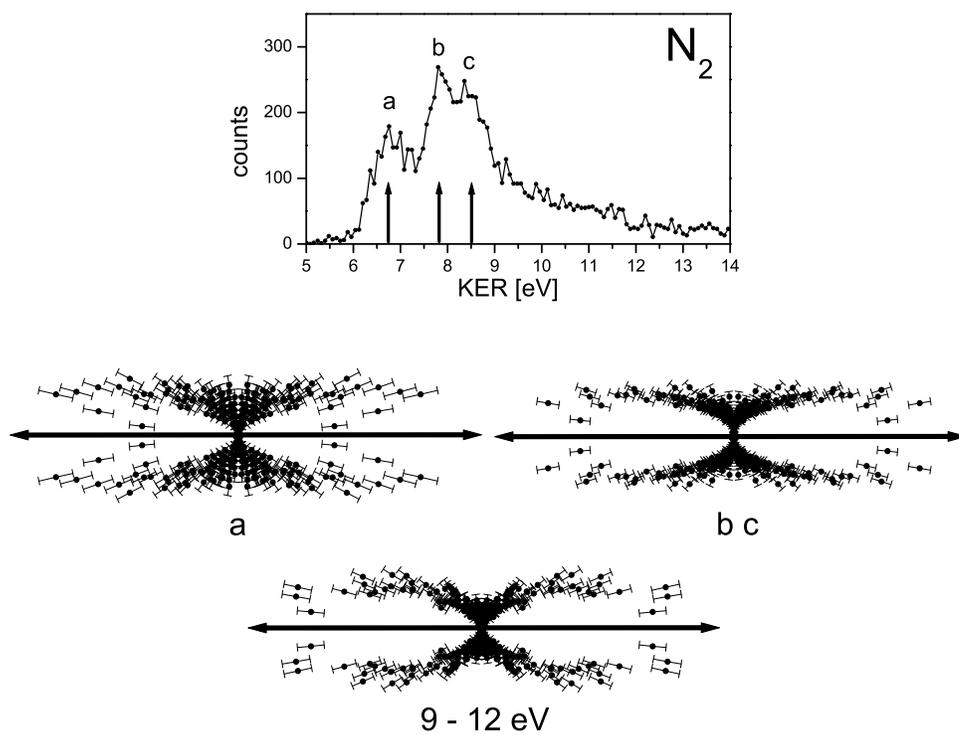


Abb. 6.24. N<sub>2</sub>, 35 fs,  $2.2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$

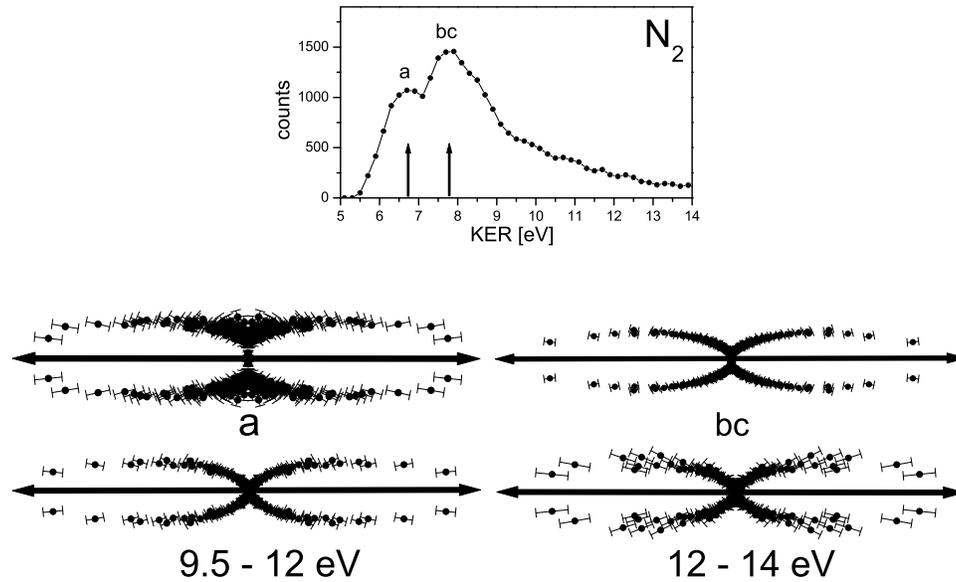


Abb. 6.25.  $N_2$ , 35 fs,  $3 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$

Wie zuvor beim Sauerstoff beobachtet, zeigt auch der Stickstoff mit größer werdenden Intensitäten eine steigende Wahrscheinlichkeit für Doppelionisationen, wenn die Molekülachse mit der des Laserfeldes zusammenfällt.

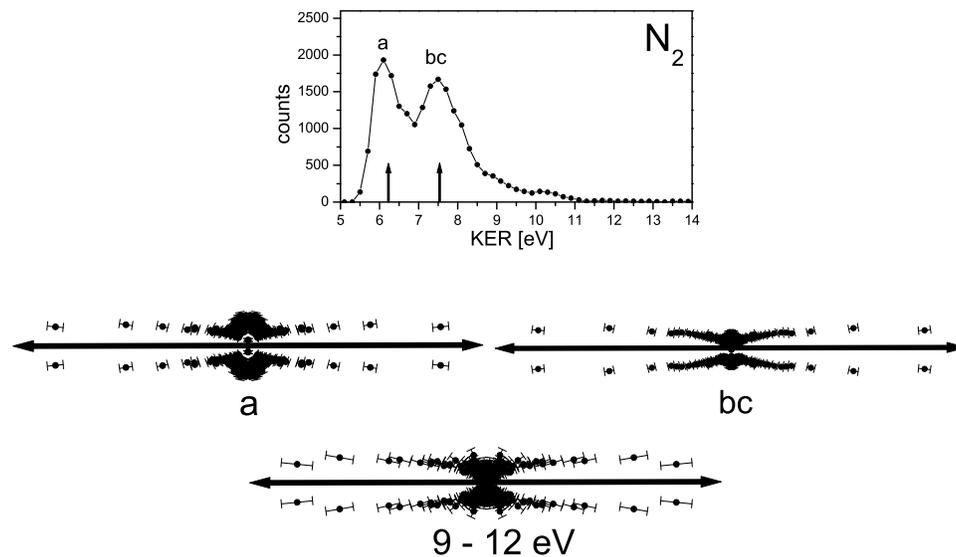


Abb. 6.26.  $N_2$ , 35 fs,  $1 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$

## 6.2.2 8 fs

 $O_2$  (Sauerstoff)

Das beim Sauerstoff bei 35 fs und niedrigster Intensität beobachtete Minimum entlang der Polarisationsachse ist bei den kürzeren Pulsen trotz schlechter Statistik noch ausgeprägter zu erkennen. Es scheint, als maximiere sich die Doppelionisationswahrscheinlichkeit für Moleküle, deren internukleare Achse um  $40^\circ$  gegenüber der Polarisationsachse des linearen Laserslichtes geneigt ist. Und auch bei den kürze-

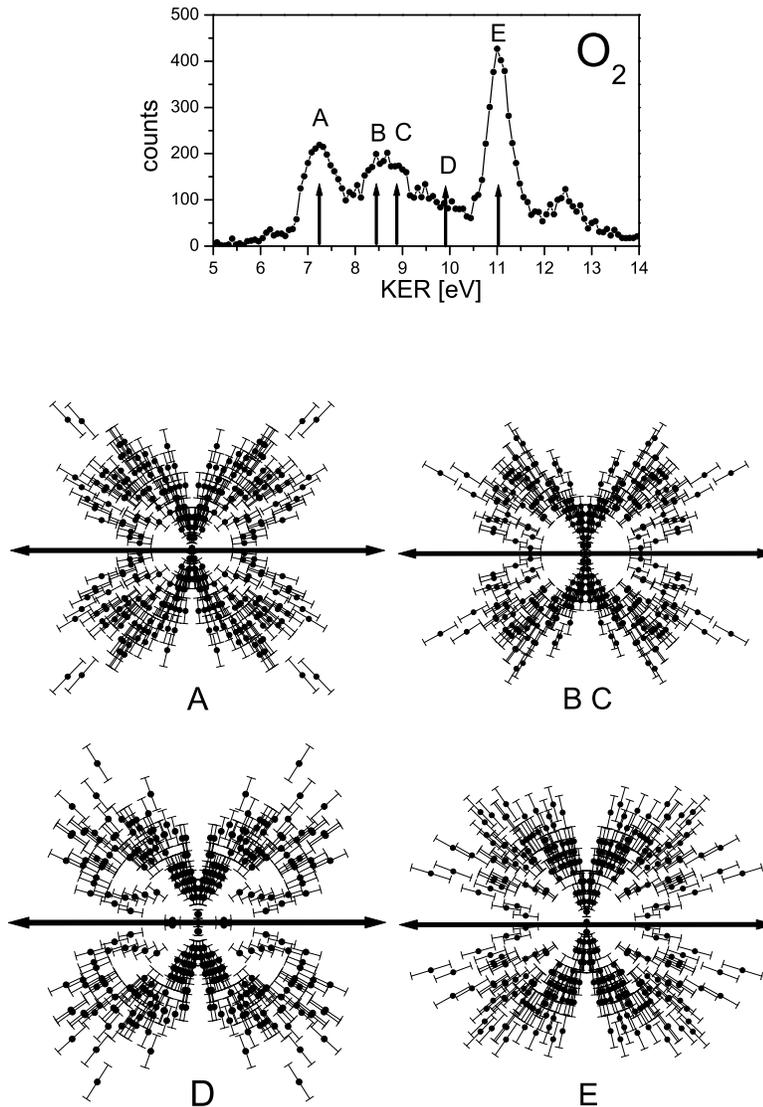


Abb. 6.27.  $O_2$ , 8 fs,  $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$

ren Pulsen verschiebt sich die Verteilung mit steigender Intensität zunehmend zur Polarisationsachse hin (Abb. 6.28 und 6.29). Eine bislang ungesehene Erscheinung zeigt sich in der Winkelverteilung des Energiemaximums bei etwa 11 eV (E). Neben der Hauptwahrscheinlichkeit für Doppelionisationen bei Molekülausrichtungen entlang der Polarisationsachse, besteht eine kleine aber erhöhte Ionisationswah-

scheinlichkeit für Moleküle, deren Achse senkrecht zur Laserpolarisation steht (siehe auch Teilprojektion oben links, Energie-cos  $\theta$ -Spektrum oben mittig und Gesamtprojektion des Energie-cos  $\theta$ -Spektrums auf die untere Achse im Diagramm oben rechts). Die Tatsache, daß bei exakt senkrechter Orientierung jede Verteilung auf

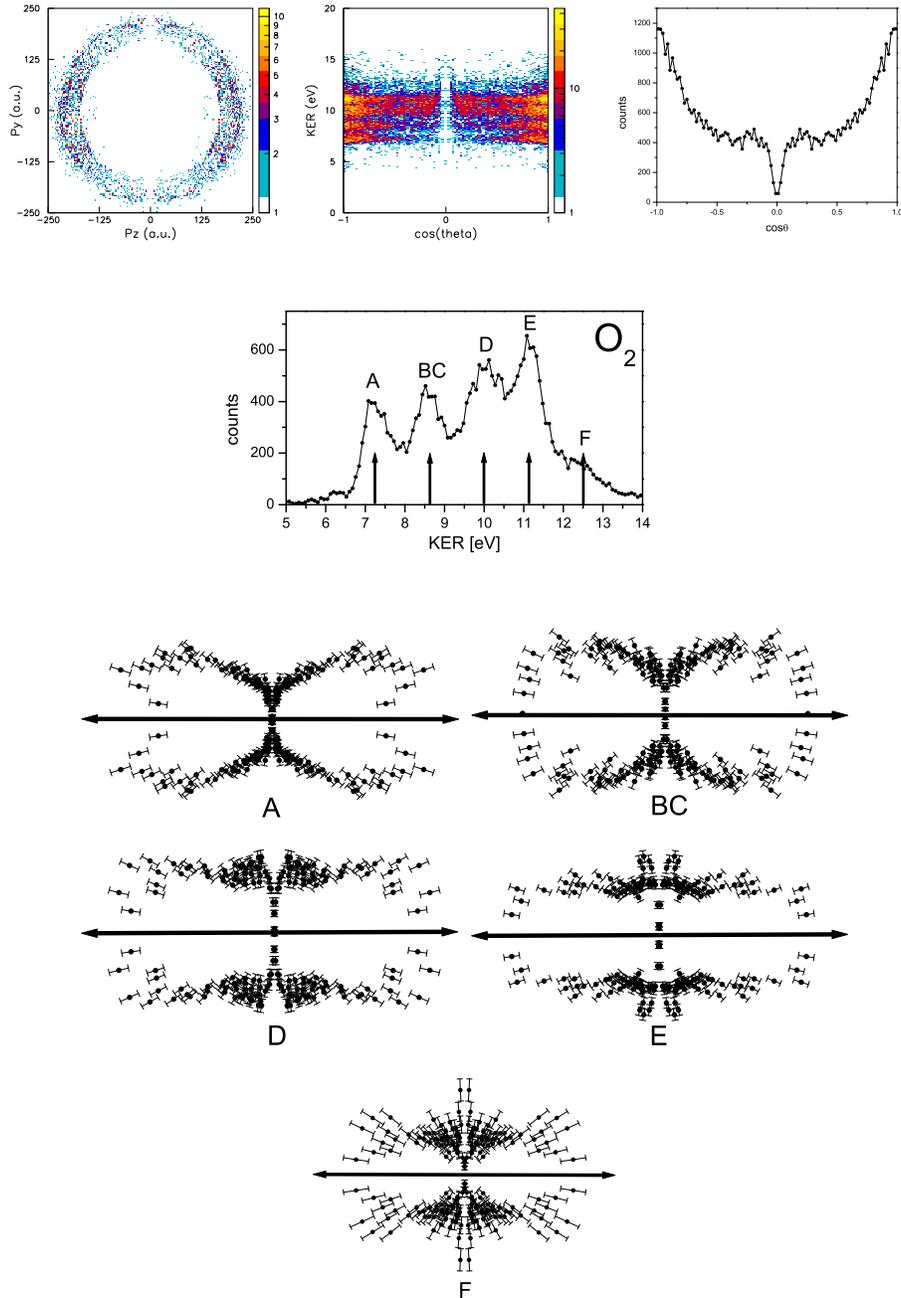


Abb. 6.28.  $O_2$ , 8 fs,  $1.2 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$

Null sinkt, liegt am begrenzten zeitlichen Auflösungsvermögen der Detektoren, da in diesen Fällen beide Fragmente zeitgleich die Detektoroberfläche treffen. Daher bildet sich im kleinen Maximum um  $90^\circ$  ein Minimum, das eine Doppelpeakstruktur

entstehen läßt (ähnlich einer  $f$ -Resonanz).

Bei der größten Intensität zeigt sich, neben der zu erwartenden weiteren Verschmälerung der Verteilung zur Polarisationsachse hin, eine Verstärkung des  $90^\circ$ -Effekts für das Energiemaximum um etwa 11 eV. Auch Verteilungen für Energien um 10 eV (D) scheinen von diesem Effekt beeinflusst zu sein.

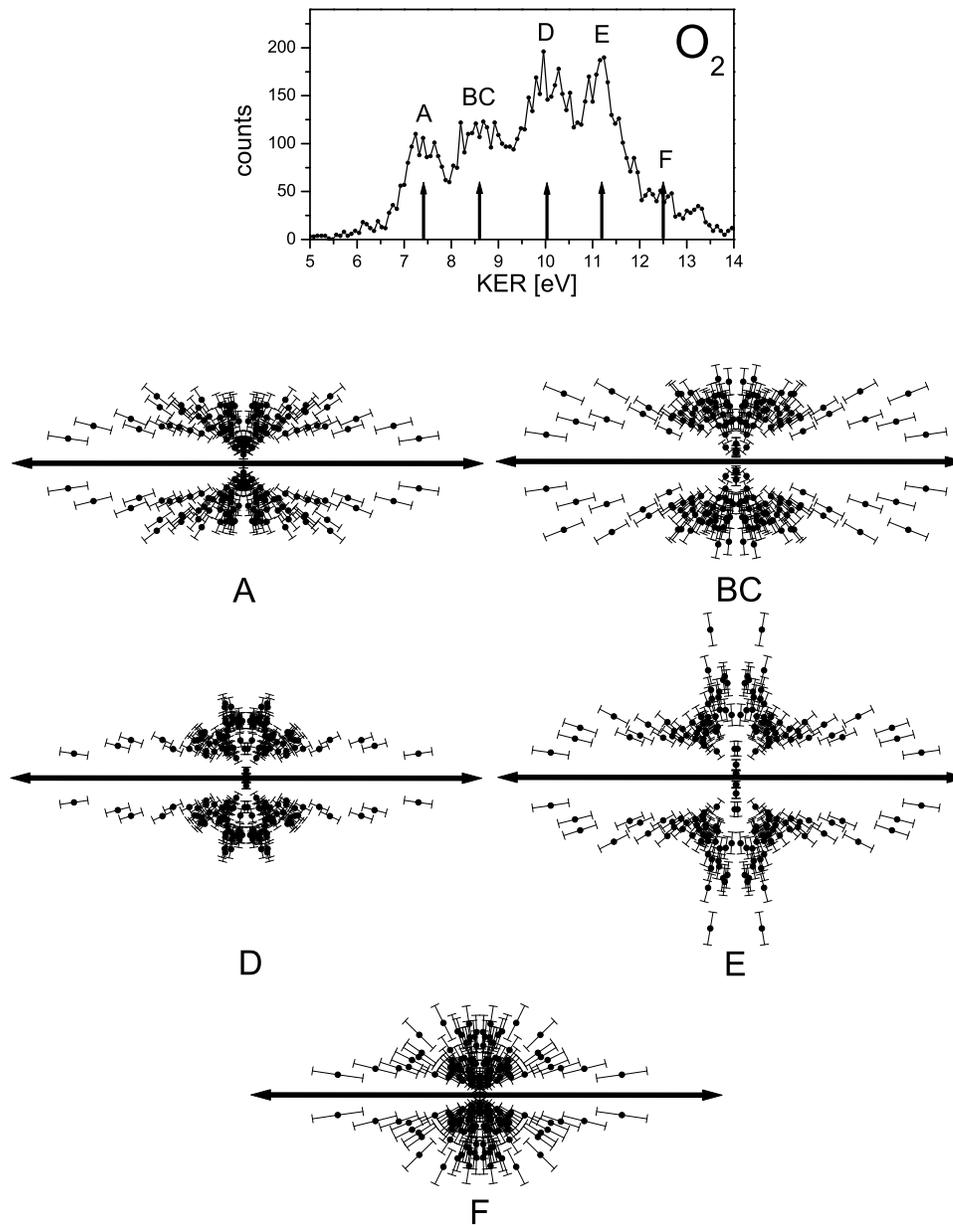
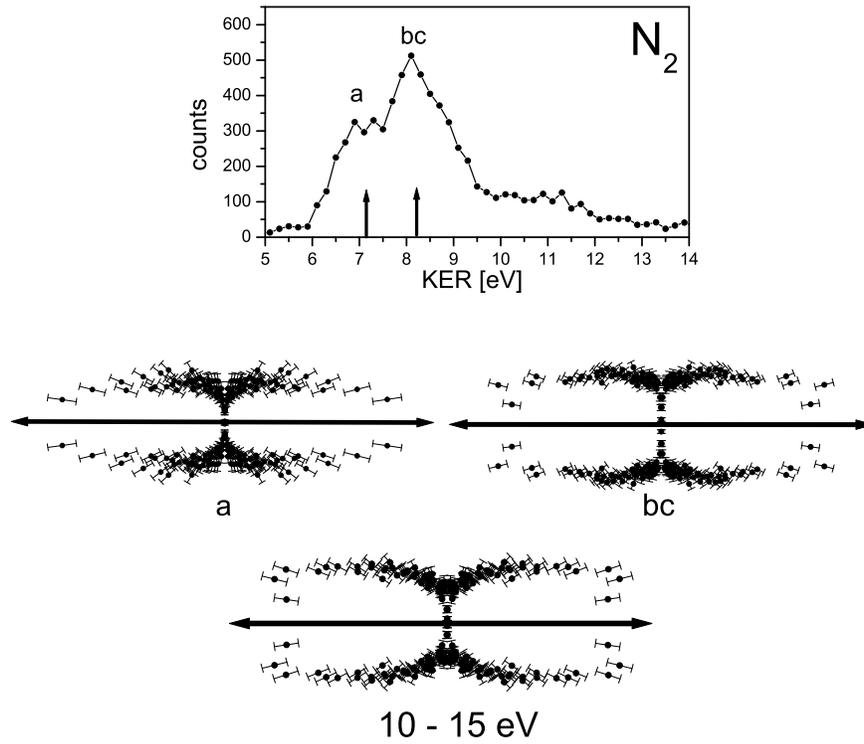


Abb. 6.29.  $O_2$ , 8 fs,  $2.3 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$

**N<sub>2</sub> (Stickstoff)**

Im Rescattering-Regime des Stickstoffs sind bei den kurzen Pulsen folgende Ergebnisse erzielt worden



**Abb. 6.30.** N<sub>2</sub>, 8 fs,  $2 \cdot 10^{14}$  W cm<sup>-2</sup>

Bei größeren Intensitäten fallen die Winkelverteilungen noch überraschend breit aus.

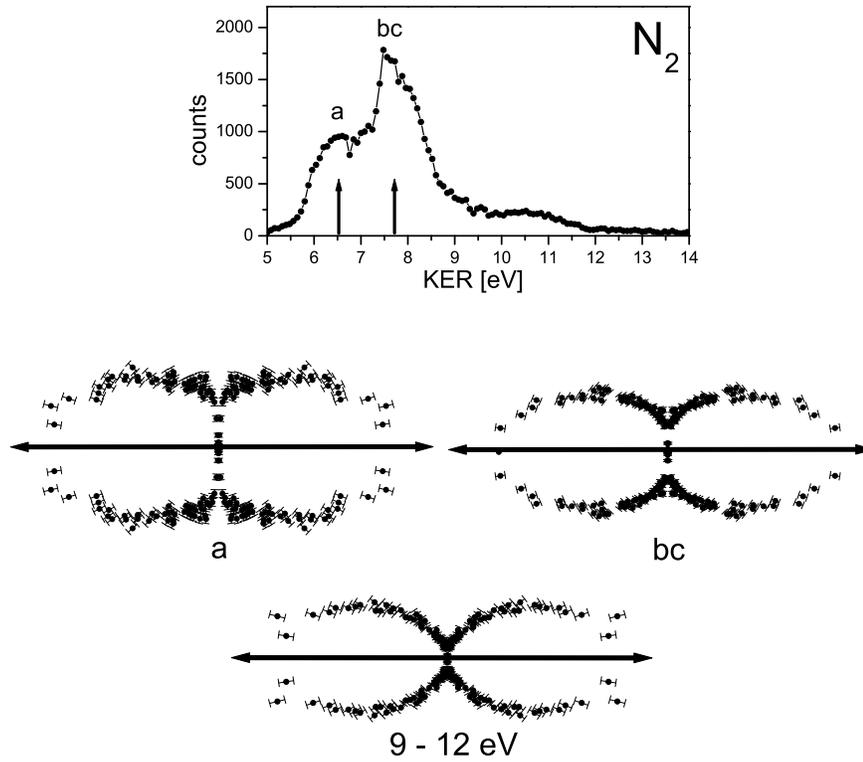


Abb. 6.31. N<sub>2</sub>, 8 fs,  $1.2 \cdot 10^{15}$  W cm<sup>-2</sup>

Bei der höchsten Intensität stellt sich dann die erwartete enge Verteilung der Doppelionisationswahrscheinlichkeit um die Polarisationsachse ein. Fraglich ist, wie stark die etwas eigenartige „X-Struktur“ bei den Winkelverteilungen für Energien von 8.5 eV bis 10 eV und weniger ausgeprägt für Energien zwischen 10 eV und 12 eV zu bewerten ist. Diese augenscheinliche Verteilungsform könnte auch zufällig durch die Analysemethode entstanden sein.

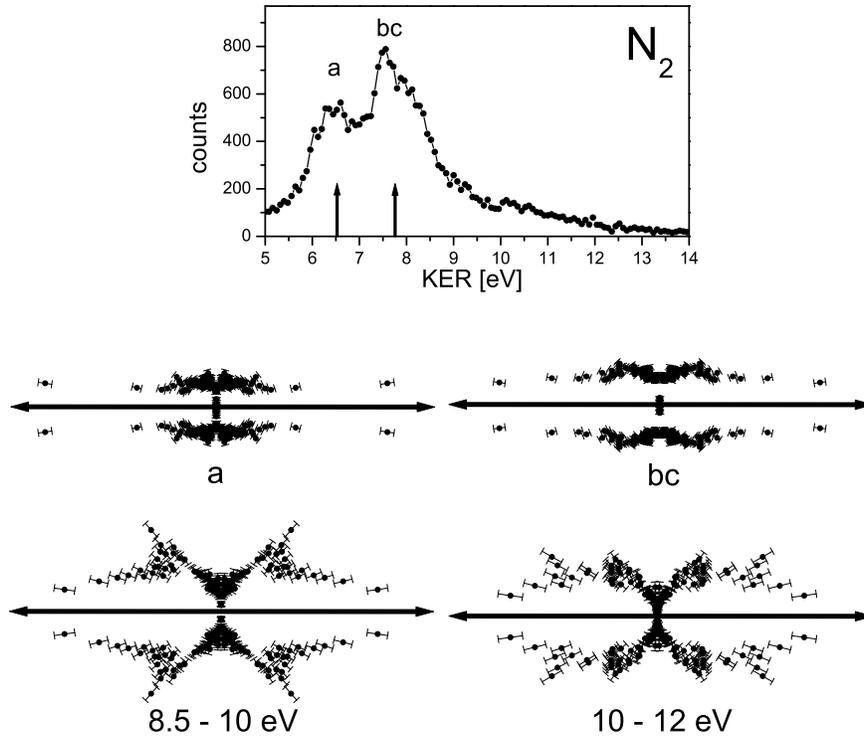
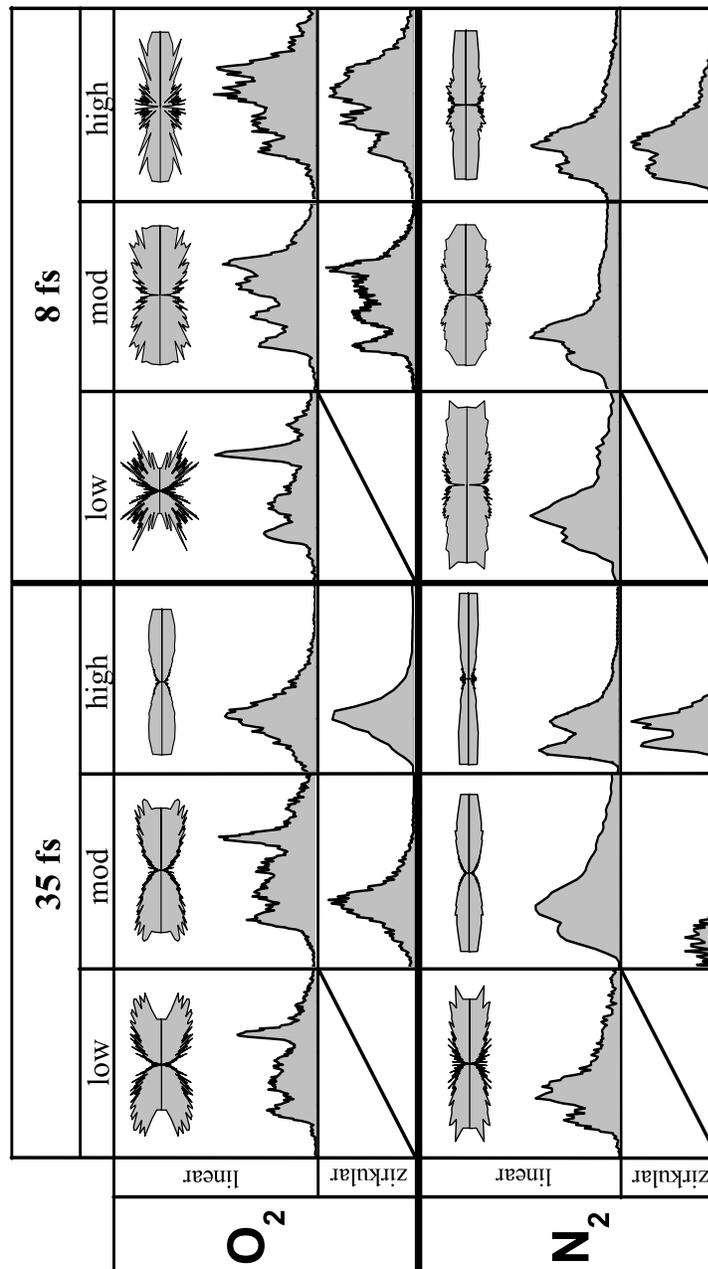


Abb. 6.32. N<sub>2</sub>, 8 fs,  $2.3 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$

### 6.3 Auf einen Blick

An dieser Stelle sollen der Übersicht halber noch einmal qualitativ die bereits vorgestellten Ergebnisse tabellarisch aufgeführt werden. Dabei beschränkt sich der winkelabhängige Vergleich auf die Polardarstellungen des BC-Energiemaximums für Sauerstoff und des bc-Maximums im Falle des Stickstoffs (siehe oben).



**Abb. 6.33.** Auf einen Blick. Die gezeigten Polardiagramme beziehen sich jeweils auf das Energiemaximum BC bzw. bc.



# Kapitel 7

## Diskussion

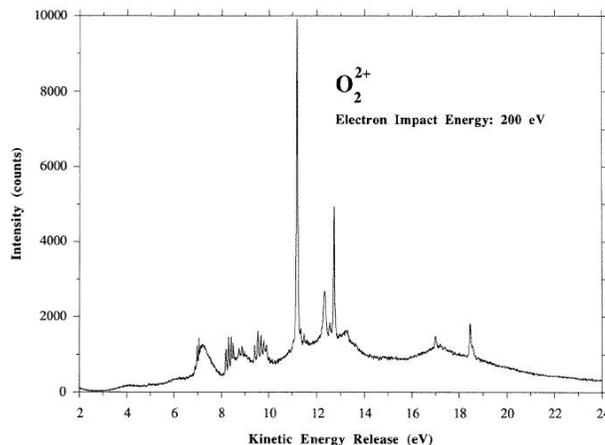
*Von dem, was du erkennen und messen willst,  
mußt du Abschied nehmen, wenigstens auf eine Zeit.  
Erst wenn du die Stadt verlassen hast, siehst du,  
wie hoch sich die Türme über die Häuser erheben.*

F. Nietzsche

### 7.1 Interpretation

#### 7.1.1 Energiespektren

Die verschiedenen Maxima im Spektrum der freigesetzten kinetischen Energie (KER) entstehen durch die Population verschiedener angeregter Zustände des doppelionisierten Sauerstoffmoleküls, welche anschließend durch Coulomb-Explosionen zerfallen. Zur Identifikation der gebildeten Zustände ist der Vergleich mit Messungen von M. Lundqvist aus dem Jahre 1995 hilfreich, bei denen Sauerstoff und Stickstoff durch den Beschuß mit beschleunigten Elektronen (200 eV) ionisiert wurden und die entstehenden Coulomb-Explosionsfragmente durch entgegengerichtete Flugzeitstrecken in Koinzidenz gemessen worden sind. Abbildung 7.1 zeigt das auf diese Weise gewonnene hochauflösende KER-Spektrum, bei welchem zum Teil Vibrationszustände verschiedener Maxima zu erkennen sind. Durch ausführliche theoreti-



**Abb. 7.1.** KER-Spektrum aus Doppelionisationen von  $O_2$  durch Beschuß mit schnellen Elektronen (200 eV). Entnommen aus [29].

sche Berechnungen gelang Lundqvist et al. die Identifikation fast aller gemessenen Maxima inklusive die der Vibrationszustände [29]. Der Vergleich mit den hier durchgeführten Untersuchungen zur Doppelionisation durch den Beschuß mit Laserlicht zeigt übereinstimmende Positionen der gefundenen Hauptmaxima, so daß die in der unten stehenden Tabelle gefundenen Zuordnungen getroffen werden können.

Peak	Zustand	Konfiguration	KER	Endzustand
a	$A \ ^1\Pi_u$	$\pi_u^{-1} 3\sigma_g^{-1}$	6.9	$N^+(^3P)+N^+(^3P)$
b	$D \ ^3\Pi_g$	$\pi_u^{-2} 3\sigma_g^{-1} \pi_g^1$	8.0	$N^+(^3P)+N^+(^3P)$
c	$d \ ^1\Sigma_g^+$	$\pi_u^{-2} 3\sigma_g^{-0}$	8.6	$N^+(^3P)+N^+(^3P)$
A	$W \ ^3\Delta_u$	$\pi_u^{-1} 1\pi_g^{-1}$	7.2	$O^+(^4S)+O^+(^2D)$
B	$B \ ^3\Sigma_u^-$	$\pi_u^{-1} 1\pi_g^{-1}$	8.4	$O^+(^4S)+O^+(^2D)$
C	$1 \ ^1\Delta_u$	$\pi_u^{-1} 1\pi_g^{-1}$	8.9	$O^+(^4S)+O^+(^2D)$
D	$1 \ ^1\Sigma_u^-$	$\pi_u^{-1} 1\pi_g^{-1}$	9.7	$O^+(^4S)+O^+(^2D)$
E	$B \ ^3\Pi_g$	$3\sigma_g^{-1} 1 \pi_g^{-1}$	11.2	$O^+(^4S)+O^+(^4S)$
F	$1 \ ^1\Pi_g$	$3\sigma_g^{-1} 1 \pi_g^{-1}$	12.7	$O^+(^4S)+O^+(^4S)$

Die Tatsache, daß sich die Energiespektren der Fragmentation von doppelt ionisiertem Sauerstoff im Laserfeld einerseits und unter Elektronenbeschuß andererseits nicht wesentlich voneinander unterscheiden, könnte auf die Ähnlichkeit beider Ionisationsmechanismen im Falle des Rescattering-Regimes zurückzuführen sein, handelt es sich doch ebenfalls um eine Art von Elektronenbeschuß durch das im Laserfeld an Energie gewonnene Rescattering-Elektron. Ein Unterschied des durch Elektronenbeschuß angereicherte Energiespektrums zu den hier gezeigten KER-Spektren besteht darin, daß in diesem Vibrationszustände aufgelöst werden können. In beiden Messungen wird durch Koinzidenzbedingungen die thermische Schwerpunktsbewegung der fragmentierten Moleküle herausgefiltert, doch trotz niedrig gewählten Extraktionsfeldern blieben Vibrationszustände in den hier durchgeführten Versuchen unentdeckt, was auf physikalische Gründe schließen läßt, zumal sich die Schärfe verschiedener Maxima als intensitätsabhängig erweist. Bei niedrigster Intensität zeigt sich die KER-Struktur am schärfsten, wobei gerade dann Raumladungseffekte aufgrund der sehr kleinen Ionisationsraten vernachlässigbar sind. Der Grund für größere Unschärfen in Energiespektren von Doppelionisationen im Laserfeld dürfte in den Unterschieden der sich ähnelnden Ionisationsmechanismen zu finden sein. Das Herauslösen zweier Elektronen durch Laserfeldeinwirkung involviert mit an Sicherheit grenzender Wahrscheinlichkeit zumindest zwei Schritte, welche durch eine bestimmte Zeitspanne voneinander getrennt sind, wobei innerhalb dieses Zeitraums der internukleare Abstand und damit die freigesetzte kinetische Energie veränderlich ist. Im Gegensatz dazu ist bei einer Doppelionisation durch ein schnelles Elektron der zugrunde liegende Mechanismus noch nicht richtig geklärt und es können sowohl *Shake off* als auch TS1 für eine zweifache Ionisation verantwortlich gemacht werden. Beiden gemein ist mit hoher Wahrscheinlichkeit ein Verlassen beider Elektronen innerhalb weniger atomarer Zeiteinheiten ( $< 1$  fs), was einem wahren Franck-Condon-Prozeß entspricht. Unter diesen Bedingungen können Vibrationszustände beobachtet werden. Zusätzlich ist bekannt, daß Laserfelder die Zustände der Elektronen nicht unbeeinflusst lassen, wodurch Verschiebungen und diverse Kopplungen zustande kommen, was bei Elektronenbeschuß nicht gegeben ist.

Ein weiterer Beobachtungsversuch von Vibrationszuständen läge in einer ausgiebigen Messung im Rescattering-Regime bei einem möglichst kurzen Laserpuls und einem optimierten Spektrometer. Wie für den molekularen Wasserstoff gezeigt, können bei 8 fs Pulslänge die Doppelionisationsmechanismen auf die erste und dritte Rückkehr des Rescattering-Elektrons beschränkt werden und dadurch die Zeitvarianz zwischen beiden Ionisationen klein gehalten werden. Die optimiertesten Lasersysteme vergleichbarer Art erzeugen Pulse von etwa 4 fs. Bei der Verwendung eines solchen Pulses stünden die Chancen einer Auflösung von Vibrationszuständen, so sie denn überhaupt im Laserfeld möglich ist, noch besser.

### Veränderungen im O<sub>2</sub>-KER-Spektrum

Aus den Messungen mit einem etwa 35 fs langen Laserpuls geht hervor, daß sich mit steigender maximaler Intensität im Fokus, das KER-Spektrum dramatisch verändert (siehe z.B. Abb. 6.33), wobei die oben identifizierten Maxima verschwinden bzw. von einem einzigen überdeckt werden. Diese Beobachtung ist auf eine *Enhanced Ionisation* zurückzuführen, die ähnlich wie bei Wasserstoffmolekülen bei hohen Intensitäten ideale Bedingungen für die zweite Ionisation dissozierender einfachgeladener Ionen schafft.

Auch die Doppelionisation bei zirkularem Laserlicht bei Pulslängen um 35 fs ist auf *Enhanced Ionisation* (EI) zurückzuführen, da der Rescattering-Mechanismus im zirkulierenden Laserfeld ausscheidet. Genau wie beim Wasserstoffmolekül sind demnach RES und EI für die Doppelionisation von Sauerstoff bei 35 fs verantwortlich, wobei der jeweilige Ertrag abhängig von der Lichtintensität gewichtet ist. Die zu langsam ansteigenden Pulsflanken der einhüllenden Funktion der elektrischen Feldstärke macht eine schnelle sequentielle Ionisation (SI) sehr unwahrscheinlich.

Bei einem 8 fs langen Laserpuls ist die oben beschriebene dramatische Veränderung des KER-Spektrums nicht zu beobachten. Auch bei sehr großen Intensitäten oder zirkularer Polarisierung bleiben die unterschiedlichen Maxima bestehen, wenngleich sich deren relative Gewichtungen verändern. Das liegt in erster Linie daran, daß die EI aufgrund der zu kurzen Pulsdauer unterdrückt ist, was ebenfalls bereits am Wasserstoffmolekül gezeigt worden ist. Die molekulare Bewegung der beiden Kerne wird praktisch eingefroren, weshalb Coulomb-Explosionen zwar von verschiedenen Zuständen ausgehend, aber lediglich aus geringen Kernabständen möglich sind. Da jedoch auch mit zirkularer Polarisierung bei ausreichender Intensität Sauerstoffmoleküle zweifach ionisiert werden, muß es neben dem Rescattering-Prozeß noch einen weiteren Doppelionisationsmechanismus geben. Der wiederholte Vergleich zum Wasserstoffmolekül läßt auf eine schnelle sequentielle Ionisation schließen, die bei den gegebenen Bedingungen durch die steileren Pulsflanken möglich geworden ist. Obwohl in dieser Diplomarbeit nicht weiter auf die unterschiedlichen Gewichtungen der gefundenen Zustandspopulationen eingegangen wird, und daher diesen Betracht einmal außer Acht gelassen, ist es zunächst erstaunlich, daß die sequentielle Ionisation die gleichen Zustände zu bevölkern scheint, die bereits bei der Doppelionisation durch Rescattering besetzt worden sind.

In Abbildung 7.2 sind die drei identifizierten Ionisationsmechanismen nebeneinandergestellt skizziert und sollen im einzelnen noch etwas detaillierter betrachtet werden.

### Rescattering (RES)

Bei Intensitäten von  $1 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$  beträgt die vom Rescattering-Elektron zurückgetragene maximale Energie 20 eV und ist demnach für eine direkte zweite Ionisation aus dem Grundzustand des einfach geladenen Moleküls nicht ausreichend. Bereits

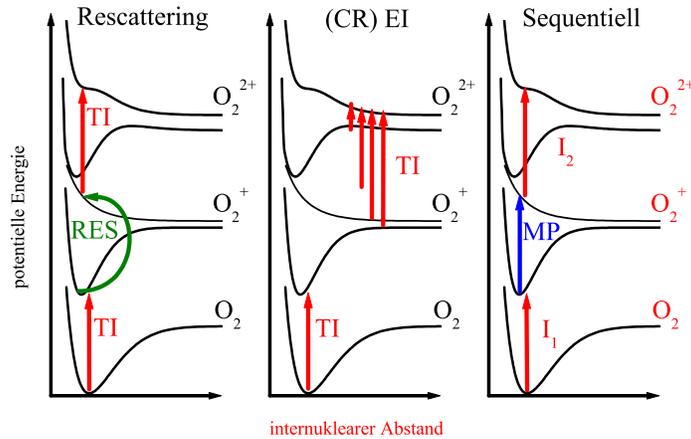


Abb. 7.2. Mögliche Mechanismen zur Doppelionisation von O<sub>2</sub>.

beim Wasserstoffmolekül ist beobachtet worden, daß eine in zwei Schritten erfolgende Zweitionisation sehr wahrscheinlich ist, wobei zunächst eine Anregung des molekularen Ions durch das Rescattering-Elektron erfolgt und sich die zweite Ionisation durch die Einwirkung des Laserfeldes rasch anschließt. Vom Grundzustand des neutralen Sauerstoffmoleküls wird folglich zunächst der (...)  $3\sigma_g^2 1\pi_u^4 1\pi_g^1 X^2\Pi_g$  Zustand durch eine Tunnelionisation (TI) des äußeren Elektrons gebildet (siehe auch Potentialkurven Abb. 2.16). Das wiederkehrende Rescattering-Elektron vermag durch einen inelastischen Stoß eines der in  $1\pi_u$ ,  $3\sigma_g$  oder  $1\pi_g$  gebundenen Elektronen in einen angeregten Zustand zu versetzen, wobei die oben durch (...) gekennzeichneten inneren Orbitale (KK, *Closed Shell*) außer Acht gelassen werden können. Die auf diese Weise erreichbaren Zustände, von denen ein unbestimmter repräsentativ in Abb. 7.2 skizziert ist, sind Ausgangspunkt der zweiten Ionisation, durch welche dann die verschiedenen Zustände des zweifach geladenen Sauerstoffmoleküls bevölkert werden, deren Coulomb-explodierende Fragmente die entsprechend gemessenen freigesetzten kinetischen Energien aufweisen.

### *Enhanced Ionisation (EI)*

Bei der EI wird bei einem bestimmten internuklearen Abstand eine zweite Ionisation sehr wahrscheinlich, so daß ein charakteristisches Maximum entsteht. Was im einzelnen bei den entsprechenden Molekülen geschieht, ist nicht eindeutig zu belegen. Es kann sich ebenso um eine langsamere sequentielle Ionisation handeln, die mit großer Wahrscheinlichkeit bei einem bestimmten internuklearen Abstand erfolgt. Eine weitere durchgeführte Untersuchung bei 100 fs Pulsdauer deutet an, daß ein weiteres Maximum bei sehr niedrigen Energien existiert, auf welches vielleicht besser die ursprüngliche Beschreibung einer *Charge Resonant Enhanced Ionisation* zutrifft, basierend auf Paaren von ladungsresonanten Zuständen. Zwar passen die beobachteten Winkelverteilungen (siehe unten) zu einem CREI-Prozeß, es ist jedoch einfacher von einer *Enhanced Ionisation* gesprochen, welche die beobachteten Eigenschaften, nämlich der wachsenden Dominanz bei steigenden Intensitäten und einer Unterdrückung bei kürzeren Pulsen, aufweist [20, 7].

### Sequentielle Ionisation (SI)

Im Gegensatz zum Wasserstoffmolekül kann doppelt ionisierter Sauerstoff metastabil gebunden bleiben, weshalb hier ein anregender Zwischenmechanismus notwendig erscheint. Dieser könnte durch die folgenden Mechanismen gegeben sein:

1. Nach einer ersten Ionisation liegt ein einfach ionisiertes Molekül im Grundzustand vor. Ein Multiphoton-Mechanismus (MP) versetzt anschließend das System in einen dissoziativen angeregten Zustand, von dem aus eine zweite Ionisation erfolgt (siehe Abb. 7.2).
2. Die Ionisation eines inneren Elektrons hinterläßt das auf diese Weise gebildete Sauerstoffion in einem angeregten Zustand, so daß nach der zweiten Ionisation das System Coulomb-explodiert.

Letztendlich ist nicht klar zu sagen, ob der schnellen sequentiellen Ionisation und der EI nicht prinzipiell derselbe Mechanismus zugrunde liegt und lediglich eine verkürzte Pulsdauer und damit das Einfrieren der Molekülbewegung die unterschiedlichen Spektren verursacht.

### Stabilität des N<sub>2</sub>-KER-Spektrums

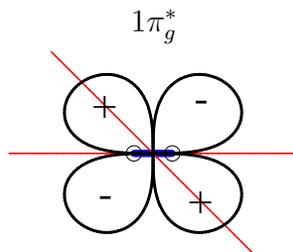
Wie die Messungen ergeben, unterliegt das KER-Spektrum von Stickstoff bei weitem nicht so großen Veränderungen wie das von Sauerstoff, was sich zum Teil auch durch Messungen von Ph. Hering bestätigt [22]. Das könnte daran liegen, daß der internukleare Abstand im Gleichgewicht des einfach ionisierten Sauerstoffs etwas kleiner ist als der des neutralen Moleküls und im Gegensatz dazu dieser Unterschied beim Stickstoff wesentlich geringer ausfällt. Das liegt daran, daß beim Lösen der antibindenden Elektronenkonfiguration im Sauerstoff die anziehenden Kernkräfte größer werden, wodurch ein Wellenpaket geformt wird, welches sich mit einer Periode von etwa 18 fs im Molekül ausdehnt. Aufgrund des geringen Gleichgewichtsabstandes der beiden Stickstoffkerne im neutralen bzw. einfach ionisierten Molekül wäre es möglich, daß das bei der Ionisation geformte Wellenpaket beinahe stationär ist und die internukleare Distanz daher fast konstant bleibt. Wie auch immer dann die zweite Ionisation erfolgt, der Ausgangspunkt bleibt weitgehend unverändert und es scheint zwei prädestinierte Ionisationswege zu geben, die für die beiden Hauptmaxima im KER-Spektrum von Stickstoff verantwortlich sind.

#### 7.1.2 Orientierungseffekte

Der direkte Vergleich von absoluten Einfach- und Doppelionisationsraten zwischen Stickstoff und Sauerstoff zeigte bereits Unterschiede, deren Ursache auf orbitale Strukturunterschiede hindeutet [21], wobei in diesem Zusammenhang oft eine Suppression der Ionisation von Sauerstoff beobachtet worden ist. Auch untersuchte Dissoziationen von metastabilen doppelionisierten Sauerstoff- und Stickstoffmolekülen lassen auf wirksame Molekülstrukturunterschiede bei NS-Ionisationen schließen [19].

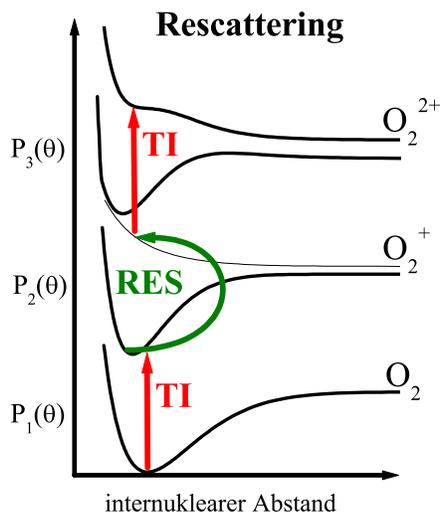
Auffälligste Beobachtung bei den gemessenen Winkelverteilungen ist die erhöhte Ionisationswahrscheinlichkeit für Sauerstoffmoleküle im Rescattering-Regime für Molekülachsenorientierungen mit 40° Neigung zur Laserpolarisationsachse bei 8 fs Pulslänge. Da es sich bei niedrigen Intensitäten vornehmlich um Ionisationen aus dem äußeren Orbital handelt, sind diese für O<sub>2</sub> noch einmal in Abb. 7.3 skizziert.

Die internukleare Achse ist blau, die Laserpolarisationsachse bei linearem Licht rot dargestellt. Es hat den Anschein, als könnten Moleküle, deren Achse um 45° gegenüber der Laserpolarisationsachse geneigt ist, besser mit einem als Dipol approximierten Laserfeld wechselwirken also solche, deren Achse parallel zur Polarisation ausgerichtet ist. Theoretische Berechnungen, basierend auf modifizierten



**Abb. 7.3.** Äußeres Orbital für Sauerstoff im Grundzustand

ADK-Modellen [37] und Vorstellungen über destruktiv interferierende Wellenteile des den Zwei-Zentren-Molekülverband verlassenden Elektrons [17], sagen eine starke Abhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit von Orbitalsymmetrien voraus. Es kann davon ausgegangen werden, daß genau dieser Effekt hier beobachtet wurde und in gewisser Weise die Orbitalstruktur selbst zu erkennen ist, obwohl die Meßresultate Verteilungen der Doppelionisation widerspiegeln. Genau genommen wird nämlich nicht die Winkelabhängigkeit der ersten Ionisation dargestellt, sondern das Resultat als Produkt dreier Prozesse, was wiederholt in Abbildung 7.4 zu erkennen ist.

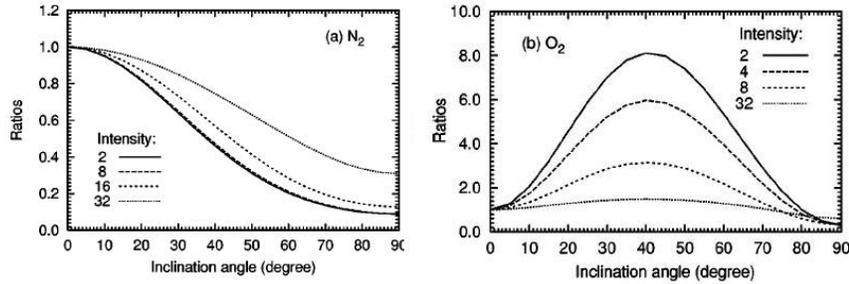


**Abb. 7.4.** Die drei Teilschritte eines Rescattering-Doppelionisationsmechanismus sind jeweils von winkelabhängigen Funktionen ( $P_1$ ,  $P_2$  und  $P_3$ ) abhängig.

Jeder Teilschritt auf dem Weg zur Doppelionisation durch einen Rescattering-Prozeß ist mit einer winkelabhängigen Funktion  $P(\theta)$  behaftet und trägt am Ende zur Gesamtverteilung bei. Letztendlich kann nicht ausgeschlossen werden, daß beispielsweise der Rescattering-Prozeß ( $P_2(\theta)$ ) bei Sauerstoff für Molekülausrichtungen parallel zum Laserfeld unmöglich wird und dadurch ein Minimum in der Verteilung bei kleinen Winkeln entsteht.

Es zeigt sich jedoch eine Übereinstimmung der gemessenen Winkelverteilungen von doppelionisierten Stickstoff und Sauerstoff im Rescattering-Regime mit theoretischen Berechnungen von winkelabhängigen Einfachionisationen, wie sie in Abbildung 7.5 dargestellt sind. Während der Stickstoff bei Ausrichtung der Molekülachse entlang der Laserpolarisation am einfachsten ionisiert wird [41, 24], maximiert sich

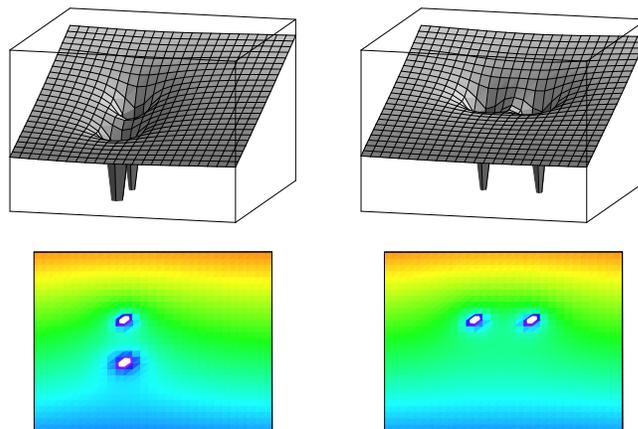
die Ionisationswahrscheinlichkeit für den Sauerstoff bei Neigungen der Molekülachse von ungefähr  $40^\circ$  gegenüber der Polarisationsrichtung des Laserfeldes.



**Abb. 7.5.** Berechnete Ionisationsraten der Einfachionisation von Stickstoff und Sauerstoff in Abhängigkeit des Winkels  $\theta$ . Die maximale Intensität ist in Einheiten von  $10^{13} \text{ W cm}^{-2}$  angegeben. Entnommen aus [41]

Der Vergleich mit Untersuchungen am Wasserstoffmolekül zeigt eine in erster Näherung isotrope Winkelverteilung der Doppelionisationen durch Rescattering. Korrelationsuntersuchungen an Elektronenimpulsen von Eremina et al. [15] zeigten, daß die orbitalen Symmetrieunterschiede zwischen Stickstoff und Sauerstoff bei Rescattering-Doppelionisationen eine große Auswirkung auf Impulskorrelationen aufweisen und sich dabei im Vergleich zu Einfachionisationen als um so bedeutender erweisen.

Mit steigender Intensität ändern sich auch die Winkelverteilungen, bis sie im Regime der *Enhanced Ionisation* sehr stark entlang der Polarisationsachse orientiert sind. Diese Beobachtung ist darauf zurückzuführen, daß bei der EI das elektrische Feld entlang der molekularen Achse wirken muß, um dem zweiten Elektron die Ionisation zu erleichtern. In Abbildung 7.6 ist der Versuch unternommen worden, diese Gegebenheit zu verbildlichen, indem ein einfaches zweidimensionales Modell zweier unendlich tiefer Coulomb-Potentiale im statischen elektrischen Feld dargestellt ist. Liegt die molekulare Achse senkrecht zur Polarisationsrichtung (rechts), so eröffnet



**Abb. 7.6.** *Enhanced Ionisation* (EI) ist nur bei Molekülachsenausrichtungen entlang der Laserpolarisation (links) wirksam. Steht die internukleare Achse senkrecht zur linearen Polarisation (rechts), so senkt zwar das zweite Kernpotential die gemeinschaftliche Barriere, nicht aber die zum Verlassen des gemeinschaftlichen Potentials. Die unteren Bilder entsprechen einer Aufsicht des entsprechenden oberen Bildes.

zwar die herabgesetzte Barriere zwischen den Kernen Aufenthaltswahrscheinlichkeiten in beiden Potentialtrichtern, nicht aber außerhalb des gemeinschaftlichen Potentials (vergleiche auch mit Abb. 2.7).

Eine andere wichtige Beobachtung ist die leicht erhöhte Doppelionisationswahrscheinlichkeit bei senkrecht zur Polarisationsachse orientierten Sauerstoffmolekülen in 8 fs langen Laserpulsen ausreichender Intensität. Auch bei diesem Effekt handelt es sich um das Produkt verschiedener Teilschritte, die zusammengekommen das kleine Nebenmaximum um  $90^\circ$  verursachen. Trotz zahlreicher Diskussionen bleibt dieser Effekt weitgehend unverstanden. Anzumerken ist, daß das  $1\pi_u$ -Orbital einem um  $90^\circ$  gedrehten  $3\sigma_g$ -Orbital ähnelt (vergleiche Abb. 2.14), was im Zusammenhang mit dieser Beobachtung stehen könnte. Jedoch ist im Grundzustand des Stickstoffs ebenfalls das  $3\pi_u$ -Orbital vierfach besetzt, wobei dort von einem  $90^\circ$ -Effekt bislang keine Spur zu sehen ist. Bei starken Laserfeldern ist hingegen auch davon auszugehen, daß die Orbitalstrukturen verzerrt und Argumentationen dadurch zunehmend schwieriger werden.

### Laserinduzierte Molekülausrichtung

Bislang sind Ergebnisse so dargestellt worden, als wenn die Ausrichtung von Molekülen über den Zeitraum eines Laserpulses unverändert bleibt. Zwar besitzen diatomare homonukleare Moleküle kein permanentes Dipolmoment, können jedoch von angreifenden Laserfeldern polarisiert werden, so daß ein induziertes Dipolmoment wirksam werden kann. Daraus resultiert die Möglichkeit einer aktiven Drehung des Moleküls im Laserfeld vor und nach einer ersten Ionisation, wobei mit steigender Ladung des molekularen Ions auch der Grad der Drehbarkeit zunimmt [30].

Beim Vergleich der Winkelverteilungen für Sauerstoff im Rescattering-Regime bei 35 fs und 8 fs zeigt sich eine schmalere Verteilung im längeren Puls. Dies könnte eventuell auf aktive Drehungen während der langsam ansteigenden Pulsflanken des 35 fs-Pulses zurückzuführen sein und ließe sich durch weitere Untersuchungen bei unterschiedlichen Pulsdauern verifizieren oder falsifizieren. Miyazaki et al. stellte beispielsweise fest, daß für Intensitäten kleiner als  $10^{15} \text{ W cm}^{-2}$  Molekülausrichtungen vernachlässigbar seien [30].

Das Phänomen der aktiven Moleküldrehungen durch Laserpulse wird teilweise zur Ausrichtung von Molekülen genutzt, wobei zunächst ein schwächerer Puls diese Aufgabe übernimmt und gefolgt von einem intensiveren Puls können die ausgerichteten Moleküle untersucht werden (*pump probe*). Durch vergleichsweise lange Laserpulse (Picosekunden) lassen sich beispielsweise Pendelzustände von Molekülen erzeugen, wohingegen kurze Pulse sogenannte *rotational wave packets* entstehen lassen, bei denen eine kohärente Überlagerung von Rotationszuständen des Moleküls eine starke zeitlich periodisch wiederkehrende Ausrichtung der Molekülachse zur Folge hat. P. W. Dooley untersuchte beispielsweise solche *rotational wave packets* an Stickstoff und Sauerstoff [14, 27], wobei ein 45 fs langer Puls zur ihrer Erzeugung verwendet wurde. Anschließend ist die zeitliche Entwicklung der Moleküle über den Zeitraum von mehreren Picosekunden verfolgt worden.

Bei der Verwendung von Laserpulsen mit einer Dauer von lediglich 8 fs sollten dagegen keine aktiven Moleküldrehungen über den Zeitraum dieses Pulses zu erwarten sein, so daß bei den durchgeführten Experimenten die Annahme der Betrachtung von Momentaufnahmen verschieden ausgerichteter Moleküle gerechtfertigt zu sein scheint.

## 7.2 Fehlerbetrachtung

Quellen für systematische Fehler liegen in den Kalibrierungen der Flugzeiten, des Ortsspektrums, der Flugdistanz und des elektrischen Extraktionsfeldes sowie in der eingeschränkten Multihitfähigkeit der Detektoren für kurze Flugzeitdifferenzen. Problematisch äußert sich dies in der Tatsache, daß die vorgestellten Resultate nicht auf unmittelbar aufeinander folgenden Messungen basieren, sondern durch viele einzelne Messreihen über Monate verteilt bei unterschiedlichen Versuchsparametern gewonnen wurden. Das bedeutet, daß sich einige Kalibrierungen voneinander unterscheiden können und dadurch eventuelle systematische Fehler nicht in gleicher Weise auf die einzelnen Messungen wirken.

### Impulsfehler

Zur Abschätzung des Gesamtfehlers der gemessenen Impulse wird exemplarisch der in Kapitel 5.1 angegebene Fehler von  $\pm 2$  ns für die Flugzeitkalibration angenommen, so daß die Flugzeit  $t_1$  mit einer Unsicherheit  $\Delta t_1$  behaftet ist. Zur Ermittlung der Positionsunsicherheit auf der Detektorfläche wird zunächst die Umrechnung von den Zeitsignalen in Positionen betrachtet

$$r_{x,y} = C_{x,y}(t_{x,y} - t_{0_{x,y}}),$$

wobei  $C_{x,y}$  den Skalierungsfaktor zur Umrechnung der Zeitsignale  $t_x$  und  $t_y$  in Positionen  $r_x$  und  $r_y$  auf dem Detektor darstellt und  $t_{0_{x,y}}$  die Kalibration des Ortsnullpunktes repräsentiert. Der Fehler für die x- bzw. y-Richtung ergibt sich als

$$\begin{aligned} \Delta r_{x,y} &= \sqrt{((t_{x,y} - t_{0_{x,y}})\Delta C_{x,y})^2 + (C_{x,y} \Delta t_{0_{x,y}})^2} \\ &= \sqrt{\left(\frac{r_{x,y}}{C_{x,y}} \Delta C_{x,y}\right)^2 + (C_{x,y} \Delta t_{0_{x,y}})^2}. \end{aligned}$$

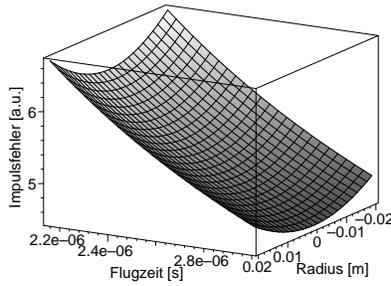
Die Unsicherheit für  $\Delta C_{x,y}$  wird relativ mit 2% angenommen und  $\Delta t_{0_{x,y}}$  mit  $\pm 2$  ns abgeschätzt. Bei der Berechnung der Impulse (Gl. 5.13)

$$\begin{aligned} p_{x,y} &= m \frac{r_{x,y}}{t_1} \\ p_z &= -m \frac{D_0}{t_1} + \frac{q E}{2} t_1 \end{aligned}$$

pflanzen sich diese Fehler fort, und es gilt

$$\begin{aligned} \Delta p_{x,y} &= \sqrt{\left(\frac{m}{t_1} \Delta r_{x,y}\right)^2 + \left(\frac{m r_{x,y}}{t_1^2} \Delta t_1\right)^2} \\ \Delta p_z &= \sqrt{\left(\frac{m D_0}{t_1^2} + \frac{q E}{2}\right)^2} \Delta t^2. \end{aligned}$$

Ohne die Unsicherheiten für die Flugdistanz  $D_0$  und das elektrische Extraktionsfeld  $E$  zu berücksichtigen, folgen für den Fehler des Impulsbetrages  $\Delta|\vec{p}| = \sqrt{\Delta p_x^2 + \Delta p_y^2 + \Delta p_z^2}$  mit einem Extraktionsfeld  $E = 2760 \text{ V m}^{-1}$ , einer Flugdistanz  $D_0 = 0.053 \text{ m}$ , einem Skalierungsfaktor  $C_{x,y} = 0.5 \cdot 10^6 \text{ m s}^{-1}$  mit Fehler  $\Delta C_x = \Delta C_y = 0.02 C_{x,y}$  und der Flugzeitkalibrationsungewissheit  $\Delta t_{0_{x,y}} = 2 \cdot 10^{-9} \text{ s}$  die in Abbildung 7.7 graphisch dargestellten Werte. Dabei ist angenommen, daß dopplionisierte Sauerstoffmoleküle mit einer um  $45^\circ$  geneigten Achse gegenüber der Laserpolarisation Coulomb-explodieren. Da ein typischer Impulsbetrag eines Fragments in der Größenordnung 200 a.u. liegt, beläuft sich der so abgeschätzte relative Fehler auf wenige Prozente.



**Abb. 7.7.** Impulsfehler für einfach geladene  $O_2$ -Fragmente, deren Flugzeiten nach einer Coulomb-Explosion unter einer Neigung der Molekül- zur Spektrometerachse um  $45^\circ$  Energiesummen zwischen 4 eV und 14 eV entsprechen.

### Zählrate

Eine Schwierigkeit beim Vergleichen von Resultaten durch Messungen mit unterschiedlichen Intensitäten besteht in der variierenden Zählrate. Die Zählrate gibt die Anzahl aller Detektorereignisse pro Zeiteinheit an. Üblicherweise wird als Zeiteinheit die Sekunde gewählt und ein an das Micro-Channel-Plate (MCP) angeschlossener Zähler (siehe Abb. 3.7 *counter*) liefert dann die Zählrate. Da sich bei der Benutzung des Überschall-Gas-Jets seine Dichte nicht wesentlich variieren läßt, steigt bei hohen Intensitäten die Zählrate stark an, was zunächst unproblematisch erscheint, da den Messungen ein *multi hit*-fähiger TDC (*time to digital converter*) zugrunde liegt. Sollen jedoch alle gespeicherten Ereignisse ausgewertet werden, so ist eine Rekonstruktion der sich vermischenden Treffersignale erforderlich, wobei Vermischungen immer dann auftreten, wenn auf dem Weg der Signale eines Treffers durch die Delay-Line-Anoden ein weiterer Treffer zusätzliche Signale auslöst. Klar ist, daß mit steigender Zählrate eine solche Rekonstruktion zunehmend aufwendiger wird, da ein rekonstruierendes Computerprogramm alle möglichen Zeitsignale miteinander vergleichen muß, um über Zeitsummen die richtigen Signalpaare herausfiltern zu können. Es zeigt sich beim Vergleich zwischen einer auf den ersten zwei Ereignissen und einer auf einem rekonstruierten Datensatz beruhenden Analyse, daß bei hohen Zählraten im Falle des rekonstruierten Datensatzes die Winkelverteilungen wesentlich enger um die Polarisationsachse orientiert sind. Auf den ersten Blick erscheint dieser Effekt beinahe zwingend, denn die Flugzeiten beider Fragmente unterscheiden sich bei einer Explosion eines Moleküls, dessen internukleare Achse mit der des Spektrometers zusammenfällt, maximal, wodurch einer auf lediglich den ersten beiden Ereignissen beruhenden Analyse mit größerer Wahrscheinlichkeit solche Ereignisse verlorengelangen.

Um die Bewertung dieses Effekts besser einschätzen zu können, ohne dabei in die größten Tiefen der Computerprogramme vordringen zu müssen, bietet sich eine Vergleichsmessung an, bei der die Vakuumkammer mit dem entsprechenden Gas geflutet wird, wobei über den Druck in der Kammer auch die Dichte im Laserfokus und letztendlich die Zählrate kontrolliert werden kann. Es zeigt sich dabei eine breitere Winkelverteilung, so daß es den Anschein hat, daß die benutzte Rekonstruktion winkelabhängige Fehler verursacht, was einen Vergleich von Messungen bei unterschiedlichen Zählraten fragwürdig erscheinen läßt. Daher sind die hier präsentierten Resultate bei höheren Intensitäten durch Untersuchungen an der gefluteten Kammer gewonnen worden. Lediglich für niedrige und teils moderate Intensitäten ( $< 5 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ) ist ein kaltes Target verwendet worden, so daß die Zählrate einen gewissen Wert nicht überschreitet, um die vorliegenden Ergebnisse vertrauenswürdig zu halten.

Eine andere Möglichkeit, die Zählrate zu kontrollieren, ohne dabei durch das Fluten der Kammer auf ein warmes und diffuses Target zurückgreifen zu müssen, besteht in der Verdünnung des Gasstrahls. Das kann wie bei dieser Versuchsanordnung beispielsweise durch über Mikrometerschrauben bewegliche Blenden geschehen, welche sich innerhalb der dritten differentiellen Pumpstufe befinden und kontrolliert in den Gasstrahl geführt werden können. Mit steigender Intensität muß dann der Gasstrahl zunehmend verdünnt werden, so daß die Zählrate einigermaßen konstant bleibt. Problematisch ist dabei der Volumenzuwachs des Laserfokus einerseits und der sich ändernde Gasstrahl andererseits und es kann leicht passieren, daß der Gasstrahl die größte Intensität im Fokus verpaßt, was eine Bestimmung der Intensität teilweise unmöglich macht. Wird allerdings von Beginn an auf einen sehr dünnen Gasstrahl zurückgegriffen, welcher im Querschnitt mit den Fokusdimensionen bei niedrigen Intensitäten vergleichbar ist, so trägt der Volumenzuwachs bei großen Intensitäten nicht weiter zum Gesamtertrag bei, da schon bei moderaten Intensitäten praktisch alle pro Laserpuls zur Verfügung stehenden Moleküle im Gasstrahl ionisiert werden. Eine solche Versuchsanordnung erfordert jedoch eine absolut zuverlässige und exakt kontrollierbare Montierung des in der Kammer befindlichen fokussierenden Spiegels, um die Kreuzung beider Strahlen im Mikrometerbereich zu gewährleisten. Bei dem benutzten Versuchsaufbau waren diese Voraussetzungen nicht gegeben, so daß ein etwa zwei Millimeter im Querschnitt betragender Gasstrahl verwendet worden ist.

### Detektionseffizienz

Nicht alle erzeugten und extrahierten Ionen sind auch imstande, eine nachweisliche Elektronenlawine im Detektor zu erzeugen. Die Detektionseffizienz gibt an, wieviel Prozent aller durch Laserpulse entstandenen geladenen Partikel im zeitlichen Mittel auch detektiert werden. Ein Grund der möglichen Verhinderung einer Detektion ist zum Beispiel gegeben, wenn ein Ion nicht in einen *Micro-Channel* gerät, sondern auf dem Gerüst zwischen den Kanälen landet. Auch trägt der Impuls eines Teilchens zur Detektionswahrscheinlichkeit bei, so daß im weiteren Sinne die Detektionseffizienz massenabhängig wird. Da jedoch bei den durchgeführten Experimenten die Ermittlung von absoluten Ionisationsraten nicht ausschlaggebend ist, zeigt sich die Detektionseffizienz als weniger bedeutungsvoll.

Angenommen, und durch Versuche an einem älteren Aufbau belegt, ist im schlechtesten Falle eine Detektionseffizienz von etwa 10%. Unter optimaleren Bedingungen können aber auch Effizienzen von etwa 40% erreicht werden.

### Raumladungseffekte

Raumladungen können entstehen, wenn ein Vielzahl von Teilchen in der Fokusumgebung gleichzeitig ionisiert wird. Durch das angelegte elektrische Extraktionsfeld werden zwar schnell alle geladenen Teilchen aus der Fokusumgebung wegbefördert, die für einen kurzen Zeitraum dort bestehende Ladungswolke kann jedoch Einfluß auf die Energie der untersuchten Coulomb-explodierten Fragmente nehmen. Je größer die Zählrate bei einem Versuch ist, desto mehr Ladungen werden pro Laserpuls erzeugt und umso größer fallen Effekte durch Raumladungen ins Gewicht. Wie bereits erwähnt, sind meist hohe Zählraten durch das Fluten der Vakuumkammer vermieden worden, es soll jedoch eine kleine Abschätzung zum maximal durch Raumladungseffekte verursachten Fehler gemacht werden.

Angenommen, es werden bis zu 1000 einfach geladene Ionen pro Puls erzeugt, was bei 1000 Laserpulsen pro Sekunde und einer Detektionseffizienz von 10% einer Zählrate von 10 000 entspricht, wenn 10 Ereignisse pro Puls registriert werden. Bei einer gleichmäßigen Verteilung dieser Ionen innerhalb des kugelförmig angenom-

menen fokalen Volumens (etwa  $0.1 \text{ mm}^3$  bei  $2 \cdot 10^{15} \text{ W cm}^{-2}$ ), beträgt der mittlere Abstand zweier Ladungen etwa  $100 \text{ }\mu\text{m}$ . Nach dem Durchqueren der Raumladungswolke erfahren zwei Coulomb-explodierte Fragmente zusammengenommen ein zusätzliches abstoßendes Potential von etwa

$$V [\text{eV}] = 2 \frac{e}{4\pi\epsilon_0} \frac{1000 e}{r} = 6.2 \text{ meV},$$

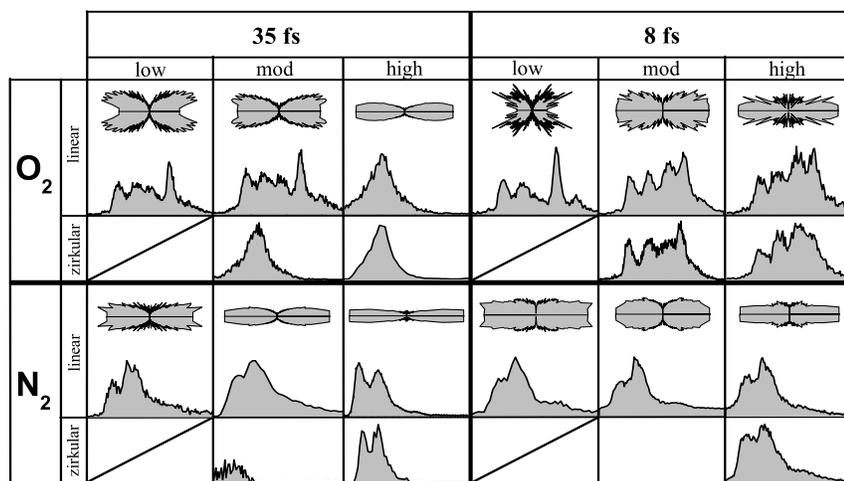
wobei der Abstand  $r$  mit dem Radius des fokalen Kugelvolumens ( $500 \text{ }\mu\text{m}$ ) abgeschätzt worden ist. Ein Fehler dieser Größenordnung ist für die hier durchgeführten Betrachtungen vernachlässigbar, könnte sich jedoch beispielsweise bei der Suche nach Vibrationszuständen als Hürde erweisen, wobei eine realistische Suche Zählraten in der Größenordnung von 10 000 bereits ausschließt.

# Kapitel 8

## Zusammenfassung

In der vorliegenden Arbeit wurde die Doppelionisation von Wasserstoff, Sauerstoff und Stickstoff in kurzen und intensiven Laserpulsen untersucht. Die Methode der COLTRIMS lieferte dabei den gesamten Impuls koinzidierender Coulomb-Explosionsfragmente, wodurch die Spektren der freigesetzten kinetischen Energie (KER) und die dazugehörigen Winkelverteilungen abgeleitet worden sind. Die hochauflösenden Spektren der durch Doppelionisation in Laserfeldern freigesetzten kinetischen Energie sind zuvor nicht beobachtet worden. Sie zeigen Übereinstimmungen mit denen, die aus Experimenten durch Beschuß von schnellen Elektronen resultieren und es konnte daher eine Zuordnung der verschiedenen Maxima zu bevölkerten Zuständen der zweifach geladenen Ionen getroffen werden.

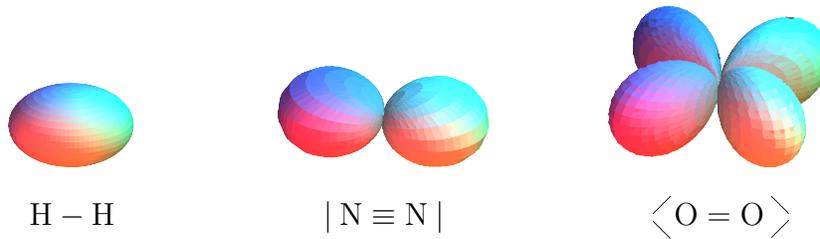
Weiterhin konnte gezeigt werden, daß bei niedrigen Intensitäten die nicht-sequentielle (NS) Ionisation die untersuchten Moleküle am effektivsten doppelionisiert, wobei sich hier orbitale Symmetrieunterschiede am einflußreichsten zeigen. Bei größeren Intensitäten dominiert im Gegensatz dazu die sequentielle Ionisation (SI). Ihre Mechanismen reagieren am empfindlichsten auf Unterschiede bezüglich der Laserpulslänge (zwischen 8 fs und 35 fs). Beim Sauerstoff zeigt sich, daß die dem Auflösen der Doppelionisationszustände zugeordneten Merkmale des KER-Spektrums mit steigender Intensität bei längeren Pulsen langsam verwaschen, bis lediglich ein einzelnes Maximum übrigbleibt. Diese Beobachtung ist auf die erhöhte



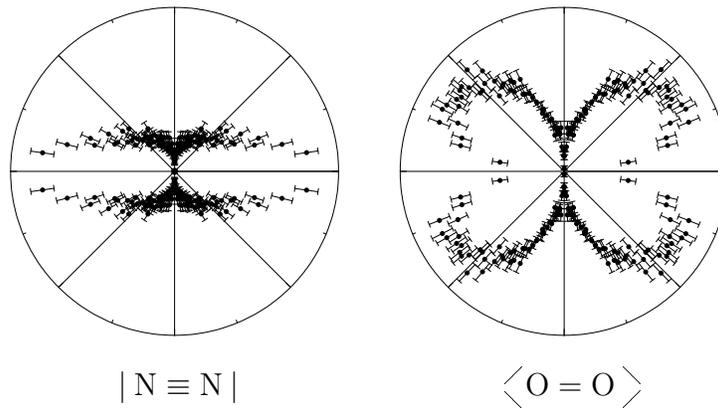
Zeitverzögerung zwischen den beiden sequentiellen Ionisationsschritten zurückzuführen, was im Zusammenhang mit einem bestimmten internuklearen Abstand steht,

für den eine verstärkte Doppelsonisationswahrscheinlichkeit auftritt. Dieser Zusammenhang ist durch Untersuchungen an kürzeren Pulsen gleicher Intensität getestet worden. Dieses Eindämmen der Zeitverzögerungen zwischen den beiden sequentiellen Ionisationen, bewirkt eine Unterdrückung der vorherigen Beobachtungen, so daß die Struktur des KER-Spektrums zurückgewonnen wird. Die molekularen Bewegungen der beiden Kerne werden dabei praktisch eingefroren.

Da zu diesem Zeitpunkt keine vergleichbaren Meßresultate publiziert sind, werden oftmals zum Vergleich Ergebnisse des molekularen Wasserstoffs herangezogen, welche durch eigene Messungen gleichzeitig reproduziert worden sind. Durch eine Vielzahl einzelner Meßreihen ist ein Gesamtbild über die Auswirkungen von ultrakurzen, hochintensiven Laserpulsen auf Stickstoff und Sauerstoff erstellt worden, welches in dieser Form bislang nicht vorlag. Orientierungseffekte bei der Doppelsonisation der kleinen Moleküle Stickstoff und Sauerstoff erweisen sich als hilfreich bei Argumentationen bezüglich verschiedener Ionisationsmechanismen, und dies besonders im Regime der nicht-sequentiellen Ionisation, wo Symmetrieunterschiede der äußeren Orbitale eine wichtige Rolle bei den betreffenden Doppelsonisationsprozessen spielen.



Wenn auch, wie bei jedem Vorstoß in Neuland, viele neue Fragen unbeantwortet bleiben, so ist zumindest eine teilweise detaillierte Grundlage für weiterführende Untersuchungen geschaffen.



**Abb. 8.1.** Beispiele der zuletzt erzielten Ergebnisse (Maximum a bzw. A) [3].

# Anhang A

## Glossar

<i>AC</i>	Alternating Current (Wechselstrom)
<i>ADC</i>	Analog to Digital Converter
<i>ADK</i>	Ammosov, Delone und Krainov (Kapitel 2.1.2)
<i>ATI</i>	Above Threshold Ionisation (Kapitel 2.1.1)
<i>BS</i>	Bond Softening (Kapitel 2.4.1)
<i>ca</i>	Catcher (Jet-dump)
<i>CFD</i>	Constant Fraction Diskriminator (Signal-Rausch-Trennung, Umwandlung in NIM-Pulse)
<i>COLTRIMS</i>	COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy
<i>(CR)EI</i>	(Charged Resonant) Enhanced Ionisation (Kapitel 2.3.1)
<i>CPA</i>	Chirped Pulse Amplification (Verstärkungsprinzip für Laserpulse)
<i>CW</i>	Continuous-Wave
<i>DC</i>	Direct Current (Gleichstrom)
<i>DLA 800</i>	Differenzverstärker der Anodensignale
<i>HHG</i>	High Harmonic Generation (Kapitel 2.4.2)
<i>IG</i>	Ion-Gauge (Vakuum-Meßzelle)
<i>KF</i>	Kühlfalle
<i>KLS</i>	Kansas Light Source (das Titan-Saphir Lasersystem)
<i>LASER</i>	Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation
<i>MCP</i>	Micro-Channel-Plate (Teil des Detektors)
<i>MPI</i>	Multiphoton Ionisation (Kapitel 2.1)
<i>NIM</i>	Nuclear Instrumentation Method (standardisierte elektr. Signale)
<i>NS</i>	nicht-sequentielle Ionisation ( <i>non-sequential</i> , Kapitel 2.3.2)
<i>OBI</i>	Over Barrier Ionisation (Kapitel 2.1.2)
<i>QMS</i>	Quadropol-Massenspektrometer
<i>RES</i>	Rescattering-Ionisationsmechanismus (Recollision, Kapitel 2.3.2)
<i>SCA</i>	Single Channel Analyser
<i>SI</i>	sequentielle Ionisation (Kapitel 2.3.1)
<i>TAC</i>	Time to Amplitude Converter
<i>TDC</i>	Time to Digital Converter
<i>TI</i>	Tunnelionisation (Kapitel 2.1.2)
<i>TS1</i>	Two Step One-Ionisationsmechanismus (Kapitel 2.3.2)
<i>V1</i>	elektro-pneumatisches Ventil zum Trennen zweier Vakuumbereiche
<i>V2</i>	Nadelventil zum kontrollierten Fluten der Vakuumkammer



# Literaturverzeichnis

- [1] A. Alnaser, T. Osipov, M. Benis, A. Wech, E. Edgu-Fry, C. L. Cocke, X. M. Tong, and C. D. Lin, *Rescattering double ionization of  $d_2$  and  $h_2$  by intense laser pulses*, Phys. Rev. Lett. (2003).
- [2] A. S. Alnaser, X. M. Tong, T. Osipov, S. Voss, C. M. Maharjan, B. Shan, and C. L. Cocke, *Laser-peak-intensity calibration using recoil-ion momentum imaging*, Phys. Rev. A (2004), submitted.
- [3] A. S. Alnaser, S. Voss, X. M. Tong, C. M. Maharjan, P. Ranitovic, B. Ulrich, T. Osipov, B. Shan, Z. Chan, and C. L. Cocke, *Effects of molecular structure on ion disintegration patterns in ionization of  $o_2$  and  $n_2$  by short laser pulses*, Phys. Rev. Lett. (2004), submitted.
- [4] M. V. Ammosov, N. B. Delone, and V. P. Krainov, *Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field*, Zh. Eksp. Teor. Fiz. **91** (1986), 2008–2013, [Sov. Phys. JETP 64,1191 (1986)].
- [5] Andre Bandrauk and Hui Zhong Lu, *Enhanced ionization of the molecular ion  $h_2^+$  in intense laser and static magnetic fields*, Phys. Rev. A **62** (2000), 053406.
- [6] Andre D. Bandrauk and Jonathan Ruel, *Charge-resonance-enhanced ionization of molecular ions in intense laser pulses: Geometric and orientation effects*, Phys. Rev. A **59** (1999), 2153.
- [7] S. Banerjee, G. Ravindra Kumar, and D. Mathur, *Multiple ionization of  $n_2$  in intense, linearly and circularly polarized light fields*, Phys. Rev. A **60** (1999), no. 1, R25–R28.
- [8] B. H. Bransden and C. J. Joachain, *Physics of atoms and molecules*, Prentice Hall, 2003.
- [9] K. Burnett, V.C. Reed, and P.L. Knight, J.Phys.B **26** (1993), 561.
- [10] P. B. Corkum, *Plasma perspective on strong-field multiphoton ionization*, Phys. Rev. Lett. **71** (1993), 1994–1997.
- [11] N. B. Delone and V. P. Krainov, Physics-Uspokhi **41** (1998), 469–485.
- [12] R. Doerner, V. Mergel, O. Jagutzki, L. Spielberger, J. Ulrich, R. Moshhammer, and H. Schmidt-Boecking., Phys. Rep. **330** (2000), 95.
- [13] T.D. Donnelly and C.H. Grossman, *Ultrafast phenomena: A laboratory experience for undergraduates*, Am. J. Phys. **66** (1998), 677.
- [14] P.W. Dooley, I. V. Litvinyuk, Kevin F. Lee, D. M. Rayner, M. Spanner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Direct imaging of rotational wave-packet dynamics of diatomic molecules*, Phys. Rev. A **68** (2003), no. 023406.
- [15] E. Eremina, X. Liu, H. Rottke, W. Sandner, M. G. Schätzel, A. Dreischuh, G. G. Paulus, H. Walther, R. Moshhammer, and J. Ullrich, *Influence of molecular structure on double ionization of  $n_2$  and  $o_2$  by high intensity ultrashort laser pulses*, Phys. Rev. Lett. **92** (2004), no. 17, 173001.
- [16] U. Eichmann et al., Phys. Rev. Lett. **84** (2000), 3550.
- [17] F. Grasbon, G. G. Paulus, S. L. Chin, H. Walther, J. Muth-Bhm, A. Becker, and F. H. M. Faisal, *Signatures of symmetry-induced quantum-interference effects observed in above-threshold-ionization spectra of molecules*, Phys. Rev. A **65** (2001), 041402(R).

- [18] S. Guerin, F. Monti, J.-M. Dupont, and H.R. Jauslin, *J.Phys.A* **30** (1997), 7193.
- [19] C. Guo, *Multielectron effects on single-electron strong field ionization*, *Phys. Rev. Lett.* **85** (2000), no. 11, 2276–2279, try to explain the suppression but I do not buy his argument.
- [20] C. Guo and G. N. Gibson, *Ellipticity effects on single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields*, *Phys. Rev. A* **63** (2001), 040701.
- [21] C. Guo, M. Li, J. P. Nibarger, and G. N. Gibson, *Single and double ionization of diatomic molecules in strong laser fields*, *Phys. Rev. A* **58** (1998), no. 6, R4271–R4274, Experiment on N2 and O2 ionization in 30 fs intense laser field.
- [22] Ph. Hering and C. Cornaggia, *Coulomb explosion of n2 and co2 using linearly and circularly polarized femtosecond laser pulses*, *Phys. Rev. A* **59** (1999), 2836.
- [23] S. Kammer, *Nichtsequentielle doppelionisation von argon in starken laserfeldern*, Master's thesis, IKF, Goethe Universität Frankfurt, 2003.
- [24] T. K. Kjeldsen and L. B. Madsen, *Strong-field ionization of n2: length and velocity gauge strong-field approximation and tunnelling theory*, *J. Phys. B* **37** (2004), 2033–2044.
- [25] P. Kruit and F. Read, *J.Phys.E:Sci.Instrum.* **16** (1983), 313.
- [26] K. C. Kulander, J. Cooper, and K. J. Schafer, *Laser-assisted inelastic rescattering during above-threshold ionization*, *Phys. Rev. A* **51** (1995), no. 1, 561–568.
- [27] I. V. Litvinyuk, Kevin F. Lee, P. W. Dooley, D. M. Rayner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum., *Alignment-dependent strong field ionization of molecules*, *Phys. Rev. Lett* **90** (2003), 233003.
- [28] L.A. Lompré, G. Mainfray, C. Manus, and J. Thebault, *Phys.Rev.A* **15** (1977), 1604.
- [29] M. Lundqvist, D. Edvardsson, P. Baltzer, M. Larsson, and B. Wannberg, *Observation of predissociation and tunneling process in o2+ : a study using doppler free kinetic energy release spectroscopy and ab initio ci calculations*, *J.Phys. B* **29** (1996), 499–514.
- [30] K. Miyazaki, T. Shimizu, and D. Normand, *Femtosecond-laser-induced alignment in coulomb explosion of n2*, *J. Phys. B* **37** (2004), 753–761.
- [31] H. Niikura, F. Legare, R. Hasbani, M. Y. Ivanov, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum, *Probing molecular dynamics with attosecond resolution using correlated wave packet pairs*, *Nature* **421** (2003), 826–829.
- [32] M. Nisoli, S. DeSilvestri, O. Svelto, R. Szipocs, K. Ferencz, C. Spielmann, S. Sartania, and F. Krausz, *Compression of high-energy laser pulses below 5 fs*, *Opt. Lett.* **22** (1997), 522–524.
- [33] Posthumus, *Molecules and clusters in intense laser fields*, Cambridge, 2001.
- [34] A. Staudte, *D2 in ultrakurzen, hochintensiven laserpulsen*, Master's thesis, Goethe Universität Frankfurt, 2001, p. 313.
- [35] J. I. Steinfeld, *Molecules and radiation*, second ed., MIT Press, Cambridge, Massachusetts, 1985.
- [36] E. W. Thulstrup and A. Andersen, *Configuration interaction studies of bound, low-lying states of n2-, n2, n2+ and n2+* , *J. Phys. B* **8** (1975), no. 6, 965.
- [37] X. M. Tong, Z. X. Zhao, and C. D. Lin, *Theory of molecular tunneling ionization*, *Phys. Rev. A* **66** (2002), 033402.
- [38] X. M. Tong, Z. X. Zhao, and C. D. Lin, *Correlation dynamics between electrons and ions in the fragmentation of d2 molecules by short laser pulses*, *Phys. Rev. A* **68** (2003), 043412.
- [39] ———, *Probing molecular dynamics at attosecond resolution with femtosecond laser pulses*, *Phys. Rev. Lett.* **91** (2003), no. 23, 233203.
- [40] M. Weckenbrock, *Einfach- und doppelionisation von argon in starken laserfeldern*, Master's thesis, IKF, Goethe Universität Frankfurt, 2001.
- [41] Z. X. Zhao, X. M. Tong, and C. D. Lin, *Alignment-dependence ionization probability of molecules in a double-pulse laser field*, *Phys. Rev. A* **67** (2003), 043404.

# Abbildungsverzeichnis

2.1	Eindimensionales Modell eines gebundenen Elektrons (links), einer Tunnelionisation (Mitte) und einer <i>Over Barrier Ionisation</i> (rechts). Die rote Linie stellt die potentielle Energie des Laserfeldes dar. Die schwarze zeigt, wie sich das Kernpotential durch das überlagerte Laserfeld verändert und sich eine Potentialbarriere endlicher Breite bildet. . . . .	7
2.2	Der Keldysh-Parameter in Abhängigkeit von der Maximalintensität $I$ [ $\text{W cm}^{-2}$ ] im Laserfokus für atomaren Wasserstoff (rot), $\text{O}_2$ (schwarz) und $\text{O}_2^+$ (blau) bei einer Laserwellenlänge von 800 nm. . . . .	8
2.3	Eindimensionales Modell verschiedener Elektronentrajektorien im Laserfeld (willkürliche Einheiten). Durch Ionisation entstehen freie Elektronen zur Zeit $t = 0$ und Phase $t_0$ des elektrischen Feldes. Die $z$ -Richtung beschreibt die zeitabhängige eindimensionale Entfernung zum Startpunkt ( $z = 0$ ). Die Trajektorie zur Phase $t_0 = 0$ weist z.B. Umkehrpunkte auf, an denen die Geschwindigkeit null bei $z = 0$ wird, wohingegen ein Elektron auf der Trajektorie mit Phase $t_0 = \pi/2$ sich schnell vom Startpunkt wegbewegt, ohne ihn jemals wieder zu erreichen. . . . .	9
2.4	Der farbige Konturenplot beschreibt die kinetische Energie eines Elektrons zu einer bestimmten Zeit $t$ , nachdem es bei einer Phase $t_0$ ionisiert worden ist, wobei die blaue Linie den phasenabhängigen Ionisationszeitpunkt widerspiegelt. Die überlagerten schwarzen Konturlinien geben Bedingungen an, bei denen das Elektron zum Startpunkt ( $z = 0$ ) bzw. in seine Nähe ( $z = 0.1, z = 0.2$ ) zurückgelangt (entspricht dem Durchtreten der Ebene aus Abb. 2.3). Daraus wird ersichtlich, daß das Elektron die maximale kinetische Energie am Startpunkt bei der ersten Rückkehr und einer Startphase von etwa $t_0 = 0.3 = 17^\circ$ aufweist. Bei den größten Energien (rote Bereiche) ist das Elektron bereits weit vom Startpunkt entfernt (vergleiche Abb. 2.3). . . . .	10
2.5	Skizzierter Prozeß der sequentiellen Ionisation im $\text{H}_2$ . Nach der ersten Ionisation $I_1$ befindet sich das Molekül im einfach ionisierten Zustand, von dort aus erfolgt die Doppelionisation durch $I_2$ . Mit größer werdender Intensität des Laserfeldes steigt die Wahrscheinlichkeit für $I_2$ , so daß sich Doppelionisationen zunehmend schneller vollziehen, was durch den magentafarbenen Pfeil angedeutet werden soll. . . . .	12
2.6	Schematisierter Mechanismus der ( <i>Charge Resonant</i> ) <i>Enhanced Ionisation</i> für $\text{H}_2$ . . . . .	13
2.7	Einfaches Modell zur ( <i>Charge Resonant</i> ) <i>Enhanced Ionisation</i> . Rot dargestellt ist die potentielle Energie des Laserfeldes, schwarz die der Kernpotentiale im Laserfeld und blau die des verbleibenden Elektrons in $\text{H}_2^+$ . . . . .	14
2.8	Schematisierter Mechanismus des Rescatteringprozesses für $\text{H}_2$ . . . . .	15
2.9	$\text{H}_2^+$ im Laserfeld bei 532 nm Wellenlänge. Der Floquet-Theorie nach werden verschiedene Kopplungszustände ( <i>dressed states</i> ) erzeugt, über die das Ion dissoziieren kann. Entnommen aus [34]. . . . .	16
2.10	High Harmonic Generation der KLS-Arbeitsgruppe . . . . .	17

2.11	Symmetrische (oben) und anti(sym)metrische (unten) Wellenfunktion. Aufgrund der Überlappung der einzelnen Wellenfunktionen für die beiden Kernpotentiale wird im oberen Bild die Aufenthaltswahrscheinlichkeit zwischen den beiden Kernen erhöht, wodurch im Gegensatz zum unteren Bild die Bindung zustande kommt. . . . .	18
2.12	Schematisierte $\pi 2p$ -Orbitale . . . . .	18
2.13	Grundzustand von Stickstoff und Sauerstoff . . . . .	19
2.14	Äußeres Orbital von Stickstoff (links) und Sauerstoff (rechts). . . . .	20
2.15	Potentialkurven für $N_2$ und $N_2^+$ . Entnommen aus [35]. . . . .	21
2.16	Potentialkurven für $O_2$ und $O_2^+$ . Entnommen aus [35]. . . . .	22
2.17	Berechnete Potentialkurven für ausgewählte (a) Singlet-, (b) Triplet-Zustände von $N_2^+$ . Die vertikalen Linien deuten den internuklearen Abstand der Kerne im Gleichgewicht an. Entnommen aus [36]. . . . .	23
2.18	Potentialkurven für $O_2^+$ . Entnommen aus [29]. . . . .	23
3.1	Maßstabsgetreue Skizze des Versuchsaufbaus: von vorne (links), von der rechten Seite (Mitte) und, die Hauptkammer herausgenommen, von oben (rechts). Fokus-Spiegel FS, Ion Gauge IG (Vakuummeßzellen), Kühlfälle KF, Pumpen P-, Quadrupol-Massenspektrometer QMS, Spektrometer S, Ventile V, Wellbalg WB. . . . .	26
3.2	Querschnittsskizze durch einen Überschalljet. Entnommen aus [40]. . . . .	27
3.3	Flugzeitverteilung für $N_2^+$ (erster peak) und $O_2^+$ (zweiter peak) für ein warmes diffuses Target (breite Verteilung) und zum Vergleich vom kalten Jet. In beiden Fällen ist ein Gasgemisch benutzt worden. . . . .	28
3.4	Maßstabsgetreue Spektrometerskizze (die Elektronenseite ist verkürzt dargestellt) . . . . .	28
3.5	Skizze eines Micro-Channel-Plates. Aufbauend auf [23]. . . . .	30
3.6	Skizze eines Delay-Line Anodenausschnitts. Aufbauend auf [23] . . . . .	30
3.7	Schaltskizze der Signalverarbeitung . . . . .	31
4.1	In der Halbwertsbreite 4 fs bzw. 8 fs langer Puls, dargestellt mit der einhüllenden Gaußfunktion als zeitliche Abhängigkeit des elektrischen Feldes (links) und Fourier-transformiert zur Winkelgeschwindigkeit (rechts). . . . .	34
4.2	Fluoreszenz-Emissionsspektrum für einen Titan:Saphir-Kristall. . . . .	34
4.3	Superposition von 10 (rot), 8 (magenta), 6 (orange) und 4 (grau) phasenverschobenen Wellen gleicher Periodendauer (blau). . . . .	35
4.4	Formung eines kurzen Pulses durch konstruktive Interferenz mehrerer phasengekoppelter Wellen mit unterschiedlicher Periodendauer. Die Ausgangswellenzüge sind blau dargestellt, in unterschiedlichen Rottönen ist die Superposition verschieden vieler Ausgangswellen zu sehen (je kräftiger das Rot, desto mehr Ausgangswellen wurden überlagert). . . . .	35
4.5	Schematisierter Aufbau des Oszillators. Dispersionsspiegel (DM), Output Coupler (OC), Compensating Plate (CP). . . . .	36
4.6	Das Prinzip der <i>Chirped-Pulse-Amplification</i> . Die aus dem Oszillator (O) ausgekoppelten Pulse werden im <i>Stretcher</i> (S) spektral gestreckt, vom Verstärker (V) intensiviert und schließlich durch den Kompressor (K) wieder gestaucht. . . . .	37
4.7	Laseraufbau der Kansas-Light-Source (KLS) . . . . .	37
4.8	Der Laserfokus mit $I(r [\mu\text{m}], z [\mu\text{m}])$ bei $f = 2 \text{ cm}$ , $\lambda = 800 \text{ nm}$ , $z_R = 16 \mu\text{m}$ , $I_{max} = 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ und $w_0 = 2 \mu\text{m}$ . Die verschiedenen Linien beschreiben von innen angefangen Iso-Intensitäten von $I_{max}/(2, 4, e^2, 20, 50, 100)$ . . . . .	40
4.9	Das Volumen $V [\mu\text{m}^3]$ des durch $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ (rot) und $6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ (grün) begrenzten Laserfokus bei steigender Maximalintensität $I [\text{W cm}^{-2}]$ , wobei wie gehabt $z_R = 16 \mu\text{m}$ und $w_0 = 2 \mu\text{m}$ gewählt worden ist. Die blaue Kurve ist die Differenz zwischen der roten und der grünen und beschreibt daher den Zuwachs des Volumens, in dem Intensitäten zwischen $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ und $6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ vorliegen. Die Funktion $\sqrt{x^3}$ ist schwarz dargestellt (oberhalb $4 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ ). Sie stellt die Hauptabhängigkeit der Volumina für große Maximalintensitäten dar und resultiert aus dem $\beta^3$ -Term in Gl. 4.13. . . . .	41

4.10	$dV [100 \mu\text{m}^3]/dI [10^{14} \text{ W cm}^{-2}]$ für $I_{max} = 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ als Funktion der Intensität $I [10^{14} \text{ W cm}^{-2}]$ . Die Fläche unter der Kurve ist proportional zum fokalen Volumen eingeschlossen von der jeweiligen Intensität. Zu erkennen ist, daß das eingeschlossene Volumen der äußeren Schale (begrenzt durch $2 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ , rote und grüne Fläche) wesentlich größer als das der inneren ( $I > 6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ , grüne Fläche) ist. . . . .	41
4.11	$dV/dI$ für einen Fokus mit kleiner Brennweite (blau, dick, durchgezogen), $dV/dI$ für einen Fokus mit großer Brennweite (blau, dünn, gestrichelt), $w(I)$ (schwarz) und die jeweiligen Faltungen $dV/dI \cdot w(I)$ (rot, gleiche Charakteristik wie $dV/dI$ ) bei $I_{max} = 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$ . . . . .	42
5.1	Flugzeitspektrum mit einem Gasgemisch aus $\text{N}_2$ und $\text{O}_2$ als Jet-Target . . .	44
5.2	Zoom aus Abb. 5.1 auf das $\text{H}_2$ -Flugzeitspektrum des Restgases und seine Fragmente. . . . .	44
5.3	Ausgleichsgerade zur Konvertierung von Kanälen in Sekunden. Die Datenpunkte entsprechen den bestimmten Flugzeitmaxima aus Abb. 5.1 und Abb. 5.2. Auf der rechten Ordinate ist die Wurzel des Massen-Ladungsverhältnisses aufgetragen, welches für die Protonen gerade 1 und für $\text{O}_2^{2+}$ genau 4 ist. . . . .	45
5.4	Beispiel eines Detektorbildes bei sehr hoher Ionisationsrate, mit den Projektionen auf die x-Achse (rechts) und auf die y-Achse (links). . . . .	45
5.5	Berechnete Koinzidenzkurven der Flugzeit $t_1 [s]$ und $t_2 [s]$ zweier Coulomb-explodierender Ionen. Die schwarzen Hyperbeln resultieren aus $\text{H}^+ + \text{H}^+$ , $\text{N}^+ + \text{N}^+$ und $\text{O}^+ + \text{O}^+$ (von links unten angefangen); die Kombination von $\text{O}^{2+} + \text{O}^+$ bzw. $\text{O}^+ + \text{O}^{2+}$ ergeben die roten Kurven und die blauen stehen für $\text{N}^{2+} + \text{N}^+$ bzw. $\text{N}^+ + \text{N}^{2+}$ . . . . .	47
5.6	Die Flugzeit $t_2 [\mu\text{m}]$ , aufgetragen gegen die Flugzeit $t_1 [\mu\text{m}]$ (Pipico-Spektrum) von Sauerstoff bei einem 35 fs langen Puls mit $6 \cdot 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ Maximalintensität. Überlagert sind die berechneten Koinzidenzkurven der Kombinationen (von links unten nach rechts oben) $\text{H}^+ + \text{H}^+$ (aus Restgas), $\text{O}^{3+} + \text{O}^{3+}$ , $\text{O}^{3+} + \text{O}^{2+}$ , $\text{O}^{2+} + \text{O}^{3+}$ , $\text{O}^{2+} + \text{O}^{2+}$ , $\text{O}^+ + \text{O}^{3+}$ , $\text{O}^{2+} + \text{O}^+$ , $\text{O}^+ + \text{O}^{2+}$ und $\text{O}^+ + \text{O}^+$ . . . . .	47
5.7	Skizze der Geometrie . . . . .	49
5.8	$\frac{dN}{dp_z}$ für $\text{H}_2$ und He, berechnet nach Gleichung 5.25. Der Impuls, bei welchem die Ertragsrate maximal ist, ist abhängig vom Ionisationspotential. . . . .	51
5.9	Zur Bestimmung der Intensität werden die experimentell gewonnenen Daten mit der Theorie verglichen. . . . .	52
5.10	Ionisationsrate für $\text{H}_2^+$ als Funktion der Maximalintensität. Durch den Vergleich der experimentell gewonnenen Daten mit Berechnungen des Tunnelionisations-Modells kann ebenfalls die Maximalintensität bestimmt werden. . . . .	52
5.11	Flugzeitspektren der Protonen aus Coulomb-explodierendem Wasserstoff für unterschiedliche Laserintensitäten. Die relativen Häufigkeiten der verschiedenen Reaktionskanäle können zur Bestimmung der maximalen Laserintensität herangezogen werden. Im Bild jeweils oben rechts ist die entsprechende Maximalintensität in $\text{W cm}^{-2}$ angegeben. . . . .	53
6.1	$\text{H}_2$ -Flugzeitspektrum aus Restgas (links) und KER-Spektrum (rechts). . . .	56
6.2	$\text{H}_2$ -KER-Spektrum . . . . .	56
6.3	Skizzierter Verlauf der elektrischen Feldstärke bei einem 35 fs langen Puls mit 800 nm Wellenlänge (ohne Bandbreite). Grün entspricht dem Wert $1/e^2$ , über den sich die Pulslänge definiert. . . . .	57
6.4	$\text{O}_2$ -Flugzeitspektrum (höhere Intensität) und KER-Spektrum im Rescattering-Regime. . . . .	57
6.5	$\text{O}_2$ -KER-Spektren bei größeren Intensitäten . . . . .	58
6.6	$\text{O}_2$ -KER-Spektrum großer Intensitäten . . . . .	58
6.7	$\text{N}_2$ -KER-Spektren im Rescattering-Regime . . . . .	59
6.8	$\text{N}_2$ -KER-Spektren . . . . .	59
6.9	Skizzierter Verlauf der elektrischen Feldstärke bei einem 8 fs langen Puls mit 800 nm Wellenlänge (ohne Bandbreite). Grün entspricht dem Wert $1/e^2$ , über den sich die Pulslänge definiert. . . . .	60

6.10	H <sub>2</sub> -KER-Spektrum, 8 fs, Rescattering-Regime . . . . .	60
6.11	H <sub>2</sub> -KER-Spektren, 8 fs . . . . .	61
6.12	O <sub>2</sub> -KER-Spektrum, 8 fs, Rescattering-Regime . . . . .	61
6.13	O <sub>2</sub> -KER-Spektren, 8 fs . . . . .	62
6.14	N <sub>2</sub> -KER-Spektrum, 8 fs, Rescattering-Regime . . . . .	62
6.15	N <sub>2</sub> -KER-Spektren, 8 fs . . . . .	62
6.16	Impulsraum für O <sub>2</sub> , 35 fs, Rescattering-Regime, $1 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> (links) und für N <sub>2</sub> , 8 fs, $8 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> (rechts). . . . .	63
6.17	3D-Darstellung von O <sub>2</sub> , 8 fs, $3 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> (links) und N <sub>2</sub> , 8 fs, $8 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> (rechts). . . . .	64
6.18	Skizze zur Veranschaulichung der Sphärenschnitte . . . . .	64
6.19	O <sub>2</sub> , 35 fs, $3 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> . Ungefiltertes Energie-Impuls-Spektrum (oben links), $P_z$ - $P_x$ -Teilprojektion (oben Mitte), $P_y$ - $P_z$ -Teilprojektion (oben rechts), Energie-cos $\theta$ -Spektrum (unten links), $P_z$ - $P_x$ -Projektion (unten Mitte) und $P_y$ - $P_z$ -Projektion (unten rechts). . . . .	65
6.20	N <sub>2</sub> , 35 fs, $2.2 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> . Gefiltertes Energie-Impuls-Spektrum (oben links), $P_z$ - $P_x$ -Teilprojektion (oben Mitte), $P_y$ - $P_z$ -Teilprojektion (oben rechts), Energie-cos $\theta$ -Spektrum (unten links), $P_z$ - $P_x$ -Projektion (unten Mitte) und $P_y$ - $P_z$ -Projektion (unten rechts). . . . .	66
6.21	O <sub>2</sub> , 35 fs, $1 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	67
6.22	O <sub>2</sub> , 35 fs, $2.2 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	68
6.23	O <sub>2</sub> , 35 fs, $5.4 \cdot 10^{15}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	68
6.24	N <sub>2</sub> , 35 fs, $2.2 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	69
6.25	N <sub>2</sub> , 35 fs, $3 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	70
6.26	N <sub>2</sub> , 35 fs, $1 \cdot 10^{15}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	70
6.27	O <sub>2</sub> , 8 fs, $2 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	71
6.28	O <sub>2</sub> , 8 fs, $1.2 \cdot 10^{15}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	72
6.29	O <sub>2</sub> , 8 fs, $2.3 \cdot 10^{15}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	73
6.30	N <sub>2</sub> , 8 fs, $2 \cdot 10^{14}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	74
6.31	N <sub>2</sub> , 8 fs, $1.2 \cdot 10^{15}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	75
6.32	N <sub>2</sub> , 8 fs, $2.3 \cdot 10^{15}$ W cm <sup>-2</sup> . . . . .	76
6.33	Auf einen Blick. Die gezeigten Polardiagramme beziehen sich jeweils auf das Energiemaximum BC bzw. bc. . . . .	77
7.1	KER-Spektrum aus Doppelionisationen von O <sub>2</sub> durch Beschuß mit schnellen Elektronen (200 eV). Entnommen aus [29]. . . . .	79
7.2	Mögliche Mechanismen zur Doppelionisation von O <sub>2</sub> . . . . .	82
7.3	Äußeres Orbital für Sauerstoff im Grundzustand . . . . .	84
7.4	Die drei Teilschritte eines Rescattering-Doppelionisationsmechanismus sind jeweils von winkelabhängigen Funktionen ( $P_1$ , $P_2$ und $P_3$ ) abhängig. . . . .	84
7.5	Berechnete Ionisationsraten der Einfachionisation von Stickstoff und Sauerstoff in Abhängigkeit des Winkels $\theta$ . Die maximale Intensität ist in Einheiten von $10^{13}$ W cm <sup>-2</sup> angegeben. Entnommen aus [41] . . . . .	85
7.6	<i>Enhanced Ionisation</i> (EI) ist nur bei Molekülachsenausrichtungen entlang der Laserpolarisation (links) wirksam. Steht die internukleare Achse senkrecht zur linearen Polarisation (rechts), so senkt zwar das zweite Kernpotential die gemeinschaftliche Barriere, nicht aber die zum Verlassen des gemeinschaftlichen Potentials. Die unteren Bilder entsprechen einer Aufsicht des entsprechenden oberen Bildes. . . . .	85
7.7	Impulsfehler für einfach geladene O <sub>2</sub> -Fragmente, deren Flugzeiten nach einer Coulomb-Explosion unter einer Neigung der Molekül- zur Spektrometerachse um 45° Energiesummen zwischen 4 eV und 14 eV entsprechen. . . . .	88
8.1	Beispiele der zuletzt erzielten Ergebnisse (Maximum a bzw. A) [3]. . . . .	92

## Special thanks to ...

- *Prof. Lew Cocke*, my US adviser, without whom this work would have been unable to fulfill. I had all freedoms I can think of, all my questions found extreme helpful answers and I had never the feeling of being left alone with unsolvable problems. He is the one who came up with the idea to all experiments and who enabled my outstanding stay in Manhattan, Kansas.
- *Dr. Ali Alnaser* for all the endless hours of working together and the possibility of always keep on learning from his knowledge, experience, high professionalism and never ending enthusiasm for experimental physics. The very best colleague and comrade one could think of.
- *Dr. Timur Osipov, Chakra Mahrajan, Predrag Ranitovic and Birte Ulrich*, my fellow students, for the time together and detailed discussions.
- *Dr. B. Shan* and all the other members around the Laser facility under guidance of *Prof. Z.Chang*, for their patience in coordinating our big amount of beam time and help in modifying and adjusting the laser beam.
- *Dr. X. M. Tong* and *Prof. C. D. Lin* for supporting us with theoretical background information and calculations.
- *Peggy Matthews, Treva Singleton* and *Deanna Selby*, for their help in solving all non physical problems especially with paperwork as well as for always being in a good mood. *Mike Wells, Al Rankin, Bob Gearing, Scott Chainey* and *Charles Fehrenbach* for the harmonic performance of their every day work as JRM lab staff. My thanks go to *Dr. Kevin Chainey* and *Vince Needham* for answering many computer related questions and keeping the systems running.
- The work was supported by Chemical Sciences, Geosciences and Biosciences Division, Office of Basic Energy Sciences, Office of Science, U. S. Department of Energy. The construction of the laser facility was partially supported by a NSF MRI grant.
- *Sir Edward ThomasMan - Lord of the Esdimax* for countless reasons. *Zoya* for a lot of fun and, like *Smita* and *Andrea*, one of the very best roommates. *Elizabeth*, a dignified running partner, for the moments together. *Maggy* incl. family, for a lovely Thanks Giving. *Red Fox* for faithful duty.
- *Prof. Kenneth and Anne Carpenter*. It is wonderful to experience their love and to be a guest in their house. 'to a friend's home the road is never long'.

## Mein besonderer Dank gilt ...

- *Prof. Dr. Reinhard Dörner* für eine herzliche Aufnahme in die Frankfurter Arbeitsgruppe, die Idee und Vermittlung einer Diplomantenstelle in Amerika, sowie der Parallelbetreuung dieser Diplomarbeit.
- *Prof. Dr. Horst Schmidt-Böcking*. Seine Fähigkeit zu begeistern ist außergewöhnlich und ihm habe ich auch die Grundidee eines Forschungsaufenthalts im Ausland zu verdanken. Es ist ein besonderes Vergnügen, seine fantastische Herangehensweise an physikalische Problemstellungen zu erleben.
- *Achim Czasch*, Betreuer meiner ersten Schritte innerhalb der experimentellen Atomphysik. Bei meiner ersten Strahlzeitteilnahme in Hamburg (DESY) stellte er auf äußerst eindrucksvolle Weise seine Führungsqualitäten unter Beweis und erlaubte mir ausgiebig von ihm zu lernen.
- *Markus Schöffler, Sven Schössler, Jasmin Titze, Susanne Kammer, Matthias Weckenbrock, Till Jahnke* und *Andre Staudte* für ausgesprochen gute Zusammenarbeit und kompromißlose, allzeit bereitwillige Hilfe.
- *meinen Eltern* für die Ermöglichung meines Studiums und der größtmöglichen Unterstützung. Meinen Schwestern danke ich besonders für die organisatorische Hilfe und die heimatlichen Berichte; für Korrekturhilfen und besonders große Unterstützung geht ein Extradank an Rike.
- allen, die einen Teil meiner Habe in ihre Obhut nahmen oder mir Unterkunft gewährten und deren Aufzählung im einzelnen mir unmöglich erscheint. Allen vorweg sei die *Familie Ulrich* genannt. Des weiteren allen, die zum Gelingen dieser Diplomarbeit beigetragen haben und deren Name nicht explizit erwähnt worden ist.

