

**Elementare Moleküle in intensiven
ultrakurzen Laserlichtpulsen**

**Experimentelle Untersuchung
an HD^+**

Andreas Kieß

**MPQ-Report
285**

Elementare Moleküle in intensiven ultrakurzen Laserlichtpulsen

Experimentelle Untersuchung an HD^+

Andreas Kieß

Diplomarbeit
an der Fakultät für Physik
der Ludwig-Maximilians-Universität
München

vorgelegt von
Andreas Kieß
aus München

München, den 17.03.2003

Dieser MPQ-Bericht ist als Manuskript des Autors gedruckt
Alle Rechte vorbehalten

This MPQ-Report has been printed as author's manuscript
All rights reserved

Max-Planck-Institut für Quantenoptik
85740 Garching, Bundesrepublik Deutschland

Max-Planck-Institut für Quantenoptik
BIBLIOTHEK
Hans-Kopfermann-Straße 1
D-85748 Garching
Tel.-Nr.: (089) 32905-149

Erstgutachter: Prof. Dr. Hänsch
Zweitgutachter: Prof. Dr. Riedle

Inhaltsverzeichnis

Zusammenfassung	xi
1 Einleitung	1
2 Theorie	3
2.1 Theoretische Betrachtung	3
2.2 Experimentell verwertbare Parameter	11
3 Experimenteller Aufbau	13
3.1 Molekülstrahlapparatur	13
3.1.1 Ionenquelle	14
3.1.2 Ionenoptik	16
3.2 Lasersystem	18
3.2.1 Femtosekundenoszillator	18
3.2.2 Pumplaser für Femtosekundenoszillator	19
3.2.3 Nachverstärker	19
3.2.4 Pumplaser für Nachverstärker	23
3.2.5 Bestimmung des Pulsprofils	24
3.3 Wechselwirkungsbereich	26
3.3.1 Intensitätsbestimmung	27
3.4 Detektion der Fragmente	30
3.4.1 MCP und Phosphorschirm	31
3.4.2 CCD - Kamera	34
4 Aufbereitung der Meßdaten	37
4.1 Verwendete Daten	37
4.2 Projektionsbedingte Anpassungen	38
4.3 Energieskala der Fragmente	40
4.4 Erstellen der Graphiken der abgebildeten Meßergebnisse	42
5 Experimentelle Ergebnisse	45
5.1 Anmerkungen zum Ionenstrahl	45
5.2 Verteilung der Photodissoziationsfragmente von HD^+	46

5.3	Messungen mit fs-Pulsen unterschiedlicher Intensität	50
5.3.1	Geschwindigkeitsverteilung der neutralen Fragmente	53
5.3.2	Geschwindigkeitsverteilung der neutralen und geladenen Fragmente	57
5.3.3	Winkelverteilung der Fragmente	63
5.4	Verhältnis der Dissoziationskanäle	65
5.5	Allgemeine Fehlerabschätzung	68
6	Ausblick	69
A	Vorgenommene Umbauten am Experiment	71
	Literaturverzeichnis	75
	Danksagung	77

Abbildungsverzeichnis

2.1	Potentialkurven lichtinduzierter Zustände	7
2.2	Rabioszillation zwischen zwei Potentialkurven	9
2.3	HD ⁺ -Crossing für Ein- und Drei-Photonenabsorption	11
3.1	Ionenstrahl	14
3.2	Duoplasmatron	15
3.3	Gitterstrecker	20
3.4	Regenerativer Verstärker	20
3.5	Oszilloskopbild der Pulse im regenerativen Verstärker	22
3.6	Doppelpaßverstärker	22
3.7	Gitterkompressor	23
3.8	Autokorrelation zur Bestimmung der Halbwertsbreite	24
3.9	Laserpuls auf dem Oszilloskop	26
3.10	Strahlprofil des Lasers	27
3.11	Wechselwirkungszone	28
3.12	Strahldurchmesser des Lasers nach der Fokussierlinse	29
3.13	Fragmentdetektion	31
3.14	Multi Channel Plate	33
4.1	Zweidimensionale Projektion einer Kugelschale	38
4.2	Veranschaulichung der Abel-Transformation	39
4.3	Erstellen der Graphiken der Dissoziationsfragmente	44
5.1	Verteilung der Dissoziationsfragmente, Coulomb-Explosions-Kanal	48
5.2	Dreidimensionale Ansicht der Verteilung der Dissoziationsfragmente	49
5.3	Verteilung neutraler Fragmente bei Intensitäten von $3,05 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $1,09 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$	54
5.4	Geschwindigkeitsspektrum neutraler Fragmente	55
5.5	Detektierte Bilder und 3D-Darstellungen bei Intensitäten von $3,05 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $6,63 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$	58
5.6	Geschwindigkeitsspektrum neutraler und geladener Fragmente bei 10^{13} W/cm^2	59
5.7	Detektierte Bilder und 3D-Darstellungen bei Intensitäten von $8,5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $2,24 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$	60

5.8 Geschwindigkeitsspektrum neutraler und geladener Fragmente bei 10^{14} W/cm² 61

5.9 Winkelverteilungen 64

5.10 Fragmente bei der Bestimmung eines bevorzugten Dissoziationskanals . . . 66

5.11 Bestimmung eines bevorzugten Dissoziationskanals 66

A.1 Neu konstruierte Ionenlinse 72

A.2 Verschiebeeinheit der CCD-Kamera 73

A.3 Faradaybecher 74

Tabellenverzeichnis

3.1 Druckverteilung in der Vakuumapparatur 15

3.2 Betriebsparameter der Ionenquelle 16

3.3 Detektorspannungen 34

4.1 Vibrationsniveaus in HD⁺ 42

Zusammenfassung

In intensiven Lichtfeldern wurden von den Wasserstoffisotopomeren bisher nur die homonuclearen Moleküle H_2^+ und D_2^+ untersucht. Deshalb war es naheliegend, nun auch das Verhalten des heteronuclearen Ions HD^+ , das im Unterschied zu Obigen ein permanentes Dipolmoment besitzt, unter solchen Bedingungen zu betrachten.

Ziel war es, zu überprüfen, inwieweit die auftretenden Phänomene bei HD^+ mit der Theorie der LIP („Light Induced Potentials“) vorhergesagt werden können. Diese gibt ein anschauliches Verständnis der nichtlinearen Prozesse, die bei Intensitäten oberhalb von 10^{13} W/cm^2 eine wesentliche Rolle spielen. Danach weicht insbesondere die Dissoziationswahrscheinlichkeit für Moleküle in Abhängigkeit vom besetzten Vibrationszustand deutlich von der durch die Störungstheorie vorhergesagten ab.

In Übereinstimmung mit dieser Theorie konnte gezeigt werden:

- Die Energie der Fragmente, die von HD^+ -Molekülen in Vibrationszuständen im Bereich der „vermiedenen Kreuzung“ stammen, hängt nicht von der Intensität ab.
- Vibrationsniveaus unterhalb des Kreuzungspunktes haben eine hohe Dissoziationsrate bei großen Intensitäten. Außerdem verschiebt sich die Energie der hieraus stammenden Fragmente mit zunehmender Intensität zu kleineren Werten hin.
- Bei Intensitäten oberhalb von $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ dissoziieren zunehmend Moleküle, deren Vibrationszustände im Bereich des „2-Photonen-Crossings“, also bei $v = 2$ und $v = 3$ liegen.

Außerdem konnte ab Intensitäten von $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ das Öffnen des „Coulomb-Kanals“ beobachtet werden.

Das Verhalten von HD^+ in diesen Feldern entspricht qualitativ dem von H_2^+ und D_2^+ , wie dies wegen der ähnlichen Potentialkurven auch zu erwarten war, nur daß hier durch die Impulserhaltung bei der Dissoziation die H- und D- Fragmente mit unterschiedlichen Geschwindigkeiten erscheinen, und somit an verschiedenen Orten des zweidimensionalen Detektors auftreten. Daraus resultiert im Vergleich mit H_2^+ und D_2^+ ein schlechteres Signal-Rausch-Verhältnis, und somit eine etwas geringere Auflösung bei der Bestimmung der kinetischen Energie der Fragmente.

Schließlich wurde noch untersucht, ob einer der Dissoziationskanäle $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H} + \text{D}^+$ oder $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{D}$ bevorzugt wird. Da der Fehler bei ca. 15% lag, konnte dies jedoch nicht endgültig entschieden werden. Es deutet aber nichts darauf hin, daß die Wahrscheinlichkeit für einen der Kanäle erheblich größer ist.

Die für das Experiment verwendeten HD^+ -Ionen wurden bei einer Gasentladung in einem Duoplasmatron aus HD erzeugt, und zu einem Strahl von $25 \times 300 \mu\text{m}$ kollimiert. Dieser verlief senkrecht zu dem des Lasers in einer Vakuumkammer bei 10^{-7} mbar. Die linear polarisierten Pulse hatten eine Dauer von ca. 100 fs und Intensitäten von bis zu 10^{15} W/cm². Die im Wechselwirkungsbereich entstandenen Fragmente wurden dann mit einem zweidimensionalen Detektor („Multi-Channel-Plate“) erfaßt.

Kapitel 1

Einleitung

Laser sind heute nahezu allgegenwärtig. Sie begegnen uns in CD-Spielern, bei der Vermessungstechnik, in der Medizintechnik, sowie in vielerlei Anwendungen der Industrie zum positionieren, überwachen, schneiden oder schweißen.

Doch ursprünglich wurden sie für die Spektroskopie entwickelt, bei der es ganz besonders auf die Qualität des Lichtes ankommt. Die Eigenschaften des Laserlichtes, nämlich zeitliche und räumliche Kohärenz, hohe Energiedichte, und spektrale Schmalbandigkeit ermöglichten viele Untersuchungen, die interessante Ergebnisse brachten. So wurde bei der Weiterentwicklung der Laser zunächst auch besonderes Augenmerk auf die Schmalbandigkeit und große Durchstimmbarkeit gelegt, um die Auflösung bei spektroskopischen Messungen noch weiter zu verbessern und den Anwendungsbereich zu vergrößern.

In jüngerer Vergangenheit wurden dann parallel dazu gepulste Laser mit entsprechend breiterer spektraler Verteilung entwickelt, mit deren Hilfe es möglich wurde, zeitaufgelöste Spektroskopie durchzuführen und beispielsweise die Lebensdauer angeregter Zustände zu bestimmen. Durch Einführung der „Mode-Lock-Technik“, bei der die Phasenlage der verschiedenen Schwingungsmoden im Laserresonator fixiert wird, gelang es, in Verbindung mit neuartigen Kompressionstechniken, die spektrale Laufzeitunterschiede zwischen zwei Prismen nutzen, Pulse bis in den Femtosekundenbereich zu verkürzen. Durch diese extrem kurzen Pulsdauern können bei Pulsenergien im mJ-Bereich Intensitäten von mehreren Terawatt pro Quadratzentimeter erreicht werden.

Inzwischen ist es möglich, Pulse von einigen Attosekunden, die nur noch aus wenigen Schwingungen bestehen, zu erzeugen und Intensitäten im Multiterawattbereich zu erreichen.

Je weiter die Entwicklung der Laser und deren Verbreitung, insbesondere durch Dioden- und Festkörper-Laser und deren einfachere Handhabung voranschreitet, umso wichtiger wird ein genaues Verständnis der Wechselwirkung von Licht mit Materie. Hierzu mußten

neue Konzepte entwickelt werden, da bei Intensitäten im Terawattbereich die elektrische Feldstärke des Lichtes in der selben Größenordnung liegt, wie die Kräfte der Molekülbindungen, und somit bisherige Theorien wie Fermi's goldene Regel oder störungstheoretische Betrachtungen nicht mehr gültig sind.

Neuere Theorien der Wechselwirkung von Lichtfeldern mit Atomen und Molekülen, wie das semiklassische Quantenbild des „LIP-Modells“ („Light Induced Potentials“), versuchen die Wechselwirkung durch Kombinieren der Maxwell-Gleichungen mit der Schrödinger-Gleichung zu erklären [Ban93]. Um herauszufinden, ob diese Theorien in der Lage sind, sämtliche auftretenden Effekte korrekt zu beschreiben, bietet sich zunächst an, dies anhand der einfachsten existierenden Moleküle experimentell zu untersuchen. Dies sind das Wasserstoffmolekül H_2^+ und seine Isotopomere D_2^+ , T_2^+ , HD^+ , HT^+ , und DT^+ , wobei die Tritiumverbindungen wegen ihrer Radioaktivität weniger beliebt sind. Deshalb wurde die Photodissoziation in intensiven Laserfeldern zunächst an H_2^+ und D_2^+ studiert [Buc90] [Buc93]. Im Rahmen dieser Arbeit wurden die dort verwendeten Methoden dann auf HD^+ übertragen.

HD^+ ist deswegen besonders interessant, weil sein Massenschwerpunkt im Gegensatz zum Ladungsschwerpunkt nicht in der Mitte der beiden Atome liegt, und sich so ein Dipolmoment ausbildet, wodurch eine Absorption im infraroten Spektralbereich möglich ist. Außerdem existieren hier zwei unterschiedliche Dissoziationsmöglichkeiten, nämlich $HD^+ \rightarrow H + D^+$ und $HD^+ \rightarrow H^+ + D$. Bei der Photodissoziation sollte sich wegen der unterschiedlichen Massen auch eine deutliche Trennung von H- und D-Fragmenten aufgrund der Impulserhaltung zeigen.

Die Besonderheit der hier vorgestellten experimentellen Untersuchung liegt darin, daß hier der Laser auf einen Ionenstrahl, und nicht in eine Molekülwolke fokussiert wird, weshalb eine deutlich bessere Auflösung der Fragmentenergie erreicht werden kann, und es somit gelingt, die Vibrationsniveaus im Bild der Dissoziationsfragmente darzustellen.

Es existieren bereits zahlreiche Untersuchungen an HD^+ anderer Gruppen, jedoch nur in Laserfeldern mit Intensitäten unter 10^{13} W/cm^2 .

W. Wing [Win76] konnte das erste Infrarot-Spektrum der Rotations- und Vibrationsniveaus von HD^+ darstellen.

Von A. Carrington [Car89] wurde mit einem CO_2 -Laser an einem HD^+ -Strahl die Hyperfeinstruktur aufgelöst.

B. Sheehy [She95] versuchte durch Kontrolle der relativen Phase in einem zweifarbigem Laserfeld das Dissoziationsverhalten von HD^+ zu steuern.

Kapitel 2

Wechselwirkung von Molekülen mit intensiven Lichtfeldern

2.1 Theoretische Betrachtung

Es existieren viele verschiedene Ansätze, das Verhalten von Molekülen in intensiven Laserfeldern zu beschreiben. Vor allem durch die Entwicklung leistungsfähiger Computer ist es heute möglich, mit numerischen Methoden die zeitabhängige Schrödinger-Gleichung zu lösen. Aber auch die hieraus resultierenden Ergebnisse sind noch nicht in der Lage, alle bekannten Effekte zu erklären. Deshalb soll hier nur ein etwas einfacherer Zugang erläutert werden, um ein intuitives Bild der relevanten Vorgänge zu vermitteln, auch wenn dieses für HD^+ nur näherungsweise Gültigkeit besitzt.

Bei kleinen Intensitäten lassen sich mit störungstheoretischen Rechnungen in erster Ordnung, also durch Fermis Goldene Regel, noch gute Ergebnisse erzielen. Bei intensiveren Feldern treten jedoch neue interessante Phänomene auf, die dadurch nicht erklärt werden können. Hier ist es nötig, auch das Lichtfeld zu quantisieren, und als eigenständigen Summanden mit einzubeziehen. Zu einer derartigen Beschreibung gelangt man mit Hilfe der sogenannten „lichtinduzierten Potentiale“ (LIP oder „Dressed States“ [Ban93]).

Der Hamilton-Operator für das Molekül-Licht-System wird in der Born-Oppenheimer-Näherung, bei der die kinetische Energie der Kerne vernachlässigt wird, dargestellt als:

$$H = (H_{\text{Elektron}}(\vec{r}) + V_{\text{Prot;Deut}}(R)) + H_{\text{Licht}} + V, \quad (2.1)$$

wobei

$H_{Elektron}$ die elektrostatische und kinetische Energie
 des Elektrons im Potential der beiden Kerne repräsentiert
 $V_{Prot;Deut}$ für das elektrostatische Potential der beiden Kerne untereinander steht
 H_{Licht} den Hamiltonoperator des quantisierten Lichtfeldes darstellt
 V den Wechselwirkungsterm zwischen Licht und Molekül symbolisiert

$H_{Elektron}(\vec{r}) + V_{Prot;Deut}(R)$ bilden dabei zusammen den Hamiltonoperator, der die Eigenzustände der Elektronen, also ihre Potentialkurven im Feld der Protonen, ohne Lichteinwirkung bestimmt.

Im Folgenden sollen nur die beiden untersten elektronischen Zustände ($i = 1, 2$) des Moleküls betrachtet werden, da bei HD^+ ebenfalls nur die unteren beiden Zustände $1\sigma_g$ und $2\sigma_u$ von Bedeutung sind. Die nächsthöheren Niveaus liegen ca. 11 eV entfernt, weshalb eine Anregung äußerst unwahrscheinlich ist.

Ziel ist es die zeitunabhängige Schrödingergleichung des Gesamtsystems zu lösen:

$$(H_{Elektron}(\vec{r}) + V_{Prot;Deut}(R) + H_{Licht} + V) |\Phi_i(\vec{r}, R)\rangle = E_i(R) |\Phi_i(\vec{r}, R)\rangle, \quad i = 1, 2 \quad (2.2)$$

Dazu wählt man als Basis die Produktzustände aus den elektronischen Zuständen des Moleküls:

$$(H_{Elektron}(\vec{r}) + V_{Prot;Deut}(R)) |\phi_i(\vec{r}, R)\rangle = E_i(R) |\phi_i(\vec{r}, R)\rangle, \quad i = 1, 2 \quad (2.3)$$

und den Fockzuständen des Lichts:

$$H_{Licht} |n\rangle = \hbar\omega_L a^\dagger a |n\rangle. \quad (2.4)$$

Hierbei ist n die Photonenzahl, a^\dagger und a sind die Erzeugungs- bzw. Vernichtungsoperatoren, und ω_L ist die Kreisfrequenz des Lichts.

Wendet man die Drehwellennäherung¹ auf den Kopplungsterm V an, lässt sich der Hamiltonoperator 2.1 darstellen als:

$$H = \begin{pmatrix} E_1(R) & 0 \\ 0 & E_2(R) \end{pmatrix} + \hbar\omega_L a^\dagger a + \vec{D} \cdot \vec{\epsilon} (a\sigma_+ + a^\dagger\sigma_-) + \vec{\epsilon} \cdot \mu_{HD^+} \quad (2.5)$$

¹Bei der Kopplung von Molekülniveaus und elektrischem Feld des Lasers ergibt sich ein Term, der von der Differenz und ein Term, der von der Summe der Laserfrequenz und der Übergangsresonanzfrequenz der elektronischen Zustände abhängt. Beide Frequenzen liegen in der gleichen Größenordnung, deshalb ist die Differenz klein, die Summe groß. Da jeweils der Kehrwert des Terms in die Gleichung eingeht, kann der Teil, der von der Summe abhängt, vernachlässigt werden.

\vec{D} steht für das Übergangsdipolmoment:

$$\vec{D} = \langle \phi_1 | e \cdot \vec{r} | \phi_2 \rangle \quad (2.6)$$

und

$$\vec{\epsilon} = \hat{\epsilon} \sqrt{\frac{\hbar\omega_L}{2\epsilon_0 v}} \quad (2.7)$$

$\hat{\epsilon}$ ist der Einheitsvektor in Richtung der Laserpolarisation, ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante, v das Quantisierungsvolumen und μ_{HD^+} das permanente Dipolmoment des HD^+ -Moleküls.

σ_+ und σ_- sind die Pauli-Matrizen:

$$\sigma_+ = \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix}, \quad \sigma_- = \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (2.8)$$

Diese wirken auf den Zustandsvektor des elektronischen Systems und bewirken Übergänge von E_1 nach E_2 (2.9) und umgekehrt (2.10). Dabei wird gleichzeitig dem Lichtfeld ein Photon entzogen bzw. hinzugefügt.

$$a\sigma_+ (|n\rangle \otimes |\phi_1\rangle) = a|n\rangle \otimes \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 1 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \end{pmatrix} = \sqrt{n}|n-1\rangle \otimes |\phi_2\rangle \quad (2.9)$$

$$a^\dagger\sigma_- (|n\rangle \otimes |\phi_2\rangle) = a^\dagger|n\rangle \otimes \begin{pmatrix} 0 & 1 \\ 0 & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} 0 \\ 1 \end{pmatrix} = \sqrt{n+1}|n+1\rangle \otimes |\phi_1\rangle \quad (2.10)$$

Bei großen Photonenzahlen n können die Nicht-Diagonalelemente, die durch den letzten Term des Hamilton-Operators (Gleichung 2.5) entstehen, ersetzt werden durch:

$$V(R) = \frac{1}{2} \langle \phi_i | \vec{D} \cdot \vec{E}_{Feld} | \phi_j \rangle \quad (2.11)$$

Da dieser Term die Erzeugung oder Vernichtung eines Photons nur bei gleichzeitigem Übergang des elektronischen Zustands erlaubt, zerfällt der Hamiltonoperator in untereinander nicht gekoppelte Untermatrizen:

$$H = \begin{pmatrix} E_1(R) + (n+1)\hbar\omega_L & V(R) \\ V(R) & E_1(R) + n\hbar\omega_L \end{pmatrix} \quad (2.12)$$

Ein Diagonalisieren dieser Matrix ergibt deren Eigenwerte E_+ und E_- . Dies sind die lichtinduzierten Potentialkurven:

$$E_{\pm}(R) = \frac{1}{2}(E_1(R) + \hbar\omega_L + E_2(R)) \pm \frac{1}{2}\sqrt{\delta^2 + \hbar\omega_{Rabi}^2} \quad (2.13)$$

wobei

$$\delta(R) := E_1(R) + \hbar\omega_L - E_2(R) \quad (2.14)$$

und

$$\omega_{Rabi}(R) := 2 \frac{V(R)}{\hbar} \quad (2.15)$$

Die Diagonalelemente der Matrix in Gleichung 2.12 repräsentieren diabatische Potentialkurven im Lichtfeld, die sich am Punkt $R = X$ kreuzen. Anschaulich bedeutet dies, die untere Kurve E_1 wird um die Photonenenergie nach oben verschoben, und schneidet damit die obere Potentialkurve E_2 (gestrichelte Kurven in Abbildung 2.1). Durch diagonalisieren der Matrix (Basiswechsel) wird die Entartung aufgehoben. Es entsteht die sog. „vermiedene Kreuzung“ („avoided crossing“), d. h. es bilden sich zwei getrennte Potentialkurven, die adiabatischen Potentiale E_+ und E_- , mit einer Lücke dazwischen (durchgezogene Linien in Abb. 2.1).

Die in Gleichung 2.15 definierte Rabifrequenz ist ein Maß für die Stärke der Wechselwirkung zwischen den elektronischen Zuständen. Sie gibt an, wie schnell die Population zwischen den gekoppelten Zuständen oszilliert. Das $\delta(R)$ in Gleichung 2.14 kann als eine Art „Verstimmung“ betrachtet werden, und wird zu Null für $R = X$, also am Schnittpunkt der diabatischen Potentialkurven. An diesem Punkt ist der Abstand der adiabatischen Potentialkurven, also die Größe der Lücke, durch die Rabifrequenz gegeben ($\delta = 0$ in Gleichung 2.13). Ist $\delta \gg \omega_{Rabi}$, und somit die Kopplung von Molekül und Lichtfeld klein, oder sind die Kerne des Moleküls weit vom Kreuzungspunkt entfernt, entspricht ihre Bewegung also der ohne Lichtfeld, d.h. sie folgen den diabatischen Potentialkurven. Ansonsten sind jedoch die lichtinduzierten adiabatischen Potentiale E_+ und E_- relevant für die Bewegung der Kerne.

Hierfür bestimmen sich die Eigenfunktionen des Hamiltonoperators (2.12) zu:

$$\Phi_+(\vec{r}, R) = \sin(\Theta) |\phi_1(\vec{r}, R)\rangle |n+1\rangle + \cos(\Theta) |\phi_2(\vec{r}, R)\rangle |n\rangle \quad (2.16)$$

$$\Phi_-(\vec{r}, R) = \cos(\Theta) |\phi_1(\vec{r}, R)\rangle |n+1\rangle + \sin(\Theta) |\phi_2(\vec{r}, R)\rangle |n\rangle \quad (2.17)$$

Dabei ist

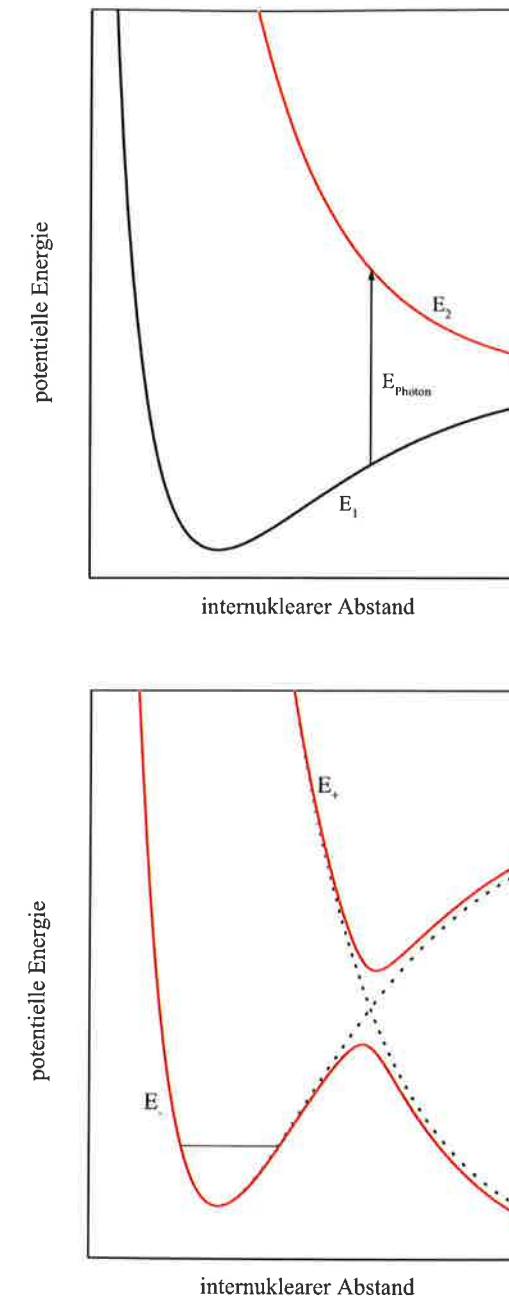


Abbildung 2.1: oben: Bindende und antibindende Potentialkurven für ein Molekülmodell von H_2^+ , D_2^+ oder HD^+ ; unten: Durch Wechselwirkung mit Licht der Photonenenergie E_{Photon} werden die Potentialkurven um E_{Photon} zueinander verschoben. Es entstehen die lichtinduzierten adiabatischen Potentialkurven E_+ und E_- (durchgezogene Linien) mit einer „Lücke“ im Bereich der „vermiedenen Kreuzung“ (gepunktete Linien).

$$\Theta := \frac{1}{2} \arctan \left(\frac{\omega_{Rabi}}{\delta(R)} \right) \quad (2.18)$$

Die Eigenfunktionen sind also eine Linearkombination aus Eigenfunktionen der ungestörten Bewegung $|\phi_i(\vec{r}, R)\rangle$ und des Lichtfeldes $|n\rangle$ beider Potentialkurven, der des Grundzustandes, und der des angeregten Zustandes. Die Größe der Koeffizienten bestimmt dabei den jeweiligen Anteil. Nähern sich die Kerne beispielsweise dem „vermiedenen“ Kreuzungspunkt, so wird Θ zu $\pi/4$, d. h. die Gesamtwellenfunktion besteht zu gleichen Teilen aus der Grundzustandsfunktion und der des angeregten Zustandes. Das bedeutet die beiden Potentialkurven sind resonant gekoppelt, und das Molekül „wechselt“ immer beim Durchqueren des Resonanzpunktes die Potentialkurve. Die Kernbewegung hat dann also einen Endpunkt auf der Potentialkurve E_1 und den anderen Endpunkt auf der Potentialkurve E_2 .

Zusammenfassend ergeben sich für das Molekül durch das starke Lichtfeld und der damit verbundenen Änderung der Potentialkurven interessante Konsequenzen:

- In der adiabatischen Potentialkurve oberhalb des Kreuzungspunktes entsteht ein neuer „Potentialtopf“, in dem sich gebundene Zustände befinden. Deshalb sollte die Dissoziationsrate selbst mit steigender Intensität innerhalb eines bestimmten Intervalls sinken. Dies soll im Folgenden als Stabilisierungseffekt bezeichnet werden.
- Für Moleküle, in denen Vibrationsniveaus im Bereich des Kreuzungspunktes besetzt sind, ist die Dissoziationsrate maximal. In diesem Bereich weicht sie nur unwesentlich von der durch Fermis Goldene Regel vorhergesagten Rate ab.
- Das Absenken der Potentialbarriere unterhalb des Kreuzungspunktes führt zu einer steigenden Tunnelwahrscheinlichkeit, wodurch wesentlich mehr Moleküle dissoziieren können. Dieser Effekt wird meist als „Bond Softening“ - „Aufweichen“ der molekularen Bindung bezeichnet. Da das Absenken der Barriere gleichzeitig eine Verbreiterung des Potentialtrogens mit sich bringt, also die Energieniveaus etwas absinken, besitzen diese Fragmente eine entsprechend verringerte kinetische Energie.
- Die auf das Molekül wirkende effektive Intensität entspricht der Projektion der Laserpolarisationsrichtung auf die Verbindungsachse der Kerne. Dies wird auch durch das Skalarprodukt im Wechselwirkungsterm in Gleichung 2.11 verdeutlicht. Da die Winkelverteilung der Molekülachsen im Raum isotrop, und die Polarisationsrichtung konstant ist, ergibt sich für die elektrische Feldstärke, die auf die Moleküle wirkt, die Amplitude $E = E_0 \cdot \cos \phi$ (Wobei ϕ der Winkel ist, den die Molekülachse mit der Laserpolarisationsrichtung einschließt). Somit variiert die Intensität mit $\cos^2 \phi$. Im Fall einer linearen Intensitätsabhängigkeit sollte die Anzahl der auf dem Detektor

auftreffenden Fragmente also die gleiche \cos^2 -Verteilung bezüglich der Laserpolarisationsrichtung zeigen. Da für Vibrationsniveaus unter dem Kreuzungspunkt die Dissoziationsrate progressiv nichtlinear mit der Intensität wächst, sollte die Winkelverteilung der Fragmente aus diesen Niveaus entsprechend schmaler sein.

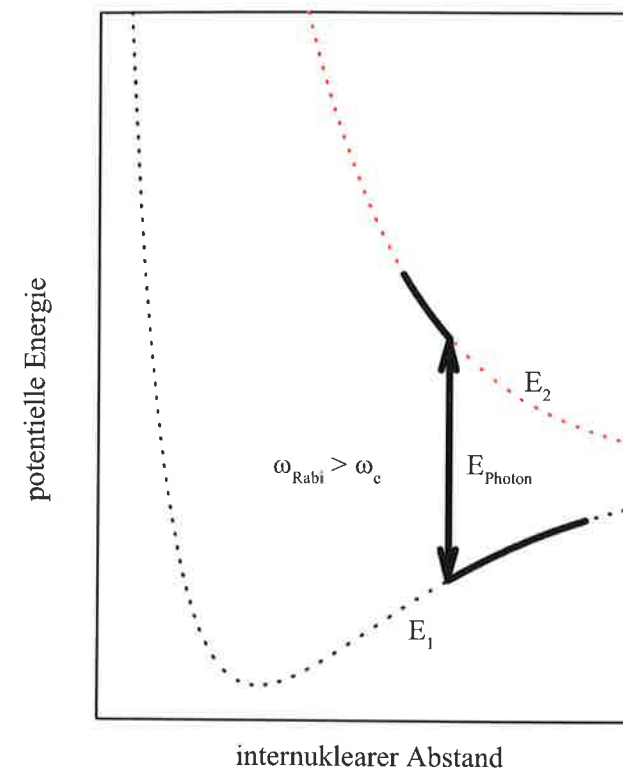


Abbildung 2.2: Potentialkurven der untersten zwei elektronischen Zustände eines Moleküls (E_1 und E_2). Ist die Rabifrequenz vergleichbar oder größer als die Eigenschwingungsfrequenz des Moleküls, so „verweilt“ das Molekül lange genug in der Nähe des Resonanzpunktes, um einen Austausch der Population zu ermöglichen. Die beiden Umkehrpunkte der Kernbewegung liegen dann auf unterschiedlichen Potentialkurven.

Die Lage des Kreuzungspunktes wird durch die Photonenenergie und die Intensität bestimmt. Bei größerer Photonenenergie werden die Potentialkurven weiter gegeneinander verschoben. Damit verschiebt sich der Kreuzungspunkt der beiden Kurven hin zu niedrigeren Vibrationsniveaus und kleineren Kernabständen. Das bedeutet, daß mit zunehmender Photonenenergie tiefere Vibrationsniveaus dissoziieren können. Da die Dissoziationsrate näherungsweise proportional zum Abstand der beiden Kerne, und dieser bei niedrigen Vibrationsniveaus geringer ist, wächst die für die Dissoziation niedrigerer Niveaus benötigte

Photonenenergie progressiv nichtlinear an. Die Intensität fließt über die Rabifrequenz bzw. den Wechselwirkungsterm mit ein und bestimmt so die Größe der Lücke zwischen den beiden adiabatischen Potentialkurven. Bei höherer Intensität wird der Potentialwall stärker abgesenkt, und die Tunnelwahrscheinlichkeit steigt entsprechend an.

Bei Intensitäten von über 10^{14} W/cm² findet neben den bisher beschriebenen einfachen Anregungen auch zunehmend eine Multiphotonabsorption statt. Die Wahrscheinlichkeiten für solche Ereignisse ist umgekehrt proportional zur Anzahl absorbiert Photonen, weshalb für experimentelle Untersuchungen hauptsächlich Ein-, Zwei-, und Drei-Photonenabsorptionen von Bedeutung sind. Die theoretische Darstellung ist identisch mit dem Einphotonen-Fall, nur daß die Potentialkurven um ein entsprechendes Vielfaches der Photonenenergie zueinander verschoben sind (siehe auch Bild 2.3). Bei Anwendung des Hamiltonoperators auf den Systemzustand werden dann bei einem Übergang von E_1 nach E_2 gleichzeitig 2 bzw. n Photonen vernichtet. Entsprechendes gilt für die Erzeugung beim Übergang von E_2 nach E_1 .

HD^+ besitzt zwar im Gegensatz zu H_2^+ oder D_2^+ ein permanentes Dipolmoment, dies ist jedoch zu klein, um auch direkte Zweiphotonenübergänge zu ermöglichen. Deshalb werden bei der „Zweiphotonenabsorption“ bei HD^+ ebenfalls wie bei H_2^+ oder D_2^+ zunächst drei Photonen absorbiert, und anschließend wird ein Photon wieder emittiert. Darum entsteht diese „vermiedene Kreuzung“ an der Stelle, die einem Verschieben der Potentialkurven um die dreifache Photonenenergie entspricht. Um darauf hinzuweisen, daß dies keine echte Zweiphotonenabsorption ist, wird dies hier stets mit „Zweiphotonenabsorption“ bezeichnet. In der Literatur wird dies oft auch als „Netto-Zweiphotonenabsorption“ bezeichnet.

Ein weiterer Effekt von Molekülen in starken Lichtfeldern, ist die sogenannte Coulomb-Explosion. Dabei wird das Molekül durch Absorption mehrerer Photonen innerhalb sehr kurzer Zeit ionisiert, und zerfällt aufgrund der abstoßenden Coulomb-Kraft der Kerne. Geschieht die Ionisation schnell genug, so können die Energieunterschiede der einzelnen Vibrationsniveaus wie bei der Dissoziation in der Fragmentenergie nachgewiesen werden.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Coulomb-Explosion von HD^+ zwar beobachtet (s. Abb. 5.1), jedoch nicht näher untersucht.

Zu diesem Thema existieren ausführliche Messungen an H_2^+ und D_2^+ von D. Pavicic [Pavicic].

Nicht in der Theorie der lichtinduzierten Potentiale berücksichtigt ist, daß sich die HD^+ -Moleküle wegen ihres Dipolmoments im elektrischen Feld des Lasers ausrichten. Vor allem bei Messungen mit längeren Pulsdauern führt dies zu einer veränderten Winkelverteilung der Fragmente.

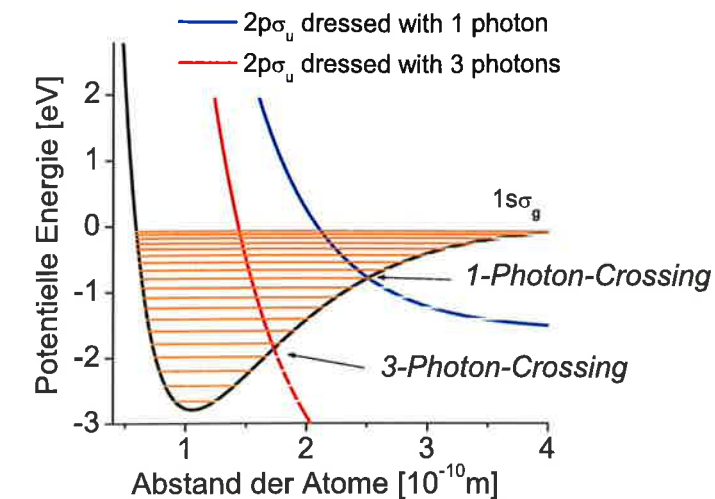


Abbildung 2.3: Die Kreuzungspunkte der Potentialkurven der elektronischen Zustände von HD^+ bei Ein- und Drei-Photonenabsorption liegen in Höhe des elften und fünften Vibrationsniveaus des Moleküls. Da unmittelbar nach dem Dissoziieren in Höhe des „3-Photon-Crossing“ wieder ein Photon emittiert wird, ist dies als „Zweiphotonenabsorption“ bezeichnet.

2.2 Experimentell verwertbare Parameter

Aus obiger Theorie ergeben sich verschiedene Möglichkeiten, das Entstehen lichtinduzierter Potentiale experimentell nachzuweisen.

Denkbar wäre eine spektroskopische Untersuchung der neu entstandenen Vibrations- und Rotations-Niveaus mit einem zweiten Laser. Veränderungen im Raman-Spektrum oder im Wirkungsquerschnitt für die Raman-Streuung sind an HD^+ jedoch kaum messbar, da die nächst höheren anregbaren Energieniveaus zu weit entfernt sind. Eine Messung des veränderten Fluoreszenzspektrums sollte möglich sein, jedoch ist wegen der geringen Anzahl der Moleküle im Laserfokus nur ein schwaches Signal zu erwarten. Außerdem sollten sich, da die effektive Intensität von der Orientierung des Moleküls im Laserfeld abhängt, die Effekte der lichtinduzierten Potentiale nur ungleichmäßig ausbilden. Daraus würde dann eine entsprechende Breite der Fluoreszenzlinien resultieren, die exakte Aussagen erschwert.

Deshalb bietet sich an, die Moleküle auf ihr verändertes Dissoziationsverhalten hin zu untersuchen. Dabei werden die lichtinduzierten Potentiale über die Parameter

- Intensität

- Pulsdauer
- Wellenlänge

verändert, und die jeweilige Auswirkung auf

- Anzahl der fragmentierten Moleküle
- Energieverteilung der Photofragmente
- Winkelverteilung der Photofragmente

untersucht. Die Effekte der lichtinduzierten Potentiale sollten dabei in den verschiedenen Vibrationsniveaus unterschiedlich stark ausgeprägt sein.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

Will man das Verhalten von Molekülen in starken Lichtfeldern untersuchen, so benötigt man dazu zunächst Moleküle in einem möglichst gut definierten Zustand (Kap. 3.1), und eine entsprechend starke Lichtquelle (Kap. 3.2) mit auf das Molekül abgestimmten Parametern. Die Fragmente, die in der Wechselwirkungszone entstehen, werden dann mit Hilfe eines Detektors (Kap. 3.4) nachgewiesen.

3.1 Molekülstrahlapparatur

Die untersuchten Molekülionen werden in der Molekülstrahlapparatur (s. Abb. 3.1) zu einem Strahl präpariert. Dies hat z. B. gegenüber zeitgemäßen Ionenfallen den Vorteil, daß in gleicher Zeit erheblich mehr Ionen für die Messung zur Verfügung stehen, weshalb sich gerade bei geringen Wirkungsquerschnitten eine deutlich bessere Statistik bzw. ein besserer Signal - Rausch - Abstand ergibt. Außerdem wäre für ein Dissoziationsexperiment in einer Ionenfalle ein ständiges Nachladen erforderlich.

Bei hinreichend kleinem Querschnitt ist zudem die aus einem Strahl resultierende Auflösung der Impulsverteilung der Fragmente sehr gut. Deshalb kommt zur Fokussierung eine entsprechende Ionenoptik zum Einsatz.

Der gesamte Strahl verläuft in einer in drei Kammern aufgeteilten Vakuumapparatur, die mit Turbomolekularpumpen und Drehschieber-Vorpumpen differentiell gepumpt werden.

Die Ionenquelle liegt gegenüber der übrigen Anlage auf einer Hochspannung von +11,1 kV, wodurch die HD^+ -Moleküle auf eine Geschwindigkeit von 10^6 ms^{-1} beschleunigt werden.

Das Grundprinzip sowie einige Teile der Anlage haben sich hier im Max-Planck-Institut für Quantenoptik seit vielen Jahren bewährt. Dabei wurden laufend Umbauten vorgenommen,

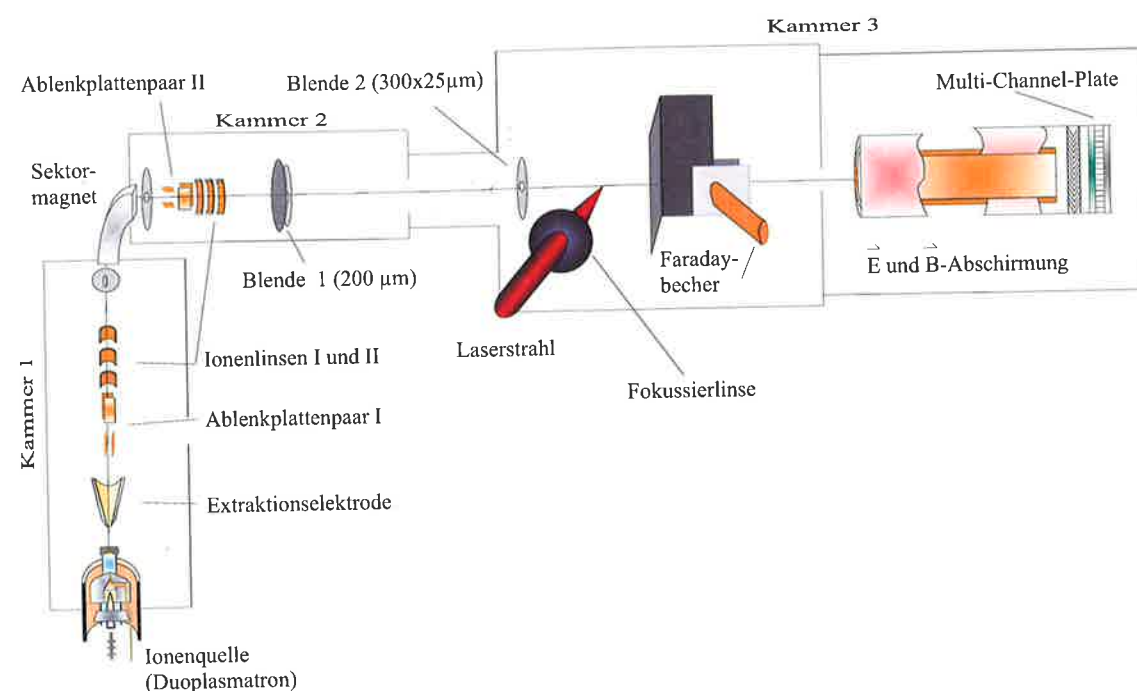


Abbildung 3.1: Aufbau der Ionenstrahlapparatur

um einen besseren Betrieb zu gewährleisten.

3.1.1 Ionenquelle

Die eigentliche Erzeugung der Ionen geschieht durch Elektronenstoßionisation einem sogenannten Duoplasmatron. In dieses wird über ein hochwertiges Leckventil, welches, in Verbindung mit einem vorgeschalteten, zweistufigen Druckregler, eine sehr exakte Steuerung der Durchflussmenge ermöglicht, das molekulare Deuteriumhydrid ¹ eingebracht.

Duoplasmatron

Das hier eingesetzte Duoplasmatron wurde von H. Liebl [Lie66] am Max-Planck-Institut für Plasmaphysik entwickelt, und wird hier eingesetzt, da es besonders hohe Ionenstromdichten bei Wasserstoff und ähnlichen Molekülen liefert (s. auch [Ket86]).

Das Duoplasmatron ist rotationssymmetrisch, und besteht aus einer Hohlkathode, die sich

¹ISOTEC INC., Deuterium Hydride, 97% HD, 1,2% D₂, 1,8% H₂, 10l

Kammer	Pumpleistung l/s	erreichter Druck /mbar
1	360	2×10^{-5}
2	300	1×10^{-6}
3	680	2×10^{-8}

Tabelle 3.1: Druck in der Vakuumapparatur. Die Kammern sind dem Ionenstrahl folgend durchnummeriert.

am oberen Ende konisch verjüngt, und einer Anode, die mit einer Bohrung versehen ist, wodurch die erzeugten Ionen aus der Gasentladungszone herausdiffundieren können. Außerdem existiert eine Zwischenelektrode, deren Feld die bei der Entladung entstehende Plasmawolke einschnürt. Um diesen Effekt zu verstärken, befindet sich das gesamte Duoplasmatron in einer Spule, deren Magnetfeld in axialer Richtung, geladene Teilchen auf eine Spiralbahn zwingt. Aufgrund der Inhomogenität in radialer Richtung verstärkt sich die Konzentration zur Mitte hin. Somit verlängert sich die Aufenthaltsdauer der Elektronen im Plasma, wodurch sich der Ionisierungsgrad weiter erhöht.

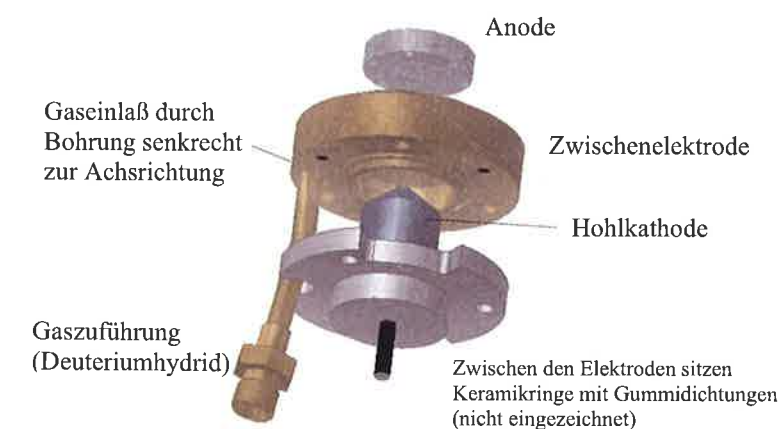


Abbildung 3.2: Aufbau des Duoplasmatrons. Durch die kleine Bohrung in der Anode werden die Ionen in die daran anschließende Apparatur extrahiert.

Die Hohlkathode unterlag einem ständigen Verschleiß, weshalb diese in Intervallen von ca. 200 Stunden erneuert, und die übrigen Teile der Ionenquelle von deren Abbrand gereinigt werden mußte.

Es wurden Anoden-Bohrungen mit verschiedenen Durchmessern von 180 μm bis 400 μm ausprobiert. Dabei stellte sich heraus, daß eine große Öffnung zwar mehr Ionen entweichen läßt, aber der daraus resultierende Strahl wesentlich instabiler ist. Dies konnte nur teilweise durch ständiges Nachjustieren kompensiert werden. So mußte also ein Kompromiss zwischen Stabilität und Quantität gefunden werden. Ein hoher Ionenstrom ist nötig, da

nicht nur die Anzahl der detektierten Fragmente, und somit die Messdauer proportional zu diesem sind, sondern sich auch das Signal-Rausch-Verhältnis erheblich verbessert.

Da sich gezeigt hatte, daß die Temperatur der Quelle ebenfalls eine Rolle spielt, wurde ein Ventilator angebracht, um das Gehäuse der Kathode auf ca. 20 Grad Celsius zu stabilisieren.

Der höchste Ionenstrom von ca. 60 μA konnte mit etwa folgenden Parametern extrahiert werden:

Druck	40 Pa
Magnetstrom	0,5 A
Zwischenspannung	97 V
Entladungsspannung	425 V
Anoden-Bohrung	200 μm

Tabelle 3.2: Betriebsparameter der Ionenquelle. Die Werte, außer der der Zwischenspannung, waren bedingt durch den Verschleiß nicht über längere Zeit konstant, so daß dies nur Anhaltswerte sind.

Dabei wurden Zwischenspannung, und Magnetstrom fest eingestellt, die Entladungsspannung ergab sich wegen

$$U_{\text{Entl}} \sim \frac{1}{p_{\text{Quelle}}}$$

durch den in der Quelle herrschenden Druck, der so gewählt wurde, daß die Gasentladung gerade noch aufrechterhalten werden konnte ².

3.1.2 Ionenoptik

Die HD^+ -Moleküle müssen zunächst von den anderen Ionen, wie beispielsweise H^+ , D^+ , H_2^+ , D_2^+ , die sich ebenfalls in der Ionenquelle bilden, separiert werden. Dies geschieht, wie in einem Massenspektrometer, mit Hilfe eines Sektormagneten, der den Ionenstrahl auf eine Kreisbahn lenkt, und so, da alle Ionen die gleiche Geschwindigkeit besitzen, nur Ionen mit einer bestimmten Masse passieren läßt. Die Magnetfeldstärke ist über einen großen Bereich einstellbar, so daß die gewünschte Masse selektiert werden kann.

Die erreichbare Auflösung in der Energieskala hängt wesentlich von der Transversalgeschwindigkeit der Moleküle ab. Deshalb ist ein gut kollimierter Ionenstrahl von besonderer

²Dies hat sich als sehr entscheidend erwiesen. Deshalb wurde die Gasentladung zuerst mit erhöhtem Druck gezündet, dann wurde der Druck sukzessive, bis zum Erlöschen reduziert. Die so gewonnenen Werte wurden dann während der Messungen eingestellt.

Bedeutung. Da sich die einzelnen Ionen aufgrund ihrer positiven Ladung gegenseitig abstoßen, muß aktiv eingegriffen, d.h. mit Hilfe von Linsen fokussiert werden, um die Strahldivergenz möglichst gering zu halten.

Zur Kollimierung wurden verwendet (s. a. Abb. 3.1) :

- Jeweils eine Blende am Ein- und Austritt des Sektormagneten mit \varnothing 5 mm
- Eine Ionenlinse, mit vorangesetzten Ablenkplattenpaaren zur Korrektur der Strahlrichtung, zwischen Ionenquelle und Sektormagnet
- Eine Ionenlinse, mit vorangesetzten Ablenkplattenpaaren, nach dem Sektormagneten
- Eine Kombination aus Vorblende 1 und Blende 1 in Kammer zwei mit \varnothing 3 mm und \varnothing 200 μm
- Eine Zwischenblende am Übergang von Kammer zwei zu Kammer drei mit \varnothing 3 mm
- Eine Kombination aus Vorblende 2 und Blende 2 unmittelbar vor dem Kreuzungspunkt mit dem Laser mit \varnothing 600 μm und 25 $\mu\text{m} \times 300 \mu\text{m}$

Die Ionenlinse, sowie die Blenden nach dem Sektormagnet wurden mit Hilfe eines HeNe-Lasers justiert. Dazu wurde zunächst der Laser, der durch ein kleines Fenster nach der Biegung beim Sektormagnet eingekoppelt werden konnte, so justiert, daß dieser möglichst mittig durch die gesamte Vakuumapparatur lief, und am gewünschte, späteren Nullpunkt am Detektor auftraf. Dann wurden die Ionenlinse mit den Ablenkplattenpaaren, sowie Blenden und Vorblenden mittig in den Laserstrahl gestellt. Der Faraday-Becher, der den Direktstrahl vor dem Detektor abblocken sollte, konnte ebenfalls auf diese Weise justiert werden. Auch die Höhe des zweiten Faraday-Bechers, in den mit Hilfe eines Ablenkplattenpaares, bei der Messung neutraler Fragmente der Direktstrahl und der Anteil geladener Fragmente geleitet wurde, konnte so bestimmt werden.

Vor der Kreuzung wurde eine rechteckige Blende verwendet, da durch eine geringe Strahlhöhe in Richtung der Laserpolarisation eine gute Energieauflösung möglich ist, und sich durch eine große Strahlbreite (in Laserrichtung) mehr Moleküle im Wechselwirkungsbereich befinden (s. auch Kap. 3.3).

Alle Blenden, sowie die beiden Faraday-Becher sind elektrisch isoliert angebracht, so daß mittels Vakuumdurchführungen der Ionenstrom mit einem Pikoamperemeter ³ gemessen werden kann. Daß den beiden wichtigsten Blenden (Blende 1 und Blende 2) jeweils eine etwas größere Vorblende vorangestellt ist, hat zwei wesentliche Vorteile. Zum einen ist dadurch die Lebensdauer der eigentlichen Blende, die wegen des kleinen Bohrloches nur aus

³Keithley 617 Elektrometer

dünne Material gefertigt werden kann, und deshalb durch den Ionenstrom aufgeschmolzen wird, mehr als doppelt so groß. Zum anderen ermöglicht eine Maximierung des Ionenstroms auf der eigentlichen Blende somit gleichzeitig eine Positionierung des Strahls in deren Mitte. Die Strommessung auf den Vorblenden, sowie auf der Zwischenblende ist für eine grobe Justierung nötig.

Durch kontinuierliches Erfassen des Ionenstroms am Faraday-Becher mit einem PC, konnten während den Messungen etwaige Schwankungen festgestellt werden. Der gemessene Strom wurde außerdem zur Normierung der Fragmentzahl herangezogen.

Die zweite Ionenlinse mußte im Rahmen dieser Diplomarbeit erneuert werden (s. a. A), da vermutlich Ablagerungen auf dem Keramikträger, in Verbindung mit zu geringen Abständen, zu elektrostatischen Aufladungen und gelegentlichen Überschlügen führte. Dies äußerte sich in starken Schwankungen der Ionenstromstärke und gehäuftem Abstürzen der Messrechner, so daß kein sinnvolles Arbeiten mehr möglich war. Deshalb erschien eine verbesserte Neukonstruktion angebracht, obwohl dies mit erheblichem Zeit- und Arbeitsaufwand verbunden war. Die neue Linse funktionierte dann einwandfrei.

3.2 Lasersystem

Das Lasersystem „Spitfire“ der Firma Spectra-Physics, das hier eingesetzt wurde, hat sich bereits bei Dissoziationsexperimenten an H_2^+ und D_2^+ [Pavicic] bestens bewährt. Es ist in der Lage, Pulse ab $t_{1/2} = 80$ fs mit einer Energie von maximal 2 mJ bei einer Repetitionsrate von 1 kHz zu liefern. Damit läßt sich bei einem Fokusbereich von 60 μm eine Intensität von $1,5 \times 10^{15} W/cm^2$ erreichen.

Das System besteht aus vier Komponenten, die nachfolgend genauer beschrieben werden.

3.2.1 Femtosekundenoszillator

Der Femtosekundenoszillator „Tsunami“ (Firma Spectra-Physics) liefert Pulse von $t_{1/2} = 60$ fs mit Pulsenergie 10 nJ bei einer Wiederholrate von 80 MHz. Es ist ein Titan:Saphir-Laser, der nach dem Kerr-Linsen-Modenkopplungs-Prinzip [Pic91] arbeitet. Im Resonator befindet sich ein Kompressor aus vier Prismen, mit deren Hilfe der Lichtweg der einzelnen Spektralkomponenten verändert, und so die Gruppengeschwindigkeitsdispersion dahingehend variiert werden kann, daß ein zeitliches auseinanderlaufen des Pulses verhindert wird. Zwischen den Prismen, in dem Bereich, in dem das Licht spektral aufgespalten ist, befindet sich ein Schlitz, der in Breite und Position verändert werden kann. Somit läßt sich die spektrale Breite und die Zentralwellenlänge einstellen. Für kurze Pulse muß das Spektrum breit genug, $\Delta\lambda$ etwa 12-16 nm, sein, wodurch die Variation der

Zentralwellenlänge auf einen Bereich von 720 nm bis 850 nm beschränkt ist.

Bei sämtlichen Messungen wurde hier eine Breite (FWHM) von 14,3 nm und eine Zentralwellenlänge von 791 nm beibehalten.

3.2.2 Pumplaser für Femtosekundenoszillator

Um im Titan:Saphir-Kristall des Femtosekundenoszillators die nötige Besetzungsinversion herbeizuführen, wird über zwei Spiegel Licht eines „Milenia“-Lasers (Firma Spectra-Physics), mit kontinuierlicher Leistung von 5,5 W eingekoppelt. Dies ist ein durch 4 Laserdiodenarrays gepumpter, Nd:YVO₄-Laser, in dessen Resonator sich ein LBO-Kristall⁴ befindet. Die Endspiegel des Resonators sind hochreflektierend für die im Nd:YVO₄-Kristall erzeugte Grundwellenlänge von 1064 nm. Auf diese Weise kann im LBO-Kristall eine hohe Lichtintensität, und damit ein besserer Wirkungsgrad bei der Frequenzverdopplung erreicht werden. Das frequenzverdoppelte Licht mit 532 nm wird dann durch einen der Resonatorspiegel, der diese Wellenlänge transmittiert, ausgekoppelt.

3.2.3 Nachverstärker

Um derart hohe Intensitäten zu erreichen, die hier benötigt werden, ist eine spezielle Technik zur Pulsverstärkung nötig. Diese nennt sich CPA (Chirped Pulse Amplification) und besteht aus vier Schritten:

- Pulsstrecke
- Regenerativer Verstärker
- Doppelpaßverstärker
- Pulskompressor

Dabei wird der Puls zunächst zeitlich gedehnt, um die Intensität soweit zu verringern, daß die bei der nachfolgenden Verstärkung beteiligten Kristalle und Spiegel nicht zerstört werden. Anschließend wird der verstärkte lange Puls wieder zeitlich komprimiert. So wird eine Gesamtverstärkung um mehr als fünf Größenordnungen erreicht.

Pulsstrecke

Das Prinzip des Pulsstreckers zeigt Abb. 3.3.

⁴LBO = LiB₃O₅

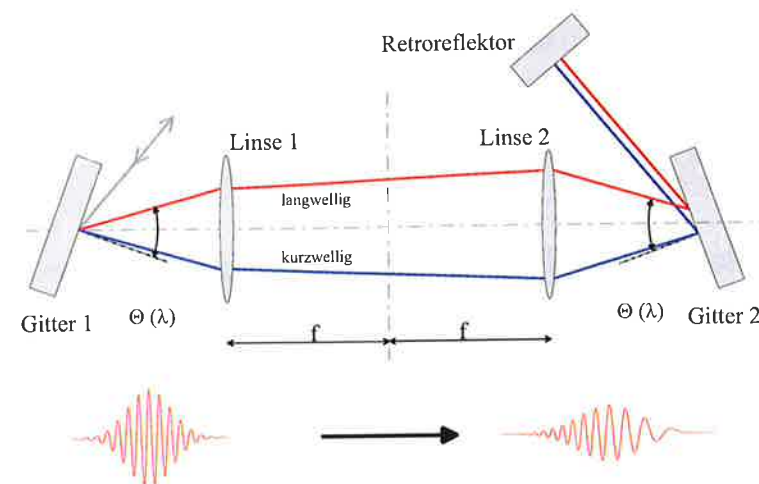


Abbildung 3.3: Prinzipieller Aufbau eines Gitterstreckers. Mit langwellig bzw. kurzwellig ist der jeweilige Anteil des aufgespaltenen Spektrums bezeichnet.

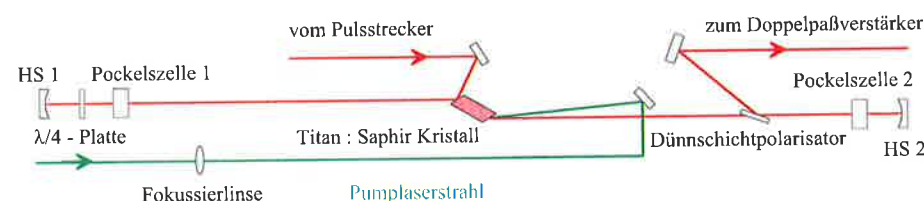


Abbildung 3.4: Aufbau des regenerativen Verstärkers

Der langwellige Frequenzanteil des Pulses legt einen kürzeren Weg zurück als der Kurzwellige. Deshalb eilen die langwelligen Anteile gegenüber der Zentralwellenlänge, die sich nicht ändert, voraus, und die kurzwelligen Anteile verzögern sich. Die Anordnung besitzt also eine große positive Gruppengeschwindigkeitsdispersion und erreicht in der verwendeten Ausführung eine Verlängerung des Pulses von 80 fs auf ca. 1 ns. Diese besteht im Gegensatz zur Abbildung nur aus einem Gitter⁵, das mit Hilfe eines Retroreflektors vierfach durchlaufen wird. Die beiden Linsen sind durch einen Hohlspiegel ersetzt, der, in Verbindung mit einem einfachen Spiegel, ebenfalls vierfach genutzt ist. Dadurch kann die chromatische Abberation verringert werden.

⁵Gitterzahl 1800 /mm, Größe 50 mm * 110 mm

Regenerativer Verstärker

Der Regenerative Verstärker besteht aus einem Titan:Saphir-Laser, in dessen Resonator sich zusätzlich eine $\lambda/4$ -Platte, ein Dünnschichtpolarisator, und zwei Pockelszellen im Strahlengang befinden (s. Abb. 3.4). Der gestreckte, vertikal (senkrecht zur Zeichenebene) polarisierte Puls gelangt durch Reflexion an der Oberfläche des Titan:Saphir-Kristalls in den Resonator. Dort durchläuft er zunächst Pockelszelle 1 und die $\lambda/4$ -Platte je zweimal, wodurch die Polarisation bei inaktiver Pockelszelle um 90 Grad gedreht wird, und der Puls für einen Umlauf im Resonator verbleibt. Ist Pockelszelle 1 geschaltet, hebt sie die Wirkung der $\lambda/4$ -Platte auf, so daß der Puls weiterhin im Resonator verbleibt. Auf diese Weise können also einzelne Pulse in den Resonator geladen werden.

Der Verstärkungsfaktor des Pulses durch einmaliges passieren des Kristalls beträgt maximal 3, und verringert sich aufgrund des Abbaus der Besetzungsinversion mit zunehmender Intensität des Lichtpulses. Durch eine Photodiode hinter dem Resonatorhohlspiegel HS 2, der einen geringen Teil transmittiert, kann der Verlauf der Verstärkung auf einem Oszilloskop beobachtet werden (s. Abb. 3.5).

Zum Auskoppeln des verstärkten Pulses dient Pockelszelle 2 in Verbindung mit dem Dünnschichtpolarisator. Ist die Pockelszelle aktiv, so wird die Polarisation des Pulses, bei zweimaligem Durchlaufen, um 90 Grad gedreht, so daß er den Polarisator nicht mehr passieren kann.

Der Zeitpunkt des Auskoppelns wird über eine Zeitverzögerung bezüglich des Einkoppelsignals festgelegt. Die Größe der Verzögerung wird so gewählt, daß Pockelszelle 2 nicht während eines Pulsdurchganges schaltet, und die Ausgangsleistung maximal wird. Dies ist nach 8-9 Umläufen, was 16-18 Verstärkungsvorgängen entspricht, gegeben.

Doppelpaßverstärker

Das aktive Medium des Doppelpaßverstärkers ist ebenfalls ein Titan:Saphir-Kristall. Dieser wird, wie der Name vermuten läßt, zweifach durchlaufen. Die Eintrittswinkel, und damit natürlich auch die Austrittswinkel, der beiden Durchläufe sind leicht unterschiedlich, so daß, im Gegensatz zum regenerativen Verstärker, hier die Lichtwege auf räumlich getrennten Bahnen verlaufen. Dadurch werden keine aktiven Komponenten, wie z.B. Pockelszellen, benötigt, um den Puls ein- oder auszukoppeln. Dies ist vor allem bei hohen Intensitäten von Vorteil, da solche Komponenten dann entsprechend groß dimensioniert, und die Strahldurchmesser entsprechend angepasst werden müssten, um die Zerstörungsgrenze nicht zu überschreiten. Da die Kosten überproportional mit der Größe der Komponenten ansteigen, werden andere Lösungen, wie diese, bevorzugt.

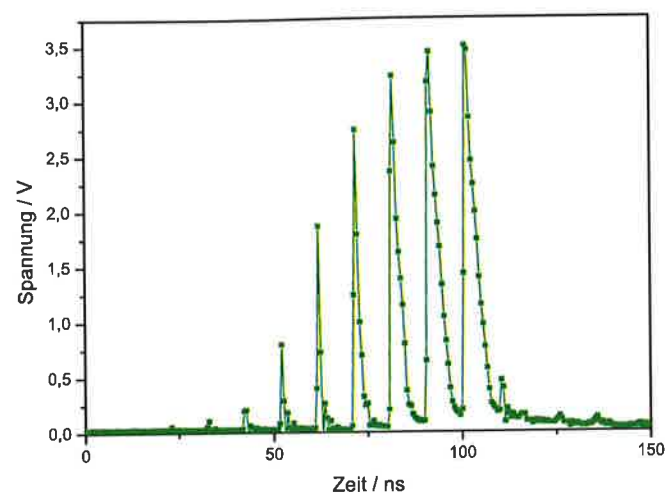


Abbildung 3.5: Mit einer Photodiode und einem digitalen Oszilloskop aufgenommener Verlauf der Verstärkung. Da die Diode am Ende des Resonators sitzt, ist der Puls nach jeweils zwei verstärkenden Durchläufen durch den Kristall zu sehen.

Pulskompressor

Der Kompressor arbeitet invers zum Strecker und ist dementsprechend sehr ähnlich aufgebaut. Das Prinzip wird in Abbildung 3.7 verdeutlicht. Hier legen die langwelligen Anteile einen längeren und die kurzwelligen Anteile einen kürzeren Weg zurück, weshalb die Anordnung eine negative Gruppengeschwindigkeitsdispersion besitzt. Somit kann der Puls wieder verkürzt werden. Dies gelingt jedoch nicht ganz bis auf den ursprünglichen Wert, da der Puls bei der Verstärkung etwas an spektraler Breite verliert und Phasenmodulationen höherer Ordnungen erfährt. Der reale Aufbau besteht auch hier, wie beim Strecker, nur aus einem Gitter, das durch zwei Retroreflektoren vierfach verwendet wird.

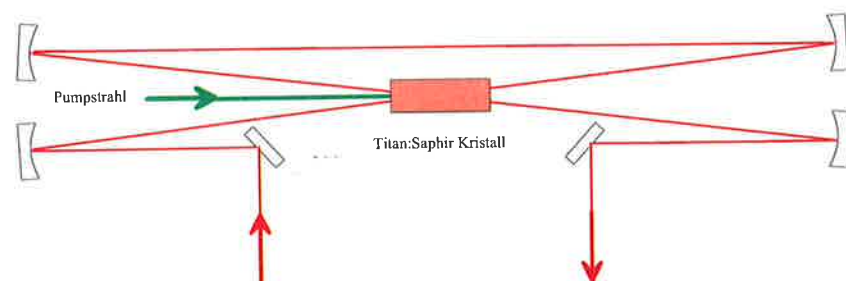


Abbildung 3.6: Aufbau des Doppelpaßverstärkers

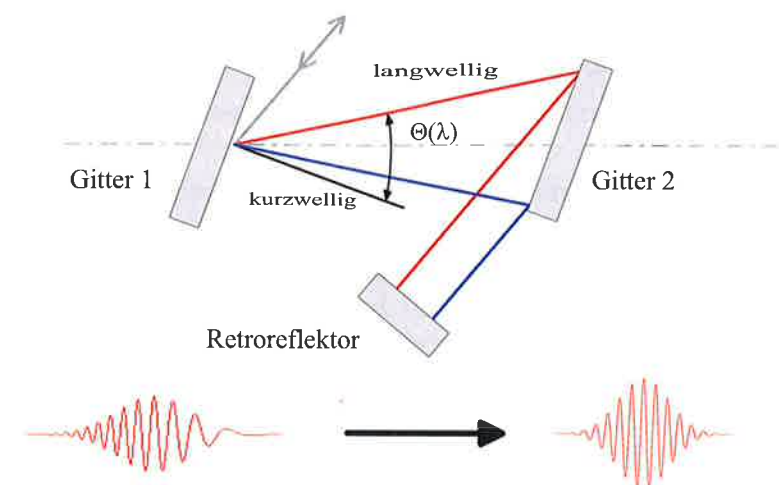


Abbildung 3.7: Prinzipieller Aufbau eines Gitterkompressors. Mit langwellig bzw. kurzwellig ist der jeweilige Anteil des aufgespaltenen Spektrums bezeichnet.

Die Retroreflektoren sind auf einem, durch Piezo-Motor verfahrbaren, Tisch so angebracht, daß ihre aktiven Flächen einander abgewandt parallel sind. Dies ermöglicht eine Verkürzung des Kompressor-Weges, ohne eine Änderung der Strahllage. Somit kann die Pulslänge innerhalb eines Bereiches von 80 fs bis zu 1 ps, der durch die Gitter⁶ festgelegt ist, variiert werden. Auf diese Weise wurde die Pulsdauer bei allen hier beschriebenen Messungen entsprechend eingestellt.

3.2.4 Pumplaser für Nachverstärker

Als Pumplaser für den Nachverstärker dient ein „Evolution“- Laser der Firma Spectra-Physics mit einer mittleren Ausgangsleistung von 20 Watt. Dabei handelt es sich um einen Diodengepumpten, gütegeschalteten Nd:YLF-Laser mit intracavity Frequenzverdopplung durch einen NCPM LBO-Kristall⁷. Das von ihm emittierte Licht mit einer Wellenlänge von 527 nm wird mit einem Strahlteiler im Verhältnis 40/60 auf die Titan:Saphir-Kristalle im regenerativen Verstärker und im Doppelpaßverstärker aufgeteilt. Durch die Wiederholrate des Pumplasers von 1 kHz wird damit die Wiederholrate des Gesamtsystems festgelegt.

⁶Die Breite des Gitters limitiert die spektrale Breite des Pulses, wobei die Gitterkonstante den Maßstab für die Aufspaltung festlegt. Verwendet wurde eine Gitterzahl von 1800 /mm bei einer Abmessung von 30 mm * 110 mm.

⁷Non-Critically Phase-Matched Lithium Triborate Kristall (LiB_3O_5)

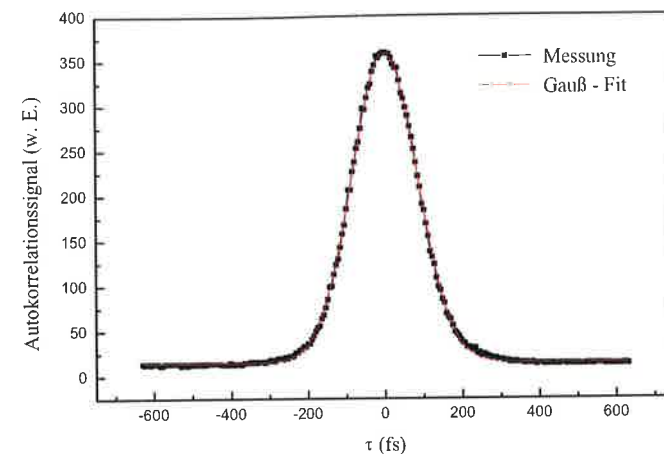


Abbildung 3.8: Typische gemessene Autokorrelation zur Bestimmung der zeitlichen Laserpulsbreite. Die Halbwertsbreite wurde auch durch Anpassen einer Gaußfunktion bestimmt.

3.2.5 Bestimmung des Pulsprofils

Die Eigenschaften der bei den Experimenten verwendeten Laserpulse ist natürlich von besonderer Bedeutung. Deshalb wurden ständig folgende Parameter bestimmt:

- Pulsdauer
- Pulsenergie
- Spektrum
- Strahlprofil

Die **Pulsdauer** wurde dabei mit einem Autokorrelator⁸ bestimmt, wobei über 64 Messungen gemittelt wurde. So konnte im verwendeten Messbereich bis 500 fs eine Genauigkeit von ± 2 fs erreicht werden. Um auch Dispersionseffekte und Einflüsse der Selbst-Phasen-Modulation auf dem Weg vom Laserausgang zum Wechselwirkungspunkt zu berücksichtigen, wurde dabei weitgehend der gleiche Lichtweg, exakt die gleiche Anzahl Spiegel und Linsen, sowie die gleiche Entfernung vom Laser eingehalten. Die Messkurven konnten über eine Schnittstelle auf den PC übertragen werden, wodurch die Halbwertsbreite auch durch Anpassen einer Gaußkurve bestimmt werden konnte, was aber die selben Ergebnisse lieferte.

⁸Pulse Scope, Firma APE

In einem Autokorrelator (second-order, noncolinear), wie er hier verwendet wurde, wird der eingehende Puls, wie bei einem Interferometer, mit einem Strahlteiler in zwei zueinander senkrecht stehende „Arme“ aufgespalten. Die beiden Teilstrahlen werden dann fokussiert, und in einem KPD-Kristall überlagert. Die Intensität der im Kristall erzeugten „Zweiten Harmonischen“, also des frequenzverdoppelten Lichtes, hängt stark nichtlinear von der Intensität des erzeugenden Pulses ab. Durch Verändern der Länge eines „Armes“ kann der Überlapp der beiden Teilpulse gesteuert, und so die Intensität im Kristall variiert werden. Diese Längenveränderung liefert mit der Lichtgeschwindigkeit ein Maß der zeitlichen Verzögerung der Pulse zueinander. Mißt man nun die Intensität des frequenzverdoppelten Lichtes in Abhängigkeit dieser Verzögerung, ergibt sich ein zur Pulsdauer proportionales Signal. Die Dauer τ (halbe Breite bei $1/e$) eines zeitlich gaußförmigen Pulsverlaufs:

$$I(t) = I_0 \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau} \right)^2 \right] \quad (3.1)$$

ergibt sich dann aus:

$$\tau = \frac{t_{Korr}}{2\sqrt{2 \ln 2}} \quad (3.2)$$

Die **Pulsenergie** wurde durch Messen der mittleren Leistung mit einem Leistungsmesser⁹ mit thermischem Messkopf¹⁰ und der Wiederholrate der Pulse bestimmt :

$$E_{Puls} = \bar{P} * \left(\frac{n}{t} \right)^{-1}$$

Um zu gewährleisten, daß die mittlere Leistung nicht durch kleinere Vor- oder Nach- Pulse erhöht wird, wurde zusätzlich mittels einer schnellen Photodiode das Pulssignal auf einem Oszilloskop überwacht.

Das **Spektrum** der Pulse wurde, insbesondere auch bereits am Ausgang des Femtosekundenoszillators, mit einem Faserspektrometer¹¹ überwacht. Dazu wurde, um eine Abschwächung zu erzielen, nur der Reflex einer Glasplatte verwendet, und über eine Ulbrichkugel in die Glasfaser eingekoppelt. Bei allen Messungen wurde das gleiche Spektrum verwendet, nämlich 791 nm Zentralwellenlänge mit einer Breite von $14,3 \pm 0,6$ nm.

Das **Strahlprofil** (Abbildung 3.10) wurde mit einer CCD-Kamera¹² bestimmt (siehe auch Abschnitt 3.3.1). Die Intensitätsverteilung über den Querschnitt war, wenngleich leicht elyptisch, noch in guter Näherung gaußförmig.

⁹COHERENT LABMASTER

¹⁰Meßfehler $\pm 2\%$

¹¹Pulse Scope, Firma APE

¹²Spiricon LBA

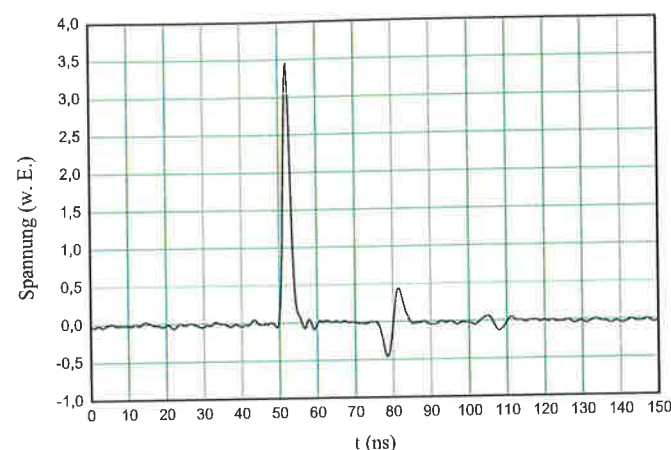


Abbildung 3.9: Mit einer schnellen Photodiode (Anstiegszeit 1 ps) und einem digitalem Oszilloskop aufgenommener Pulsverlauf. Die Nachschwingung 30 ns nach dem Laserpuls entstand durch Reflexion des elektrischen Signals im Kabel, was leicht durch Verlängerung dieses verifiziert werden konnte.

3.3 Wechselwirkungsbereich

Der Wechselwirkungsbereich, also der Kreuzungspunkt von Molekülstrahl und Laserpuls, liegt 11 mm hinter Blende 2 (s. a. Abbildung 3.1). Die Polarisation ist dabei, räumlich betrachtet, senkrecht, also auch senkrecht zur Ebene, die durch die Ausbreitungsrichtung des Lasers und der Molekülstrahlrichtung, die wiederum zueinander senkrecht sind, aufgespannt wird.

Zur groben Justierung des Kreuzungspunktes wurde der Laser durch eine, 45 Grad zum Molekülstrahl stehende Blende fokussiert, die mittels Vakuumdurchführung auch ohne Belüften der Apparatur in den Strahl geschoben werden konnte. Ein Spiegel reflektierte dabei das durch die Blende transmittierte Licht durch ein Fenster in der Vakuumkammer, welches mittels Infrarot-Viewer dann zum Auffinden der richtigen Position verwendet wurde. Dabei wurde die Richtung des Laserstrahls über einen Spiegel solange angepasst, bis die Fokussierlinse exakt im Strahlengang zentriert war.

Die Feineinstellung erfolgte dann durch Verschieben der Fokussierlinse. Als Maß diente dabei die Anzahl der, pro Puls im Fokus erzeugten Photofragmente. Bei Mittelung über $5 \cdot 10^4$ Pulsen konnte so eine Positionierung mit einer Genauigkeit von $\pm 0,5 \mu\text{m}$ erreicht werden.

Bei einer Geschwindigkeit von 10^6 ms^{-1} bewegen sich die Moleküle während eines Pulses

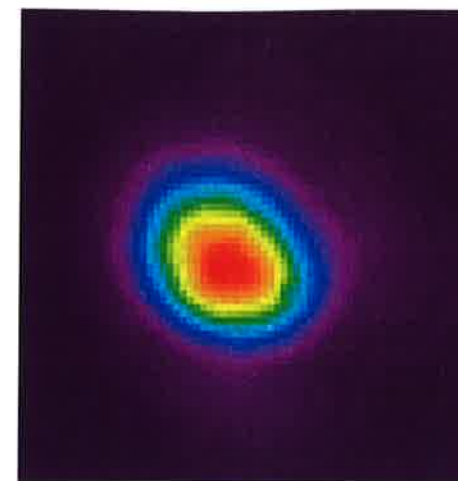


Abbildung 3.10: Strahlprofilmessung: mit einer CCD-Kamera wurde ein Querschnitt der Laserpulse aufgenommen.

von $t_{1/2} = 100 \text{ fs}$ Dauer um $0,1 \mu\text{m}$ in Strahlrichtung. Bei einem Fokussdurchmesser von mindestens $60 \mu\text{m}$ kann somit die Intensitätsvariation aufgrund der Bewegung vernachlässigt, und eine Gaußverteilung (siehe auch Abschnitt 3.2.5) angenommen werden. Die Intensität in Laserstrahlrichtung ist näherungsweise im gesamten Wechselwirkungsvolumen konstant, da die Rayleighlänge (s. a. Abb. 3.11) $2,3 \text{ mm}$ beträgt, und somit wesentlich größer ist als die Breite des Molekülstrahls von etwa $300 \mu\text{m}$.

3.3.1 Intensitätsbestimmung

Die Intensität des Lichtfeldes hat einen entscheidenden Einfluß darauf wie stark sich die Effekte der lichtinduzierten Potentiale zeigen. Bei Intensitäten im Bereich von 10^{15} W/cm^2 ist eine direkte Messung jedoch kaum möglich. Darum wurde die mittlere Leistung der Laserpulse vor der Fokussierlinse mit einem Powermeter¹³ gemessen und der Strahldurchmesser am Wechselwirkungsort bestimmt. Während des Experiments wurde die Intensität durch Vergrößern des Linsenabstands zum Wechselwirkungsort verändert. Deshalb ist es wichtig, den Strahlquerschnitt auch in der Umgebung des Fokuspunktes zu kennen. Um den Strahlverlauf zu bestimmen, wurde ein Objektiv¹⁴ mit Vergrößerungsfaktor 7,45 so im Strahlengang plaziert, daß sich dessen Brennpunkt exakt mit dem der Fokussierlinse deckte. Der hierdurch aufgeweitete Strahl wurde dann auf die CCD-Kamera zur Strahlprofilmessung fokussiert. So konnten die verschiedenen Durchmesser der Strahlquerschnitte durch schrittweises Verschieben der Fokussierlinse auf die CCD-Kamera abgebildet werden. Um die Kamera nicht zu zerstören, und um Selbstfokussierungs- und Ionisations- Effekte

¹³ COHERENT LABMASTER

¹⁴ $f = 200 \text{ mm}$

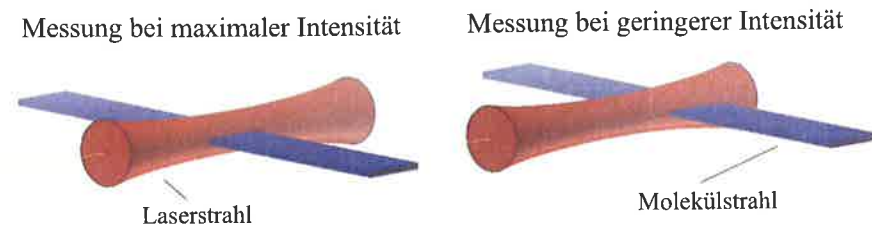


Abbildung 3.11: Veranschaulichung der Wechselwirkungszone zwischen Laser und Molekülstrahl. Es ist deutlich zu erkennen daß die Intensitätsvariation in Laserstrahlrichtung in der Nähe des Fokus vernachlässigt werden kann.

in der Luft zu vermeiden, wurde ein Abschwächer vor der Fokusslinse und ein Abschwächer unmittelbar vor der CCD-Kamera eingesetzt. Die im Meßgerät integrierte Software¹⁵ zur Analyse des Strahlprofils führt Selbsttätig einen Gauß-Fit in zwei Richtungen durch, und liefert so Werte für die Standardabweichung σ . Außerdem wird der Durchmesser des Strahls bei dem Wert I_0/e^2 mit der sogenannten knife-edge Technik bestimmt. Den Verlauf dieses Strahldurchmessers zeigt Abbildung 3.12 bei verschiedenen Entfernungen von der Linse. Diese Werte wurden auch zur Berechnung der Intensität verwendet.

Für die Querschnittsfläche eines elyptischen gaußförmigen Strahls der Breite 2σ bei $1/e$ gilt:

$$A_{Strahl} = 2 \int_0^\infty G(x, y) dx dy = \pi \sigma_x \sigma_y \quad (3.3)$$

mit:

$$G(x, y) = \exp \left[- \left(\frac{x}{\sigma_x} \right)^2 \right] \cdot \exp \left[- \left(\frac{y}{\sigma_y} \right)^2 \right]$$

Betrachtet man die volle Breite (FW) eines Gaußprofil nicht bei der der Höhe $1/e$, sondern bei $1/e^2$, oder bei halber Höhe $1/2$, ergeben sich entsprechend noch die Vorfaktoren:

$$\begin{aligned} A_{Strahl} &= \frac{\pi}{4} \cdot FW_{\frac{1}{e}, x} \cdot FW_{\frac{1}{e}, y} \\ &= \frac{\pi}{8} \cdot FW_{\frac{1}{e^2}, x} \cdot FW_{\frac{1}{e^2}, y} \\ &= \frac{\pi}{4 \ln 2} \cdot FW_{\frac{1}{2}, x} \cdot FW_{\frac{1}{2}, y} \end{aligned} \quad (3.4)$$

¹⁵Spiricon LBA-PC, vers. 2.6

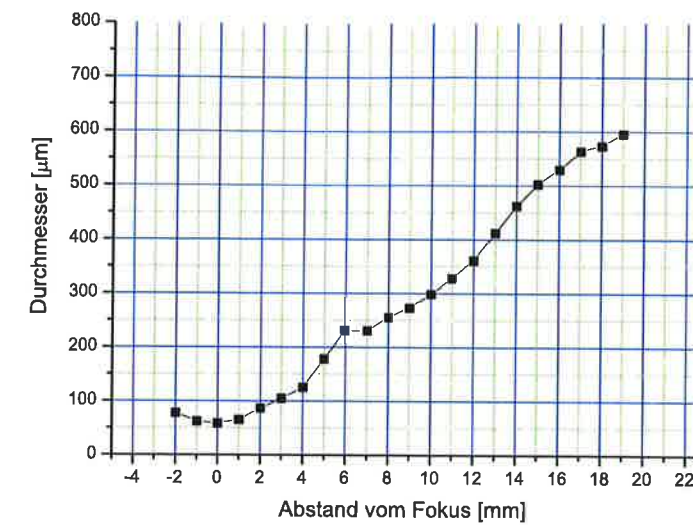


Abbildung 3.12: Mit der CCD-Kamera bestimmte Querschnitte des Laserstrahls nach der Fokussierlinse. Der Knick bei 6 mm wird durch Umschalten des Meßbereichs erzeugt.

Aus den gemessenen Werten (Durchmesser d bei $1/e^2$) ergibt sich somit die Strahlquerschnittsfläche zu:

$$A_{Strahl} = \frac{\pi}{8} d^2 \quad (3.5)$$

Für die Intensität eines räumlich gaußförmigen Laserpulses, dessen zeitlicher Verlauf ebenfalls gaußförmig, mit Breite 2τ ist, gilt damit:

$$I(x, y, t) = I_0 \cdot G(x, y) \cdot F(t) \quad (3.6)$$

bzw. für die Energie:

$$\begin{aligned} E &= I_0 \int G(x, y) dx dy \int F(t) dt \\ &= I_0 A_{Strahl} \int \exp \left[- \left(\frac{t}{\tau} \right)^2 \right] dt \\ &= I_0 A_{Strahl} \sqrt{\pi} \tau \end{aligned} \quad (3.7)$$

Da sich die Energie leicht aus der mittleren Leistung und der Pulsfrequenz berechnen läßt:

$$E = \frac{\bar{P}}{f} \quad (3.8)$$

folgt:

$$I_0 = \frac{\bar{P}}{\sqrt{\pi} f \tau A_{\text{Strahl}}} \quad (3.9)$$

wobei \bar{P} die mittlere Leistung und f die Wiederholfrequenz des Lasers ist. τ ist die halbe Breite der Pulsdauer bei der Höhe $1/e$.

Für das Fenster, durch das die Laserpulse in die Vakuumapparatur eindringen, wurde ein Transmissionskoeffizient von 0,92 angenommen.

Alle in den Graphiken angegebenen Intensitäten sind Spitzenintensitäten I_0 an Ort der Wechselwirkung.

3.4 Detektion der Fragmente

Für eine gute Auflösung bei der Detektion der Photodissoziationsfragmente sind nicht nur die eigentlichen Detektoren von Bedeutung. So ist zunächst wichtig, daß die räumliche Ausdehnung und die Geschwindigkeitskomponente des Molekülstrahls in Laserpolarisationsrichtung möglichst gering ist. Dies wird durch die, in diese Richtung nur $25 \mu\text{m}$ große Blende annähernd erreicht (s. a. Abschnitt 3.1.2). Eine noch kleinere Blende wäre diesbezüglich zwar wünschenswert, jedoch würde sich aufgrund der dann geringeren Anzahl an Fragmenten die Messdauer deutlich erhöhen, und somit das Verhältnis Signal zu Hintergrundsignal weiter verringern. So bleibt die Blendengröße der größte zur Linienverbreiterung beitragende Faktor.

Eine sehr wesentliche Rolle bei der Auflösung spielt das Verhältnis aus Geschwindigkeit der Fragmente und Abstand der Wechselwirkungszone vom Detektor. Denn dies legt den Abbildungsmaßstab fest. Die Fragmentgeschwindigkeit kann über die Geschwindigkeit des Molekülstrahls, also durch Wahl einer entsprechenden Spannung an der Extraktionselektrode der Ionenquelle gesteuert werden. Einen deutlich größeren Einfluß hat jedoch der Detektorabstand, so daß zunächst dieser festgelegt wird. Da für eine Änderung größere Umbauten an der Apparatur nötig sind, muß eine Einstellung gewählt werden, die es auch erlaubt an ähnlichen Molekülen messen zu können. So betrug der Abstand des Detektor von der Wechselwirkungszone bei allen Messungen $955 \pm 1 \text{ mm}$ (im inneren des Vakuumrohres und ohne die Detektoroberfläche zu berühren, ist eine genauere Bestimmung sehr aufwendig). Die Geschwindigkeitsverteilung in Strahlrichtung führte bei diesem Abstand in

Verbindung mit dem größten verwendeten Abbildungsmaßstab der Linse zu einer Variation im Auftreffpunkt, die eine Größenordnung unter der Pixelgröße der CCD-Kamera lag.

Der Bereich zwischen Wechselwirkungszone und Detektor ist innerhalb des Vakuumrohres noch doppelt mit Rohren aus Mu-Metall, das eine besonders hohe magnetische Leitfähigkeit besitzt, abgeschirmt, um elektromagnetische Einstrahlungen zu verhindern.

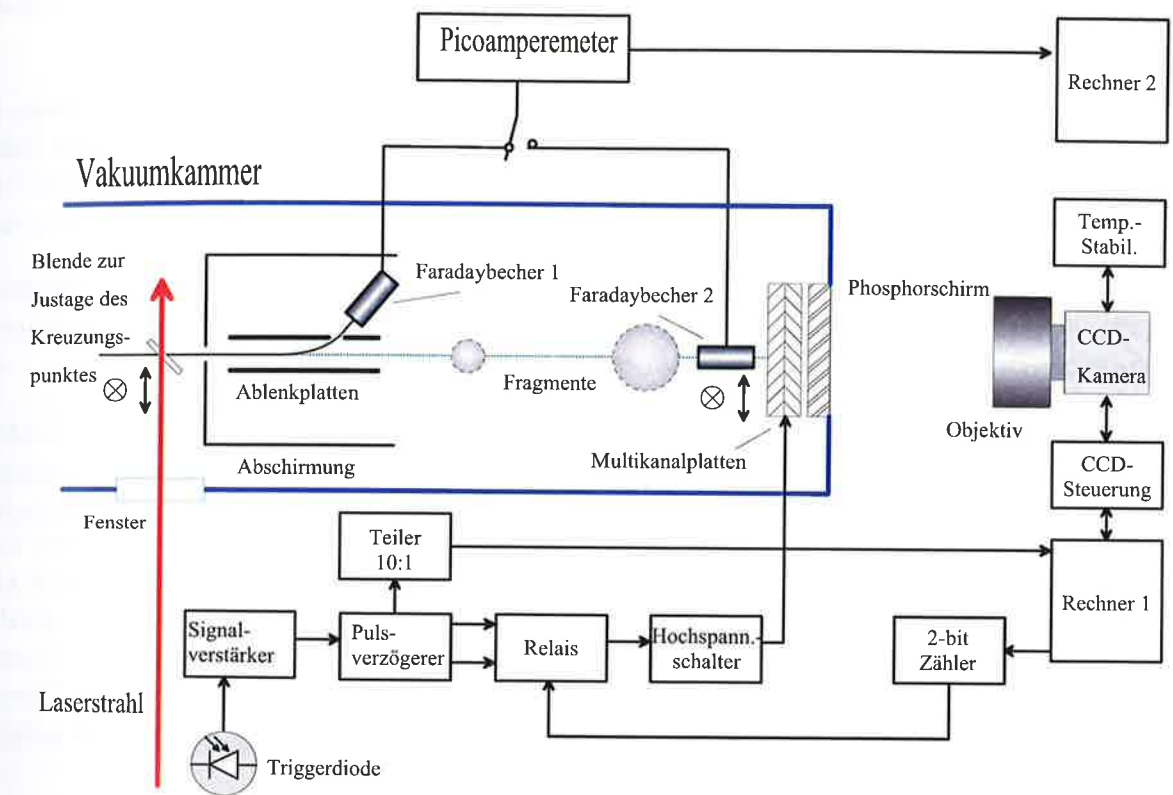


Abbildung 3.13: Schema der an der Detektion der Photofragmente beteiligten Komponenten

3.4.1 MCP und Phosphorschirm

Als Detektor dient ein Verbund aus zwei in Chevron-Anordnung hintereinandergesetzten Multi-Channel-Plates und eines Phosphorschirmes auf einem CF-100-Vakuumflansch¹⁶. Die sensitive Fläche hat einen Durchmesser von 40 mm, wobei die einzelnen Kanäle nur $10 \mu\text{m} \times 10 \mu\text{m}$ groß sind.

Die auftreffenden Fragmente schlagen Elektronen heraus, die dann durch die anliegende Hochspannung (siehe Tabelle 3.3), innerhalb der einzelnen Kanäle, beschleunigt werden.

¹⁶LaVision IonStar open microchannel plate detection system

Diese lösen dann Sekundärelektronen heraus, so daß die am Phosphorschirm auftreffende Elektronenlawine groß genug ist, um ausreichend Fluoreszenzlicht zu erzeugen, damit es mit der CCD-Kamera nachgewiesen werden kann. Der Verstärkungsfaktor kann dabei über die Höhe der angelegten Spannung in einem Bereich von 10^2 bis $2 \cdot 10^4$ verändert werden.

Die einzelnen Kanäle sind nicht vollkommen unabhängig voneinander. Effekte, wie Ion-feedback verursachen ein Übersprechen zwischen den Kanälen. Bei der im Experiment erreichten Gesamtauflösung ist dies jedoch nicht relevant.

Wird ein Kanal von einem Teilchen getroffen, so kann innerhalb der Regenerationszeit, die benötigt wird um ihn wieder aufzuladen, kein zweites Teilchen detektiert werden. Da innerhalb dieser Totzeit von 20 - 30 ns nur ca. 5 Fragmente auf dem Detektor mit ca. $12,6 \cdot 10^6$ Kanälen auftreffen, ist die Wahrscheinlichkeit eines zweiten Treffers zu vernachlässigen.

Um fertigungsbedingte Schwankungen des Nachweisvermögens auf der Detektorfläche zu kompensieren, wurde die gesamte Fläche gleichmäßig mit UV-Licht bestrahlt, und das so gewonnene Referenzbild als Faktor in die Auswertung mit einbezogen.

Die absolute Größe des Nachweisvermögens, also die Wahrscheinlichkeit, daß ein Auftreffendes Fragment auch detektiert wird, ist insofern von Bedeutung, da mit geringerem Nachweisvermögen zwangsläufig die Messzeit und damit das Rauschsignal ansteigt. Das Hintergrundsignal wird überwiegend durch gestreute Teilchen vom Direktstrahl, aber auch durch Restgasteilchen des Vakuums, erzeugt, und ist im Mittel konstant. Die Beiträge wachsen somit linear zur Meßzeit. Als Wert für die Nachweiswahrscheinlichkeit wird in einer Arbeit von [Bre95] für H^+ $40 \pm 5 \%$ und für D^+ $41 \pm 5 \%$ ab einer kinetischen Energie von 3 keV genannt. Dies läßt hoffen, daß bei der hier im Experiment verwendeten Energie von ca. 13 keV die Detektion der verschiedenen Fragmente mit ähnlicher Anzahl möglich ist.

Der exakte relative Unterschied in der Nachweiswahrscheinlichkeit für die Fragmente H^+ und D^+ ist jedoch von großer Bedeutung. Denn es war beabsichtigt, auch eine Auswertung der Messergebnisse durchzuführen, die den Nachweis ermöglicht, ob einer der Dissoziationskanäle $HD^+ \rightarrow H^+ + D$, bzw. $HD^+ \rightarrow H + D^+$, bevorzugt ist. Im Unterschied zu oben genannter Untersuchung [Bre95] werden hier im Experiment die beiden Teilchen zusammen beschleunigt, und erst kurz vor dem Detektor getrennt. Daraus resultiert beim Auftreffen ein Impulsverhältnis entsprechend den Massen von 1:2. Deshalb ist, auch wenn die Nachweisempfindlichkeit bei Fragmenten ab 3 keV gesättigt ist, eine Differenz wahrscheinlich. Die großzügige Fehlerabschätzung in [Bre95] läßt dies ebenfalls zu.

Um diese Unsicherheit zu umgehen, wurde deshalb nicht direkt die detektierte Anzahl der H-Fragmente mit der Anzahl der D-Fragmente verglichen. So wurde zunächst die Anzahl der H-Fragmente und die Anzahl der D-Fragmente bei einer Messung, bei der nur die neutralen Fragmente gezählt wurden ermittelt. Anschließend wurde bei einer Messung, bei der neutrale und geladene Fragmente gezählt wurden, die Anzahl der in den beiden

Bereichen auftreffenden Fragmente $H + H^+$ sowie $D + D^+$ bestimmt. Da davon auszugehen ist, daß der Unterschied in der Nachweisempfindlichkeit von H zu H^+ bzw. von D zu D^+ keine Relevanz hat, kann die Häufigkeit von H und H^+ Fragmenten, bzw. von D und D^+ Fragmenten, und damit das Verhältnis der Dissoziationswege dann bestimmt werden mit:

$$\frac{|H + H^+|}{|H|} = 1 + \frac{|H^+|}{|H|} \quad \frac{|D + D^+|}{|D|} = 1 + \frac{|D^+|}{|D|} \quad (3.10)$$

Der Impulsunterschied der jeweiligen Fragmente aufgrund der Geschwindigkeitsverteilung in Strahlrichtung war gut zwei Größenordnungen kleiner als das Nachweisvermögen, und wurde deshalb nicht berücksichtigt.

Um störende Einflüsse der an der Eingangsseite der MCP anliegenden Hochspannung auf die Bahn der Fragmente zu verhindern, befand sich ursprünglich ein Gitter auf Nullpotential unmittelbar davor. Nach Verbesserung der Auflösung (s. 3.4.2) wurde die durch das Gitter im Bild der Fragmente erzeugte Struktur jedoch deutlich sichtbar. Deshalb wurde das Gitter entfernt. Anschließend Wiederholungen von Messungen an H_2^+ lieferten exakt die bekannten Bilder, so daß der Einfluß auf den Auftreffort der Fragmente unter der Auflösungsgrenze zu liegen scheint.

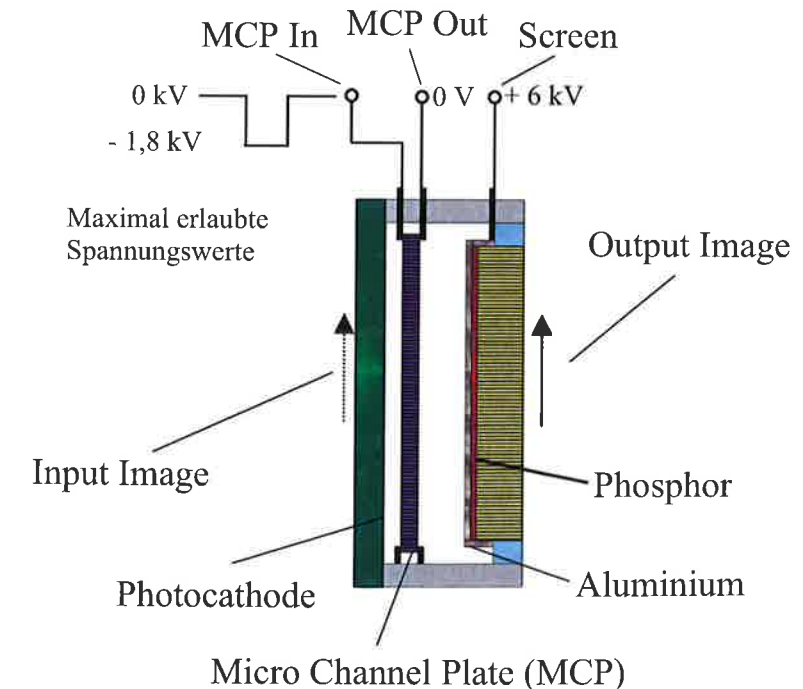


Abbildung 3.14: Aufbau der Multi Channel Plate

MCP Input	-1,45 kV
MCP Output	ground
Phosphor screen	6 kV

Tabelle 3.3: Verwendete Spannungseinstellungen am Detektor

3.4.2 CCD - Kamera

Die eigentlich erfassten, dem Experiment zugeordneten, und später ausgewerteten Meßdaten liefert eine CCD-Kamera¹⁷. Auf deren sensitivem Chip werden, proportional zur Anzahl der auftreffenden Photonen, Elektronen erzeugt. Dies geschieht orts aufgelöst in einem Raster von 286 * 384 Pixeln bei einer Pixelgröße von 23 μm * 23 μm . Die so gewonnenen Matrizen können in einem Zwischenspeicher abgelegt, und analog addiert werden. Die Summe wird dann in einer AD-Wandlerkarte mit 12 Bit \pm 0,5 LSB Auflösung digitalisiert, und als Matrix im Rechner gespeichert. Diese Matrizen können wiederum beliebig summiert (siehe auch Abschnitt 4.1), und als Bilder visualisiert werden, wobei den Zahlen innerhalb gewisser Intervalle jeweils Farben zugewiesen werden.

Der CCD-Chip wird, mittels eines durch Wasserkühlung temperaturstabilisierten Peltierelementes, auf -8 Grad gekühlt, um ein Rauschen zu unterdrücken.

Um die Photonen des Phosphorschirmes auf den CCD-Chip abzubilden wird ein Objektiv¹⁸ verwendet. Da der Schirm rund (\emptyset 40 mm) ist, und der Chip rechteckig (8832 μm * 6624 μm), gelingt dies nicht optimal. Will man den gesamten Schirmdurchmesser abbilden, so ergibt sich außerdem ein Abbildungsmaßstab von ca. 4,54 : 1. Das bedeutet, daß etwa 10 * 10 Zellen der MCP (s. a. 3.4.1) auf ein Pixel der CCD-Kamera abgebildet werden. Verwendet man ein Objektiv mit kleinerem Abbildungsmaßstab, so kann die Auflösung also deutlich verbessert werden. Da dann aber nur noch ein kleiner Ausschnitt der Detektorfläche abgebildet werden kann, sollte dieser beliebig gewählt werden können. Deshalb wurde im Rahmen dieser Diplomarbeit eine Verschiebeeinheit konstruiert, die es erlaubt, die CCD-Kamera über die gesamte Detektorfläche zu bewegen. Dabei konnte eine Genauigkeit der Repositionierung von $\pm 1,5 \mu\text{m}$ erreicht, und somit gewährleistet werden, daß die selben Zellen auf die selben Pixel abgebildet werden.

Bei den folgend beschriebenen Messungen wurden zwei verschiedene Abbildungsmaßstäbe verwendet. Da nur ein Objektiv zur Verfügung stand (ein anderes wurde bestellt, aber leider innerhalb 5 Monate noch nicht geliefert), wurde ein Zwischenring¹⁹ verwendet, um die Projektion zu vergrößern. Die dadurch im Randbereich verursachten Abbildungsfehler sind tolerierbar, da bei der Auswertung der Messungen vor allem das Zentrum von Interesse

¹⁷Fa. LaVision LightStar

¹⁸Schneider & Kreuznach, 35 mm

¹⁹Distanzring mit 2,5 mm

ist. Dennoch liegt in der Pixelgröße der CCD-Kamera und der Projektionsgüte darauf der größte limitierende Beitrag der Auflösung der Detektionskette.

Um beurteilen zu können, wie aussagekräftig die Ergebnisse der Messungen sind, was wesentlich auch von der Statistik abhängt, also davon wieviele Fragmente eigentlich aus den jeweiligen Dissoziationskanälen zum Gesamtergebnis beitragen, wurden Bilder aufgenommen, auf denen nur einzelne Fragmente zu sehen sind. Aus diesen konnte dann ein Mittelwert dafür bestimmt werden, wieviele Counts des CCD-Chips pro Fragment letztendlich am Monitor ausgegeben werden. Dieser Mittelwert lag für die verwendeten Parameter (s. Tab. 3.3) bei 140 ± 20 Counts/Fragment für H- und für D- Fragmente.

Kapitel 4

Aufbereitung der Meßdaten

4.1 Verwendete Daten

Den als Rohdaten bezeichneten Grafiken liegen die Matrizen zugrunde, die aus dem Meßrechner entnommen wurden. Doch auch diese sind bereits aufbereitet. So wurden zunächst auf dem Chip der CCD-Kamera jeweils die Bilder von 2500 Laserpulsen analog aufaddiert (vergleiche auch 3.4.2) und als ein digitales Bild abgespeichert. Auf dieselbe Weise wurde mit einem versetzten Zeitfenster (die von einem Puls erzeugten Fragmente treffen nur während einer kurzen Zeitspanne am Detektor auf) ein Bild vom Hintergrund aufgenommen. Dieses Bild wurde dann von den Meßwerten subtrahiert, um das Hintergrundsignal zu verringern. Um die Gesamtmeßzeit zu verringern, wurden jeweils drei Bilder addiert, und davon das Dreifache eines Hintergrundbildes subtrahiert. Um zu überprüfen, ob dies zu Artefakten führt, wurden auch Testmessungen mit jeweils einem Vordergrund- und einem Hintergrund-Bild durchgeführt. Es zeigten sich jedoch keine Unterschiede. Diese Summe (3 Bilder - 3×1 Hintergrund) ergab dann einen separat abgespeichertes Einzelbild. Ein Gesamtbild einer Messung besteht typischerweise aus 600 Einzelbilder. Diese Gesamtbilder, die die Fragmente von $4,5 \times 10^6$ Laserpulsen zeigen, werden als Rohdaten bezeichnet.

Da die Bilder stets symmetrisch sind, wurde der Abbildungsmaßstab für eine bessere Auflösung so gewählt, daß die gesamte Detektorfläche für Fragmente von nur einer Bildhälfte genutzt wird. Eine Rohdaten-Matrix zeigt also nur eine Hälfte der Fragmente. Die vollständigen Bilder entstehen dann durch Zusammensetzen zweier Matrizen, wovon eine gespiegelt wurde. Solche zur Symmetrie gespiegelten Gesamtmatrizen sind der Ausgangspunkt für die weitere Bearbeitung.

Normierung

Während den Messungen wurde ständig die Stromstärke des Ionenstrahls auf einem der

beiden Faradaybecher (siehe Abb. 3.13) erfaßt. Aus der Messdauer und dem Mittelwert der Stromstärke wurde die Ladungsmenge errechnet. Mit diesem Wert wurde dann die Anzahl der detektierten Fragmente normiert. Damit liegt jedem Bild ¹ die gleiche Zahl an HD⁺-Molekülen zu Grunde. Dies erlaubt einen direkten Vergleich der Fragmentzahlen bei den Messungen mit unterschiedlichen Lichtintensitäten.

4.2 Projektionsbedingte Anpassungen

Im Experiment wird der Ort gemessen, an dem die Photofragmente auf den Detektor auftreffen. Die Entstehung dieser Fragmente durch Dissoziation aus HD⁺, geschieht, im Schwerpunktsystem des Moleküls betrachtet zylindersymmetrisch um die Laserpolarisationsrichtung. Das heißt, während sich die Fragmente vom Wechselwirkungsort zum Detektor bewegen, befinden sie sich auf expandierenden Kugelschalen mit dem „Molekül“-Schwerpunkt als Zentrum (wegen der unterschiedlichen Massen haben die Kugelschalen von H und D, bzw. H⁺ und D⁺ verschiedene Radien). Da der Detektor zweidimensional ist, ergibt sich beim Auftreffen der Fragmente eine Geschwindigkeitsverteilung, die dem zweidimensionalen Projektionsbild einer Kugelschale entspricht.

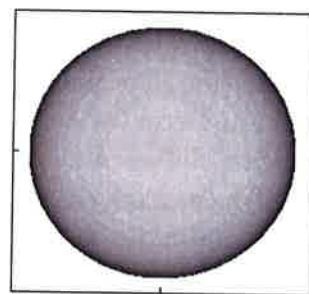


Abbildung 4.1: Projektionsbild einer Kugelschale auf eine zweidimensionale Fläche.

Die Differenz zwischen absorbierter Photonenenergie und Bindungsenergie legt die kinetische Energie der Fragmente fest (siehe auch Abschnitt 4.3). Die daraus resultierende Geschwindigkeit bestimmt dann den Radius der Kugelschale. Alle Fragmente gleicher Masse aus den gleichen Vibrationsniveaus aller Moleküle liegen somit auf gleichen Kugelschalen,

¹In sehr guter Näherung, da die detektierten Fragmente zwar am Faradaybecher vorbei auf den Detektor treffen, was bedeutet, daß, je mehr Fragmente detektiert werden, umso geringer der gemessene Strom am Faradaybecher ist, aber, da die Fragmente nur während den Pulsen, also im fs-Bereich entstehen, wohingegen der Strom kontinuierlich erfaßt wird, mehr als 12 Größenordnungen zwischen diesen Ladungsmengen liegen.

4.2 Projektionsbedingte Anpassungen

die zeitlich nacheinander auf den Detektor treffen. Die Verteilung der Fragmente auf diesen Kugelschalen hängt von der Dissoziationswahrscheinlichkeit ab. Somit befinden sich die Fragmente der Moleküle, die einer bestimmten Lichtintensität ausgesetzt waren, auf einer Bahn mit $z = \text{konstant}$ auf der jeweiligen Kugelschale, also einer Kreisbahn $f_z(\rho)$ mit der Polarisationsrichtung als Symmetrieachse (siehe Abbildung 4.2). So ergibt beispielsweise die Projektion einer homogenen Verteilung auf dieser Kreisbahn am Detektor eine Linie senkrecht zur Laserpolarisationsrichtung mit einer Dichteverteilung:

$$\sigma(y) = \frac{\rho}{\sqrt{\rho^2 - y^2}}$$

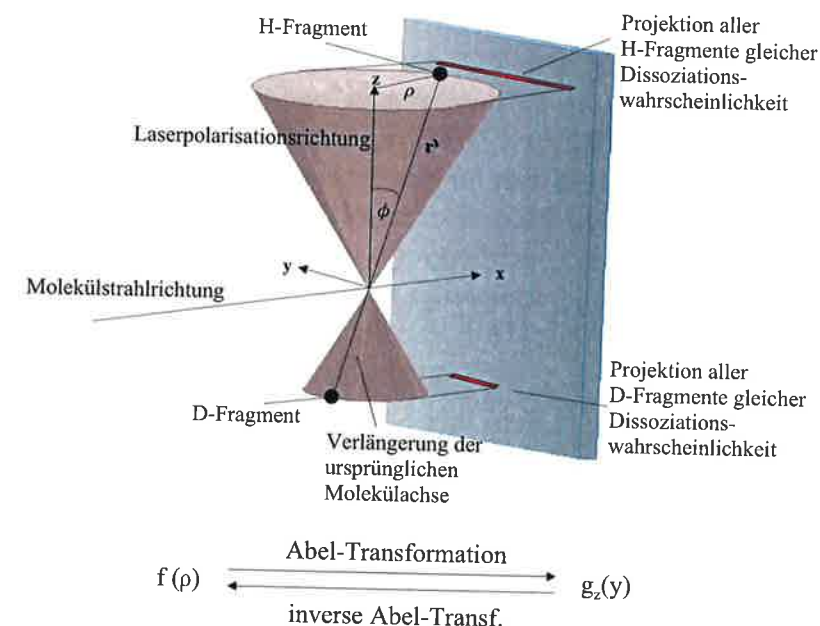


Abbildung 4.2: Veranschaulichung der Abel-Transformation. Aufgrund der Impulserhaltung bei der Dissoziation ist die Geschwindigkeit der H-Fragmente doppelt so groß wie die der D-Fragmente des selben Vibrationsniveaus.

Der Unterschied, der daraus resultiert, daß die Fragmente auf der dem Detektor abgewandten Seite eine längere Flugzeit haben und deshalb weiter außen auftreffen, trägt zwar zur Verbreiterung der Linien bei, kann aber noch vernachlässigt werden. Dieser Unterschied liegt in der Größenordnung des Verhältnisses von halbem Detektordurchmesser zum Abstand des Detektors vom Wechselwirkungspunkt und beträgt ca. 1/35.

Um vom detektierten Bild die ursprüngliche Lage der Fragmente zu erhalten, muß eine Rückprojektion der Daten vorgenommen werden. Dies geschieht mit Hilfe der inversen Abel-Transformation, durch die die Verteilung auf der Kreisbahn $f_z(\rho)$ wiedergewonnen

werden kann. Durch Übereinandersetzen der verschiedenen Kreisbahnen erhält man dann die vollständige dreidimensionale Verteilung auf der Kugeloberfläche zurück.

Inverse Abel-Transformation:

$$f_z(\rho) = -\frac{1}{\pi} \int_{\rho}^{\infty} \frac{g'_z(y)}{\sqrt{y^2 - \rho^2}} dy \quad (4.1)$$

mit:

$$\rho := r' \cos \phi \quad g'_z := \frac{dg_z(y)}{dy}$$

Die konkrete Transformation der Matrizen mit den Meßwerten erledigte ein entsprechendes numerisches Verfahren auf dem PC. Als Ausgangsmatrix diente dabei eine symmetrische Gesamtmatrix, wie oben in 4.1 beschrieben. Getestet wurden drei Programme von Reisler [Rei02], Kitsopoulos [Kit96] und Vrakking [Vra01]. Verwendet wurde schließlich das von Programm von Vrakking, da dies für unsere Anwendungen die besten Resultate lieferte.

4.3 Energieskala der Fragmente

Bei den Graphiken, insbesondere den Schnittbildern, bei denen die Größe der Fragmentenergien interessant ist, wurde als Einheit die Geschwindigkeit der Fragmente gewählt. Eine direkte Angabe der Energie erscheint ungünstig, da wegen der unterschiedlichen Massen H- und D-Fragmente gleicher kinetischer Energie an unterschiedlichen Orten detektiert werden. Die Energie ergibt sich aus $E_{kin\,Fragment} = \frac{1}{2} m_{Fragment} v^2$.

Die Fragmentgeschwindigkeit am jeweiligen Detektorort wurde auf folgende Weise berechnet:

Die kinetische Energie des Moleküls am Wechselwirkungsort ergibt sich aus der Beschleunigungsspannung und der einfachen Ladung des HD^+ zu:

$$E_{kin\,HD^+} = U_{beschl} \cdot Q_{HD^+} = 11,13\,keV \quad (4.2)$$

Mit der Masse des HD^+ und der Entfernung x zwischen Wechselwirkungsort und Detektor ergibt sich daraus die Flugzeit T der Fragmente:

$$T = \frac{x}{v_{HD^+}} = x \sqrt{\frac{m_{HD^+}}{2E_{kin\,HD^+}}} \quad (4.3)$$

4.3 Energieskala der Fragmente

Aus der senkrecht zum Molekülstrahl gemessenen Differenz R zwischen den Auftreffpunkten des Fragments und des Direktstrahls kann mit dieser Flugzeit die Geschwindigkeit pro μm , bzw. pro Pixel Detektorstrecke bestimmt werden:

$$v_{Fragment} = \frac{R_{Fragment}}{T} = \frac{R_{Fragment}}{D} \sqrt{\frac{2E_{kin\,HD^+}}{m_{HD^+}}} \quad (4.4)$$

Diese Geschwindigkeit $v_{Fragment}$ wurde als Maß für die Abszisse der Graphen verwendet.

Für die Berechnung der erwarteten Lage der Fragmente muß zusätzlich die unterschiedliche Masse der Fragmente H und D berücksichtigt werden. Denn für den Dissoziationsprozess bleibt der Gesamtimpuls erhalten:

$$\vec{p}_{HD^+} = \vec{p}_{H^+} + \vec{p}_{D^+} + \vec{p}_{e^-}$$

Wegen der im Verhältnis sehr viel geringeren Masse des Elektrons kann dessen Impuls vernachlässigt werden. Ebenso kann der Massenunterschied zwischen Proton und Neutron vernachlässigt, also für die Masse des D^+ die doppelte Masse des H^+ angenommen werden. Dies hat den Vorteil, daß nicht zwischen den Fragmenten H und H^+ bzw. D und D^+ der beiden Dissoziationskanäle unterschieden werden muß. Daraus folgt insbesondere, daß sich die Impulse der beiden Fragmente zu Null addieren, also:

$$\vec{p}_H = -\vec{p}_D \quad \text{bzw.} \quad \vec{v}_H = -2\vec{v}_D$$

Dementsprechend verteilt sich die durch die Absorption des Photons gewonnene Energie auch im Verhältnis 2 : 1 auf H und D. Somit berechnen sich die theoretischen Auftrefforte der Fragmente aus den jeweiligen Vibrationsniveaus, die als senkrechte Linien in den Diagrammen eingezeichnet sind durch:

$$\begin{aligned} v_H &= \sqrt{\frac{\frac{4}{3}(E_{Photon} + E_{Bindung})}{m_H}} \\ v_D &= \sqrt{\frac{\frac{2}{3}(E_{Photon} + E_{Bindung})}{m_D}} \quad \text{wobei jeweils } E_{Bindung} < 0 \end{aligned} \quad (4.5)$$

und

$$Y_{Fragment} = v_{Fragment} \cdot T \quad (4.6)$$

wobei aufgrund der hier gewählten Geschwindigkeitsskala direkt die Ergebnisse aus 4.5 verwendet werden können.

Bei einer „Zweiphotonenabsorption“ wird entsprechend die doppelte Photonenenergie addiert.

Die Energie eines Photons des verwendeten Lasers berechnet sich aus:

$$E_{\text{Photon}} = \frac{hc}{\lambda} = 1,5694 \text{ eV} \quad (4.7)$$

Die Bindungsenergien der Vibrationsniveaus wurden aus [Wol85] entnommen und sind für das Rotationsniveau $J=1$ in Tabelle 4.1 angegeben.

Vibrationsniveau	0	1	2	3	4	5
Bindungsenergie in eV	-2,6622	-2,4253	-2,2003	-1,9868	-1,7846	-1,5934
Vibrationsniveau	6	7	8	9	10	11
Bindungsenergie in eV	-1,4129	-1,2431	-1,0837	-0,9347	-0,7960	-0,6677
Vibrationsniveau	12	13	14	15	16	17
Bindungsenergie in eV	-0,5498	-0,4425	-0,3459	-0,2603	-0,1859	-0,1233

Tabelle 4.1: Die potentielle Energie der Vibrationsniveaus in HD^+ .

4.4 Erstellen der Graphiken der abgebildeten Meßergebnisse

Die zweidimensionalen Bilder zeigen eine Gesamtmatrix aus Rohdaten (siehe Kap. 4.1). Den dreidimensionalen Abbildungen liegt jeweils der gleiche Datensatz zu Grunde. Zur Unterdrückung des Rauschens wurde der Datensatz allerdings geglättet, um eine eindeutigere Darstellung zu erreichen.

Bei den zweidimensionalen Abbildungen der Messungen mit unterschiedlicher Intensität wurden als Einheiten auf den Ordinaten Pixel belassen. Dies sind die Pixel der CCD-Kamera, die eine Längeneinheit darstellen. Eine Angabe in Metern ist bewußt unterblieben, um zu verdeutlichen, daß diese Größe nicht quantitativ mit in die Auswertung einbezogen wurde.

Die als Einheiten an den Abszissen abgedruckten Geschwindigkeitswerte sind nur auf der Mittellinie der Bilder gültig, da nur die Fragmente, die dort auftreten, der Spitzenintensität I_0 ausgesetzt waren. Die Fragmente, die von der Mittellinie entfernt auftreten,

stammen von HD^+ -Molekülen, deren Achse mit der Laserpolarisation einen Winkel $\phi \neq 0$ einschließen und somit nur einer Intensität $I = I_0 \cos \phi$ ausgesetzt waren (siehe auch 2.1).

Die Anzahl der Fragmente, die den Kurven der Diagramme mit den Schnittbildern entsprechen, wurde durch Integrieren der Fragmentzahlen in der invers Abel-Transformierten Matrix über einen Winkel von 4 Grad berechnet. Da der Transformations-Algorithmus auf der Mittellinie Artefakte erzeugt, wurde dort eine Linie mit einer Breite von 4 Pixeln herausgenommen (siehe Abb. 4.3).

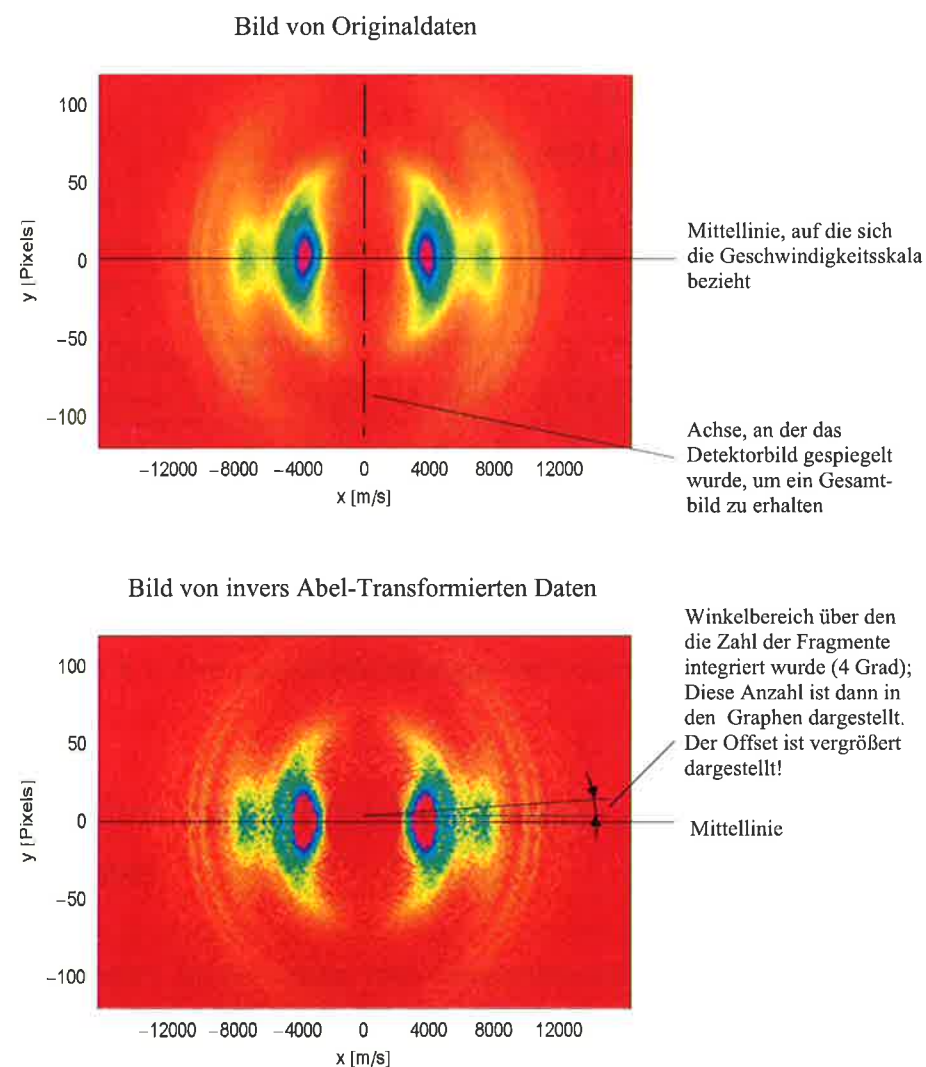


Abbildung 4.3: Zur Ermittlung der Anzahl der Photofragmente, die in den Graphen der Messungen mit unterschiedlichen Intensitäten dargestellt sind, wurde über einen Winkelbereich von 4 Grad ein invers Abel-Transformiertes Bild integriert. Dabei wurde mit einem Offset von 4 Pixeln begonnen.

Kapitel 5

Experimentelle Ergebnisse

Zuerst wird kurz die „Reinheit“ des Ionenstrahls diskutiert. Dann folgt ein Überblick, wodurch sich die Fragmente der jeweiligen Vibrationsniveaus unterscheiden, und wie sie sich auf dem Detektor verteilen. Anschließend wird exemplarisch gezeigt, wie sich die Dissoziationskanäle voneinander trennen lassen.

Im Folgenden wird zuerst die experimentelle Untersuchung bei verschiedenen Intensitäten dargestellt, und die Erkenntnisse, die daraus gewonnen werden konnten, beschrieben. Dann wird nochmals detailliert auf die einzelnen Messungen eingegangen, bei denen entweder nur die neutralen Fragmente detektiert wurden, oder neutrale und geladene Fragmente berücksichtigt wurden.

Es wird beschrieben, wie die Winkelverteilung der Fragmente auf dem Detektor bestimmt wurde, und welche Resultate sich diesbezüglich bei den Messungen ergaben.

Bevor eine kurze allgemeine Fehlerabschätzung erfolgt, wird die Methode erläutert, mit der versucht wurde zu entscheiden, ob einer der beiden Dissoziationskanäle $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H} + \text{D}^+$ oder $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{D}$ bevorzugt wird.

5.1 Anmerkungen zum Ionenstrahl

Bei der Gasentladung in unserer Ionenquelle konnte nicht davon ausgegangen werden, daß aus dem eingeleiteten Deuteriumhydrid ausschließlich HD^+ -Ionen entstehen. Es ist zu erwarten, daß sich ebenfalls in relevanter Menge H_3^+ -Moleküle bilden. Da die Apparatur aber nur eine Massenselektion ermöglicht, und somit die H_3^+ -Moleküle nicht von den HD^+ -Ionen abgetrennt werden konnten, sollte sich auf dem Detektor ein Bild ergeben, das einer Überlagerung der Fragmente dieser beiden Moleküle entspricht.

Um den Beitrag von H_3^+ am Gesamtbild abschätzen zu können, wurden deshalb zunächst aus H_2 -Gas Ionen produziert, und daraus H_3^+ selektiert. Da hierbei keine HD^+ -Ionen entstehen, konnten ausschließlich die Fragmente des H_3^+ -Moleküls untersucht werden. Es zeigte sich jedoch, daß mit den im Experiment verwendeten Laserpulsen keine Fragmente erzeugt werden konnten. Somit verändern keine zusätzlichen Ionen das Bild der Fragmente bei HD^+ -Messungen.

5.2 Verteilung der Photodissoziationsfragmente von HD^+

Nach der Theorie der „Lichtinduzierten Potentiale“ lassen sich die Fragmente in folgende Kategorien einteilen:

- Fragmente von Molekülen, in denen Vibrationsniveaus im oder oberhalb des Bereichs des Kreuzungspunktes der Potentialkurven (s. auch Abb. 2.1 und 2.3) besetzt waren. Für diese sollte die Dissoziationsrate maximal sein und nur unwesentlich von der durch Fermis Goldener Regel vorhergesagten Rate abweichen. Diese Fragmente sind in erster Linie an der breiteren Winkelverteilung (s. auch Kap. 5.3.3) zu erkennen und werden hier als „klassisch dissoziierte“ Fragmente bezeichnet, auch wenn nicht auszuschließen ist, daß bei den hier verwendeten Intensitäten noch zusätzliche Effekte beteiligt sind.
- Fragmente von Molekülen, in denen Vibrationsniveaus unterhalb des Kreuzungspunktes besetzt waren. Diese Moleküle konnten durch Absenken der Potentialbarriere aus einem der etwas unterhalb des Kreuzungspunktes liegenden Vibrationsniveaus herausstunneln. Dieser Effekt wird als „Bond-Softening“ bezeichnet. Diese Fragmente erscheinen gegenüber den oben erwähnten bei niedrigeren Geschwindigkeiten. Außerdem sind sie durch eine sehr schmale Winkelverteilung (s. Kap. 5.3.3) gekennzeichnet.
- Fragmente von Molekülen, in denen Vibrationsniveaus weit unterhalb des Kreuzungspunktes besetzt waren. Diese Moleküle konnten nicht durch Absorption eines einzelnen Photons dissoziieren. Ihre Fragmente erscheinen bei Geschwindigkeitswerten knapp oberhalb denen der Fragmente der Einphotonenabsorption und mit etwas schmalere Winkelverteilung. Auf den Ablauf dieses als „Zweiphotonenabsorption“ bezeichneten Dissoziationsprozesses wird in 5.3 noch näher eingegangen. Im Detail ist dieser jedoch noch nicht geklärt.
- Fragmente der Coulomb-Explosion. Diese stammen ebenfalls aus Vibrationsniveaus weit unterhalb des Kreuzungspunktes und bestehen nur aus geladenen Fragmenten. Sie beginnen durch Absorption eines Photons zu dissoziieren, werden aber durch

erneute Absorption eines zweiten Photons während des Dissoziationsprozesses, ionisiert. Diese Fragmente werden also im Prozess $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{D}^+ + \text{e}^-$ gebildet, und sind als „Coulomb-Explosions-Kanal“ bezeichnet. Sie treffen bei großen Geschwindigkeitswerten mit einer sehr engen Winkelverteilung auf.

Abbildung 5.1 zeigt, wie sich die Fragmente aus den verschiedenen Dissoziationskanälen, die durch Laserpulse von 100 fs Dauer und einer Intensität von $1,34 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ erzeugt werden, auf dem Detektor verteilen. Im Unterschied zu den homonuklearen Molekülen H_2^+ und D_2^+ , bei denen die H und H^+ , bzw. D und D^+ Fragmente jeweils gleiche Massen haben, erscheinen hier die Auftrefforte der Fragmente H^+ und D bzw. D^+ und H aufgrund der Impulserhaltung bei der Dissoziation nach ihren Massen getrennt. Daraus resultiert bei den Messungen eine Zählrate pro Pixel, die nur halb so groß ist, wie etwa die bei H_2^+ , wodurch der Signal-Rausch-Abstand entsprechend geringer ist, und die Auflösung der einzelnen Vibrationsniveaus nicht so gut gelingt.

Betrachtet man nur die neutralen Fragmente, so sind insbesondere bei den H-Fragmenten trotzdem die Ringstrukturen deutlich zu erkennen, die die Herkunft aus den jeweiligen Vibrationsniveaus des HD^+ verraten. Aus der breiten Winkelverteilung (s. Kap. 5.3.3) ist zu erkennen, daß diese auf „klassische Weise“ in Übereinstimmung mit Fermis Goldener Regel dissoziiert sind. Ebenfalls sehr gut zu erkennen ist die schmale Winkelverteilung der D-Fragmente ganz im Zentrum. Dies läßt den Schluß zu, daß diese Fragmente durch „Bond-Softening“ dissoziiert sind, und aus Vibrationsniveaus knapp unterhalb des Kreuzungspunktes der beiden Potentialkurven stammen. Im Bereich dazwischen überlagern sich die „klassisch“ dissoziierten D-Fragmente mit denen durch „Bond-Softening“ erzeugten H-Fragmente, wodurch eine Unterscheidung schwierig wird.

Noch komplexer erscheint das Bild bei einer Unterscheidung von neutralen und geladenen Fragmenten. Die H- und H^+ -Fragmente bzw. D- und D^+ -Fragmente der Dissoziation treffen zwar jeweils am gleichen Ort auf, wodurch das meßbare Signal deutlich stärker wird, jedoch kommen die H^+ und D^+ -Fragmente aus der Coulomb-Explosion $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{D}^+ + \text{e}^-$ hinzu. Dieser Kanal ist wesentlich schwächer, und die H^+ -Fragmente verteilen sich so großflächig, daß hierin keine Struktur mehr erkennbar ist. Aufgrund der kleineren räumlichen Verteilung (wegen der Impulserhaltung) ist die Anzahl der D^+ -Fragmente aus diesem Kanal jedoch groß genug, um die übrigen Fragmente auf störende Weise zu überdecken. Diese Überlagerung ist insbesondere bei den dreidimensionalen Bildern in Abb. 5.2 klar zu erkennen. Außerdem verdeutlicht die Höhe der Maxima in den beiden Bildern den Unterschied in den Zählraten der Messungen mit neutralen sowie neutralen und geladenen Fragmenten. Im Zentrum scheinen die geladenen Fragmente die Struktur der Vibrationsniveaus zu verwischen.

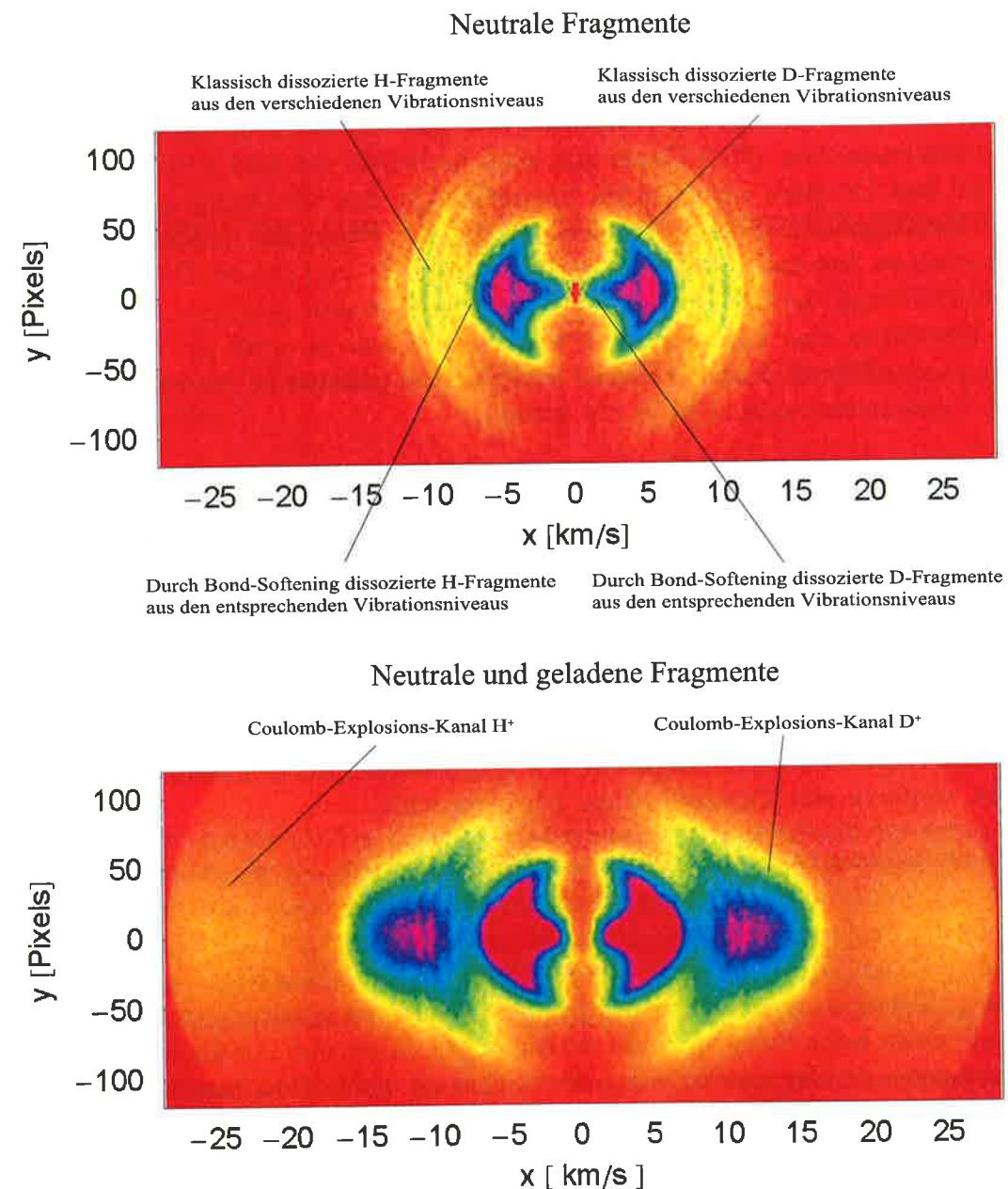


Abbildung 5.1: Übersicht über die Auftrefforte der Dissoziationsfragmente von HD^+ bei Pulsen von 100 fs und einer Intensität von $1,34 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ auf den Detektor (nur eine Hälfte wird wirklich gemessen, die andere durch Spiegelung der Daten hinzugefügt).

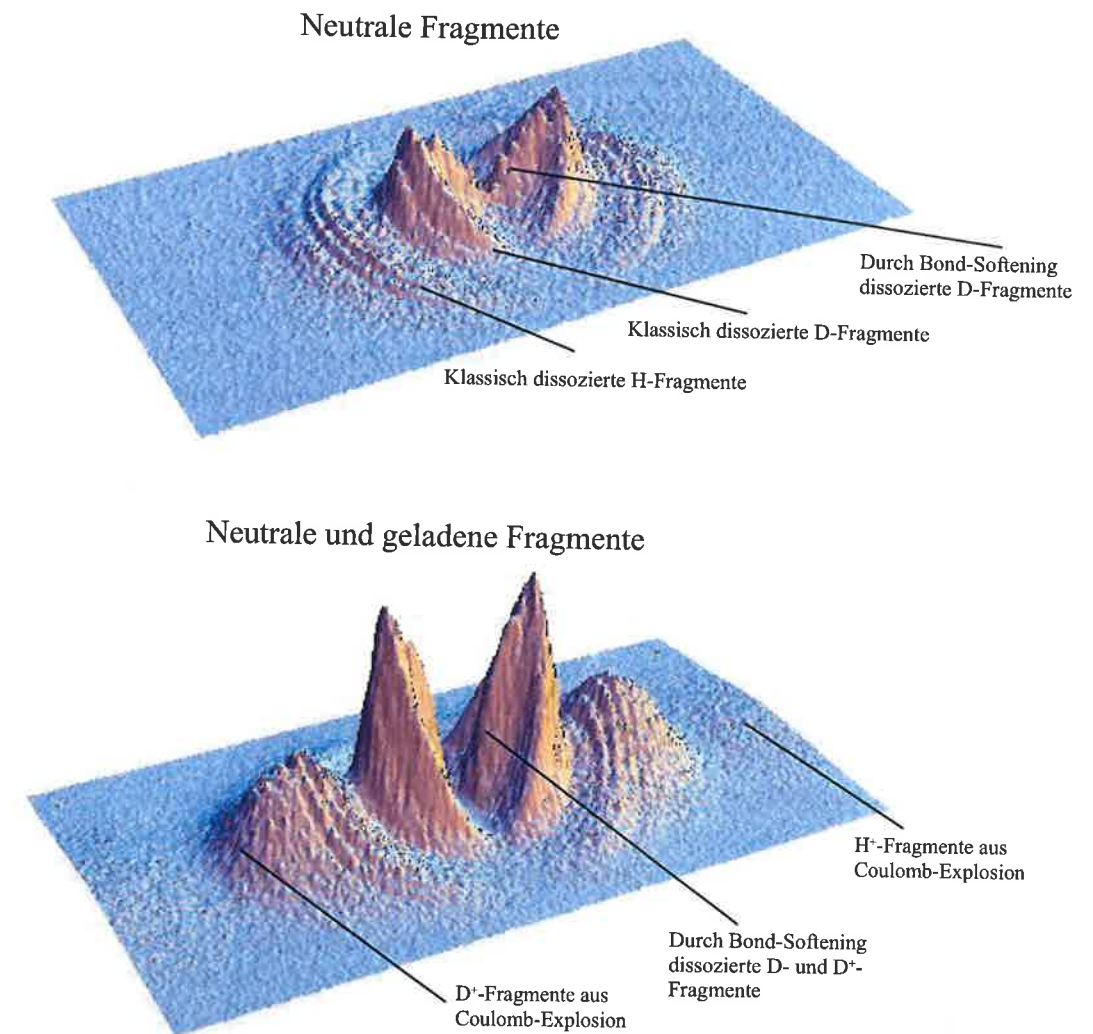


Abbildung 5.2: Dreidimensionale Darstellung der Fragmentverteilung. Hier sieht man deutlich den Bereich, in dem sich die H-Fragmente mit den D^+ -Fragmenten des „Coulomb-Explosions-Kanals“ überdecken. Außerdem wird der Unterschied in der Anzahl der detektierten Fragmente erkennbar. Es wurden Fragmente, die von 4,5 Millionen Pulsen mit 100 fs Dauer und einer Intensität von $1,34 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ erzeugt wurden summiert.

5.3 Messungen mit fs-Pulsen unterschiedlicher Intensität

Wie im theoretischen Teil (Kap. 2.1) bereits erwähnt, sind die Effekte der lichtinduzierten Potentiale stark intensitätsabhängig. Bei der hier untersuchten Abhängigkeit des Dissoziationsverhaltens von der Intensität sollten sich deshalb deutliche Hinweise zur Überprüfung dieser Theorie ergeben. Insbesondere sollte eine Abweichung zu sehen sein von der durch Fermis Goldenen Regel gegebenen Dissoziationsrate:

$$D = I \frac{\lambda}{2\pi\hbar c} \sigma(E_{\text{Photon}}, v, J) \quad (5.1)$$

worin I die Intensität, λ die Wellenlänge des Lichts, v die Vibrationsquantenzahl, und J die Rotationsquantenzahl des Moleküls ist. σ steht für den Wirkungsquerschnitt der Photo-dissoziation. Setzt man voraus, daß diese Dissoziationsrate gilt, so folgt mit der Ratengleichung für die Anzahl N der noch nicht dissoziierten Moleküle im Wechselwirkungsbereich

$$\frac{dN}{dt} = -N \cdot D(I(t)) \quad (5.2)$$

folgende Dissoziationswahrscheinlichkeit:

$$P = 1 - \exp\left(-\frac{\lambda}{2\pi\hbar c} \sigma(\lambda, v, J) F\right) \quad (5.3)$$

wobei sich die Fluenz errechnet aus:

$$F = \int I(t) dt \quad (5.4)$$

Die Anzahl der dissoziierten Moleküle wäre demnach nur von der Fluenz abhängig. Ein Nachweis der direkten Intensitätsabhängigkeit der Fragmentzahlen würde also zumindest zeigen, daß bei den hier untersuchten Effekten nichtlineare Prozesse beteiligt sind, und somit Fermis Goldene Regel keine angemessene Beschreibung liefert.

Dies gelingt jedoch nur indirekt über die Winkelverteilung der Fragmente (s. Absatz 5.3.3). Die Anzahl der bei verschiedenen Intensitäten gemessenen Fragmente, also die Höhe der Maxima in den Schnittbildern, ist nämlich nur bedingt aussagekräftig. So steht einer quantitativen Auswertung vor allem die mangelnde Kenntnis des Ausgangszustandes der Moleküle entgegen. Aus [Dun65] und [Car89] ergibt sich zwar ein Anhaltspunkt dafür, wie die Besetzungen der vibronischen Zustände der HD^+ -Moleküle nach der Entstehung durch Elektronenstoßionisation in der Ionenquelle verteilt sind, jedoch ist dies nicht ausreichend.

Die Ermittlung der Zustandsbesetzung in [?] scheint zwar exakt, aber diese wurde für H_2^+ durchgeführt. Ob die Ergebnisse auf HD^+ übertragbar sind, ist nicht gesichert und liefert so ebenfalls nur einen Anhaltspunkt. Ähnliches gilt für die Rotationsniveaus, wobei hier vermutlich in Analogie mit [?] geschlossen werden kann, daß überwiegend die unteren Niveaus besetzt sind. Nach [Nak02] hat die Rotationsquantenzahl jedoch eine entscheidende Auswirkung auf die Dissoziationswahrscheinlichkeit.

Ebenfalls Einfluß auf die Höhe der dargestellten Spektren hat die Anzahl der Moleküle im Wechselwirkungsbereich mit dem Laser. Bei der hier zur Variation der Intensität angewandten Methode (s. Kap. 3.3.1) nimmt diese Anzahl mit geringer werdender Intensität stark zu. Es stehen also mehr Moleküle für die Dissoziation zur Verfügung, woraus eine entsprechend höhere Fragmentzahl resultiert.

Gegenläufig wirkt sich hingegen die mit der Intensität abnehmende Fluenz aus. Da bei den Messungen stets mit gleicher Pulslänge gearbeitet wurde, variiert die Fluenz mit der Intensität.

Die beiden vorgenannten Effekte könnten durch Bestimmung der entsprechenden Größen und anschließender Normierung auf gleiche Ausgangsbedingungen weitgehend eliminiert werden. Da wegen erstgenannter Unsicherheit des Molekülzustandes eine quantitative Auswertung aber trotzdem nicht sinnvoll scheint, wurden die Daten im ursprünglichen Zustand belassen. Somit entfallen zusätzliche Fehlerquellen, obige Einflüsse sind jedoch enthalten.

Der im theoretischen Teil 2.1 beschriebene Stabilisierungseffekt, bei dem durch den neu entstandenen Potentialtopf in der oberen lichtinduzierten adiabatischen Potentialkurve E_+ die Dissoziationsrate innerhalb eines bestimmten Intervalls mit steigender Intensität abnehmen sollte, kann bei hohen Intensitäten, wie sie bei den hier durchgeführten Messungen verwendet wurden, nicht mehr beobachtet werden.

Dennoch sind an den Meßergebnissen einige Effekte zu erkennen, die in Übereinstimmung mit der Theorie der lichtinduzierten Potentiale stehen.

So ist vor allem das „Level-Shifting“ im Bereich des „Bond Softening“ im Spektrum der D-Fragmente gut ausgeprägt. Das „Level-Shifting“, also das Verschieben der Maxima zu kleineren Energien bzw. Geschwindigkeiten, resultiert aus der Absenkung der Energie dieser Vibrationsniveaus durch das Verbreitern des Potentialtroges der unteren lichtinduzierten Potentialkurve E_- , wenn sich die „Lücke“ bei der „vermiedenen Kreuzung“ bei $v = 11$, bzw. bei $v = 5$ für die (Netto-) „Zweiphotonenabsorption“ öffnet (s. Kap. 2.1). Die Größe dieser Lücke nimmt mit steigender Intensität zu, wodurch sich die Position der Maxima zunehmend verschiebt. Die breite Energieverteilung dieser Fragmente wird in [?] mit der zeitlichen Änderung des Potentialtroges erklärt. Bei zunehmender Lichtintensität sinkt die Potentialbarriere und wandert gleichzeitig nach außen. Dadurch verringert sich die relative Geschwindigkeit des gebundenen Wellenpakets zu dieser Barriere hin und verliert somit bei der Reflexion an Energie. Abhängig davon, wie oft das Wellenpaket im Potential hin-

und herläuft, bevor es schließlich heraustunnelt, reduziert sich seine Energie. Dies betrifft die Niveaus $v = 6$, $v = 7$, $v = 8$.

Die Fragmente, die auf „klassische“ Weise dissoziiert sind und von Molekülen stammen, die sich in den Vibrationsniveaus $v = 9$, $v = 10$ und $v = 11$ befanden, sind in den Bildern gut an der Ringstruktur mit großer Winkelverteilung zu erkennen. In den Spektren sind sie vor allem bei den Wasserstofffragmenten gut zu sehen, da hier zumindest bei niedrigen Intensitäten noch keine Überlagerung stattfindet. Bei höheren Intensitäten sinken ihre Maxima etwas ab, was auf den höheren Anteil an „Zweiphotonenabsorptionsprozessen“ zurückzuführen ist. Ihre Position ändert sich jedoch über den gesamten Intensitätsbereich nicht und liegt exakt bei den „klassisch“ erwarteten Geschwindigkeitswerten. Die relative Anzahl der Fragmente aus $v = 9$ scheint jedoch bei den Spektren der Messungen mit neutralen Fragmenten deutlich größer zu sein als bei denen mit neutralen und geladenen Fragmenten.

Bei steigender Intensität treten zunehmend mehr Fragmente auf, die durch „Zweiphotonenabsorption“ aus Molekülen entstanden sind, bei denen niedrige Vibrationsniveaus, $v = 2$ und $v = 3$ besetzt waren. Diese überlagern sich meist mit den anderen Fragmenten, weshalb dieser Effekt überwiegend in den 3D-Bildern zu erkennen ist. Dort ist auf den Ringen der Einphotonen-Fragmente der mittlere Bereich etwas erhöht.

Der genaue Mechanismus, nach dem die Zweiphotonenabsorption abläuft, scheint hier noch nicht geklärt. So könnten, wie angenommen, unter Beachtung der Auswahlregeln, zunächst drei Photonen absorbiert und unmittelbar nach der Dissoziation wieder ein Photon emittiert werden. Denkbar wäre aber auch, daß zunächst analog zu einem Ramanprozeß höhere Niveaus besetzt werden. Dies könnte durch einen Übergang aus einem kurzfristig besetzten Kontinuumszustand, der durch vorangegangene Einphotonenabsorption erzeugt wurde, erfolgen. Aus diesem höheren Niveau erfolgt dann durch Absorption des zweiten Photons die Dissoziation.

In einer theoretischen Arbeit von [Nak02] über H_2^+ und HD^+ , die sich wesentlich auf die experimentellen Ergebnisse von [?] stützt und somit dem hier vorgestellten Experiment sehr nahe kommt, wurde das Dissoziationsspektrum von HD^+ simuliert. Dazu wurde die Methode des „close coupling“ benutzt, deren erfolgreiche Anwendung auf die Simulation der Atomionisation in [Kon01] und [Kon02] beschrieben ist. Die dort erhaltenen Spektren sind den hier gemessenen ähnlich. Allerdings wird dort eine zusätzliche Struktur bei höheren Energien vorhergesagt, die durch einen zweistufigen Dissoziationsprozess aus niedrigeren Niveaus entsteht.

In den folgenden Abschnitten soll anhand der Bilder und Spektren der einzelnen Messungen noch im Detail erläutert werden, wo welche Effekte besonders gut zu erkennen sind.

5.3.1 Geschwindigkeitsverteilung der neutralen Fragmente

Die detektierten neutralen Photofragmente sind in Abb. 5.3, Bild 1 bis Bild 4 dargestellt. In Abb. 5.4 sind die zugehörigen Spektren zu sehen, die die kinetische Energie- bzw. Geschwindigkeitsverteilung, als radialen Schnitt zeigen.

Im Unterschied zu den nachfolgenden Messungen, bei denen neutrale und geladene Fragmente detektiert wurden, wird hier der Direktstrahl zusammen mit den geladenen Fragmenten H^+ und D^+ direkt hinter der Wechselwirkungszone mit Hilfe eines Ablenkplattenpaares seitlich in einen Faradaybecher gelenkt (Faradaybecher 1 in Abb. 3.13). Auf dem Detektor treffen also nur noch die neutralen Photodissoziationsfragmente H und D auf. Dies hat insbesondere den Vorteil, daß keine D^+ -Fragmente des Coulomb-Explosions-Kanals $HD^+ \rightarrow H^+ + D^+ + e^-$ die H Fragmente des Dissoziationskanals $HD^+ \rightarrow H + D^+$ überdecken. Somit sollte sich eine klarere Struktur der Vibrationsniveaus abzeichnen. Da die Anzahl der Fragmente dadurch allerdings auf die Hälfte abnimmt, steigt die Meßdauer und damit der Hintergrundanteil entsprechend an. Deshalb liegt der Vorteil hauptsächlich darin, daß die Struktur eindeutig zuzuordnen ist.

Im Detail zeichnet sich an den Spektren folgendes ab:

Spektren zu Bild 1 und Bild 2:

Bei einer Intensität von $2,8 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (grüne Linie) treffen die D -Fragmente aus $v = 8$ exakt am „klassisch“ erwarteten Ort auf. Bei $2,24 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (rote Linie) ist dieses Maximum dann aufgrund von „Bond-Softening“ zu kleineren Geschwindigkeiten hin verschoben und deutlich schwächer. Es verbreitert nur noch das Maximum der ebenfalls durch „Bond-Softening“ dissoziierten und „verschobenen“ Fragmente aus $v = 7$. Die Intensität scheint gerade auszureichen, um auch Fragmente aus $v = 6$ durch die abgesenkte Potentialbarriere tunneln zu lassen. Deshalb ist der Potentialtrog nur geringfügig verbreitert, und die Fragmente treffen mit der „klassisch“ erwarteten Energie auf.

Bei den H -Fragmenten sind die Maxima für $v = 9$ und $v = 10$ (kleinere Kurve im Insert) gut zu erkennen. Diese auf „klassische“ Weise dissoziierten Fragmente treffen bei beiden Intensitäten etwa am erwarteten Ort auf. Bei der höheren Intensität scheint dies auch für Fragmente aus $v = 11$ zu gelten. Wieso diese in der grünen Kurve nicht zu sehen sind, ist zunächst unklar. Dafür ist hier das Maximum, das bei der für Fragmente aus dem Niveau $v = 2$ durch „Zweiphotonenabsorption“ entstanden, erwarteten Geschwindigkeit liegt, ebenso stark wie in der roten Kurve. Dies deutet darauf hin, daß die grüne Kurve möglicherweise insgesamt etwas zu höheren Werten verschoben ist, und dieses Maximum eventuell doch den vermißten Fragmenten aus $v = 11$ zuzuordnen ist.

In beiden Kurven noch gut zu erkennen sind die D -Fragmente aus $v = 10$. Auch hier scheint die Grüne wieder leicht verschoben zu sein. Die Fragmente aus $v = 11$ werden von denen aus $v = 2$ („Zweiphotonenabsorption“) überlagert und bilden ein gemeinsames Maximum, das ebenfalls in beiden Kurven zu sehen ist. Bei der höheren Intensität ist dies wegen

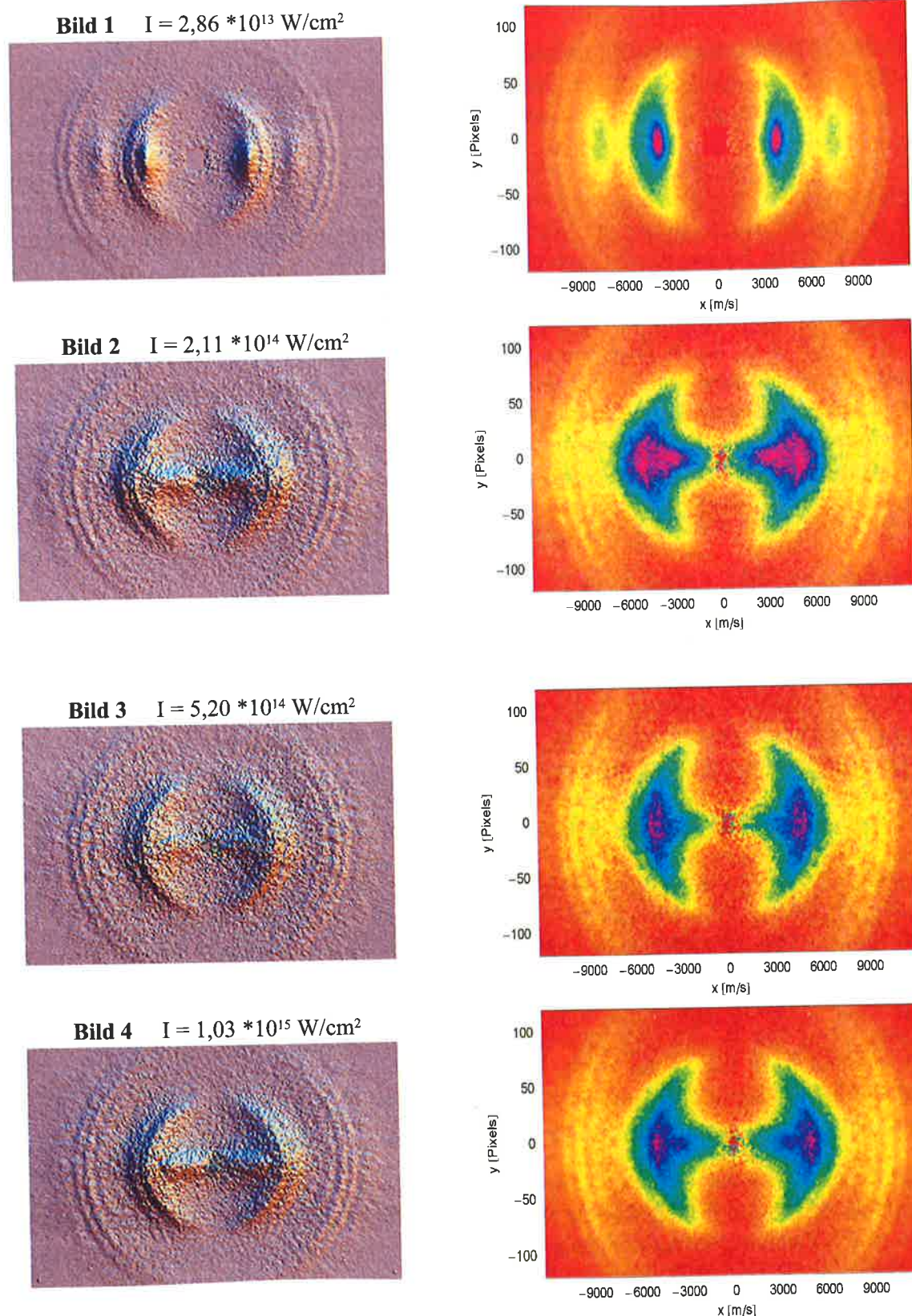


Abbildung 5.3: Projektion der Impulsverteilung der neutralen Photofragmente. Die Bilder zeigen die Summe der Photofragmente nach 5,25 Millionen Laserpulsen der jeweiligen Intensität. Rechts und links sind jeweils die gleichen Datensätze in unterschiedlichen Darstellungen abgebildet.

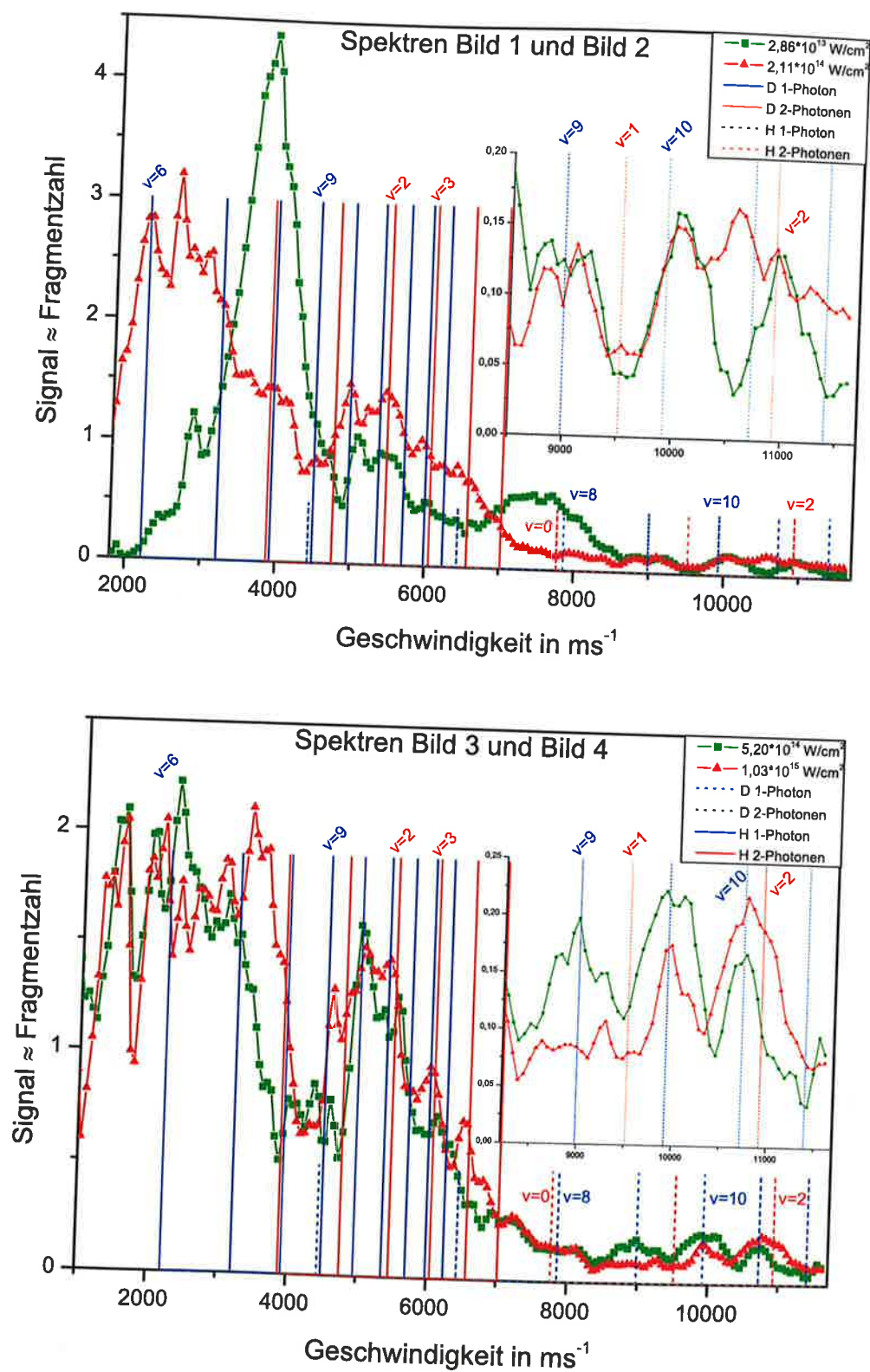


Abbildung 5.4: Schnitte durch die invers Abel-Transformierte Projektion neutraler Photofragmente bei Intensitäten von $2,86 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $1,03 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$. Die senkrechten Linien markieren die „klassisch“ erwarteten Auftrefforte der Fragmente für Ein- und Zwei-Photonenabsorption.

der anteilig stärkeren Zweiphotonenprozesse deutlicher ausgeprägt. Die auf gleiche Weise dissoziieren Fragmente aus $v = 3$ und $v = 4$ sind ebenfalls den entsprechenden Maxima zuzuordnen, wenn man einen Blick auf das zugehörige Bild wirft. Denn hier sind diese an der schmalen Winkelverteilung zu erkennen.

Spektren zu Bild 3 und Bild 4:

Hier sind die Spektren bei Intensitäten von $5,2 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (grüne Linie) und $1,0 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$ (rote Linie) dargestellt. Im Bereich der D-Fragmente ist das Hintergrundsignal so stark, daß kaum mehr zu unterscheiden ist. So erkennt man eigentlich nur noch die beiden Maxima, die von Fragmenten aus $v = 3$ und $v = 4$ (Zweiphotonenübergänge) stammen, und letzteres auch nur in der roten Kurve.

Bei den H-Fragmenten hingegen sind die „klassischen“ Maxima der Niveaus $v = 10$ und $v = 11$ recht deutlich. Da in letzterem Bereich auch die Fragmente aus $v = 2$ auftreffen, die durch „Zweiphotonenabsorption“ entstanden sind, wird dieses Maximum bei der höheren Intensität stärker und breiter in diese Richtung. Dagegen ist das zuvor noch erkennbare Maximum der Fragmente aus $v = 9$ nun kaum mehr zu sehen.

5.3.2 Geschwindigkeitsverteilung der neutralen und geladenen Fragmente

In den Abbildungen 5.5 und 5.7 bzw. 5.6 und 5.8 sind die Bilder und Spektren als radiale Schnitte der Messungen dargestellt, bei denen sowohl neutrale als auch geladene Fragmente detektiert wurden. Um eine bessere Auflösung zu erreichen, wurden hierbei nur die interessanten Bereiche auf den gesamten Detektor projiziert, weshalb hier der Coulomb-Kanal der H-Fragmente nicht zu sehen ist. Ebenfalls nicht zu sehen sind die Fragmente, die durch „Bond-Softening“ aus dem Niveau $v = 6$ dissoziiert sind, da diese auf dem Faradaybecher auftreffen, der den Direktstrahl abfängt.

Im Detail ist in den Spektren folgendes zu erkennen¹:

Spektren zu Bild 1 und Bild 2:

Bei einer Intensität von $3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (grüne Linie) treffen die D-Fragmente aus $v = 8$ noch am „klassisch“ erwarteten Ort auf. Bei $4,3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (rote Linie) ist dieses Maximum dann aufgrund von „Bond-Softening“ zu kleineren Geschwindigkeiten hin verschoben. Außerdem ist eine deutliche Verbreiterung des Peaks durch einen zunehmenden Anteil an Fragmenten aus $v = 7$ zu erkennen.

Für die H-Fragmente aus $v = 8$ und $v = 7$ ist diese Aussage ebenfalls gültig, auch wenn letzteres, insbesondere bei der roten Kurve, wegen der Überlagerung schwieriger zu beurteilen ist. Deutlich zu erkennen sind hingegen die Maxima für $v = 10$ und $v = 11$ (kleinere Kurve im Insert). Diese auf „klassische“ Weise dissoziierten Fragmente treffen bei beiden Intensitäten exakt am erwarteten Ort auf. Bei der höheren Intensität und einer damit verbundenen größeren Fluenz ist sogar eine fast lineare Zunahme der Dissoziationsrate des niedrigeren Niveaus zu beobachten. Daß die Höhe von Fragmenten aus $v = 11$ konstant bleibt, liegt möglicherweise daran, daß dieses Niveau entsprechend seltener besetzt ist und die Übergangswahrscheinlichkeit bereits ihren Maximalwert erreicht hat.

Bei den D-Fragmenten sind die beiden Zacken der Niveaus $v = 10$ und $v = 11$ in der grünen Kurve nur schwer zu unterscheiden. Bei der höheren Intensität ist nur noch ein Maximum zu erkennen, das aus Fragmenten dieser beiden Niveaus durch Überlagerung mit Fragmenten, die durch „Zweiphotonenabsorption“ aus dem Niveau $v = 2$ erzeugt wurden, entstanden ist. Dies läßt sich insbesondere am zugehörigen 3D-Bild als zusätzliche Erhöhung im zentralen Bereich des zweiten Maximums (von innen) gut erkennen. Dort sieht man auch, daß für das nächst höhere Niveau $v = 3$ ebenfalls ein deutlich ausgeprägtes Maximum des Zweiphotonenprozesses existiert. Dies läßt sich auch in den Spektren leicht finden, und der Anstieg mit der Intensität ist gut zu beobachten.

¹Der übersichtlicheren Schreibweise wegen werden die Fragmente nur nach H und D unterschieden. Wenn nicht ausdrücklich anders erwähnt, treffen dort ebenfalls die entsprechenden geladenen Fragmente H^+ und D^+ auf.

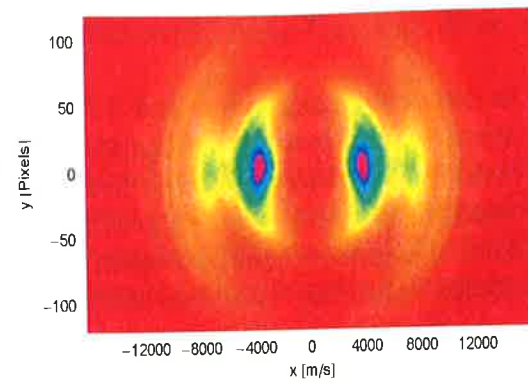
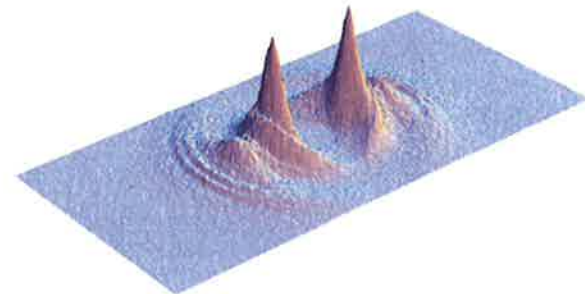
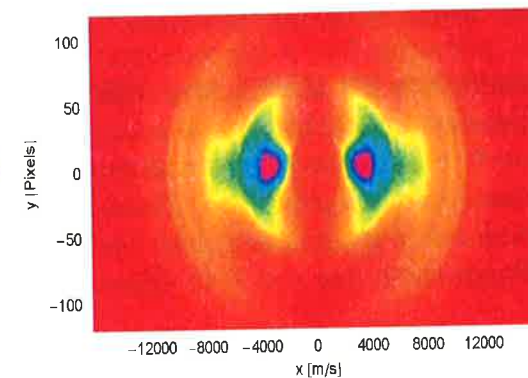
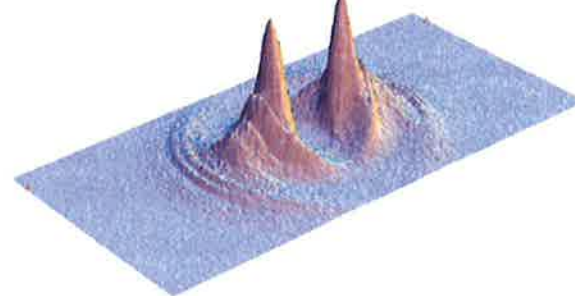
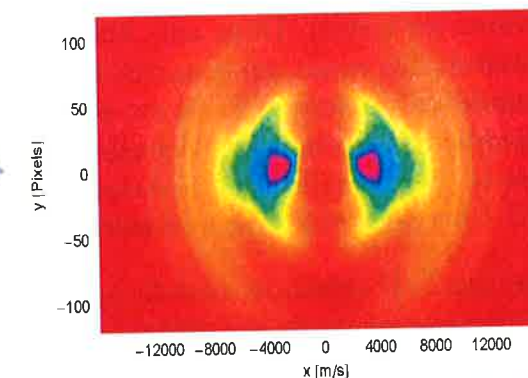
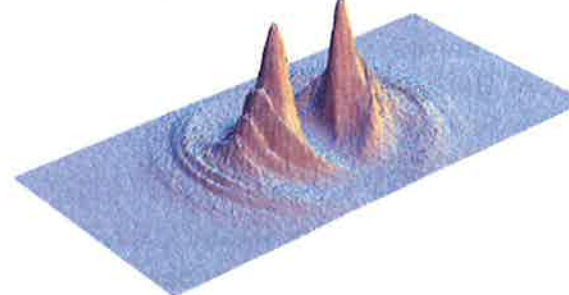
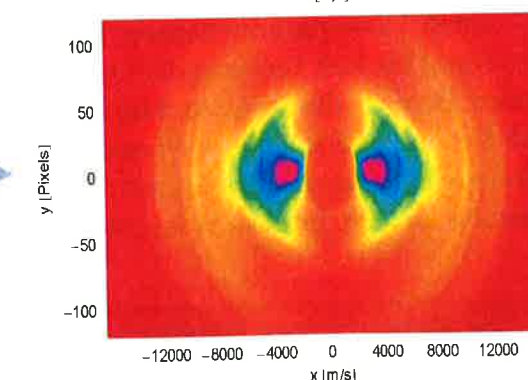
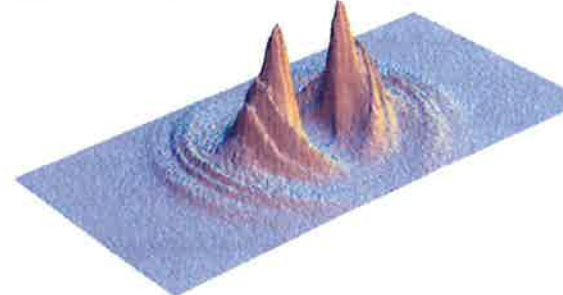
Bild 1 $I = 3,05 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ Bild 2 $I = 4,35 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ Bild 3 $I = 5,30 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ Bild 4 $I = 6,63 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ 

Abbildung 5.5: Projektion der Geschwindigkeitsverteilung der Photofragmente. Die Bilder zeigen die Summe aller Photofragmente nach 4,5 Millionen Laserpulsen der jeweiligen Intensität; rechts wie mit dem Detektor erzeugt, links als dreidimensionale Grafik.

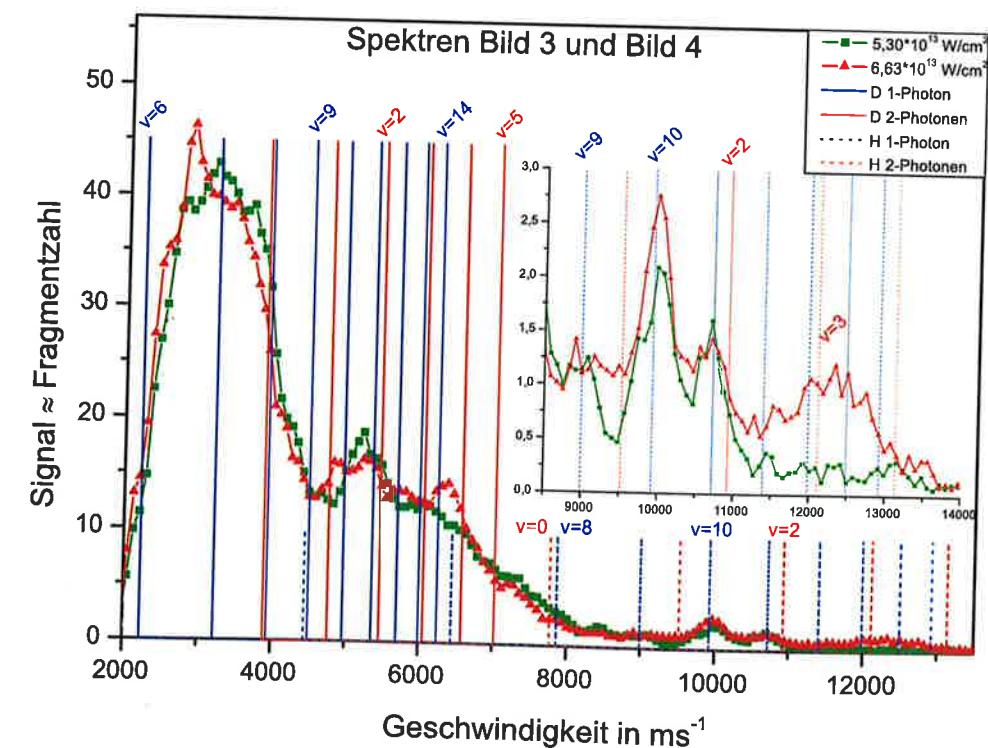
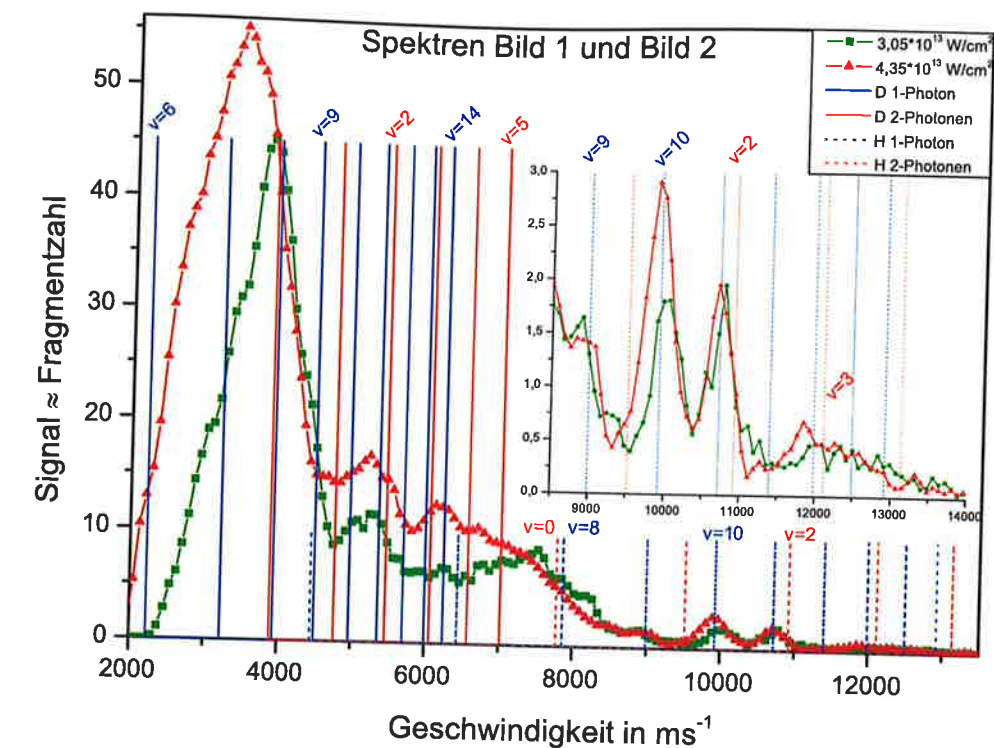


Abbildung 5.6: Schnitte durch die invers Abel-Transformierte Photofragmentprojektion im Experiment mit Intensitäten von $3,05 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $6,63 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Die senkrechten Linien markieren die „klassisch“ erwarteten Auftrefforte der Fragmente für Ein- und Zwei-Photonenabsorption.

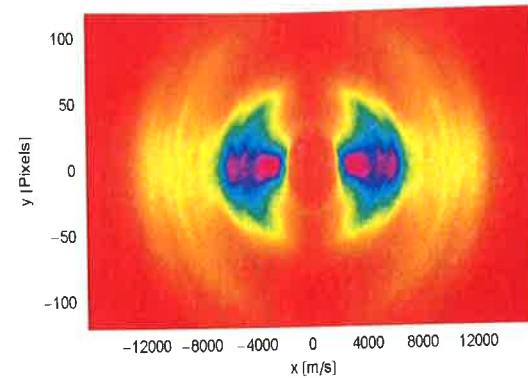
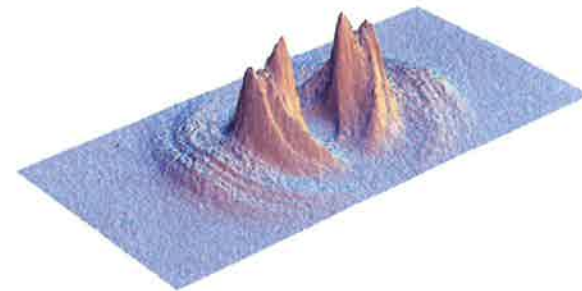
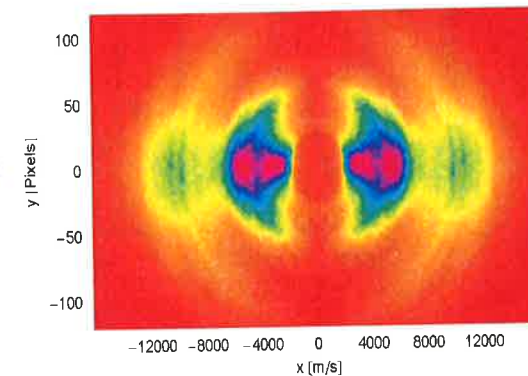
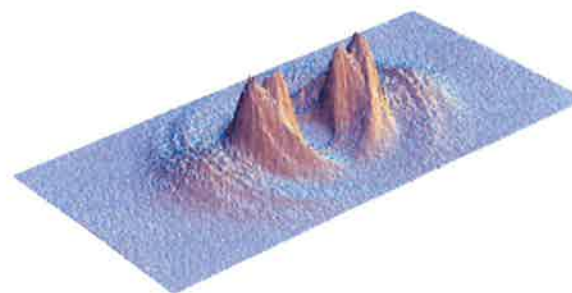
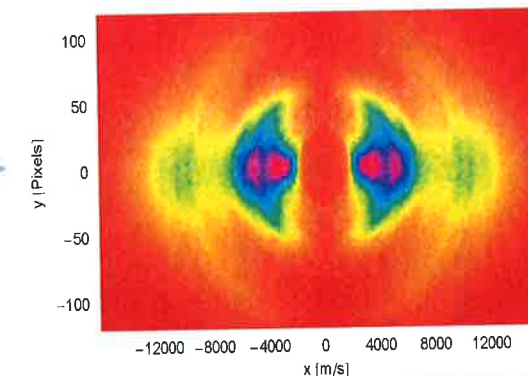
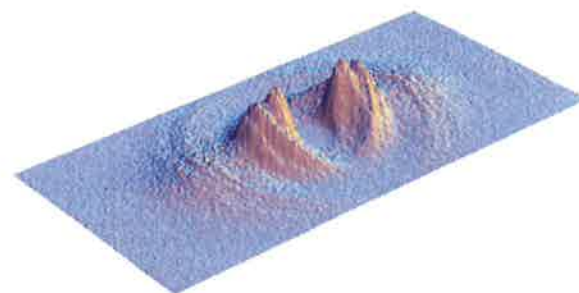
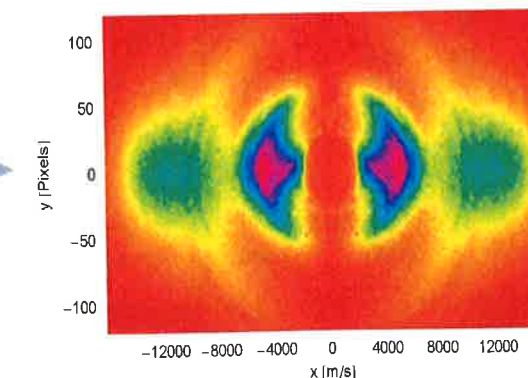
Bild 5 $I = 8,50 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ Bild 6 $I = 1,13 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ Bild 7 $I = 1,55 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ Bild 8 $I = 2,24 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ 

Abbildung 5.7: Projektion der Impulsverteilung der Photofragmente. Die Bilder zeigen die Summe aller Photofragmente nach 4,5 Millionen Laserpulsen der jeweiligen Intensität.

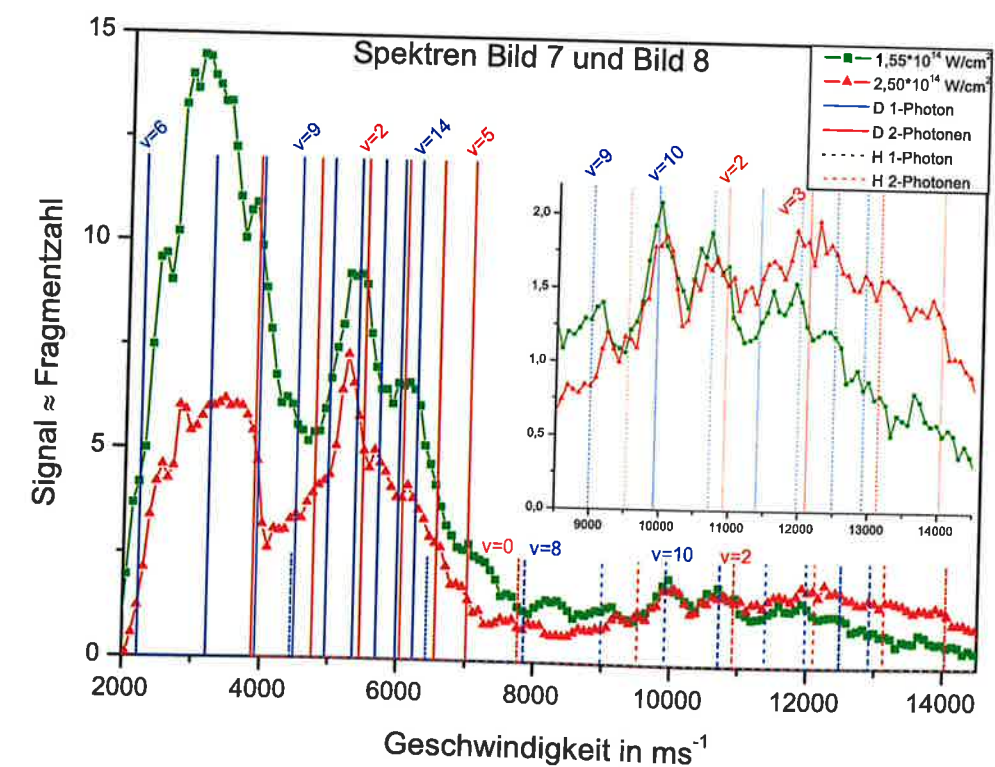
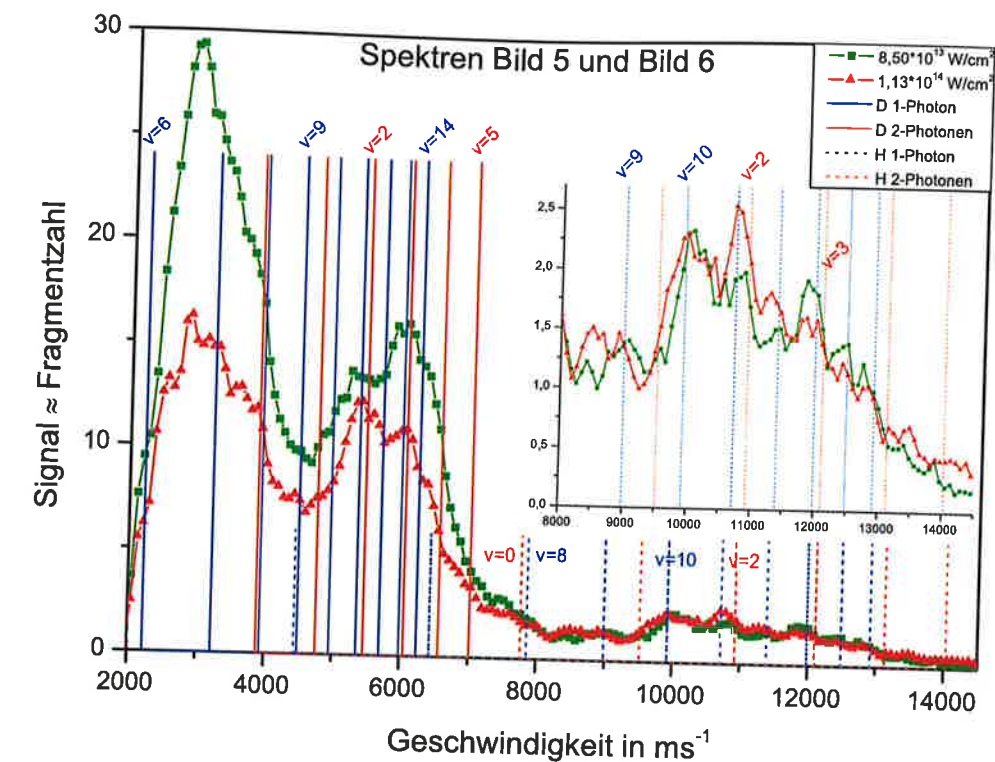


Abbildung 5.8: Schnitte durch die invers Abel-Transformierte Photofragmentprojektion im Experiment mit Intensitäten von $8,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ bis $2,24 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Die senkrechten Linien markieren die „klassisch“ erwarteten Auftrefforte der Fragmente für Ein- und Zwei-Photonenabsorption.

Bei den H-Fragmenten aus $v = 3$ ist die „Zweiphotonenabsorption“ bei höherer Intensität ebenfalls zu erkennen.

Spektren zu Bild 3 und Bild 4:

Das im vorangegangenen Spektrum erläuterte „Bond-Softening“ setzt sich hier fort. So sind die D-Fragmente aus $v = 8$ und jetzt auch aus $v = 7$ zu noch niedrigeren Energien hin verschoben. Wiederum ist dieser Effekt bei der Kurve mit der höheren Intensität von $6,6 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (rot) stärker ausgeprägt, als bei der, die die Anzahl der Fragmente bei der niedrigeren Intensität von $5,3 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (grün) repräsentiert.

Die H-Fragmente aus $v = 8$ und $v = 7$, sowie die D-Fragmente aus $v = 10$ und $v = 11$ werden nun von denen, die durch „Zweiphotonenabsorption“ aus den Niveaus $v = 2$ und $v = 3$ erzeugt wurden gänzlich überlagert. Die Lage der Maxima ist deshalb nicht mehr aussagekräftig, da sie nur noch den Ort der größten Gesamtzahl und nicht die Lage der Fragmente aus den jeweiligen Vibrationsniveaus angibt.

Die Maxima der H-Fragmente aus $v = 10$ und $v = 11$ liegen noch exakt am erwarteten Platz. Bei der roten Kurve ist jedoch bereits zu erkennen, daß die D^+ -Fragmente aus dem Coulomb-Kanal ebenfalls an diesem Ort auftreffen, und so die gesamte Kurve nach oben verschoben wird. Dies dürfte wohl auch den größten Anteil der Fragmente oberhalb von 11 km/s liefern, wenngleich hier auch H-Fragmente durch „Zweiphotonenabsorption“ aus $v = 3$ auftreffen.

Spektren zu Bild 5 und Bild 6:

Die Maxima des „Bond-Softening“ der D-Fragmente aus $v = 8$ und $v = 7$ sind bei den selben Energien wie in der roten Kurve des vorangegangenen Spektrums. Offenbar ist die „Lücke“ zwischen den beiden Potentialkurven bei diesen Intensitäten bereits maximal geöffnet. Bei der Intensität von $8,5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (grün) ist zu erkennen, daß die Anzahl der Fragmente, die in diesem Bereich auftreffen deutlich abnimmt (ca. 25%). Bei Erhöhen der Intensität auf $1,1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (rot) nimmt diese Zahl nochmals um ca. 50% ab. Dies liegt vermutlich daran, daß sich weniger Moleküle im Wechselwirkungsvolumen befinden.

Die Zweiphotonenprozesse nehmen hingegen wie erwartet anteilig zu, auch wenn die Gesamthöhe der Maxima in diesem Bereich ebenfalls sinkt. Dies ist zum einen darauf zurückzuführen, daß der Untergrund, den hier bisher, durch Einphotonenabsorption aus $v = 10$ und $v = 11$ entstandene Fragmente gebildet hatten, abnimmt. Zum anderen ist die geringere Anzahl an Molekülen im Wechselwirkungsbereich dafür verantwortlich. Es bilden sich nun deutlich die beiden Maxima, die den Fragmenten aus $v = 2$ und $v = 3$ entsprechen heraus. Auch hier ist in Übereinstimmung mit der Theorie bei der höheren Intensität (rot) der Anteil aus dem niedrigerem Niveau größer.

Bei den H-Fragmenten sind nach wie vor die beiden Maxima der Niveaus $v = 10$ und $v = 11$ zu erkennen. Ebenso das bei $v = 2$ (Zweiphotonenübergang), auch wenn der Untergrund der D^+ -Fragmente aus dem Coulomb-Kanal zunimmt.

Spektren zu Bild 7 und Bild 8:

Hier gewinnen die Zweiphotonenprozesse von $v = 2$ und $v = 3$ weiter an Bedeutung. In den D-Fragmenten ist vor allem bei der höheren Intensität von $2,5 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ (rot) gut zu erkennen, daß anteilig deutlich mehr Fragmente von $v = 2$ als von $v = 3$ stammen.

Bei den H-Fragmenten sind noch immer die beiden Maxima der „klassisch“ dissoziierten Moleküle mit $v = 10$ und $v = 11$ zu erkennen. Oberhalb vermischt der Coulomb-Kanal die Struktur, so daß keine seriöse Aussage mehr möglich ist.

5.3.3 Winkelverteilung der Fragmente

Bei den oben dargestellten Bildern ist deutlich zu erkennen, daß die Fragmente aus den unterschiedlichen Vibrationsniveaus nicht nur unterschiedliche Energien, sondern auch unterschiedliche Winkelverteilungen besitzen. Dies liegt an der nichtlinearen Intensitäts-Abhängigkeit der beteiligten Dissoziationsprozesse.

Denn die effektiv auf das Molekül wirkende Intensität entspricht der Projektion der Laserpolarisationsrichtung auf die Verbindungsachse der Kerne, und ist somit abhängig von der Orientierung des Moleküls im Raum (s. auch Gleichung 2.11). Die Molekülachsen sind isotrop im Raum verteilt, die Polarisationsrichtung ist stets senkrecht. Darum gilt für die elektrische Feldstärke, die durch das Laserlicht auf die Moleküle wirkt $E = E_0 \cdot \cos \phi$, wobei ϕ der Winkel ist, den die Molekülachse mit der Laserpolarisationsrichtung einschließt. Somit variiert die Intensität, die die Moleküle erfahren, mit $\cos^2 \phi$ bezüglich der Polarisationsrichtung. Der Winkel, unter dem die Dissoziation stattfindet, spiegelt sich in der Winkelverteilung, also der Anzahl der Fragmente, die unter einem bestimmten Winkel auftreffen, auf dem Detektor wieder. Deshalb ist diese Winkelverteilung ein Indikator² für die Intensitätsabhängigkeit des Dissoziationsverhaltens. Bei einer linearen Intensitätsabhängigkeit sollten sich auf dem Detektor Ringe der jeweiligen Vibrationsniveaus zeigen, die einer $\cos^2 \phi$ -Verteilung entsprechen, wohingegen bei einer progressiv nichtlinearen Abhängigkeit eine $\cos^n \phi$ -Verteilung mit $n > 2$ gelten sollte.

Zu beachten ist allerdings, daß die obig dargestellten Abbildungen von Originaldaten stammen, und so nur die zweidimensionale Projektion der eigentlichen Impulsverteilung der Fragmente zeigen. Deshalb dienen als Ausgangspunkt für die Bestimmung der Winkelverteilungen invers Abel-Transformierte Matrizen. In diesen wird die Winkelabhängigkeit der Fragmentzahl bei einer Energie bzw. Geschwindigkeit ermittelt, die Fragmenten eines Vibrationsniveaus entspricht. Im invers Abel-Transformierten Bild wird dazu einfach eine Kreisbahn mit der Fragmentgeschwindigkeit als Radius durchlaufen. Die Fragmentzahlen auf dieser Kreisbahn sind in Abhängigkeit des Winkels in Abbildung 5.9 dargestellt. Zum Vergleich ist jeweils auch eine $\cos^n \phi$ -Verteilung dargestellt. So ist zu erkennen, daß die

²Das sogenannte „alignment“, also das Ausrichten der Moleküle im elektrischen Feld des Lasers wurde bei allen Messungen vernachlässigt. Dies ist nach einer Fehlerabschätzung von [?] zulässig.

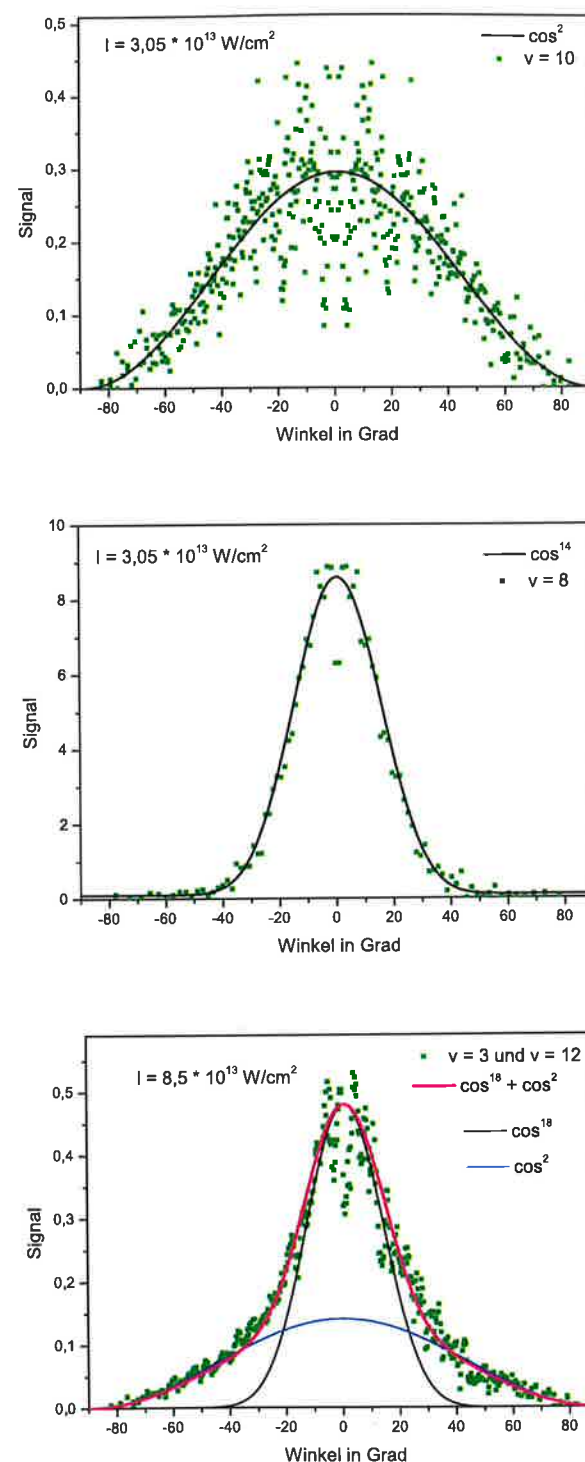


Abbildung 5.9: Winkelverteilung der Photofragmente aus verschiedenen Vibrationsniveaus in Experimenten mit Intensitäten von $3,05 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ und $8,5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Das starke Hintergrundsignal im zentralen Bereich wird durch den Algorithmus der inversen Abel-Transformation erzeugt, wenn die Daten unsymmetrische Anteile enthalten.

auf „klassische“ Weise aus $v = 10$ dissoziierten Fragmente fast einer $\cos^2 \phi$ -Verteilung unterliegen, wohingegen die aus $v = 8$ durch „Bond-Softening“ dissoziierten annähernd einer $\cos^{14} \phi$ -Verteilung folgen. Beide Verteilungen wurden aus der Messung bei $I = 3,05 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ von neutralen und geladenen Fragmenten, dargestellt in Abb. 5.5 Bild 1, extrahiert. Der Messung bei $I = 8,5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ (Abb. 5.7 Bild 5) entstammen die Daten, die die Überlagerung des auf „klassische“ Weise dissoziierten Vibrationsniveaus $v = 12$ mit denen, die aus $v = 3$ durch „Zweiphotonenabsorption“ entstanden, zeigt. Hier wurden zum Vergleich eine $\cos^2 \phi$ -Kurve, eine $\cos^{18} \phi$ -Kurve, sowie eine Kurve, die einer Summe beider entspricht, hinzugefügt. Dadurch ist zu erkennen, wie sich die schmale Verteilung, die bei der „Zweiphotonendissoziation“ entsteht, auf die breite $\cos^2 \phi$ -Verteilung der Einphotonendissoziation setzt. Somit ist bei dieser Energie im zugehörigen Schnittbild ein großes Maximum zu erkennen, zu dem beide Niveaus anteilig beitragen.

5.4 Verhältnis der Dissoziationskanäle

Inspiziert durch den Artikel [Itz00], in dem eine experimentelle Untersuchung des Dissoziationsverhaltens von HD^+ , das durch Beschuss mit schnellen Protonen aus HD erzeugt wurde, beschrieben ist, und unter anderem erwähnt wird, daß die beiden Dissoziationskanäle $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H} + \text{D}^+$ und $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{D}$ nicht mit gleicher Wahrscheinlichkeit auftreten, wurde versucht, diesen Unterschied zu messen. In [Itz00] wird angegeben, daß der Kanal $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{D}$, der einer Dissoziation auf der unteren Potentialkurve 1σ entspricht, die energetisch um $3,7 \text{ meV}$ niedriger liegt als die $2p\sigma$ -Kurve, die zu den Fragmenten $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H} + \text{D}^+$ führt, um 7% wahrscheinlicher ist. Da in der theoretischen Arbeit von [Nak02], die sich auf ein Photodissoziationsexperiment stützt, das unserem sehr ähnlich ist, angegeben wird, daß der andere Kanal deutlich bevorzugt wird, ohne jedoch eine Größenordnung zu nennen, war das Ergebnis von großem Interesse.

Der Energieunterschied der Potentialkurven $2p\sigma$ und 1σ der beiden Dissoziationskanäle $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H} + \text{D}^+$ und $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H}^+ + \text{D}$ von $3,7 \text{ meV}$ entspricht zum Beispiel bei $v = 10$ einer Verbreiterung der Linien um ca. 20 ms^{-1} , was etwa einem viertel Pixel entspricht, und deshalb nicht aufgelöst werden kann. Darum wurden, analog zu den oben beschriebenen Messungen, abwechselnd Bilder mit neutralen sowie neutralen und geladenen Fragmenten aufgenommen. Die Anzahl der jeweiligen Fragmente wurde dann auf den Ionenstrom während dieser Messung normiert. Aus dem Mittelwert aller Bilder mit neutralen sowie aller Bilder mit neutralen und geladenen Fragmenten kann dann das Verhältnis

$$\frac{|D + D^+|}{|D|} = 1 + \frac{|D^+|}{|D|} \quad (5.5)$$

bestimmt und dadurch auf einen bevorzugten Dissoziationskanal geschlossen werden (s.

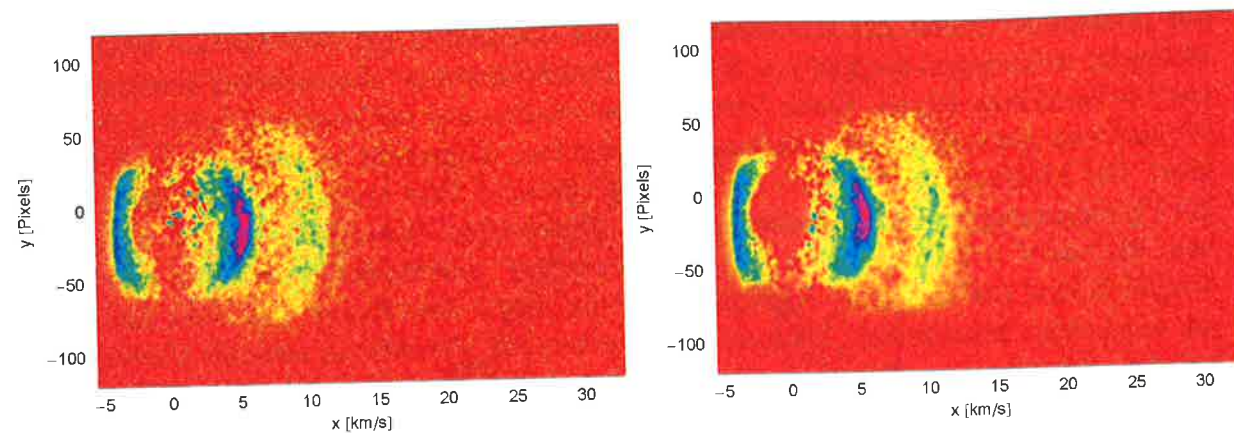


Abbildung 5.10: Links ist das Bild mit den neutralen, rechts das mit neutralen und geladenen Fragmenten, das für die Bestimmung eines bevorzugten Dissoziationskanals verwendet wurde, dargestellt.

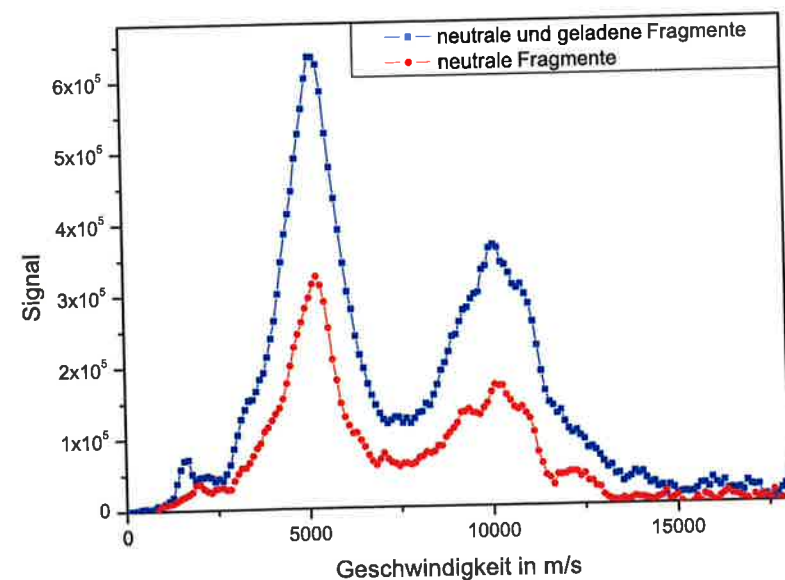


Abbildung 5.11: Schnittbild zur Bestimmung eines bevorzugten Dissoziationskanals. Die beiden Spektren wurden aus Abb. 5.10 durch Integrieren über 45 Grad gewonnen.

auch Kap. 3.4.1).

Durch die jeweils kurzen Meßintervalle und das zwischen nur neutralen und neutralen und geladenen Fragmenten abwechselnde Messverfahren sollten eventuelle langfristigen Änderungen an der Apparatur bei beiden Mittelwerten etwa gleichen Anteil besitzen, und somit insgesamt einen zu vernachlässigenden Beitrag darstellen.

Ein relativ großer Fehler entstand durch die Normierung der Fragmentzahlen auf den Ionenstrom. Dadurch, daß für das Messen der neutralen Fragmente die geladenen Fragmente seitlich in den Faradaybecher 1 (s. Abb. 3.13) gelenkt werden mußten, und somit auch nur hier der zeitliche Verlauf des Ionenstroms erfaßt werden konnte, wohingegen sonst der Ionenstrom an Faradaybecher 2 verfolgt wurde, war es nicht möglich, beide Bilder auf den Absolutwert des Stroms zu normieren. Deshalb wurde zwischen der Aufnahme der einzelnen Bilder wiederholt umgeschaltet, um das Verhältnis dieser Strommessungen und insbesondere auch dessen zeitlichen Verlauf (idealerweise konstant) zu bestimmen. Dieser Wert konnte aber wegen seiner zeitlichen Schwankungen nur zu $5,98 \pm 0,47$ (Standardabweichung), also mit etwa 8 % Genauigkeit ermittelt werden.

Ein weiterer nicht unerheblicher Fehler ist in den Intensitätsschwankungen des Lasers im Wechselwirkungspunkt aufgrund der räumlichen Verschiebung (s. Kap. 5.5) enthalten, auch wenn sich dieser zum größten Teil durch das zwischen neutralen sowie neutralen und geladenen Fragmenten abwechselnde Meßverfahren eliminieren lässt. Um diese Schwankungen weiter zu minimieren, wurde außerdem eine geringe Laserintensität, also ein großer Fokusbereich gewählt.

In Abbildung 5.10 sind die Bilder dargestellt, aus denen die Schnittkurven in Abb. 5.11 extrahiert wurden. Dies geschah analog zu dem oben beschriebenen Verfahren. Nur war hier mehr die Anzahl, und weniger eine exakte Energie bzw. Geschwindigkeitsauflösung der Fragmente von Interesse. Deshalb wurde über einen Winkel von 45 Grad integriert. In den Schnittkurven konnte dann über ein Geschwindigkeitsintervall, in dem nur D bzw. D und D⁺ Fragmente auftreten, integriert werden, um so das Verhältnis (Gleichung 5.5) zu bestimmen.

Zusammenfassend läßt sich das Verhältnis der beiden Kanäle dann mit $1,06 \pm 0,15$ zugunsten der $\text{HD}^+ \rightarrow \text{H} + \text{D}^+$ Dissoziation angeben. Es ist also möglich, daß dieser Kanal bei der Dissoziation in intensiven Feldern leicht bevorzugt wird. In diesem Fall wäre das Verhalten hier invers zu dem in [Itz00] beschriebenen, was sich wegen den unterschiedlichen Experimenten jedoch nicht zwangsläufig widersprechen muß. Wegen des großen Fehlers von fast 15 % kann aber ohnehin keine signifikante Aussage über ein unsymmetrisches Verhalten getroffen werden. Relativ sicher ist hingegen, daß keine gravierenden Effekte in Erscheinung treten, die einen der Kanäle weitgehend unterdrücken, und so ein deutliches Abweichen vom 1 : 1 - Verhältnis erzwingen.

5.5 Allgemeine Fehlerabschätzung

Die Fehler der einzelnen Komponenten sind in den jeweiligen Abschnitten beschrieben. Sie tragen entweder zur Verschlechterung des Signal-Rausch-Abstandes oder zur Verbreiterung der Linien bei. Auf eine detaillierte Aufsummierung all dieser Einzelfehler kann jedoch verzichtet werden, da der Fehler in der Intensitätsbestimmung so groß ist, daß alle anderen eine untergeordnete Rolle spielen.

Der Fehler in den Intensitätsangaben resultiert vor allem aus der Unkenntnis darüber, wie sich der Laserstrahl während den Messungen gegenüber dem Ionenstrahl verschiebt. Bei der Justierung des Wechselwirkungspunktes sind Höhenschwankungen von $0,1 \mu\text{m}$ in den Fragmentzahlen zu erkennen. Da beide Apparaturen aber deutlich getrennt voneinander im Raum stehen, sind Schwankungen in dieser Größenordnung nicht auszuschließen. So stützt sich die verlässlichste Fehlerabschätzung der am Wechselwirkungsort herrschenden im Vergleich zur gemessenen Intensität auf Statistiken über die Anzahl der Fragmente bei verschiedenen Messungen mit stets gleichen Parametern. Demnach ist eine Abweichung bis zu 60% möglich.

Kapitel 6

Ausblick

Die in dieser Arbeit vorgestellten Experimente bieten einen Überblick des Verhaltens von HD^+ in intensiven Laserfeldern. Um ein tieferes Verständnis der physikalischen Zusammenhänge zu gewinnen, sollte eine Bestimmung der Population der Vibrations- und Rotationsniveaus im Targetstrahl erfolgen. Die Kenntnis dieser Ausgangsbedingungen würde einen Vergleich mit der Theorie durch eine ab initio Simulation, das heißt ausgehend von der Schrödingergleichung ermöglichen.

Interessant scheint auch ein Experiment mit Mehrfachpulsen oder einer Mischung mit höheren Harmonischen. Dadurch könnten die Moleküle zuerst räumlich orientiert oder Interferenzen der Dissoziationskanäle untersucht werden.

Die Generierung beliebiger Laserpulsformen wäre durch eine LCD-Maske in der Fourierebene des Pulsstreckers möglich. Durch eine detaillierte Untersuchung des Einflusses der Pulsform auf das Dissoziationsverhalten von HD^+ könnten fundamentale Fragen bei der Wechselwirkung von Licht mit Materie geklärt werden.

Anhang A

Vorgenommene Umbauten am Experiment

Im Rahmen dieser Diplomarbeit wurden diverse Vorrichtungen konstruiert und in die bestehende Apparatur integriert, von denen nachfolgend noch einige näher beschrieben werden.

Ein Defekt erforderte eine Erneuerung der Ionenlinse der Molekülstrahlapparatur, die bei dieser Gelegenheit gegenüber der vorherigen in einigen Punkten modifiziert wurde. Abbildung A.1 zeigt die neu konstruierte Ionenlinse, deren Vorteil in der leichteren Justierbarkeit und einer höheren Spannungsfestigkeit liegt.

Um die Auflösung bei der Projektion der auf dem Phosphorschirm erzeugten Lichtpunkte auf den CCD-Chip der Kamera zu erhöhen, wurde der Abbildungsmaßstab des Kameraobjektivs verändert. Dies hatte zur Folge, daß nur noch ein Ausschnitt der Detektorfläche beobachtet werden konnte. Um diesen Ausschnitt frei über die gesamte Detektorfläche bewegen zu können, wurde deshalb eine Verschiebeeinheit (Abb. A.2) konstruiert, die dies ermöglicht. Die Mikrometerschrauben erlauben dabei eine Repositionierung, deren Abweichung unter einem Pixel liegt. Auf der Flansch-Seite sind Paßstifte angebracht, wodurch selbst nach einer Demontage, die zur Kalibrierung mittels UV-Lampe nötig ist, die gleiche Position wieder erreicht werden kann.

Um den Einfluß des Faradaybechers, der den Direktstrahl der Moleküle vor dem Detektor abfängt, auf die Fragmente, die in dessen unmittelbarer Nähe auf den Detektor treffen, möglichst gering zu halten, wurden mehrere Konstruktionen erprobt, wovon eine exemplarisch in Abb. A.3 dargestellt ist.

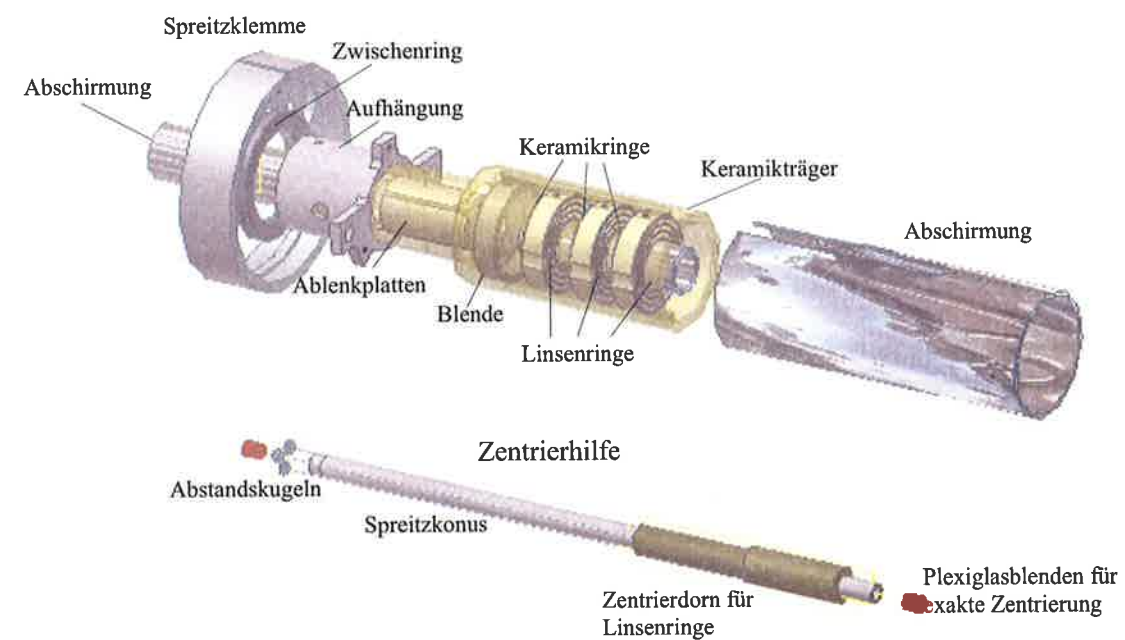


Abbildung A.1: Neue Konstruktion der Ionenlinse. Der Vorteil liegt vor allem in der besseren Justierbarkeit, die durch die völlig neu gestaltete Aufhängung in Verbindung mit der geschaffenen Zentrierhilfe ermöglicht wird. Durch größere Abstände und veränderte Anschlüsse wird eine höhere Spannungsfestigkeit gewährleistet. Außerdem wurden zusätzliche Öffnungen geschaffen, die ein Entweichen aufgestauter Moleküle ermöglichen.

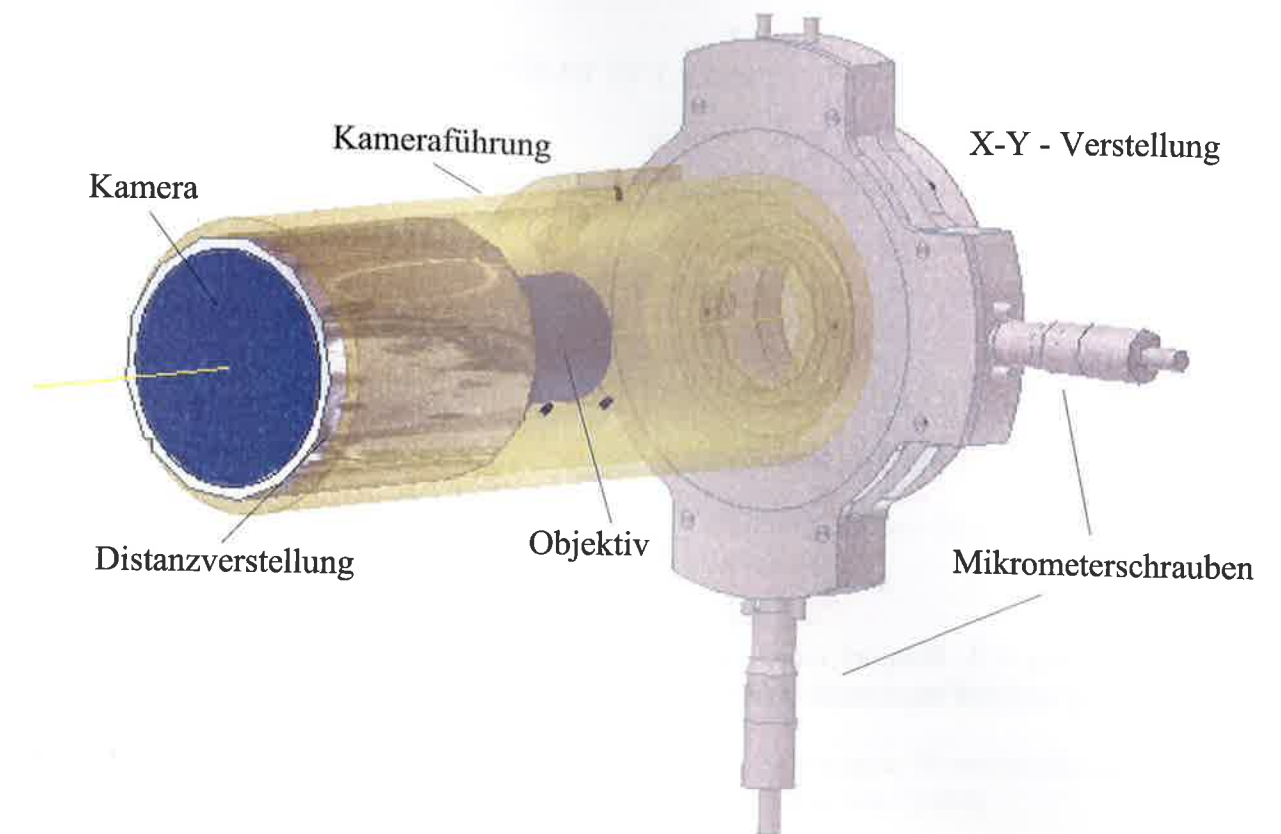


Abbildung A.2: Verschiebeeinheit der CCD-Kamera. Durch die Mikrometerschrauben wird bei der Repositionierung eine Abweichung unter einem Pixel erreicht.



Faradaybecher

Abbildung A.3: Beispiel eines erprobten Faradaybeckers, der eingesetzt wurde, um eine Störung in der Fragmenttrajektorie weitgehend zu vermeiden.

Literaturverzeichnis

- [Ban93] A. D. Bandrauk, *MOLECULES IN LASER FIELDS* M. Dekker, New York (1994)
- [Bre95] B. Brehm, J. Grosser, T. Ruscheinski, M. Zimmer, *Meas. Sci. Technol.* **6**, 953-958 (1995)
- [Buc90] P. H. Bucksbaum, A. Zavriyev, H. G. Muller und D. W. Schumacher, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1883 (1990)
- [Buc93] P. H. Bucksbaum und A. Zavriyev, *Phys. Rev. Lett.* **64**, 1883 (1990)
- [Car89] A. Carrington, I. R. McNab und C. A. Montgomerie, *J. Phys. B* **22**, 3551 (1989)
- [Coh92] C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Atom-Photon Interactions* J. Wiley & Sons, New York (1992)
- [Dun65] G. H. Dunn, *J. Phys. Chem.* **44**, 2592 (1965)
- [Itz00] Ben-Itzhak, E. Wells, K. D. Carnes, u. a. , *Phys. Rev. Lett.* **85**, 58 (2000)
- [Ket86] „Spektroskopie an Heliumhydrid und am dreiatomigen Wasserstoffmolekül“, Dissertation, Ludwig-Maximilian-Universität, München (1986)
- [Kit96] T. N. Kitsopoulos and P. Rakitzis, Fortran code, (1996)
- [Kon01] A. Kondorskiy und L. Presnyakov, *J. Phys. B* **34**, L663 (200)
- [Kon02] A. Kondorskiy und L. Presnyakov, *Laser Phys.* **12**, 449 (2002)
- [Lie66] H. Liebl und W. W. Harrison, *Int. J. Mass Spect. Ion. Phys.* **22**, 237 (1966)
- [Nak02] A. Kondorskiy und H. Nakamura, *Phys. Rev. A* **66**, 053412 (2002)
- [Pavicic] D. Pavicic, H. Figger, and T. W. Hänsch, to be published
- [Pic91] M. Piché, *Opt. Commun.* **86**, 156 (1991)

- [Rei02] V.Dribinski, V. Mandeshtam und H. Reisler, „Reconstruction of Abel-Transformable Images“, Rev. Sci. Inst., **73**, 2634 (2002)
- [She95] B. Sheehy, B. Walker and L.F. DiMauro, Phys. Rev. Lett. **74**, 24 (1995)
- [Vra01] M. J. J. Vrakking, „An iterative procedure for the inversion of 2D ion imaging experiments“, Rev. Sci. Inst., **72**, 4084 (2001)
- [Win76] W. Wing, G. Ruff, W. Lamb u. a. , Phys. Rev. Lett. **36**, 25 (1976)
- [Wol85] L. Wolniewicz und J. D. Poll, Can. J. Phys. **63**, 1201 (1985)
- [Wun95] C. Wunderlich, „Licht-induzierte molekulare Struktur“, Dissertation, Ludwig-Maximilian-Universität, München (1995)

Danksagung

An dieser Stelle möchte ich allen danken, die mich bei der Erstellung dieser Arbeit unterstützt haben. Mein herzlicher Dank gilt besonders ...

...Prof. Dr. T. W. Hänsch, der mir die Möglichkeit gab, diese Arbeit am Max-Planck-Institut für Quantenoptik unter hervorragenden Arbeitsbedingungen durchführen zu können.

...meinem Betreuer Herrn Dr. Figger für die vielseitige und unkomplizierte Unterstützung meiner Arbeit.

...Herrn Pavicic, der mich in all die Geheimnisse der Apparatur einweihte, und mir während der gesamten Zeit mit außerordentlicher Geduld und Hilfsbereitschaft beistand, meine Probleme zu lösen.

...Herrn Karl Linner und insbesondere Herrn Wolfgang Simon, der engagiert und kompetent technische Probleme meisterte.

...Helmut Brückner, der bei elektronischen Problemen stets zur Stelle war.

...Frau Gschwendtner und Frau Lechner für die Organisation nicht nur von Tagungsaufenthalten.

...allen Doktoranden und Diplomanden der Laserspektroskopie-Arbeitsgruppe für ihre Hilfsbereitschaft und die angenehme Arbeitsatmosphäre.

...Herrn Prof. Dr. Riedle für die Übernahme der Aufgaben des Zweitgutachters.

...meiner langjährigen Partnerin Uli, nicht nur für die seelische Unterstützung, die nötig war um mein Studium zu vollenden.

...meinen WG-Mitbewohnern, die so manches Mal meine Gemeinschaftsarbeiten übernehmen mußten, und trotzdem gute Laune behielten.

...meinen Eltern für die unterlassene Unterstützung, wodurch ich nicht das Gefühl haben mußte, mich in finanzieller Abhängigkeit zu befinden.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, daß ich die vorliegende Arbeit selbständig verfaßt und keine anderen als die angegebenen Hilfsmittel und Quellen verwendet habe.
München, den 17. März 2003

Andreas Kieß



