



Nachweis der Energiequantisierung in der doppelten Argon-Ionisation

Master-Thesis

von: Kevin Henrichs
geb.: 24.07.1987

vorgelegt am: 25. Januar 2013

**durchgeführt am Institut für Kernphysik der
Goethe-Universität Frankfurt am Main**

Erster Gutachter: Prof.Dr. Reinhard Dörner
Zweiter Gutachter: Dr. Markus Schöffler

Meiner Familie.

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

Frankfurt am Main, der

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Physikalische Grundlagen	5
2.1	Quantenmechanische Grundlagen	5
2.1.1	Quantenmechanische Einführung	5
2.1.2	Quantenmechanische Atomphysik	6
2.2	Laser	7
2.2.1	Elektromagnetische Wellen	7
2.2.2	Nichtlineare Prozesse	8
2.2.3	Frequenzverdopplung	9
2.2.4	Lasing	9
2.2.5	Zeit-Frequenz-Korrelation	11
2.2.6	Kurzpulslaser	11
2.3	Licht-Materie-Wechselwirkungen	14
2.3.1	Photoelektrischer Effekt	14
2.3.2	Ponderomotorisches Potential	15
2.3.3	Dynamik der Einfachionisation	16
2.3.4	Multiphotonenionisation und Tunnelionisation	17
2.3.5	Dynamik der Multiphotonenionisation	17
2.3.6	Doppelionisation	19
2.4	Modelle	20
2.4.1	Das Recollision-Modell	20
2.4.2	RESI	21
2.4.3	Raten der Doppelionisation - Das "Knie"	22
2.4.4	Ionen-Impulse	23
2.4.5	Elektronen im Recollision-Modell	25
2.4.6	Korrelation der Elektronen	26
3	Experimenteller Aufbau	29
3.1	Überblick über das Experiment	29
3.2	Laser	30
3.2.1	Oszillator	30
3.2.2	Regenerativer Verstärker	31
3.2.3	Frequenzverdopplung mittels BBO	32
3.2.4	Laser-Pulse in der Kammer	33
3.3	COLTRIMS	33

3.3.1	Vakuumsystem und Gas-Jet	33
3.3.2	Spektrometer	36
3.3.3	Gitter	41
3.3.4	MCP	42
3.3.5	Ortsauflösende Delay-Line-Anode	43
3.3.6	Auslese	45
4	Messung und Auswertung	46
4.1	Messung	46
4.2	Auswertung	46
4.2.1	Korrekturen	46
4.2.2	Flugzeiten	47
4.2.3	Bestimmung des B-Feldes	49
4.2.4	Elektronen-Impulse	51
4.2.5	E-B-Drift	52
4.2.6	Drehung der Detektoren	53
4.2.7	Zeitliche Parameterveränderung	53
4.2.8	CUDA	54
4.3	Auswahl der richtigen Ereignisse	55
4.3.1	Elektronenauswahl	56
4.3.2	Auflösung der Recoil-Flugzeitkomponente	57
4.3.3	Unterdrückung des Untergrunds	58
4.3.4	Falsche Koinzidenzen	60
5	Ergebnisse und Schlussfolgerungen	63
5.0.1	Intensitätseichung	63
5.0.2	Bestätigung für nichtsequentielle Ionisation	67
5.0.3	Hinweis auf Recollision	68
5.0.4	Einzel-Elektronen-Energien	71
5.0.5	Elektronensummenenergie	74
5.0.6	Energiebetrachtung im Recollision(e, 2e)-Modell	75
5.0.7	Energiekorrelation	76
5.0.8	Verschiebung der ATI-Spektren	82
6	Zusammenfassung und Ausblick	83
6.1	Zusammenfassung	83
6.2	Ausblick	84
	Literatur	84
A	Atomare Einheiten	90
B	Abkürzungsverzeichnis	91
C	Verwendete Zeichen und Symbole	92
D	Experimentelle Parameter	94
E	Danksagung	95

Kapitel 1

Einleitung

Die öffentliche Wahrnehmung der modernen physikalischen Forschung wird zur Zeit bestimmt durch die Entdeckung des Higgs-Bosons, durch Kern- und Teilchenphysik im Allgemeinen, Quantenkryptographie bzw. Quantencomputer und durch die auch für den Laien faszinierende Astrophysik. Atomare Prozesse scheinen so grundlegend, dass sie als verstanden gelten. Dennoch hält die Atomphysik viele ungelöste Rätsel bereit: Die Dynamik des Helium-Atoms etwa ist bei Weitem nicht gänzlich verstanden.

Und auch der Mechanismus der auf den ersten Blick simpel klingenden Doppelionisation eines Atoms durch viele Photonen ist bisher nicht vollständig geklärt. Die experimentellen Beobachtungen können klassisch [MFLSL04], semiklassisch [CLZ02] und quantenmechanisch [LGE01] erklärt werden. Weitergehende Erkenntnisse würden helfen, Vielteilchenwechselwirkungen besser zu verstehen. Im vorliegenden Fall ist es das Dreikörperproblem Elektron-Elektron- Ar^{2+} , welches auch theoretisch nur schwer beschreibbar ist.

Die Einfachionisation durch ultrakurze Laserpulse, also das Zweikörperproblem Elektron- Ar^+ , ist gut erforscht und weitestgehend verstanden [HDPT05]. Da Energie vom Feld an das Elektron nur in Vielfachen der Photonenenergie übertragen werden kann, beobachtet man bei der Messung der kinetischen Elektronenenergie sogenannte ATI-Peaks (Above-Threshold-Ionization). Diese kommen zwangsweise durch die Energieerhaltung zu Stande: Da die Ionisationsenergie bei jedem Laserpuls etwa die gleiche ist, außerdem nur diskrete Energien durch Photonen an das Elektron übertragen werden können, muss auch die kinetische Energie, also die Differenz der übertragenen Energie durch die Photonen und der Ionisationsenergie im Feld, diskrete Peaks zeigen. Das ist auch gefunden worden (z.B. [LLD⁺12]).

Es existieren verschiedene theoretische Modelle, die den Mechanismus der Doppelionisation erklären. Das wohl intuitivste ist die sequentielle Ionisation, bei der beide Elektronen wie bei der Einfachionisation separat voneinander ionisiert werden und jeweils ATI-Peaks aufweisen sollten. Für bestimmte Intensitäten des Lasers ist dieses Modell jedoch unzureichend, da es zu niedrige Raten vorhersagt. Hier wird derzeit davon ausgegangen, dass ein Mechanismus verantwortlich ist, bei dem ein Elektron ausgelöst wird, zum Mutteratom zurückkehrt und das zweite Elektron in einem Coulomb-Stoß ionisiert ("Recollision"). Die

Gesamtenergie der beiden Elektronen berechnet sich - unabhängig vom Modell - aus der Differenz der Energie der absorbierten Photonen, die zur Ionisation der Elektronen geführt hat, minus der Summe der Ionisationsenergien der beiden Elektronen im Feld. Daher sollte auch die Gesamtenergie der Elektronen die Energiequantisierung des Laserfeldes tragen [LGE01]. Diese sind noch nicht beobachtet worden und sollen in der vorliegenden Arbeit gefunden werden.

Ähnliche Experimente wurden in der Vergangenheit auch mit Argon schon durchgeführt [LL10] [WHC⁺01], allerdings mit 800 nm Laser-Pulsen. In diesem Experiment wurde jedoch mit 400 nm gearbeitet, was die Photonenenergie verdoppelt und damit den Abstand der ATI-Peaks vergrößert. Daher sollte das Problem der Auflösung, welches als ausschlaggebend dafür angesehen wurde, dass die ATI-Peaks in der Doppelionisation noch nicht gefunden wurden, verringert werden.

Ziel dieser Arbeit ist es, die bestehenden theoretischen Modelle der Doppelionisation dem Experiment gegenüberzustellen und danach möglichst einige von ihnen verwerfen zu können. Durchgeführt wird die Messung an einer sogenannten COLTRIMS-Apparatur (Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy) [DWW⁺02], die es ermöglicht, die dreidimensionalen Impulse aller beteiligten Teilchen eines Ionisationsereignisses zu rekonstruieren.

Kapitel 2

Physikalische Grundlagen

In diesem Abschnitt werden die theoretischen Grundlagen des Experiments samt vorgeschlagener Modelle der Doppelionisation erläutert. Es wird eine quantenmechanische Einführung geben, einen Einblick in die Theorie des Lasers sowie eine detaillierte Diskussion verschiedener Arten der Ionisation.

2.1 Quantenmechanische Grundlagen

2.1.1 Quantenmechanische Einführung

Im Gegensatz zur klassischen Mechanik werden Teilchen in der Quantenmechanik mit Hilfe einer sogenannten Wellenfunktion beschrieben. Das Betragsquadrat dieser Wellenfunktion liefert eine Wahrscheinlichkeitsverteilung etwa für den Aufenthalt des Teilchens an einem klassischen Ort. Die exakten Koordinaten aus der klassischen Mechanik werden also durch Wahrscheinlichkeitsaussagen ersetzt. Sogenannte Observable ersetzen diese klassischen Größen. Observable sind hermitesche, lineare Operatoren innerhalb des Hilbertraumes, der ein unendlich dimensionaler Raum ist und in dem die Wellenfunktionen sowie das Skalarprodukt definiert sind. Jeder physikalisch messbaren Größe wird nun eine Observable zugeordnet [Tri11]. Die Wellenfunktion Ψ kann bestimmt werden als Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung [Nol01]

$$\mathcal{H}(t)|\Psi(\vec{r}, t)\rangle = \left(-\frac{\hbar^2}{2m}\Delta + V(\vec{r})\right)\Psi(\vec{r}, t) = i\hbar\frac{d}{dt}|\Psi(\vec{r}, t)\rangle, \quad (2.1)$$

wobei $|\Psi(\vec{r}, t)\rangle$ einen sogenannten Zustand darstellt. Lösungen dieser Gleichung haben die Form $|\Psi\rangle = \sum_n c_n|\Phi_n\rangle$. Sie sind also Linearkombinationen diskreter Zustände $|\Phi_n\rangle$ mit den Eigenwerten c_n .

Kommt es zu einer Messung, bedeutet das, dass eine Observable, also ein Operator A , auf den Zustand $|\Psi\rangle$ angewendet wird. Das Ergebnis dieser Messung können nur Eigenwerte des Operators A sein. Außerdem liegt das System danach genau im gemessenen Zustand vor. Die Messung sorgt also dafür, dass die Linearkombination des Systems aus mehreren Zuständen in genau einen Zustand kollabiert und beeinflusst quantenmechanisch daher prinzipiell das Experiment.

Die Wahrscheinlichkeit, dass das System $|\Psi\rangle$ im Zustand $|\Phi_n\rangle$ vorliegt, ist durch $P = |\langle\Psi|\Phi\rangle|^2$ gegeben.

Außerdem führt die Heisenberg'sche Unschärferelation dazu, dass es bezüglich zweier klassischer Größen keine exakten Aussagen mehr gibt. Der Ort eines Teilchens kann nicht mehr gleichzeitig mit seinem Impuls genau bestimmt werden:

$$\Delta p \Delta x \geq \hbar. \quad (2.2)$$

Gleiches gilt für Zeit und Energie:

$$\Delta t \Delta E \geq \hbar, \quad (2.3)$$

mit dem Planckschen Wirkungsquantum $\hbar \approx 1,05 \cdot 10^{-34}$ Js.

2.1.2 Quantenmechanische Atomphysik

Mit dieser Einführung ist es möglich, das Atom quantenmechanisch zu beschreiben. Lösungen der Schrödinger-Gleichung führen zu verschiedenen Quantenzahlen, mit denen Atome charakterisiert werden können [Nol01]:

- Hauptquantenzahl n , $n = 1, 2, 3, \dots$
- Drehimpulsquantenzahl l : anschaulich der Bahndrehimpuls des Elektrons um den Kern, $l = 0, 1, \dots, n$
- Magnetische Quantenzahl m : führt zur Änderung der Energie im externen Magnetfeld, $m = -l, \dots, 0, \dots, l$
- Spin-Quantenzahl s : Spin-Zustand des Elektrons, $s = \pm \frac{\hbar}{2}$

Im Experiment zu dieser Arbeit wird ein Magnetfeld angelegt. Jedoch ist dieses zu klein, um eine Aufspaltung zu erhalten, m spielt in diesem Zusammenhang daher keine Rolle. n gibt anschaulich, klassisch betrachtet eine Schale an, auf der sich Elektronen um den Kern bewegen. l schränkt mögliche Wechselwirkungen und Ionisations- bzw Anregungskanäle ein, da für Einphotonen-Übergänge üblicherweise $\Delta l = \pm 1$ gilt. Die Quantenzahl s gibt den Spinzustand des Teilchens an, der entweder $+\frac{1}{2}$ oder $-\frac{1}{2}$ sein kann.

Elektronen in einem Atom besetzen im ungestörten Fall die Zustände mit geringster Energie. Damit ergibt sich ein eindimensionales Energiespektrum mit möglichen Zuständen, die von unten aufgefüllt werden und zwischen denen Übergänge möglich sind, sofern die benötigte Energie bereitgestellt wird oder ein energetisch niedrigerer Zustand verfügbar ist. Durch das Pauliprinzip müssen sich sämtliche Elektronen eines Atoms paarweise in mindestens einer Quantenzahl unterscheiden. Dadurch sind Übergänge unmöglich, bei denen ein Elektron in einen Zustand übergehen würde, der schon mit einem anderen Elektron besetzt ist, welches exakt die gleichen Quantenzahlen hat. Ist der Zustand

mit den gleichen Quantenzahlen aber mit entgegengesetztem Spin unbesetzt, kann das Elektron durch einen Spin-flip, also einen Wechsel des Spins, diesen Zustand besetzen. Da ein Spin-flip jedoch sehr unwahrscheinlich ist, sind Übergänge solcher Art selten und werden daher "verbotene" Übergänge genannt. Beobachtungen zeigen, dass \vec{l} und \vec{s} keine Erhaltungsgrößen sind, ihre Summe jedoch sehr wohl $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$, wobei \vec{j} für die neue Quantenzahl des Gesamtdrehimpulses steht.

2.2 Laser

2.2.1 Elektromagnetische Wellen

Mit Maxwells Gleichungen [Boy03] [Obe03]

$$\vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \vec{B}(\vec{r}, t) \quad (2.4)$$

$$\vec{\nabla} \times \vec{H}(\vec{r}, t) = \vec{j}(\vec{r}, t) + \frac{\partial}{\partial t} \vec{D}(\vec{r}, t) \quad (2.5)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{D}(\vec{r}, t) = 0 \quad (2.6)$$

$$\vec{\nabla} \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0 \quad (2.7)$$

kann die Ausbreitung elektromagnetischer Wellen beschrieben werden. Es gilt

$$\vec{D}(\vec{r}, t) = \epsilon_0 \vec{E}(\vec{r}, t) + \vec{P}(\vec{r}, t) \quad (2.8)$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \mu_0 \vec{H}(\vec{r}, t) \quad (2.9)$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = 0 \quad (2.10)$$

mit

$\vec{B}(\vec{r}, t):$	magnetische Flussdichte
$\vec{H}(\vec{r}, t):$	magnetische Feldstärke
$\vec{j}(\vec{r}, t):$	elektrische Stromdichte
$\vec{D}(\vec{r}, t):$	elektrische Verschiebungsdichte
$\vec{P}(\vec{r}, t):$	Polarisation
$\vec{E}(\vec{r}, t):$	elektrische Feldstärke
$\mu_0:$	magnetische Feldkonstante
$\epsilon_0:$	elektrische Feldkonstante

Durch Anwendung der Rotation auf (2.4) und Zeitableitung von (2.5), folgt

$$\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\vec{\nabla} \times \frac{\partial}{\partial t} \vec{B}(\vec{r}, t) \quad (2.11)$$

$$\vec{\nabla} \times \frac{\partial}{\partial t} \vec{B}(\vec{r}, t) = \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) \quad (2.12)$$

Nach Einsetzen von (2.12) in (2.11) erhält man die Wellengleichung

$$\vec{\nabla} \times \vec{\nabla} \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{E}(\vec{r}, t) - \mu_0 \frac{\partial^2}{\partial t^2} \vec{P}(\vec{r}, t), \quad (2.13)$$

die von elektrischen Feldern der Form $\vec{E}(\vec{r}, t) = E_0 \cdot e^{i(\omega t \pm \vec{k} \vec{r})}$ (ω : Kreisfrequenz, \vec{k} : Wellenvektor) gelöst wird.

2.2.2 Nichtlineare Prozesse

In der linearen Optik - also bei vergleichsweise niedrigen Intensitäten ($< 10^{14} \frac{W}{cm^2}$) - reagieren Materialien auf elektromagnetische Wellen mit einer linearen Antwort der Form

$$\vec{P}(\vec{E}) = \epsilon_0 \chi \cdot \vec{E} \quad (2.14)$$

Die damit induzierte Schwingung der Elektronenwolke um den Atomrumpf erzeugt eine Polarisationswelle der gleichen Frequenz.

Übersteigt die Intensität der Strahlung jedoch eine materialspezifische Intensität, kommt es zu nichtlinearen Effekten. Die Taylor-Entwicklung der Polarisation lässt sich daher nicht mehr auf den ersten Term beschränken. In [Hen10]

$$\frac{1}{\epsilon_0} \vec{P}(\vec{E}) = \chi_1 \cdot \vec{E} + \chi_2 \cdot \vec{E}^2 + \dots \quad (2.15)$$

müssen jetzt also auch die Terme höherer Ordnung beachtet werden, da die Suszeptibilitäten χ_j mit $j \geq 2$ für hohe Intensitäten nicht mehr vernachlässigbar klein sind. Bei hohen Intensitäten weist der Brechungsindex eine Intensitätsabhängigkeit auf:

$$n(I) = n_0 + n_2 \cdot I \quad (2.16)$$

Das wiederum führt zu mehreren Effekten. Die Intensität ist räumlich über einen Lichtpuls hinweg gaußartig verteilt. Durch die daraus resultierende räumliche Abhängigkeit des Brechungsindex wird eine sogenannte Kerr-Linse erzeugt. In der Mitte des Lichtstrahls ist der Brechungsindex dabei durch erhöhte Intensität größer als an den Randbereichen. Das ähnelt stark dem Modell einer fokussierenden Linse, bei der Komponenten der elektromagnetischen Welle in der Mitte der Linse einen größeren Phasenversatz erhalten als am Rand. Entsprechend wird ein durch ein nichtlineares Medium propagierender Lichtstrahl in gewisser Weise durch sich selbst fokussiert.

2.2.3 Frequenzverdopplung

In nichtlinearen Medien ist die Polarisationsantwort von Materialien nicht mehr linear (siehe 2.2.2), sondern intensitätsabhängig. Deshalb erweitert sich die Polarisierung durch $\chi_2 E^2$. Ein elektrisches Feld mit zwei spektralen Komponenten führt dann zu [Tho10]

$$\left(\frac{1}{\epsilon_0 \chi_2}\right) \vec{P}_2 = \vec{E}^2 \quad (2.17)$$

$$\left(\frac{1}{\epsilon_0 \chi_2}\right) \vec{P}_2 = [\vec{E}_1(t)e^{i\omega_1 t} + \vec{E}_2(t)e^{i\omega_2 t} + \vec{E}_1^*(t)e^{i\omega_1 t} + \vec{E}_2^*(t)e^{i\omega_2 t}]^2 \quad (2.18)$$

$$\begin{aligned} \left(\frac{1}{\epsilon_0 \chi_2}\right) \vec{P}_2 = & \vec{E}_1^2(t)e^{i2\omega_1 t} + \vec{E}_2^2(t)e^{i2\omega_2 t} + 2\vec{E}_1(t)\vec{E}_2(t)e^{i(\omega_1+\omega_2)t} \\ & + \left|\vec{E}_1(t)\right|^2 + \left|\vec{E}_2(t)\right|^2 + 2\vec{E}_1(t)\vec{E}_2(t)e^{i(\omega_1-\omega_2)t} + c.c. \end{aligned} \quad (2.19)$$

Durch diese nichtlinearen Effekte werden somit neue spektrale Komponenten erzeugt. Eine dieser neuen Komponenten ist die doppelte Frequenz. Dieser Effekt wird Frequenzverdopplung genannt und im Experiment zu dieser Arbeit ausgenutzt, um die 800 nm-Laser-Pulse des Ti:Sa-Lasers in 400 nm-Pulse zu konvertieren.

2.2.4 Lasing

Wie in 2.1.2 dargestellt, können Elektronen in Atomen nur diskrete Energieniveaus besetzen [Hen10]. Diese werden im Grundzustand nach dem Pauli-Prinzip beginnend mit dem energetisch niedrigsten Niveau besetzt. Das führt dazu, dass es zu Übergängen zwischen diesen Niveaus kommen kann, die mit Emission bzw. Absorption von Photonen einhergehen. So können zum Beispiel Photonen, die genau die Differenzenergie zwischen zwei Energieniveaus besitzen, ein Elektron aus dem niedrigeren Niveau in das höhere befördern. Man spricht von Absorption (siehe 2.1 links). Dabei wird das Photon - und damit auch seine Energie - absorbiert. Dieses angeregte Elektron wird dann nach kurzer Zeit durch Abstrahlung eines Photons, welches ebenso jene Energie trägt, die der Differenzenergie der Niveaus entspricht, in den energetisch niedrigeren (und damit günstigeren) Zustand zurückfallen. Dieser Prozess wird spontane Emission genannt (siehe 2.1 Mitte).

Der für das Lasing entscheidende Prozess ist jedoch die sogenannte stimulierte Emission. Liegt ein angeregtes Atom vor, ist also ein Elektron in einem Zustand, der nicht der niedrigste freie Zustand ist, kann ein Photon dieses Elektron zwingen, einen niedrigeren Zustand zu besetzen. Dabei wird ein Photon emittiert, das exakt identisch mit dem einkommenden, stimulierenden Photon ist (siehe 2.1 rechts). Es hat die gleiche Ausbreitungsrichtung, Phase und Wellenlänge. Um mit Hilfe dieses Prozesses effizient einen intensiven Laserstrahl zu erhalten, müssen mehr Elektronen im höheren als im niedrigeren Niveau sitzen ("Besetzungsinversion"), damit stimulierte Emission stattfinden kann. Diese kann nur

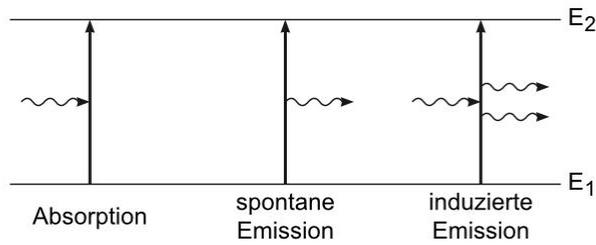


Abbildung 2.1: Darstellung verschiedener Licht-Materie-Wechselwirkungen [Gru10]

erreicht werden, wenn aus dem niedrigeren Zustand viele Elektronen in den höheren gehoben werden (“Pumpen“), was nur mit einer Energiequelle möglich ist. Beispielsweise kann diese Energiequelle ein Pumplaser sein oder eine Blitzlampe, die Photonen bereitstellt, die zur Absorption und damit Energieerhöhung der Elektronen führt. Das effiziente Hinzufügen von Energie zu einem Laserstrahl (“Lasing“) ist allerdings bei einem Zweiniveau-Schema - in dem Pumpen und Lasing zwischen den beiden gleichen Niveaus stattfindet - nicht möglich, weil stimulierte Emission und Absorption konkurrierende Prozesse mit dem gleichen Wirkungsquerschnitt darstellen. Da außerdem die spontane Emission einer Besetzungsinversion entgegenwirkt, kann in einem Zweiniveau-Schema maximal identische Besetzung der beiden Niveaus erreicht werden, nie jedoch Besetzungsinversion.

Um diese zu erreichen, werden mindestens drei Niveaus benötigt. Hierbei wer-

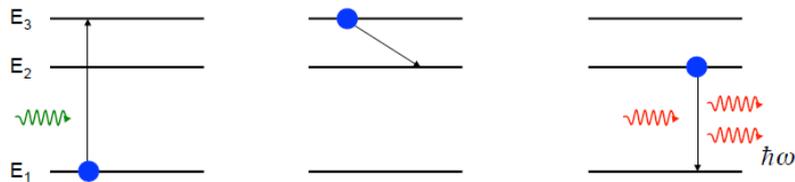


Abbildung 2.2: Darstellung des Modells eines Dreiniveau-Lasers. V.l.n.r.: Absorption eines Photons mit Übergang des Elektrons in Niveau 3, spontane Emission mit Übergang in Niveau 2, stimulierte Emission mit Übergang in Niveau 1 [Gri11]

den Übergänge vom ersten in das dritte Niveau erzwungen. Aus diesem dritten Niveau fallen die Elektronen durch spontane Emission vergleichsweise schnell in das mittlere, zweite Niveau (siehe 2.2). Die Relaxationszeit ins erste Niveau ist hierbei durch einen verbotenen Übergang (siehe 2.1.2) so hoch, dass zwischen diesen beiden Niveaus die spontane Emission vernachlässigbar klein und Besetzungsinversion erreicht wird. Ein Photon, welches die Differenzenergie zwischen den beiden Niveaus trägt, wird wahrscheinlicher für stimulierte Emission sorgen als für Absorption, da es mehr Elektronen gibt, die im oberen Niveau sitzen. Dadurch tritt ein Lawineneffekt auf, die Photonen vermehren sich beim Durchgang durch das Medium. Dem Laserstrahl wird daher effizient Energie

hinzugefügt und es kommt zum Lasing.

2.2.5 Zeit-Frequenz-Korrelation

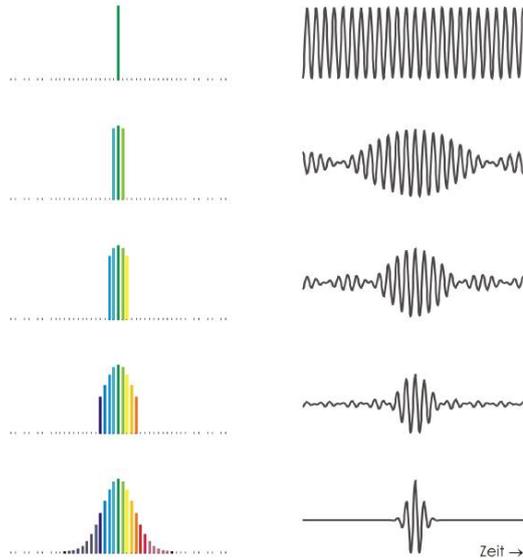


Abbildung 2.3: Fouriertransformation verschiedener Frequenzprofile. (links) Frequenzprofil, (rechts) entsprechende Fouriertransformation [Tho10]

Die Zeitdauer eines Laserpulses steht in direkter Abhängigkeit von der spektralen Breite des Lichts. Prinzipiell ist es möglich, durch eine Fouriertransformation zwischen Zeit- und Frequenz-Domäne zu wechseln. Licht einer diskreten Wellenlänge stellt im Spektrum eine Delta-Funktion dar, die Amplitude der elektromagnetischen Welle ist somit in der Zeit-Domäne konstant. Mit [Hen10]

$$f(t) = \int_{+\infty}^{-\infty} d\nu \cdot e^{i2\pi\nu t} F(\nu) \quad (2.20)$$

kann Abbildung 2.3 verstanden werden. Ein breiteres Spektrum in der Frequenz-Domäne führt laut diesem Schaubild durch die Überlagerung vieler verschiedener Frequenzen zu einem kürzeren Puls (wenn alle Frequenzen in Phase sind). Im Experiment wurde ein Titan:Saphir-Laser benutzt. Er kann Wellenlängen von etwa 670 nm bis 1070 nm verstärken [Fro07]. Mit einer derartigen Bandbreite können theoretisch Pulse von unter 10 fs Pulsdauer erzeugt werden. Dennoch erreichen wir nur etwa 45 fs Pulsdauer, da um die zentrale Wellenlänge (790 nm) nur ein kleinerer Wellenlängenbereich effektiv verstärkt wird.

2.2.6 Kurzpulslaser

Ein in 2.2.4 beschriebenen Laser kann in verschiedenen Modi betrieben werden. Der verbreitetste ist der sogenannte “Constant Wave“-Modus (CW), in

dem kontinuierlich die gleiche Intensität (Einheit: $[\frac{W}{cm^2}]$) emittiert wird. In der vorliegenden Arbeit wurde jedoch ein gepulster Laser verwendet. Hierbei werden Photonen nicht mehr kontinuierlich, sondern nur in bestimmten kurzen Zeitintervallen abgegeben. Die Leistung des Lasers klingt mit etwa $P = 10W$ zunächst nicht beeindruckend. Da jedoch die entsprechende Energie pro Sekunde von $E = 10J$ in 100 000 Pulsen zu je $t = 45fs$ zeitlich komprimiert wird, ergeben sich bei entsprechender räumlicher Fokussierung Intensitäten von über $I = 10^{14} \frac{W}{cm^2}$. Diese Intensitäten werden benötigt, um Argon doppelt zu ionisieren, und sind durch einen CW-Laser nicht zu erzeugen. Außerdem ist es bei einem CW-Laser nicht möglich, gemessene Ionen und Elektronen in Koinzidenz zu bringen, da die Zeitinformation der Pulse fehlt.

Wie aber entstehen solche Pulse? Generell sind Absorptions- und Emissionsli-

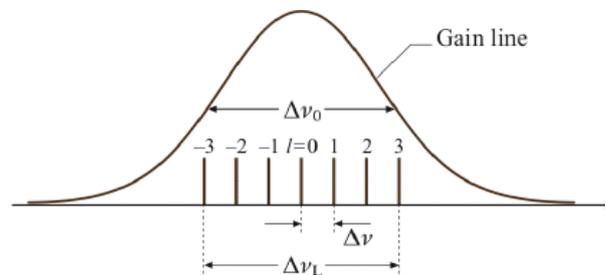


Abbildung 2.4: Modi-Abhängigkeit der Verstärkung im aktiven Medium des Lasers [Gri11]

nien keine diskreten Delta-Funktionen, sondern angenäherte Gauß-Kurven mit endlicher Breite (siehe 2.4). Das bedeutet, dass nicht nur eine Wellenlänge im Spektrum verstärkt werden kann, sondern mehrere.

Im Experiment wurde ein Titan:Saphir-Laser verwendet. Um einen Pulsmodus zu initialisieren, können verschiedene Verfahren angewendet werden. Das hier gewählte ist das Kerr-Modelocking.

Kerr-Modelocking

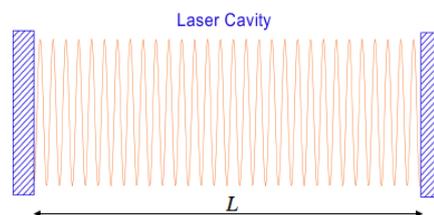


Abbildung 2.5: Darstellung einer Laser-Kavität [Gri11]

Wird ein Titan:Saphir-Kristall gepumpt, so sendet er im gesamten Emissionsbereich zwischen 670 nm und 1070 nm durch spontane Emission Photonen aus. Bringt man nun auf gegenüberliegenden Seiten Spiegel an, werden Photonen, die in diese Richtung emittiert werden, in dieser sogenannten Kavität

gefangen und propagieren zwischen den Spiegeln hin und her (siehe 2.5). Im Wellenbild ist die Phasendifferenz zwischen den verschiedenen Wellenlängen dabei willkürlich, jede Wellenlänge propagiert für sich durch die Kavität und wird verstärkt.

Zufällig kommt es irgendwann zu dem Fall, dass alle Wellenlängen während

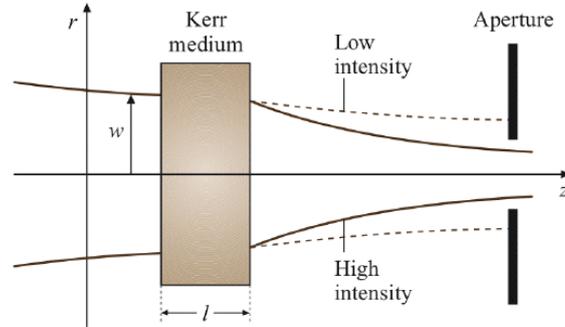


Abbildung 2.6: Funktionsweise einer Kerr-Linse zum passiven Modelocking [Gri11]

der Propagation durch den Kristall in Phase sind und sich ihre Intensitäten konstruktiv addieren. Die auftretenden Intensitäten reichen aus, um eine Kerr-Linse zu erzeugen (siehe 2.2.2). Der zufällig entstandene, phasengepasste Puls wird daher fokussiert. Wird zusätzlich eine Lochblende hinter dem Kristall eingefügt (siehe 2.6), können dadurch die nicht fokussierten, nicht phasengleichen CW-Anteile blockiert werden, wodurch der zufällig entstandene Puls begünstigt wird. Dieser Puls wird sich während der nächsten Durchläufe durch den Kristall weiter verstärken, die CW-Mode wird weiter unterdrückt. Der Laser "pulst" sich somit prinzipiell von selbst. Den Zustand dieser Phasengleichheit nennt man hierbei "Mode-Locking".

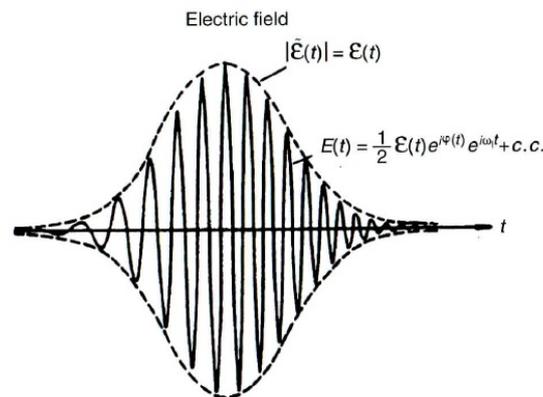


Abbildung 2.7: Pulsprofil eines 800 nm-Pulses mit etwa 20 fs Pulsdauer [Rud06]

In 2.7 ist ein Beispiel-Puls zu sehen. Die einhüllende Kurve (Envelope) wird

durch die Fouriertransformation der Frequenzdomäne bestimmt. Die Sinuskurve innerhalb der Einhüllenden ist die Trägerfrequenz. Beim Titan:Saphir-Laser beträgt diese 375 THz (entspricht 800 nm).

2.3 Licht-Materie-Wechselwirkungen

Ziel der vorliegenden Arbeit ist es, den Mechanismus der Doppelionisation durch Femtosekunden-Laserpulse besser zu verstehen. Als zu ionisierendes Atom wurde Argon ausgewählt, da es als Edelgas eine volle äußerste Schale besitzt und somit zuverlässig gegen ungewollte Ionisation und Elektroneneinfang geschützt ist. Helium wäre noch besser geeignet, da es mit nur zwei Elektronen das einfachste System aller Edelgase darstellt und experimentell die beste Auflösung erzielt werden kann, da es am leichtesten ist. Allerdings ist hier die Ionisierungsenergie deutlich höher, und es hat sich herausgestellt, dass der vorhandene Laser nach der Frequenzverdopplung zu schwach ist, um Doppelionisation in Helium hervorzurufen. Daher musste Argon verwendet werden, welches aufgrund des niedrigeren Doppelionisationspotentials einen größeren Wechselwirkungsquerschnitt hat.

2.3.1 Photoelektrischer Effekt

1905 erkannte Einstein, dass Licht auch als Teilchen (Photonen) verstanden werden kann. Außerdem trägt es nicht kontinuierlich Energie, sondern nur gequantelt in Vielfachen der Photonenenergie. Jedes Photon hat dabei die Energie $E_\nu = h\nu$. Nach der Absorption eines Photons wird ein Elektron aus dem Atom herausgelöst, wenn $h\nu \geq E_B$, wobei E_B die Bindungsenergie des Elektrons ist. Die relevanten Bindungsenergien in dieser Arbeit sind die von Ar bzw. Ar^+ und betragen $E_{B,Ar} = 15,76eV$ bzw. $E_{B,Ar^+} = 27,63eV$ [NIS12]. Quantenmechanisch beschrieben wird die Photoionisation mit dem Hamiltonoperator [Tri11]

$$\hat{H} = \frac{1}{2m}(\hat{p} - e\hat{A})^2 + V(\vec{R}) = \frac{1}{2m}(\hat{p}^2 - e\hat{p}\vec{A} - e\vec{A}\hat{p} + e^2\vec{A}^2) + V(\vec{R}), \quad (2.21)$$

wobei $\hat{p} = \frac{\hbar}{i}\nabla$ der quantenmechanische Impulsoperator und $V(\vec{R})$ die potentielle Energie des Elektrons im Potential des Atoms sind. Mit der Invarianz der Elektrodynamik gegenüber Eichtransformationen und der Coulomb-Eichung $\nabla\vec{A} = 0$ folgt

$$\hat{H} = \frac{1}{2m}(\hat{p}^2 - e\vec{A}\hat{p} + e^2\vec{A}^2) + V(\vec{R}). \quad (2.22)$$

Hierbei stehen die Terme innerhalb der Klammer der Reihe nach für den feldfreien Hamilton-Operator, die Absorption eines einzelnen Photons und die doppelte Wechselwirkung mit dem elektromagnetischen Feld.

Bei der Photoionisation der K-Schale muss das ausgelöste Kontinuumsselektron $l=1$ und $m=0$ haben und $l_f = l_i \pm 1$ erfüllt sein, wobei die Indizes i und f für den Zustand vor (initial) und nach (final) der Ionisation stehen. Für den partiellen Wirkungsquerschnitt der Photoionisation gilt

$$\frac{d\sigma}{d\Omega}(\Theta) = \frac{\sigma}{4\pi}(1 + \beta P_2(\cos\Theta)), \quad (2.23)$$

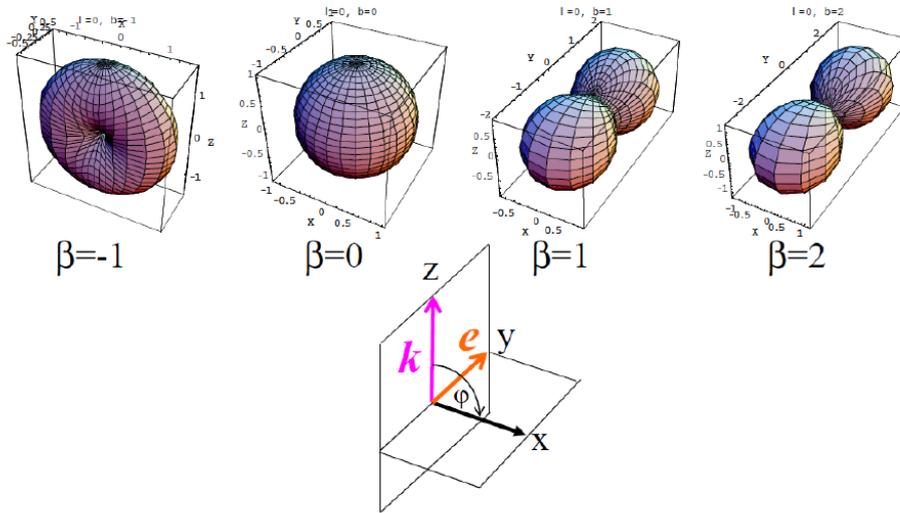


Abbildung 2.8: Differenzielle Wirkungsquerschnitte - Winkelverteilungen für lineares Licht [Che09]

wobei β der Anisotropieparameter und $P_2(\cos\Theta)$ das Legendre-Polynom zweiten Grades sind. In 2.8 und 2.9 sind die Wirkungsquerschnitte für zirkular und linear polarisiertes Licht für verschiedene Anisotropieparameter dargestellt.

2.3.2 Ponderomotorisches Potential

Die Wechselwirkung eines Elektrons mit einem hoch intensiven Laserfeld führt dazu, dass das Elektron Zitterbewegungen ausführt, da es als geladenes Teilchen durch den elektrischen Feldanteil des Lasers eine zeitlich sinusartige Kraft erfährt und dadurch beschleunigt wird. Dieses sogenannte ponderomotorische Potential sorgt bei der Ionisation durch einen genügend kurzen Puls (kürzer als 10 ps) für eine Erhöhung der Ionisationsenergie der gebundenen Zustände. Es genügt der Gleichung [Mec11]

$$U_p = \frac{I}{4\omega^2} \cdot \frac{q_e^2}{2m_e \epsilon_0 c}. \quad (2.24)$$

U_p entspricht hierbei einer Energie, die bei jedem Ionisationsvorgang im Laserfeld zusätzlich zur Ionisationsenergie aufgewandt werden muss.

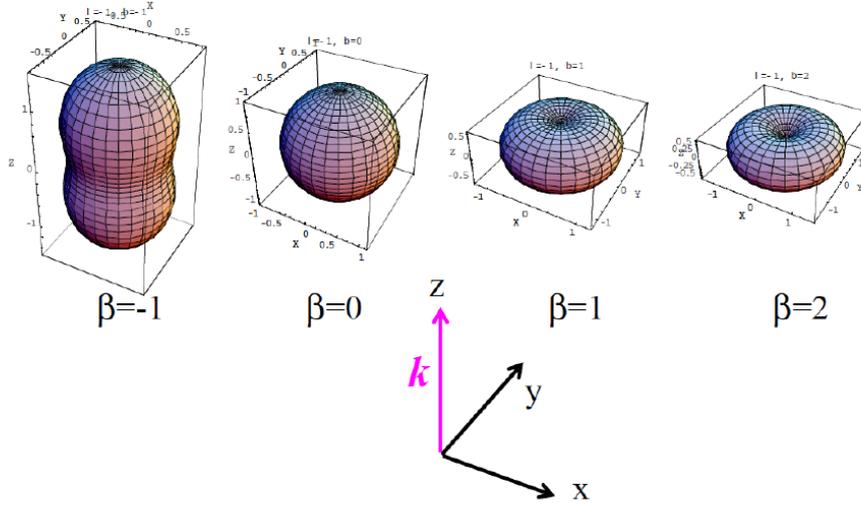


Abbildung 2.9: Differenzielle Wirkungsquerschnitte - Winkelverteilungen für zirkulares Licht [Che09]

2.3.3 Dynamik der Einfachionisation

Der Photonenimpuls ist mit $p = \frac{h}{\lambda}$ gegenüber Elektron- und rückgestoßenem Ionen-Impuls (ab jetzt "Recoil" genannt) vernachlässigbar klein. Ein Photon mit Ausbreitungsrichtung z führt also zu den Erhaltungsgleichungen

$$0 = k_{x,yrec} + k_{x,ye} \quad (2.25)$$

$$\frac{E_\gamma}{c} = k_{zrec} + k_{ze}, \quad (2.26)$$

wobei $\frac{E_\gamma}{c} = 0$ gesetzt werden kann. Die Energieerhaltung führt zu

$$k_{xrec}^2 + k_{yrec}^2 + k_{zrec}^2 = 2 \frac{m_e m_{rec}}{m_e + m_{rec}} (E_\gamma - E_{bind}^i + E_{bind}^f). \quad (2.27)$$

Offensichtlich beschreibt diese Gleichung eine Kugel im Impulsraum mit dem Radius $\sqrt{2 \frac{m_e m_{rec}}{m_e + m_{rec}} (E_\gamma - E_{bind}^i + E_{bind}^f)}$, wobei E_{bind}^i und E_{bind}^f jeweils die Bindungsenergien des Atoms bzw. Ions im Anfangs- und Endzustand darstellen. Recoil und Elektron werden in diesem Modell also entgegengesetzt mit einem Impulsbetrag emittiert, der dem Radius des Kreises entspricht.

Da aber die Masse des Recoils wesentlich größer ist als die des Elektrons, wird der Großteil der Energie in der Photoionisation in die Bewegung des Elektrons

gesteckt, nur ein kleiner Teil steckt in der Bewegung des Recoils.

Wo aber kommen die Impulse her? Da das Photon - wie oben beschrieben - nur einen zu vernachlässigenden Impuls trägt, müssen die Impulse schon im Anfangszustand vorhanden sein. Ein Photon kann ein Atom daher nur ionisieren, wenn Elektron und Atomkern den Impuls haben, den sie im Endzustand haben werden. Dadurch ist die Ionisationswahrscheinlichkeit auch an das Compton-Profil des Atoms gekoppelt [DWW⁺02].

2.3.4 Multiphotonenionisation und Tunnelionisation

Seit Entdeckung des Photoeffekts ist bekannt, dass Photonen Elektronen aus einem Atom auslösen können. Ein Photon, welches mindestens die Austrittsenergie des Elektrons besitzt, ist hierbei notwendig. Ein Photonenfeld, dessen Photonen jeweils geringere Energie als die Bindungsenergie besitzen, ist daher nicht in der Lage, ein Photoelektron auszulösen.

Diese Betrachtung gilt allerdings nur für niedrige Intensitäten. Bei höheren Intensitäten sind pro Raumvolumen mehr Photonen zu finden. Nahezu gleichzeitig sind jetzt Wechselwirkungen mit verschiedenen Photonen möglich. Ein Elektron im gebundenen Zustand kann dadurch innerhalb der Unschärferelation für kurze Zeiten Zwischenzustände einnehmen, die quantenmechanisch eigentlich nicht erlaubt sind (siehe 2.1.2), und dadurch mehrere Photonen absorbieren. So kann die benötigte Energie zur Ionisation gesammelt werden, obwohl ein einzelnes Photon nicht dafür ausreicht. Dieser Prozess wird Multiphotonenionisation genannt.

Bei noch höheren Intensitäten liefert das Wellenbild des Lichts eine adäquate Erklärung der Ionisation. Das elektrische Potential des Lasers verbiegt hierbei den Potentialtopf des Atoms derart, dass eine Potentialbarriere mit dahinter liegenden Kontinuumszuständen entsteht und dadurch Tunneln möglich ist. Daher wird dieser Prozess Tunnelionisation genannt.

Ob Tunnelionisation oder Multiphotonenionisation das angemessene Bild liefert, ist dem Wert des Keldysh-Parameters zu entnehmen [Her03]:

$$\gamma = \omega \frac{\sqrt{2m_e V_{IE}}}{eE}. \quad (2.28)$$

Für $\gamma \ll 1$ liegt Tunnelionisation vor, für $\gamma \gg 1$ Multiphotonenionisation. Bei großen E-Feldern des Lasers - also hohen Intensitäten - tunnelt das Elektron durch das verbogene Coulomb-Potential. Durch eine Erhöhung der Laserfrequenz kann allerdings wieder in das Multiphotonenbild gewechselt werden. V_{IE} ist das Potential, das bei der Ionisation überwunden werden muss. Liegt keine der beiden Bedingungen vor ($\gamma \approx 1$), so kommt es zu einer Koexistenz der beiden Modelle [Mec11].

2.3.5 Dynamik der Multiphotonenionisation

In Abb. 2.11 links ist eine Impulsverteilung für die Einphotonionisation von Helium gezeigt. Die beiden konzentrischen Kreise repräsentieren verschiedene

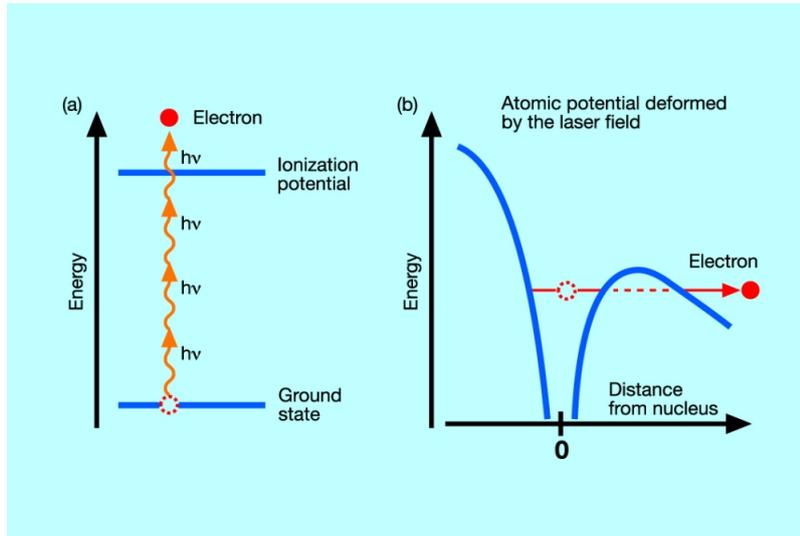


Abbildung 2.10: Schematische Darstellung der Modelle für Ionisation bei hohen Intensitäten. (a) Multiphotonenionisation und (b) Tunnelionisation [Des12]

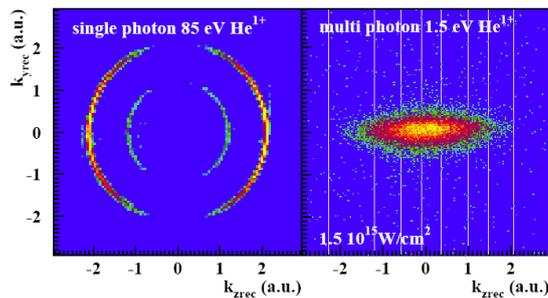


Abbildung 2.11: Ionen-Impulsverteilungen für Einphotonenionisation (links) und Multiphotonenionisation (rechts) [WWS⁺01]

Ionenimpulse nach der Ionisation. Diese ergeben sich, weil zum einen eine Ionisation jedes Mal durch nur ein Photon konstanter Energie verursacht wird und damit für Atome im Grundzustand bei jedem Ionisationsereignis die gleiche Kontinuumsenergie des Elektrons folgt. Zum anderen kann während der Ionisation das verbleibende Elektron im Helium angeregt werden. Durch die Energieerhaltung steht die benötigte Anregungsenergie nicht mehr als kinetische Energie zur Verfügung. Dadurch werden die Impulse des Elektrons bzw. des Ions - welches den Rückstoßimpuls des Elektrons aufnimmt - kleiner. Der kleine Kreis entspricht also angeregten Ionen. Auch der Dipolcharakter der Impulsverteilung ist zu sehen. Z ist die Polarisationsachse des Lichtes, wodurch Emission von Photonen senkrecht dazu verboten ist.

In der Abbildung rechts ist eine Impulsverteilung für Multiphotonenionisation gezeigt. Hier sind keine Kreise im Impulsraum zu sehen, jedoch eine Impulsverteilung um $p=0$ a. u. . Der in der Einphotonenionisation beobachtete Dipol-

charakter wird dadurch zerstört, dass viele Photonen prinzipiell zu beliebigen Gesamtdrehimpulsen koppeln können und daher keine Richtung mehr verboten ist.

Wie in 2.3.3 diskutiert, stellt sich auch bei der Multiphotonen- bzw. Tunnelionisation die Frage nach dem Ursprung der entstehenden Impulse. Im Tunnel-Bild kommt es zur Superposition des Coulomb-Potentials des Atoms mit dem des elektrischen Feldes des Lasers. Dadurch tunnelt zunächst ein Elektron ins Kontinuum, was dazu führt, dass sowohl Elektron als auch Atom mit Impuls $p = 0$ vorliegen [DWW⁺02]. Danach werden beide im Laserfeld in Form einer Zitterbewegung beschleunigt. Der aufgenommene Impuls ist dabei gegeben durch

$$p_z^{He^{1+}}(t_\infty) = \int_{t_0}^{t_\infty} E(t) \sin \omega t dt \quad (2.29)$$

mit dem Tunnelzeitpunkt t_0 , der Lasereinhüllenden $E(t)$ und der Laserfrequenz ω . Tunnelt ein Elektron am Feldmaximum, führt das zu Elektronen und Recoils mit $p = 0$; den maximalen Impuls erhalten die Teilchen beim Tunneln während des Nulldurchgangs des Feldes. Dieser maximale Impuls beträgt $p_{max} = \sqrt{4U_p}$ mit $U_p = \frac{I}{4\omega^2}$. Somit erhalten die beteiligten Fragmente ihre Impulse durch die Wechselwirkung mit dem Feld des Lasers.

2.3.6 Doppelsonisation

Bei hohen Intensitäten kommt es dazu, dass zwei Elektronen ausgelöst werden. Um diese Doppelsonisation zu verstehen, werden verschiedene mögliche Modelle diskutiert [DWW⁺02]. In den meisten Intensitätsbereichen erklärt die sogenannte sequentielle Ionisation auftretende Raten exzellent. Hierbei werden unabhängig voneinander zwei Elektronen durch Tunnelionisation ins Kontinuum gehoben (TS2 oder Two-Step-Two-Modell), es finden also zwei Einfachionisationen im gleichen Puls statt. Im Folgenden wird aber offensichtlich, dass dieses Modell bestimmte Intensitätsbereiche nicht korrekt beschreiben kann, da die beobachtete Doppelsonisationswahrscheinlichkeit mehrere Größenordnungen über der vorhergesagten liegt. Daher müssen sogenannte nicht-sequentielle Modelle entwickelt und überprüft werden, um die Raten in diesen Intensitätsbereichen korrekt erklären zu können.

Aus der Einphoton-Doppelsonisation ist beispielsweise bekannt, dass ein ionisiertes Elektron auf seinem Weg aus dem Atom ein zweites Elektron heraus stößt. Dieser Vorgang wird TS1 (Two-Step-One) genannt. Die absorbierte Photonenenergie muss allerdings ausreichend sein, um sowohl die Ionisationsenergie als auch die Anregungsenergie aufzubringen. Daher ist dieser Prozess bei Laseranwendungen und somit Multiphotonen-Doppelsonisation vernachlässigbar, da bevorzugt weniger Photonen absorbiert werden. Außerdem ist es möglich, dass ein plötzlich ausgelöstes Elektron dazu führt, dass die Wellenfunktion der übrig gebliebenen Elektronen schnell in einen Eigenzustand des neuen Potentials relaxieren muss. Da Teile dieser Wellenfunktion im Kontinuum liegen, besteht eine Wahrscheinlichkeit $P \neq 0$, dass ein Elektron dadurch zusätzlich frei

wird - man spricht vom sogenannten Shake-Off. Dieser Effekt ist bei Ionisation mit kurzen Laserpulsen sehr unwahrscheinlich, da hohe Photonenenergien benötigt werden und der Ionisationsvorgang schnell sein muss [LLD⁺05]. Ein nicht-sequentieller Prozess, der bei Laseranwendungen eine Rolle spielt, wird Recollision genannt und wird im Folgenden näher beschrieben.

Hinweis: In [WWS⁺00] wird der Unterschied zwischen sequentieller und nicht-sequentieller Doppelionisation detaillierter diskutiert.

2.4 Modelle

2.4.1 Das Recollision-Modell

Ein vom Laserpuls ausgelöstes Elektron befindet sich im Kontinuum unter dem Einfluss des Lichtfeldes selbst. Da jedoch die Geschwindigkeit des Elektrons zu jeder Zeit kleiner ist als die des Lichtfeldes, ändern sich die Stärke und Richtung des Feldes am Ort des Elektrons mit der Zeit. Nach einer gewissen Zeit dreht sich dessen Vorzeichen sogar um, was dazu führt, dass das Elektron zum Mutter-Atom zurückbeschleunigt wird. Unter Umständen stößt das Elektron dabei auf das ionisierte Atom und wechselwirkt mit dessen Elektronen. Ein solcher Elektron-Elektron-Stoß kann bei genügend hoher kinetischer Energie des stoßenden Elektrons dazu führen, dass sich danach beide Elektronen im Kontinuum befinden. So kann Doppelionisation auch in einem nicht-sequentuellen Kontext mit korrelierten Elektronen beschrieben werden. Eine ausführliche Diskussion dieser Kollisions-Ionisation ist in [CMD94] zu finden.

Die Folgen der Elektronen-Korrelation sollten in einer Messung sichtbar sein. Einfachionisation im Multiphotonen-Regime führt zu Elektronen, deren Energie durch $E_{kin} = nh\nu - E_B - U_p$ gegeben ist. Mit konstantem E_B unterscheiden sich Elektronen-Energien dieses Prozesses somit durch Vielfache von $h\nu$. Im Energiespektrum führt das zu sogenannten Above-Threshold-Ionization-Peaks (ATI-Peaks), die den Abstand einer Photonenenergie aufweisen. Im Impulsraum ergeben sich somit konzentrische Kreise, die die Quantisierung der übertragenen Energie offenbaren (siehe 2.12).

Bei der Doppelionisation durch Recollision ergibt sich für das erste ausgelöste Elektron im Impulsraum das gleiche Bild wie bei der Einfachionisation. Allerdings ist die Wechselwirkung mit dem gebundenen Elektron mit einem nicht gequantelten Energieübertrag verbunden, wodurch die ATI-Peaks auf den einzelnen Elektronen verschwinden. Die einzelnen Elektronen sollten daher keine diskreten Energiestrukturen aufweisen. Allerdings müsste unabhängig vom Prozess die Summe der beiden Elektronenenergien diskret sein. Das ist ersichtlich, da Energie nur aus der gequantelten Wechselwirkung mit dem Feld aufgenommen werden kann und die benötigte Energie zur Doppelionisation jeweils der Summe der Ionisationsenergien der einzelnen Elektronen entspricht und damit konstant ist. Es gilt also

$$E_{kin,e1} + E_{kin,e2} = nh\nu - E_{B,e1} - E_{B,e2} - 2 \cdot U_p, \quad (2.30)$$

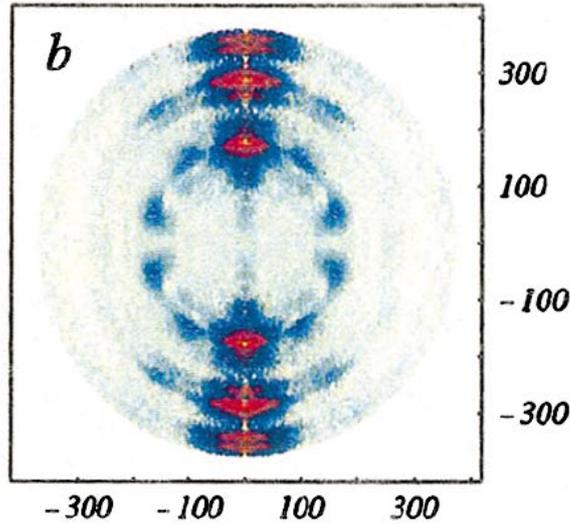


Abbildung 2.12: Impulsraum für Multiphotonen-Einfachionisation von Argon bei einer Intensität von $I=3,8 \cdot 10^{13} \frac{W}{cm^2}$. Experimentelle Daten. (Abszisse) Impulskomponente senkrecht zur Polarisationsrichtung des Lasers, (Ordinate) Impulskomponente parallel zur Polarisationsrichtung des Lasers [WWHC03]

was zu einer diskreten Struktur der Summenenergie der beiden Elektronen führt. Diese ist jedoch bisher nicht beobachtet worden.

Jene ATI-Peaks können nicht nur im Multiphotonenbild, sondern auch im Tunnelbild erklärt werden. Zu jedem Feldmaximum tunnelt ein Teil der Elektronen-Wellenfunktion in das Kontinuum. Diese Beiträge, die zeitlich jeweils eine Periode des Laserfeldes voneinander entfernt sind, interferieren miteinander und führen im Endzustand zu Peaks im Energiespektrum.

Ein Test für die Validität des Recollision-Modells ist die Verwendung von zirkularer Laser-Polarisation [DA95]. In 2.13 ist die Abhängigkeit der Einfach- und Doppel-Ionisationsrate von der Elliptizität dargestellt. Für große Elliptizitäten ϵ ist nicht-sequentielle Doppelionisation offensichtlich stärker unterdrückt als Einfachionisation. Das ist im Recollision-Modell dadurch erklärbar, dass zirkuläres Licht das emittierte Elektron nicht wieder zum ionisierten Atom zurücktreibt und es damit nicht zum Stoß kommen kann. Die anderen in 2.3.6 beschriebenen Modelle sind alle unabhängig von der Elliptizität des Lasers, weshalb eine unterdrückte Doppelionisation durch zirkuläres Licht ein starker Hinweis auf die Richtigkeit des Recollision-Modells ist.

2.4.2 RESI

Eine leichte Modifikation des Recollision-Modells stellt "RESI" (Recollision Excitation with Subsequent Ionization) dar [FMF⁺01] [SNMF10]. Der Unterschied besteht darin, dass das wiederkehrende Elektron kein zweites heraus schlägt, sondern nur zu einer elektronischen Anregung des Argons führt, also ein Elektron auf ein höheres Energieniveau gehoben wird. Dadurch ist die benötigte

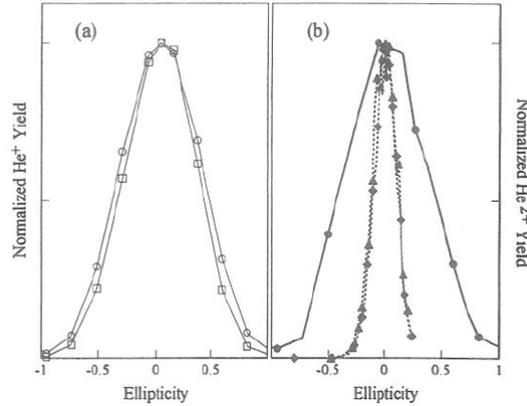


Abbildung 2.13: Abhängigkeit der (a) Einfachionisation und (b) Doppelionisation von der Elliptizität des Lichts bei 800 nm für verschiedene Intensitäten. Die gepunktete Linie in (b) gehört zu einer Intensität, bei der nicht-sequentielle Doppelionisation überwiegt. [DA95]

Ionisationsenergie für die zweite Ionisation deutlich geringer. In 2.14 ist zu erkennen, dass ein höher angeregtes Elektron einen weniger breiten Potentialwall durchdringen muss, um tunnelionisiert zu werden, wodurch die Tunnelwahrscheinlichkeit stark ansteigt. Daher kann das angeregte Ar^+ schließlich unabhängig durch Tunnelionisation doppelionisiert werden.

Ein vom Laserfeld zum Mutter-Atom zurück beschleunigtes Elektron kann maximal eine kinetische Energie von $2 U_p$ erhalten [Mec11]. Ist diese Energie gerade ausreichend, um ein zweites Elektron aus dem Atom zu ionisieren, oder gar zu niedrig, ist die Wahrscheinlichkeit einer elektronischen Anregung des Mutter-Atoms durch den Stoß höher, da in einem Elektron-Elektron-Stoß bevorzugt kleinere Energien übertragen werden. Für solche Intensitäten ist RESI von besonderer Bedeutung und wahrscheinlicher als die direkte Ionisation durch Recollision.

2.4.3 Raten der Doppelionisation - Das “Knie“

Wenn zwei Mal in einem Laserpuls unabhängig voneinander Tunnelionisation auftritt (SDI), sollte die Rate dieses Prozesses einer Faltung der Rate der Einfachionisation eines neutralen Atoms mit der Rate der Einfachionisation eines angeregten Atoms entsprechen. Man erwartet für SDI also prinzipiell den gleichen Verlauf der Ionisationsrate in Abhängigkeit von der Intensität wie bei der Einfachionisation.

Da Messungen allerdings Abb. 2.15 geliefert haben, kann das SDI Modell nicht für den gesamten Intensitätsbereich gelten. In Region (2), welche man das “Knie“ nennt, müssen andere Prozesse dominant sein. Als Modell steht die NSDI zur Erklärung von Bereich (2) bereit. Unterhalb von $10^{15} \frac{W}{cm^2}$ scheint also für Neon Recollision zu dominieren. Später in dieser Arbeit wird dieses Knie auch für Argon gezeigt werden. Für Helium gibt es Rechnungen in [PMDT00].

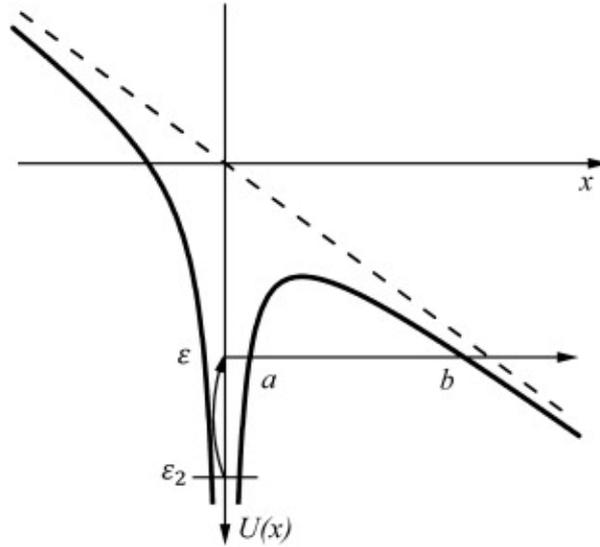


Abbildung 2.14: RESI-Prinzip [BT11]

2.4.4 Ionen-Impulse

Abb. 2.16 zeigt die Impulse der rückgestoßenen Ionen am Beispiel der Neon-Ionisation. Im oberen Teil ist die Einfachionisation zu sehen, bei der das Recoil-Ion prinzipiell mit kleinem bis gar keinem Impuls aus der Ionisation hervorgeht, da Tunnelionisation am wahrscheinlichsten nahe des Feldmaximums auftritt und nach Glg. (2.29) daher der vom Feld erhaltene Impuls etwa $p = 0$ ist. Die untere Verteilung zeigt den Ne^{2+} -Impuls in einem Intensitätsbereich, der mit dominierender SDI in Verbindung gebracht wird. Da hier zwei Mal der gleiche Prozess zeitlich hintereinander erfolgt und das Recoil für beide Prozesse im Mittel keinen Impuls erhält, ist auch die Abfolge dieser beiden Prozesse um $p = 0$ verteilt. Gute Übereinstimmung bringt eine Faltung der Einfachionisation mit sich selbst [DWW⁺02], allerdings unter Vernachlässigung der Änderung der Ionisationsenergie des Ne^+ im Vergleich zu neutralem Ne .

Im Intensitätsbereich, in dem vorwiegend NSDI vorliegt, unterscheidet sich das Bild. Die mittlere Darstellung zeigt eine solche Situation, in der das Recoil eine deutliche Doppel-Peak-Struktur aufweist (siehe auch [WWS⁺00]). Analog zu 2.3.5 kann der Recoilimpuls bestimmt werden durch [DWW⁺02]

$$p_z^{Atom^{2+}}(t_\infty) = \int_{t_1}^{t_{12}} E(t) \sin \omega t dt + 2 \int_{t_{12}}^{t_\infty} E(t) \sin \omega t dt, \quad (2.31)$$

wobei t_1 der Zeitpunkt der ersten und t_{12} der Zeitpunkt der zweiten Ionisation sind und die Wechselwirkung mit dem bei t_1 ausgelösten Elektron vernachlässigt wird. Der zweite Term ergibt für alle t_{12} , die einem Feldmaximum entsprechen, einen Impuls von etwa Null. Im Shake-Off und TS1 ist $t_1 \approx t_{12}$ und liegt genau im Feldmaximum. Dadurch entfällt der erste Term

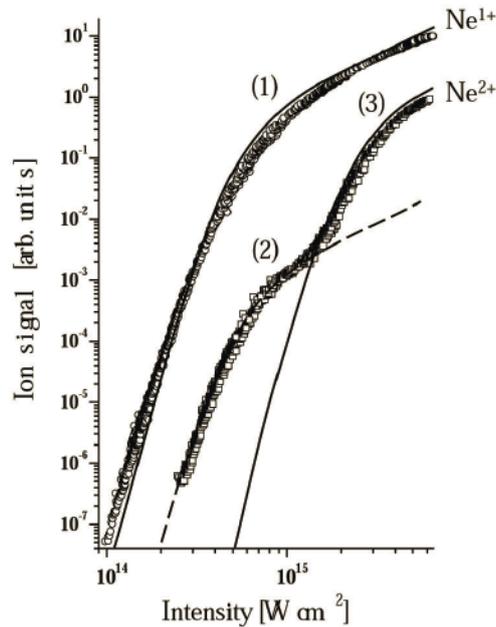


Abbildung 2.15: Einzel- (1) und Doppelionisationsraten (2) (3) von Neon für linear polarisiertes Licht [DWW⁺02]

näherungsweise und es folgt eine Impulsverteilung, die um $p = 0$ peakt. Im Modell TS2 sind t_1 und t_{12} prinzipiell zwar nicht identisch, jedoch erfolgen beide Ionisationen während eines Feldmaximums. Damit entspricht der erste Term einem Integral über ein Vielfaches einer halben Periode einer Sinusschwingung, wodurch es Null wird, ebenso wie der zweite Term. Auch hier ergibt sich eine Impulsverteilung um $p = 0$. Ein experimentelles Ergebnis, wie in Abb. 2.16 (2) gezeigt, schließt diese Modelle somit aus. Dadurch ist Recollision der verbleibende Prozess, der als einziger einen Zeitversatz zwischen erster und zweiter Ionisation aufweist, der nicht einer halben Periode des Feldes entspricht. Das führt in verschiedenen Rechnungen [DWW⁺02] zur beobachteten Doppel-Peak Struktur. Schlussendlich folgt der Recoil-Impuls im Recollision-Modell also aus der Beschleunigung des Ions im Laser-Feld addiert mit dem Impulsübertrag des kollidierenden ersten Elektrons. Der zuletzt genannte Beitrag ist in 2.31 allerdings nicht berücksichtigt.

In 2.17 ist das zugehörige Feynman-Diagramm für die NSDI durch Recollision dargestellt. Die Zeitachse zeigt nach oben, t_1 entspricht dem Zeitpunkt der ersten Ionisation, zu dem eines der beiden Elektronen des Heliums in das Kontinuum übergeht und im Feld beschleunigt wird, ohne mit dem Coulomb-Potential zu wechselwirken. Das andere Elektron wiederum bleibt im gebundenen Zustand ohne Wechselwirkung mit dem Feld. Zum Zeitpunkt t_2 kommt es zur einzigen Coulomb-Wechselwirkung zwischen den beiden Elektronen, die dazu führt, dass nun beide Elektronen im Kontinuum propagieren. Theoretische

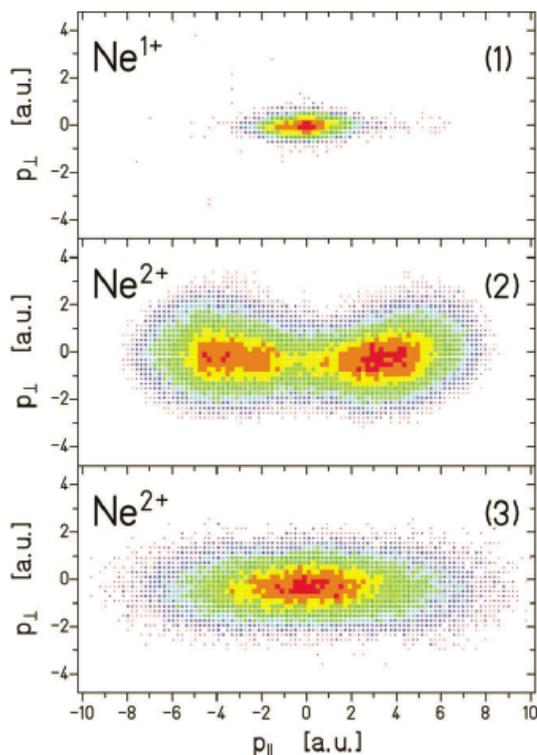


Abbildung 2.16: Recoil-Impulsverteilungen für Neon-Ionisation; (1) Einfachionisation und (2) Doppelionisation im NSDI Intensitäts-Bereich (3) Doppelionisation im SDI Intensitätsbereich; Horizontal: Impuls in Richtung der Polarisation des Lasers; Vertikal: Impuls senkrecht zur Polarisation des Lasers; (1), (2) und (3) repräsentieren die gleich benannten Intensitätsbereiche in Abb. 2.15 [DWW⁺02]

Rechnungen mit diesem Modell zeigen gute Übereinstimmung mit der Doppel-Peak-Struktur [DWW⁺02].

Eine große Abweichung ist die wesentlich kleinere Verteilung um $p = 0$ in den theoretischen Berechnungen, welche im Experiment nicht beobachtet wurde. Die zusätzliche Berücksichtigung von RESI (siehe 2.4.2) führt dann auch in der Theorie zur Füllung dieses Raumes zwischen den beiden Peaks und damit zur annähernden Übereinstimmung mit dem Experiment.

2.4.5 Elektronen im Recollision-Modell

Für Elektronen-Impulse gilt prinzipiell das Gleiche wie für die in 2.4.4 diskutierten Recoil-Impulse. Da die Elektronen bei Recollision nicht nahe des Feld-Maximums emittiert werden, peakt deren Impulsverteilung auch nicht um $p = 0$. Es kommt daher zu größeren Elektronenimpulsen in der Doppelionisation durch Recollision als in der Einfachionisation.

Die maximale Energie, die ein Elektron nach Tunnelionisation und Beschleuni-

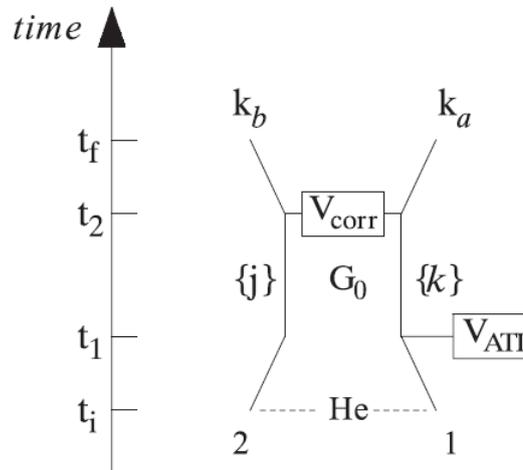


Abbildung 2.17: Feynman-Diagramm der nicht-sequentiellen Doppelionisation [BF00]

gung im Laser-Feld haben kann, ist $E = 2U_p$. Gemessene Energien, die darüber hinausgehen, können daher nur durch Rückstreuung des ersten Elektrons am Kern zu Stande kommen.

Für den verwandten Prozess RESI ergibt sich eine andere Argumentation: In 2.4.2 sind diese über die Energieerhaltung berechnet. Im Wellenbild kommt es zur Tunnelionisation des ersten Elektrons am Maximum des Feldes, was zu einem Stoß nahe des Nulldurchgangs führt. Das angeregte Atom wird dann aber erst beim nächsten Maximum des Feldes tunnelionisiert. Daher ergibt sich für das zweite Elektron $p=0$, das erste Elektron folgt Glg. 2.29, jedoch mit einem Anfangsimpuls.

2.4.6 Korrelation der Elektronen

In dieser Arbeit ist von besonderer Bedeutung, wie die beiden Elektronen aus der Doppelionisation korreliert sind. Abb. 2.18 zeigt für zwei verschiedene Intensitäten jeweils die Impulskomponenten der beiden Elektronen in Polarisationsrichtung. Für Intensitäten, bei denen Doppelionisation zumeist durch NSDI ausgelöst wird, scheinen die Elektronen bevorzugt parallel, also in die gleiche Richtung emittiert zu werden [WZS⁺04]. Bei höheren Intensitäten, die SDI dominiert sind, sind die Elektronen unabhängig voneinander wieder um $p = 0$ verteilt.

Beim RESI-Prozess wird das Tal zwischen den beiden Peaks bevorzugt gefüllt, da die Elektronen durch den Zeitversatz zwischen Recollision und Tunneln des zweiten Elektrons bei verschiedenen Phasen des Laserfeldes ins Kontinuum gesetzt werden und daher auch unterschiedliche Energien von diesem erhalten [FMF⁺01].

In Abb. 2.18 sind die sogenannten Jacobi-Koordinaten schon skizziert. Sie sind

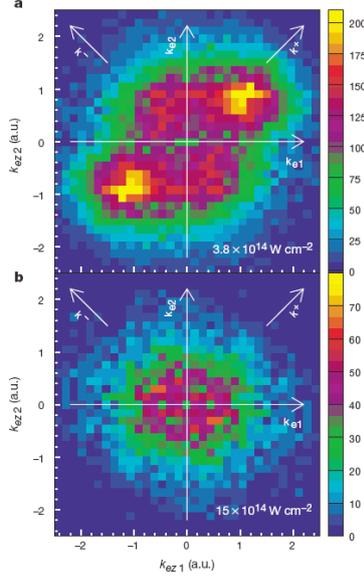


Abbildung 2.18: Elektronenimpulse nach der Doppelionisation von *Ar*. (oben) $I = 3.8 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$, (unten) $I = 15 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$. k_{ez1}, k_{ez2} sind die Impulse der Elektronen 1 und 2 in Polarisationsrichtung [WGW⁺00]

definiert als

$$k_z^+ = k_{ez1} + k_{ez2} \quad (2.32)$$

$$k_z^- = k_{ez1} - k_{ez2}, \quad (2.33)$$

wobei k^+ auch der Recoil-Impuls ist.

Damit entspricht der Koordinatenwechsel einer Projektion von Abb. 2.18 auf seine Diagonale. Er bietet eine Hilfe bei der einfachen Anschauung von Elektronenabstoßung und Beschleunigung im Feld. Stoßen sich die Elektronen ab, ändert das k_z^+ nicht, wohl aber k_z^- , da die Elektronen dabei in entgegengesetzte Richtung beschleunigt werden. Andersherum ändert eine Beschleunigung im Feld k_z^+ , jedoch nicht k_z^- , da das Feld beide Elektronen gleichermaßen und in die gleiche Richtung beschleunigt. In bisherigen Messungen wurde eine breite k_z^+ - und eine schmale k_z^- -Verteilung gemessen, was zu dem Schluss führt, dass die Beschleunigung im Laser-Feld gegenüber der Elektronen-Wechselwirkung klar überwiegt.

In [WHC⁺01] ist außerdem zu sehen, dass stark vom transversalen Impuls der Elektronen abhängt, wie sich das Korrelationsspektrum ändert. Bei transversalen Impulsen von $p_{trans} \geq 0,1$ a. u. findet man Verteilungen wie in Abb. 2.18 oben. Bei $p_{trans} \leq 0,1$ a. u. erkennt man jedoch, dass die Diagonale nicht bevorzugt besetzt wird und es ein langsames sowie ein schnelles Elektron gibt. Das

liegt an der Elektronenabstoßung, die besonders bei kleinen Impulsen verhindert, dass beide Elektronen die gleiche Richtung und gleiche Geschwindigkeit haben.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

In diesem Abschnitt wird der Aufbau des Experiments erläutert, mit dem die theoretischen Modelle getestet werden sollen. Probleme während der Durchführung werden angesprochen und Grenzen aufgezeigt.

3.1 Überblick über das Experiment

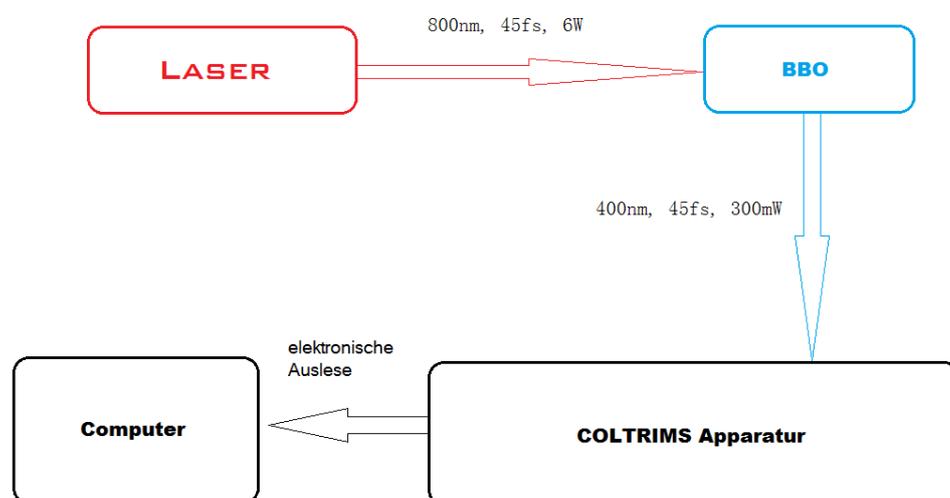


Abbildung 3.1: Grundlegender Aufbau des Experiments. Nähere Erläuterung: siehe Text.

Den grundlegenden Aufbau des Experiments zur vorliegenden Arbeit zeigt Abb. 3.1. Ein gepulster Laser bei einer zentralen Wellenlänge von 800 nm wird zunächst in einem BBO-Kristall (Beta-Bariumborat) frequenzverdoppelt und

dann auf das Argon-Gastarget innerhalb einer COLTRIMS-Apparatur fokussiert. COLTRIMS steht für “Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy“. Mit diesem Aufbau werden nach der Ionisation von Atomen eines kalten, atomaren Jets durch einen senkrecht dazu stehenden Laser die dreidimensionalen Impulsvektoren aller an einer Reaktion beteiligten Teilchen rekonstruiert. Jeweils senkrecht zu Laser und Jet sind gegenüberliegend zwei Detektoren angebracht, von denen einer zur Messung der positiv geladenen Ionen und der andere zur Messung der Elektronen verwendet wird (siehe Abb. 3.2). Die in der Reaktionszone, also dem Überlapp zwischen Laser und Gasjet entstehenden geladenen Teilchen werden durch ein elektrisches Feld auf die Detektoren beschleunigt. Diese bestimmen den Auftreffort und -zeitpunkt der Teilchen und geben die Signale an einen Computer weiter, der die Daten speichert. Im Folgenden werden die einzelnen Komponenten aus Abb. 3.1 separat erläutert.

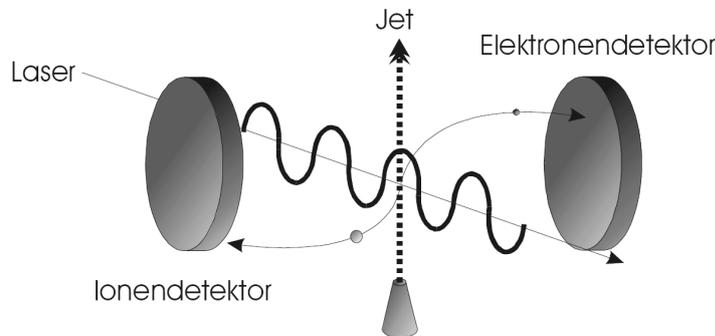


Abbildung 3.2: Schematische COLTRIMS-Darstellung. Ein zum atomaren Gasjet senkrecht stehender Laser führt zur Ionisation der Atome, welche mit den entstehenden Elektronen durch ein elektrisches Feld auf senkrecht zu Jet und Laser positionierte Detektoren beschleunigt werden. [Smo04]

3.2 Laser

Der Laser liefert im Experiment die zur Doppelionisation benötigte elektrische Feldstärke bzw. Intensität durch Femtosekunden-Pulse. Verwendet wurde ein Wyvern-500TM-Laser der Firma Kapteyn-Murnane Laboratories Inc. mit bis zu 100 μJ Pulsenergie bei 45 fs Pulsdauer und einer Repetitionsrate von 100 kHz bei 800 nm zentraler Wellenlänge. Zunächst werden in einem Oszillator kurze Laserpulse erzeugt, die anschließend in einem Verstärker zusätzliche Energie gewinnen.

3.2.1 Oszillator

Der Oszillator dient als Quelle der Laserpulse. Es wurde eine self-modelocking-cavity verwendet, wie Abb. 3.3 zeigt. Ein Ti:Sa-Kristall bildet das optische Medium, in dem es zur stimulierten Emission kommt, und wird von einem

CW-Pumplaser im grünen Frequenzbereich gepumpt. Durch das in 2.2.6 beschriebene Kerr-Modelocking stellt sich somit ein gepulster Betrieb von selbst ein. Die Pulse sind allerdings noch schwach (200 mW Laserleistung bei 80 Mhz Repetitions-Rate und 15 fs Pulsdauer) und müssen daraufhin verstärkt werden.

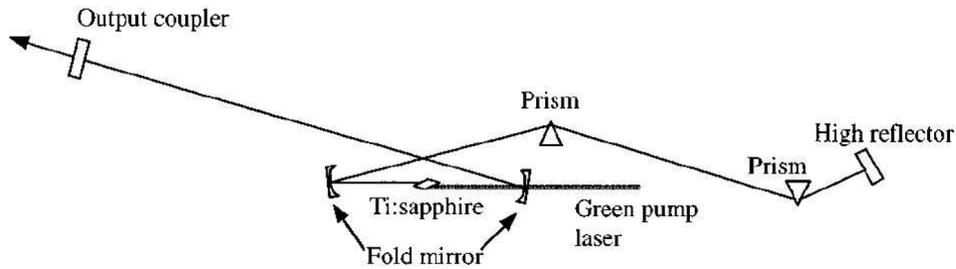


Abbildung 3.3: Anordnung der optischen Bauteile in einem Laser-Oszillator [Smo04]

3.2.2 Regenerativer Verstärker

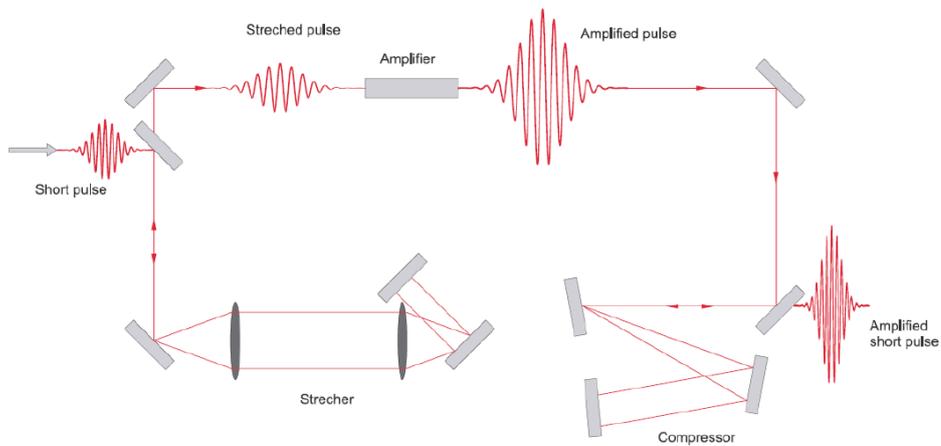


Abbildung 3.4: Funktionsweise der Verstärkung des Laserpulses [Voi09]

Um eine Verstärkung der Pulse des Oszillators zu erreichen, wird ein sogenannter Regenerativer Verstärker nachgeschaltet. Hierbei handelt es sich prinzipiell um den gleichen Aufbau, wie in 3.2.1. Allerdings muss darauf Rücksicht genommen werden, dass die auftretenden hohen Intensitäten, wie sie bei der Doppelonisation benötigt werden, den Ti:Sa-Kristall beschädigen können. Um das zu vermeiden, werden die Pulse in einem sogenannten Stretcher zeitlich gestreckt, um die Intensität zu verringern. Nach der Verstärkung werden diese wieder in einem Kompressor zeitlich komprimiert. Kompressor und Stretcher

funktionieren nach invertiertem Prinzip, Abb. 3.5 zeigt ersteren. Die Pulse werden mittels Gitter aufgespalten und durchlaufen danach wellenlängenabhängig verschiedene Strecken. Dafür benötigen sie unterschiedliche Zeiten, was dazu führt, dass rote Frequenzkomponenten relativ zur Pulsmitte einen positiven Zeitversatz erhalten, blaue Komponenten einen negativen. Im Stretcher ist das Gegenteil der Fall, wodurch sich die Wirkung der beiden Bauteile aufhebt und der Puls nach dem Kompressor etwa wieder die gleiche Pulsdauer aufweist wie ursprünglich.

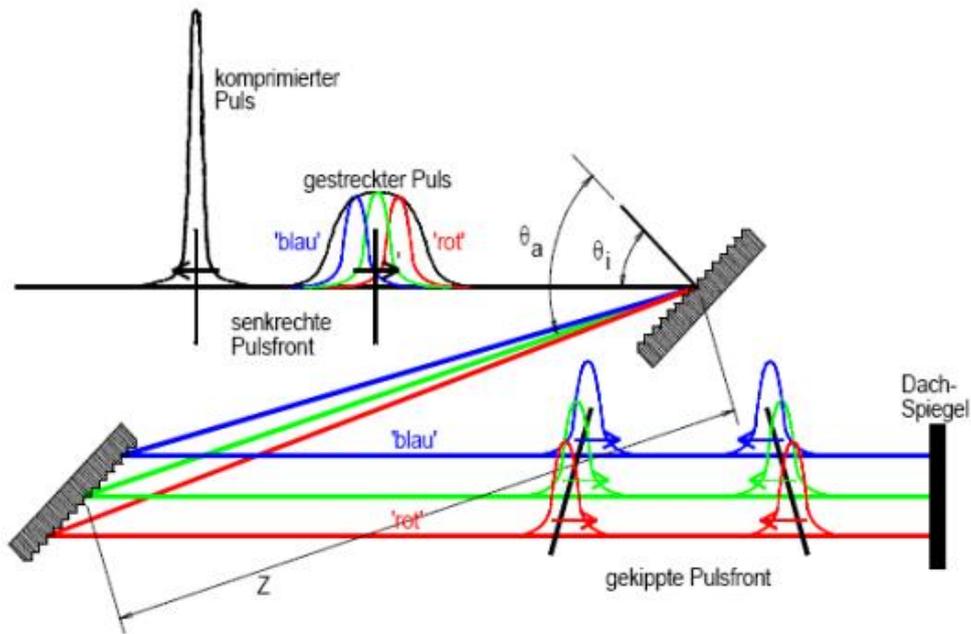


Abbildung 3.5: Funktionsweise eines Kompressors in einem Verstärkersystem [Hen10]

3.2.3 Frequenzverdopplung mittels BBO

In diesem Experiment wurde die Frequenzverdopplung mittels BBO ausgenutzt, um eine höhere Energie der Photonen zu erhalten. Dadurch sind die ATI-Peaks (siehe 2.4.1) energetisch weiter voneinander entfernt, was es experimentell leichter macht, diese aufzulösen. Ist die Intensität der Pulse hoch genug, können nichtlineare Prozesse, wie in 2.2.3 gezeigt, auftreten.

In [Hen10] ist genau beschrieben, wie ein BBO-Kristall nichtlineare Effekte ermöglicht. Dabei müssen einkommende und ausgehende Welle im Medium die gleiche Geschwindigkeit haben, damit die Polarisationswellen, die von den verschiedenen Atomen im Kristallgitter ausgehen, in Phase sind und sich konstruktiv überlagern. Genannt wird diese Bedingung Phase-Matching, also Phasenanpassung. Diese kann nur in doppelbrechenden Medien erfüllt sein, die verschiedene Brechungsindizes für zwei orthogonale Achsen anbieten. So können zwei Wellen mit unterschiedlicher Frequenz innerhalb eines Mediums die gleiche Ge-

schwindigkeit haben, was in nicht doppelbrechenden Medien durch $n = n(\omega)$ in $v = \frac{c_0}{n}$ nicht realisierbar ist.

Bei der Frequenzverdopplung müssen Intensitätsverluste in Kauf genommen werden, da die Konversionseffizienz von Basiswellenlänge zur zweiten Harmonischen kleiner eins ist. Allgemein gilt $P_{2\omega} = \eta_{SHG} P_{\omega}^2$ [Jen11], wobei η_{SHG} die Konversionseffizienz angibt. Mit 6 W Leistung am Ausgang des 800 nm-Lasers konnten in diesem Experiment 400 nm Pulse mit einer Leistung von 0,345 W erzeugt werden.

3.2.4 Laser-Pulse in der Kammer

Um eine ausreichend hohe Intensität zur Ionisation der Ar-Atome zu erhalten, wird der Laserstrahl mit einem $f=75$ mm Spiegel fokussiert. Mit einem Strahldurchmesser von etwa 10 mm ergibt sich unter Annahme eines perfekt Gauss'schen Strahls rechnerisch ein Fokalradius von $1,91 \mu\text{m}$, eine Rayleighlänge von $28,73 \mu\text{m}$ und damit ein Fokalvolumen von $660,46 \mu\text{m}^3$. Dies ist wesentlich kleiner als der Jetdurchmesser und stellt damit die begrenzende Größe für die Lokalisation der Reaktionszone dar. Bei einer Laserleistung von $0,345 \text{ W}$ vor Eintritt in die Kammer kann die maximale Intensität zu etwa $I = 1,33 \cdot 10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ bestimmt werden. Der Grund für die ungenaue Intensität und detailliertere Abschätzungen finden sich im Ergebnisse-Kapitel. Allerdings ist die tatsächliche Intensität in der Reaktionszone etwas kleiner, da Reflexion bzw. Streuung am Eintrittsfenster und unvorhersehbare Effekte innerhalb der Kammer zu Verlusten führen. Vor allem die Tatsache, dass der Strahl nicht perfekt gaussförmig ist, sorgt für Abweichungen von der theoretisch berechneten Intensität.

Zusätzlich wurde die Halterung des Spiegels mit einem elektrischen Kontakt versehen. Damit konnte der Spiegel auf das gleiche Potential gelegt werden, welches im Spektrometer am Targetort (nächster Abschnitt) herrscht, um Feldverzerrungen zu vermeiden.

3.3 COLTRIMS

3.3.1 Vakuumsystem und Gas-Jet

Für das Experiment war es eminent wichtig, die Temperatur der Argon-Atome so präzise wie möglich zu präparieren. Da die COLTRIMS-Apparatur direkt die Impulse misst und diese erwartungsgemäß verhältnismäßig klein sind, müssen die Argon-Atome eine möglichst schmale Anfangsimpulsverteilung haben. Das wird durch einen sogenannten Überschall-Gasjet realisiert. Außerdem sollen die erzeugten Teilchen eine genügend große freie Weglänge besitzen, damit sie die Detektoren erreichen und nicht schon vorher mit dem Restgas wechselwirken. Deshalb muss in der Kammer ein Ultrahoch-Vakuum herrschen.

Die verwendete Kammer ist in mehrere Pumpstufen unterteilt. Die erste Stufe enthält eine $5 \mu\text{m}$ -Düse, aus welcher das Argon-Gas expandiert. Diese erste Expansionsstufe wird von einer Turbomolekularpumpe (kurz: Turbopumpe) mit sehr hoher Pumpleistung (1380 l/s) gepumpt. Anschließend folgt die durch einen Skimmer (Durchmesser 0,3 mm) getrennte zweite Expansionsstufe, die von ei-

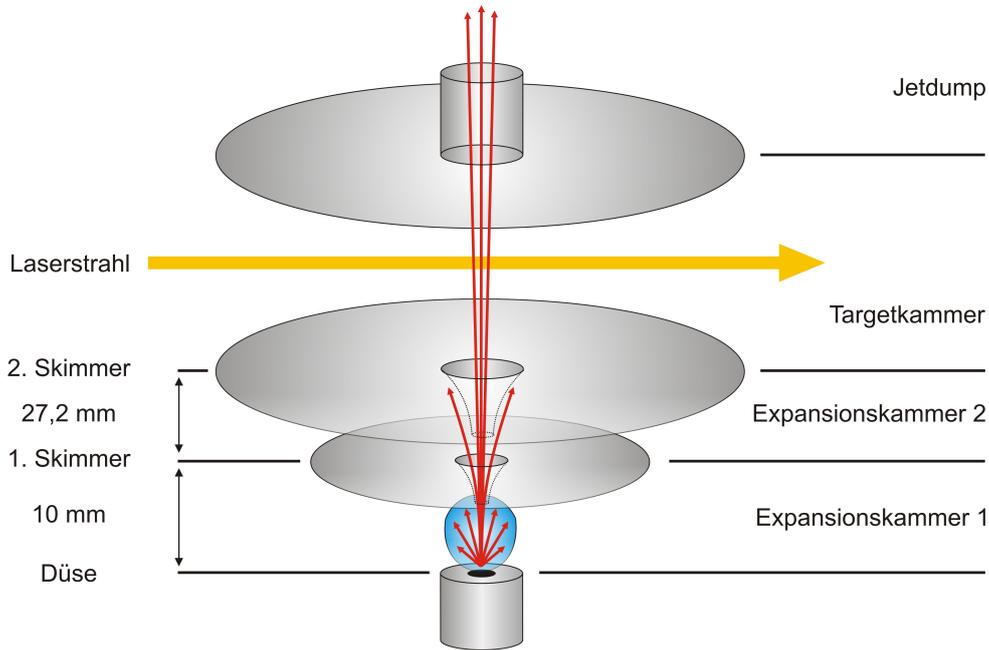


Abbildung 3.6: Das Jet-System, von unten nach oben: Düse, erste Expansionsstufe, erster Skimmer, zweite Expansionsstufe, zweiter Skimmer, Targetkammer, Jetdump (zweistufig). Der Laserstrahl überlappt in der Targetkammer und steht orthogonal zur Jetrichtung. [Wai11]

ner zweiten kleineren Turbopumpe evakuiert wird. Die folgende Targetkammer ist mit zwei Turbopumpen (je $500 \frac{l}{s}$) ausgestattet und durch einen weiteren Skimmer (Durchmesser $0,3 \text{ mm}$; Abstand zum ersten Skimmer $27,2 \text{ mm}$) mit der zweiten Expansionsstufe verbunden. Schlussendlich propagiert der Jet also durch beide Skimmer in die Targetkammer, durchfliegt diese und wird im Anschluss im sogenannten Jetdump abgepumpt. Dieser ist analog zum Expansionsbereich zweistufig aufgebaut. Der gesamte Aufbau ist in Abb. 3.6 dargestellt. Das Argon mit einem Druck von mehreren bar vor der Düse expandiert adiabatisch in die erste Expansionsstufe. Dabei wird die gesamte freie Enthalpie in gerichtete Bewegung umgewandelt [KG51]. Außerdem ist die Geschwindigkeitsverteilung in Jet-Richtung so scharf, dass ein genau präparierter Anfangsimpulszustand vorliegt. Senkrecht zur Jet-Richtung ist ein Impuls von nahezu 0 gewährleistet.

Abb. 3.7 zeigt die Expansion nach der Düse. Der erste Skimmer ($d \approx 300 \mu\text{m}$) schneidet aus dem Expansionskegel einen Überschallgasjet aus der Zone of Silence heraus, um die Jet-Qualität (also die interne Temperatur) zu erhöhen (passive/geometrische Kühlung). Anschließend sorgt der zweite Skimmer für einen noch schmaleren Gasjet und etwas mehr Kühlung. Mit Skimmern eines oben angegebenen Durchmessers und Abstandes wird - durch Strahlensätze leicht nachvollziehbar - in der Reaktionszone ein Jet-Durchmesser von etwa $d \approx 1 \text{ mm}$ erreicht. Die Jet-Geschwindigkeit lässt sich für Argon mit [Sch06]

$$v_{jet} = \sqrt{\frac{5kT_D}{m}} \quad (3.1)$$

zu $v_{jet} = 556 \frac{m}{s}$ bestimmen, wobei $T_D = 300K$ die Düsentemperatur, $m=40$ amu die Masse von Argon und k die Boltzmann-Konstante sind. Damit ergibt sich ein Impuls von $p_{jet} = 18,66$ a. u. für die Argon-Atome in Jetrichtung. Die beiden Pumpstufen nach der Düse erfüllen außerdem den Zweck, dass der Druckanstieg in der Targetkammer so niedrig wie möglich gehalten wird. Der Jetdump ist ebenfalls zweistufig aufgebaut, um zu vermeiden, dass Gas aus dem Dump zurück in die Targetkammer gelangt.

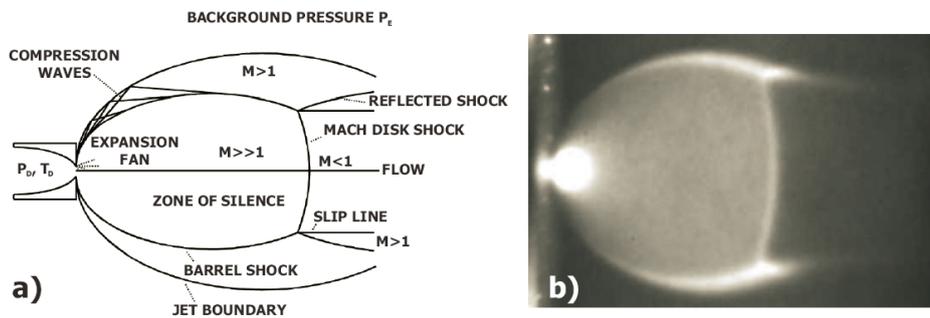


Abbildung 3.7: Überschall Gasjet, (a) Schematische Zeichnung und (b) Fotografie [Sch06]

Durch den niedrigen Druck in der Targetkammer ist eine niedrige Restgas-Ionisationsrate gewährleistet, wodurch ein gutes Signal-zu-Rauschen-Verhältnis erreicht wird.

In den Abbildungen 3.8, 3.9 und 3.10 ist ein sogenannter Jettest dargestellt. Für verschiedene Düsenvordrücke sind die Drücke in den erwähnten Vakuumbereichen aufgetragen. Oberhalb eines Grenzdruckes wird bei diesen Graphen ein Plateau erwartet, welches allerdings nicht zu sehen ist. Das liegt an den Anforderungen an das Experiment: Um eine ausreichende Doppelionisations-Rate zu erreichen, sind hohe Laserintensitäten notwendig. Das führt jedoch gleichzeitig zu einer hohen Rate der Einfachionisation. Um eine optimale Detektionsrate von 10 kHz auf dem Elektronendetektor zu gewährleisten, muss ein dünner Jet verwendet werden. Das erfordert einen niedrigen Düsenvordruck von wenigen bar, weshalb der Jettest lediglich bis 6 bar durchgeführt wurde. Typische Plateaus liegen bei etwa 30 bar.

Labor-Koordinatensystem

An dieser Stelle ist es hilfreich, das Koordinatensystem des Laborsystems zu definieren, dessen Ursprung die Reaktionszone ist: Die x-Achse zeigt in Richtung der Jet-Ausbreitungsrichtung, die y-Achse in Richtung der Laserpropagation und die z-Achse entspricht der Verbindung zwischen den Mittelpunkten der beiden Detektoren (Detektorachse).

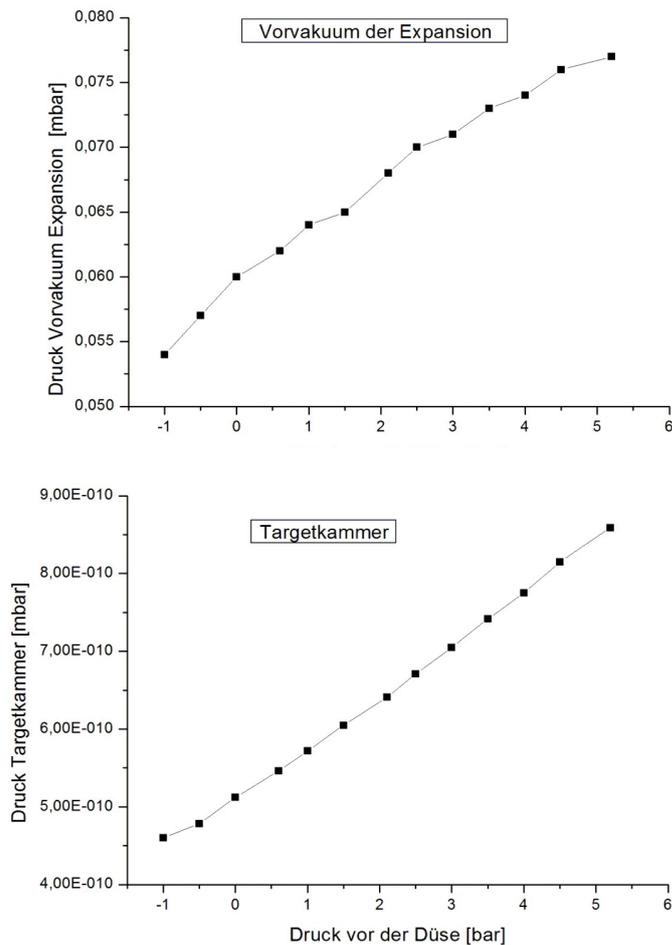


Abbildung 3.8: Jetttest, durchgeführt vor dem Experiment. Drücke in Abhängigkeit vom Düsenvordruck. Oben: Vorvakuum Expansion, unten: Targetkammer.

3.3.2 Spektrometer

Der Überlapp von Laser und Jet liegt innerhalb eines Spektrometers, welches die entstehenden geladenen Teilchen auf die Detektoren projiziert. Es sollen alle Teilchen detektiert werden, insbesondere auch die, die senkrecht zur Detektorachse emittiert werden. Um das zu realisieren, werden ein elektrisches und ein magnetisches Feld kombiniert. Das magnetische Feld wird durch zwei Helmholtz-Spulen außerhalb der COLTRIMS-Kammer erzeugt und zeigt in Richtung der Detektorachse. Auch das elektrische Feld zeigt in diese Richtung. Es wird durch eine elektrische Spannung zwischen beiden Seiten des Spektrometers implementiert und durch Widerstände zwischen Kupferplatten (siehe Abb. 3.11 links) gleichmäßig innerhalb des Spektrometers aufgeteilt, was zu parallelen Äquipotentiallinien führt.

Schematisch dargestellt ist die Anordnung der Spektrometerplatten in Abb. 3.12. In der Nähe der Reaktionszone (etwa auf Höhe der 8. Platte von links) wur-

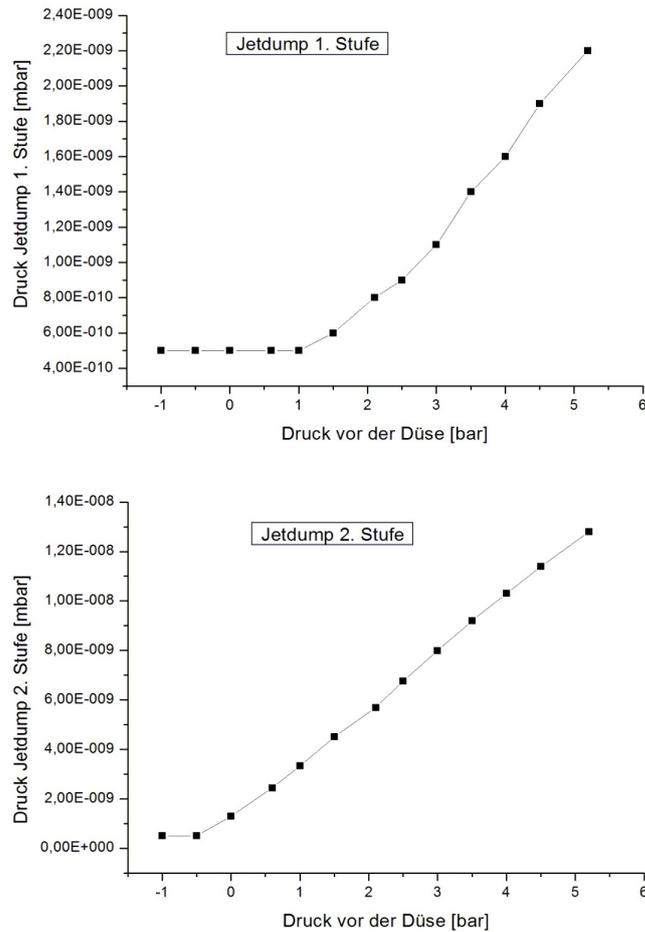


Abbildung 3.9: Jetttest, durchgeführt vor dem Experiment. Drücke in Abhängigkeit vom Düsenvordruck. Oben: Jetdump 1. Stufe, unten: Jetdump 2. Stufe.

den 14 Kupferplatten mit großem Innendurchmesser ($d=80$ mm) verwendet, um senkrecht zur Detektorachse emittierte Elektronen nicht abzufangen. Der Elektronendetektor ist auf der linken Seite lokalisiert, weshalb die Elektronen durch das angelegte elektrische Feld nach der Reaktion in diese Richtung beschleunigt und detektiert werden. Ionen erhalten kleinere Anfangsgeschwindigkeiten, daher können auf der Ionenseite 6 Kupferplatten mit kleinerem Durchmesser ($d=40$ mm) verwendet werden, die ein präziser präpariertes Feld ermöglichen. Die quadratischen Platten mit einer Kantenlänge von 10,4 cm sind durch 0,5 cm dicke Keramiken voneinander getrennt. Insgesamt folgt damit eine Beschleunigungsstrecke von 4,4 cm für die Elektronen und 7,7 cm für die Ionen. Mit einer Spannung von 65 V über das Spektrometer ergibt sich ein E-Feld von etwa $E=3,85 \frac{V}{cm}$. Um zu verhindern, dass Felder von MCP (siehe Kapitel 3.3.4) oder Anode des nah gelegenen Elektronendetektors in den Bereich der Reaktionszone hinein greifen, ist die vom Elektronendetektor aus gesehen dritte Platte durch eine Feldabschirmplatte ersetzt, die den gesamten Durchmesser der Kammer ausfüllt.

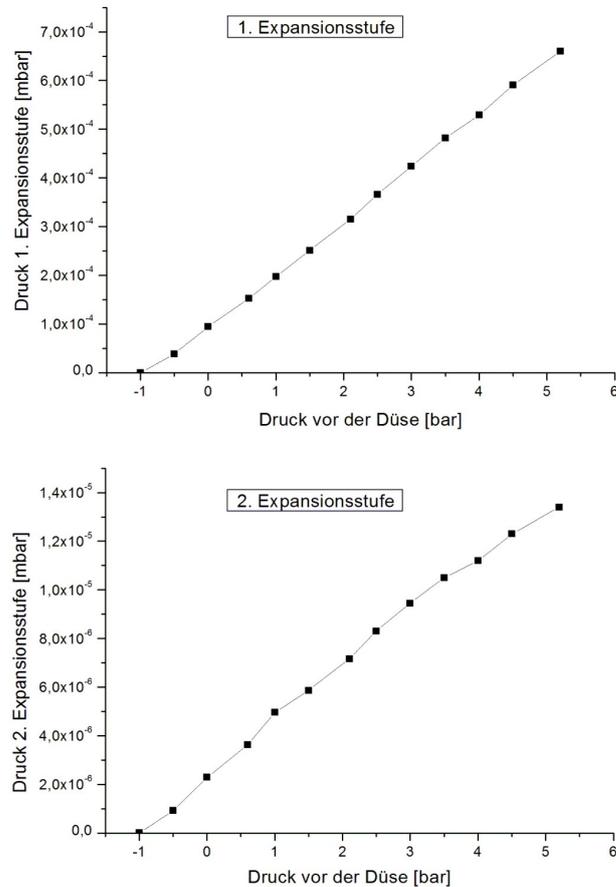


Abbildung 3.10: Jettest, durchgeführt vor dem Experiment. Drücke in Abhängigkeit vom Düsenvordruck. Oben: erste Expansionsstufe Expansion, unten: zweite Expansionsstufe.

Da sowohl die Länge des Laser-Fokus als auch die Dicke des Jets keine Delta-Funktion darstellen, sondern eine Ausdehnung besitzen, ist der Reaktionsort nicht genau bestimmt. Eine Ausdehnung in Flugzeitrichtung führt zu einer startortabhängigen Flugzeit, eine Ausdehnung senkrecht dazu zu einem startortabhängigen Detektionsort. Diese Abhängigkeiten von der Targetausdehnung sollen reduziert werden.

Dies erreicht man in Flugzeitrichtung durch die Einbringung einer feldfreien Driftstrecke (Abb. 3.12 rechts). Ionen, die mit einem größeren Abstand vom Detektor starten, haben beim Austritt aus dem elektrischen Feld eine höhere Geschwindigkeit als solche, die näher starten. Nach einer gewissen Driftstrecke holen diese schnelleren Ionen die langsameren ein (Abb. 3.13). An dieser Stelle muss der Ionendetektor lokalisiert werden. Senkrecht zur Flugzeitrichtung kann die Auswirkung der Targetausdehnung durch eine elektrostatische Linse verringert werden.

Abgesehen von einer Ausnahme sind $100 \text{ k}\Omega$ -Widerstände zwischen den ins-

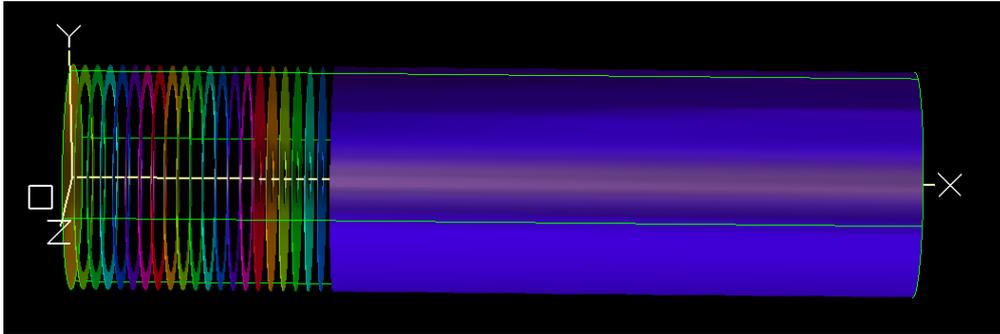


Abbildung 3.11: 3D-Veranschaulichung des Spektrometers. Links: Kupferplatten, rechts: Driftröhre

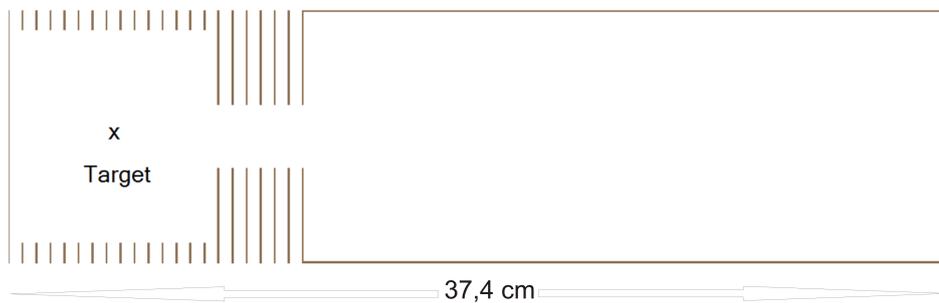


Abbildung 3.12: Anordnung der Spektrometerplatten im Querschnitt. Von links: 14 Kupferplatten mit großem Innendurchmesser (80 mm), anschließend 6 Kupferplatten mit kleinem Innendurchmesser (40 mm) und eine Driftröhre. Der Maßstab in der Zeichnung ist lediglich zur Vorstellung der Größenverhältnisse sinnvoll. Die Driftröhre ist real mit insgesamt 43 cm länger als gezeigt.

gesamt 21 Platten angebracht. Zwischen der 16. und 17. Platte ist ein 960 k Ω -Widerstand montiert, um die elektrostatische Linse zu erzeugen. Da zwischen diesen zwei Platten mehr Spannung abfällt, verbiegen sich die elektrischen Feldlinien. Diese Verbiegung hat zur Folge, dass Ionen abhängig von ihrer Trajektorie verschieden abgelenkt werden. Letztendlich ergibt sich ein Effekt, der dem einer optischen Linse für Licht entspricht. Dies ist in Abb. 3.14 mit vier Ionen-Trajektorien verschiedener Anfangsimpulse gezeigt. In der Vergrößerung (Abb. 3.15) ist der Anfangsimpuls detaillierter zu erkennen. Zwei Ionen werden senkrecht zur Detektorachse emittiert, zwei weitere in einem Winkel von 45 Grad in Richtung Elektronendetektor.

Das angelegte B-Feld erfüllt den Zweck, senkrecht zur Detektorachse emittierte Elektronen einzufangen und auf Kreisbahnen zu lenken (Abb. 3.16) Es hat aufgrund der Masse und Flugzeit der Ionen einen zu vernachlässigenden Einfluss auf deren Trajektorien. Mit der Lorentzkraft

$$F_l = q \cdot (\vec{v} \times \vec{B}) \quad (3.2)$$

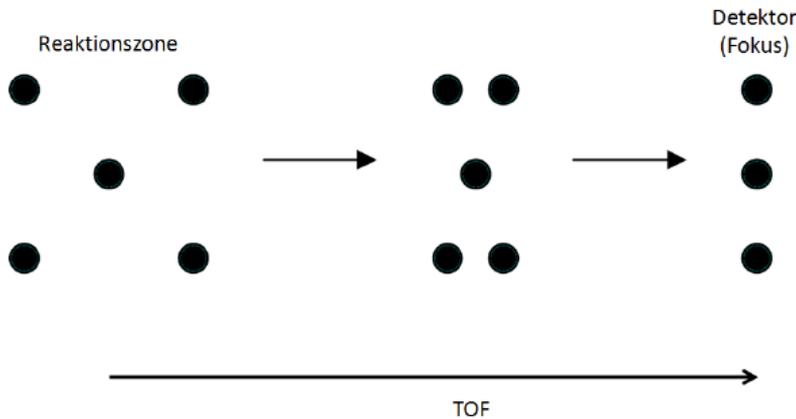


Abbildung 3.13: Flugzeitfokussierung der elektrostatischen Linse. Im Ursprung der Flugzeitachse (horizontal) starten die erzeugten geladenen Teilchen an verschiedenen Punkten innerhalb der Reaktionszone und erreichen zur gleichen Zeit den Detektor. [Tri11]



Abbildung 3.14: Spektrometer mit elektrischen Feldlinien inklusive vier Ionen-Trajektorien mit verschiedenem Anfangsimpuls. Zwischen der 16. und 17. Platte ist die elektrostatische Linse zu erkennen.

ist die auf die Teilchen wirkende Beschleunigung also

$$a = \frac{q \cdot (\vec{v} \times \vec{B})}{m}. \quad (3.3)$$

Bei einem angelegten B-Feld von $B=7,07$ Gauss und einer Masse von $m=40$ amu ist die Beschleunigung der Ionen innerhalb einer Flugzeit von bis zu $43 \mu\text{s}$ unbedeutend klein.

Das Gegenteil ist für Elektronen der Fall. Mit einer etwa 80 000 mal kleineren Masse, aber nur etwa 800 mal kürzeren Flugzeit ergeben sich hier Gyrationen, wie in Abb. 3.16 gezeigt. Diese Bewegung ist aus einer Gyrationenbewegung aufgrund des B-Feldes und einer beschleunigten Bewegung aufgrund des E-Feldes zusammengesetzt und lässt sich auch in diese separieren. Somit sind die Auftreffkoordinaten x, y auf dem Detektor nicht mehr unabhängig von den Impulskomponenten p_x, p_y , sondern hängen jeweils von beiden Koordinaten ab. Das wird später in der Datenanalyse noch wichtig werden.

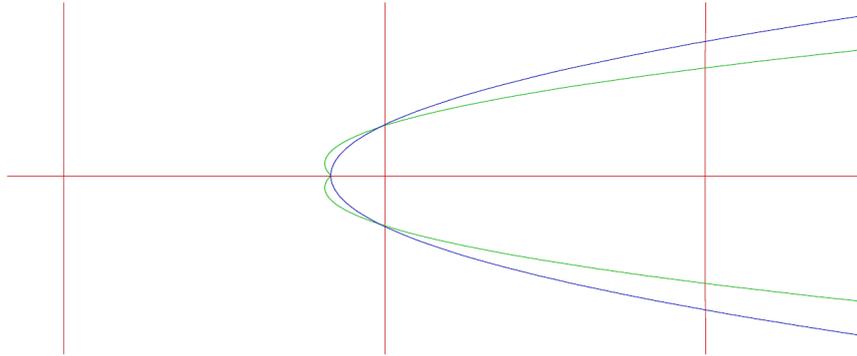


Abbildung 3.15: Vergrößerung von Abb. 3.14

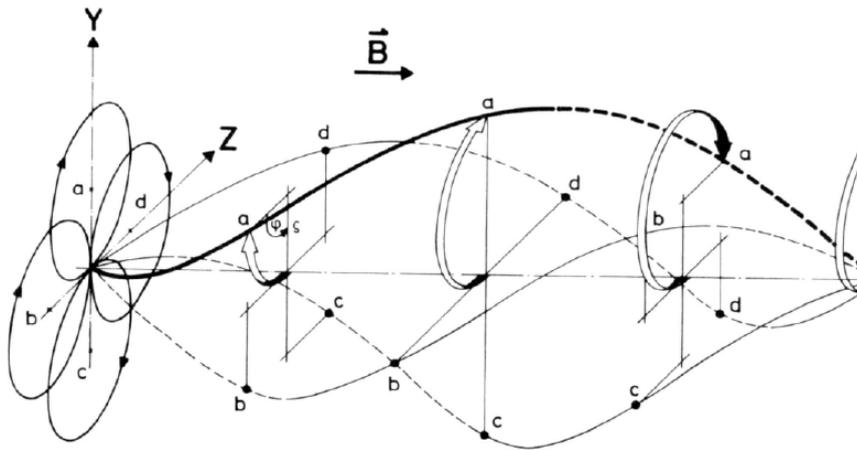


Abbildung 3.16: Gyrationen für Elektronen mit gleichem Startort $(0,0,0)$ aber verschiedenen Startgeschwindigkeiten: (a) $v_a = (0, u, v_0)$, (b) $v_b = (-u, 0, v_0)$, (c) $v_c = (0, -u, v_0)$, (d) $v_d = (u, 0, v_0)$ [Bet04]

3.3.3 Gitter

Um den Feldbereich zwischen Beschleunigungsstrecke und Drift- bzw. Nachbeschleunigung sauber voneinander zu trennen [Sch02], werden engmaschige Gitter verwendet. Dessen Maschen wirken jeweils als Mikrolinsen. Im Experiment werden Gitter am Anfang des Spektrometers (Elektronenseite, Maschenweite $250 \mu\text{m}$) und nach der Driftstrecke (Ionenseite, Maschenweite $160 \mu\text{m}$) verwendet.

Wie in 3.3.4 beschrieben, sind auch hier durch die verschiedenen Potentiale vor und hinter dem Gitter die Feldlinien in der Nähe der Maschen verbogen (Abb. 3.17), was zu einer Fokussierung und dann auch zu einer Überfokussierung führt (siehe Abb. 3.18). Die gezeigten Trajektorien führen zu einer Verschlechterung der Auflösung. Die Auflösung des Ortes kann prinzipiell nicht besser sein als die Maschenweite [Sch02]. Außerdem induziert die Mikrolinse einen Fehler in

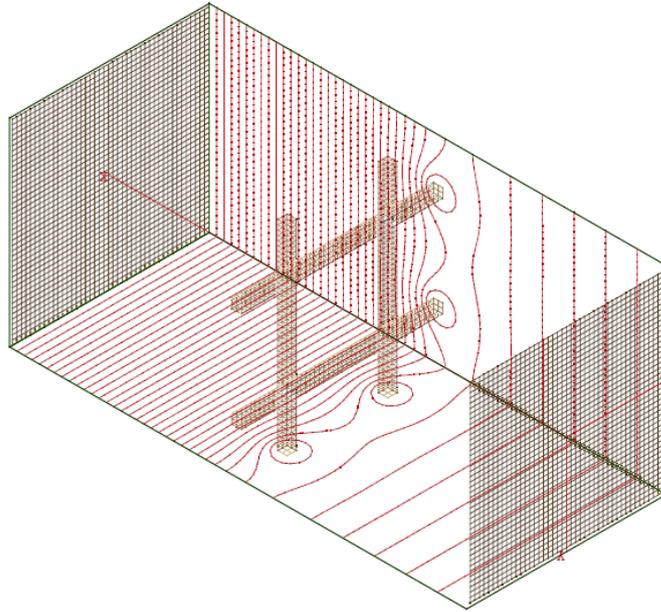


Abbildung 3.17: Elektrische Feldlinien einer Masche eines Gitters innerhalb des COLTRIMS-Spektrometers [Sch02]

der Flugzeit, da das Feld um die Masche ausgebeult ist. Teilchen, die durch die Mitte der Mikrolinse propagieren, haben somit eine kürzere Flugzeit, weil sie früher beschleunigt werden.

Diese Unschärfe in der Flugzeit konnte im vorliegenden Experiment auf der Ionenseite leider nicht vermieden werden. Näher besprochen wird dieses Problem im Auswertungskapitel.

3.3.4 MCP

Das Signal, das durch einzelne Teilchen am Detektor erzeugt wird, ist zu klein, um es elektronisch zu registrieren. Deshalb muss es verstärkt werden, was üblicherweise durch MCPs (Micro-Channel-Plates) [San09] realisiert wird. In Abb. 3.19 ist das schematische Prinzip eines MCPs zu sehen. Es ist charakterisiert durch etwa $25 \mu\text{m}$ durchmessende Kanäle, in die einkommende Teilchen hineinfliegen können. Dort lösen sie bei der Kollision mit den Wänden Sekundärelektronen aus, die durch eine zwischen Vorder- und Rückseite des MCPs angelegten Spannung in den Kanal hineingesaugt werden. Durch mehrfaches Stoßen entsteht ein Lawineneffekt, der zu einer Ladungswolke führt, die das einzelne Teilchen durch 10^6 - 10^7 Elektronen ersetzt. Ein MCP ist somit ein Teilchenvervielfacher.

Die verwendeten MCPs haben einen Durchmesser von 80 mm und werden vor jedem Detektor doppelt eingesetzt, um die gewünschte Vervielfachung zu erhalten. Um die MCPs vor den Detektoren anbringen zu können, werden Halteplatten (Holder) zwischen Detektor und Spektrometer montiert. Holder, Vordersei-

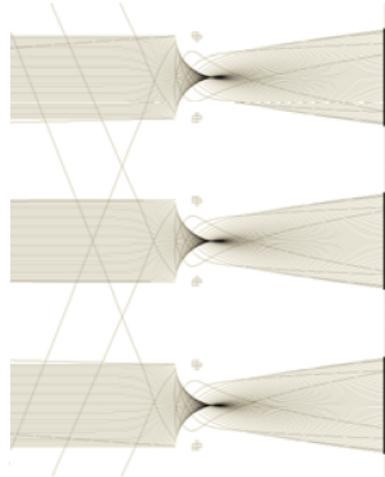


Abbildung 3.18: Wirkung einer Masche des Gitters auf He^+ -Ionen der Energie von 20 eV mit einem Abstand zum Detektor von 0,5 mm; Gitter: 0 V; Detektor: -1500 V [Sch02]

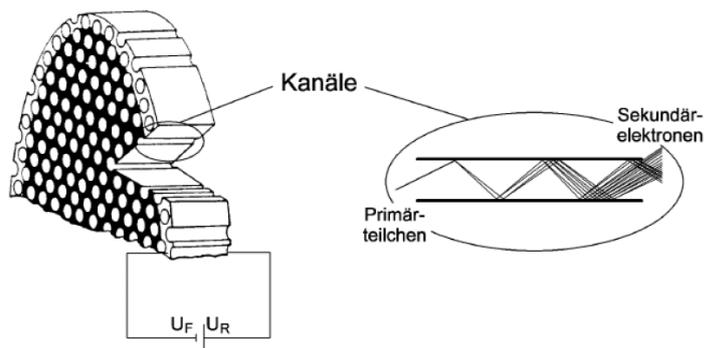


Abbildung 3.19: Schematische Darstellung eines MCPs [San09]

te (Front) und Rückseite (Back) der MCPs werden mit getrennten Spannungen versorgt.

3.3.5 Ortsauflösende Delay-Line-Anode

Die Elektronenwolke, die aus den MCP-Kanälen kommt, wird mit Hilfe einer Nachbeschleunigungsspannung von mehreren 100 V auf eine sogenannte Delay-Line-Anode beschleunigt [Jag94] [Sch06]. Sie besteht aus einem eng um einen Anodenträger gewickelten Draht (Abstand zwischen den Wicklungen etwa 1 mm), wie in Abbildung 3.20 gezeigt. Die Elektronenwolke induziert auf dem Draht am Ort des Auftreffens einen Spannungspuls. Dieser propagiert in beide Richtungen des Drahtes. Aus der Zeitdifferenz der an den Drahtenden ankommenden Pulse kann der Ort der Elektronenwolke rekonstruiert werden (Richtung der Ortsmessung ist hierbei senkrecht zur Drahtwicklung; siehe Ab-

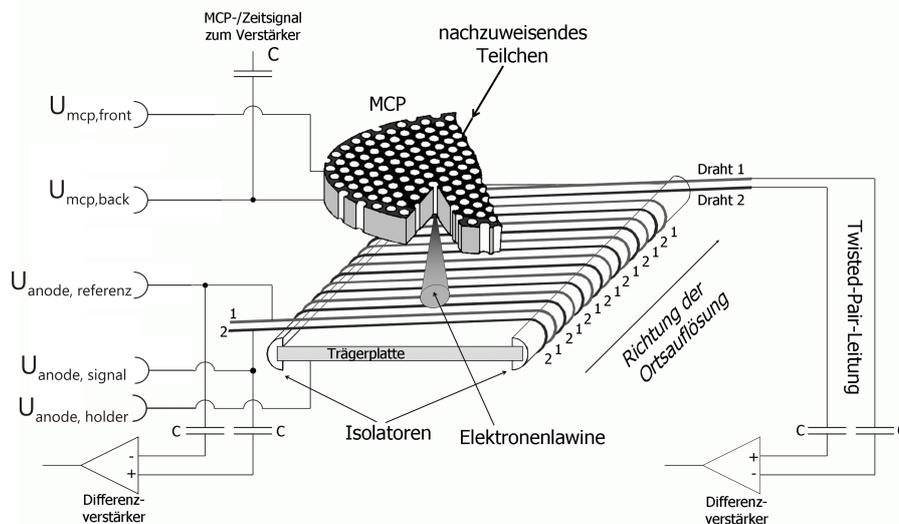


Abbildung 3.20: Eindimensionale Ortsauslese einer Delay-Line-Anode mit vorgeschaltetem MCP [Sch06]

bildung).

Da die Elektronenwolke breiter ist als der Abstand der Wicklungen, ist der erste, intuitive Gedanke, dass dadurch Präzision verloren geht. Tatsächlich ist jedoch das Gegenteil der Fall: Wenn in mehreren Wicklungen Signale induziert werden, die sich während der Propagation über den Draht hinweg verbreitern, so ergibt sich am Drahtende durch Überlagerung der Einzelpulse ein einzelner breiter Puls. Dadurch ist eine Schwerpunktbildung möglich, die es erlaubt, den Ort genauer als $100 \mu\text{m}$ zu bestimmen.

Ist die Gesamtlaufzeit des Signals über die Anode bekannt, lässt sich auch mit dem Zeitpunkt des Signals relativ zum MCP an nur einem Drahtende der Auftreffort bestimmen. Ein einzelner Draht liefert jedoch nur die Ortsinformation in einer Richtung. Ein zusätzlicher, senkrecht zum ersten angeordneter Draht bringt Aufschluss über die zweite Richtung. Im vorliegenden Experiment werden hexagonale Anoden (Hex-Anoden) als Detektoren benutzt, bei denen drei Drähte mit 60-Grad-Drehung zueinander zur 2D-Ortsmessung verwendet werden. Auswertrouninen können so den Ort genauer bestimmen und auch Multi-Hit-Ereignisse detektieren, also mehrere Teilchen, die fast gleichzeitig aufkommen. Außerdem reichen zwei Signale verschiedener Drähte bei bekannten Signallaufzeiten aus, um einen Ort eindeutig zu rekonstruieren. Da bei einer Hex-Anode bis zu sechs Signale möglich sind, wird im Vergleich zu einer Anode mit zwei Drahtebenen die Wahrscheinlichkeit erhöht, ein Teilchen rekonstruieren zu können.

Um Dispersion und Verluste zu verhindern, werden außerdem keine einzelnen, sondern zwei parallel gewickelte Drähte verwendet (Signal und Referenz), die als Lecherleitung fungieren [Ger97]. Jede der drei Drahtebenen steuert somit vier Zeitsignale zur Messung bei. Da Signal und Referenz an einem Drahtende jedoch das gleiche Zeitsignal liefern, liefert die Anode schlussendlich sechs

Zeitinformationen.

3.3.6 Auslese

Diese sechs Zeiten werden gemeinsam mit den Signalen der MCPs vor beiden Detektoren und eines Photodiodensignals, welches das Eintreffen des Laserpulses detektiert, mit Hilfe von Vakuum-Durchführungen aus der COLTRIMS-Kammer geführt. Zunächst werden die Signale (einige mV) vom Gleichspannungspotential der Anoden mit RC-Gliedern ausgekoppelt und anschließend in schnellen Vorverstärkern verstärkt [Sch06]. Die um etwa den Faktor 100 verstärkten Signale (jetzt 0,5 V bis 1 V) werden daraufhin mit CFDs (Constant Fraction Discriminator) in Standard NIM(Nuclear Instrument Module)-Signale umgewandelt, damit sie danach über TDC-Karten an den Computer übergeben und gespeichert werden können. Prinzipiell wird ein Event (allgemeine Bezeichnung für eine mögliche Reaktion) nur gespeichert, wenn das MCP des Recoil-Detektors ein Signal ausgegeben hat. Letztendlich sind die einzigen Daten, die für eine Auswertung zur Verfügung stehen, also Laufzeiten von Spannungspulsen, die dann in die relevanten physikalischen Größen umgerechnet werden müssen.

Kapitel 4

Messung und Auswertung

In diesem Kapitel wird die Auswertung der im Experiment gesammelten Daten erläutert. Es wird auf die Kalibrierung der Detektoren sowie die Berechnung physikalischer Größen aus den Laufzeiten der Signale eingegangen und notwendige Korrekturen werden besprochen.

4.1 Messung

Die folgende Messung wurde am Institut für Kernphysik der Goethe-Universität Frankfurt durchgeführt. Insgesamt sind knapp 86 GB Rohdaten in sogenannten LMFs (List-Mode-Files) mitgeschrieben worden. Hierbei handelt es sich anschaulich um Tabellen, in denen für jedes Event ein Satz von Laufzeiten (siehe Kapitel 3) gespeichert ist. Ein Event bezeichnet hierbei ein Ereignis, welches der Ionisation eines oder auch mehrerer Teilchen durch den Laser zugeschrieben werden kann.

Zunächst bestimmt eine bewährte Routine die Auftrefforte der Teilchen aus den Flugzeiten. Anschließend werden diese mit der Programmiersprache C++ verarbeitet und in Histogrammen mit einem Programm namens ROOT [Cer12] dargestellt. Aus den Laufzeiten der Signale können so die Impulskomponenten der registrierten Teilchen rekonstruiert werden.

4.2 Auswertung

4.2.1 Korrekturen

Jede Messung ist fehlerbehaftet, so auch diese. Beispielsweise müssen die Zeitsummen der Signale an beiden Enden eines Drahtes konstant und insbesondere unabhängig vom Auftreffort des Teilchens sein. Das ist in der experimentellen Realität allerdings nicht der Fall, weshalb eine vom Ort abhängige Korrekturfunktion zur Zeitsumme addiert werden muss.

Abb. 4.1 zeigt für zwei verschiedene Durchläufe durch den Vorsortierer Beispiele für die Zeitsummenkorrektur. Auf der Abszisse ist die Laufzeit an einem Drahtende angegeben, welche einem Ort auf dem Detektor entspricht. Die Ordinate zeigt die Zeitsumme für Teilchen, die an diesem Ort aufgekommen sind.

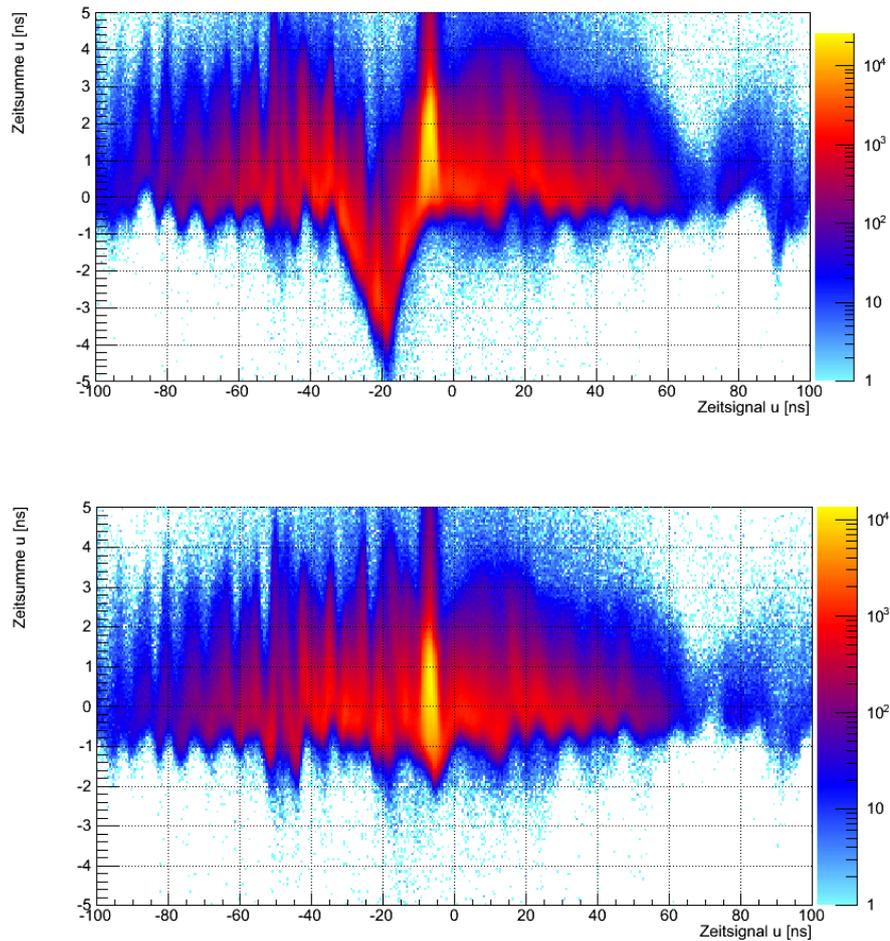


Abbildung 4.1: Zeitsummen des u-Layers auf dem Recoil-Detektor. (Abszisse) Zeitsignal, (Ordinate) Zeitsumme. (oben) Zeitsummenkorrektur nicht optimal, (unten) Zeitsummenkorrektur verbessert

Die folgende Auswertung wurde mit der oberen, etwas schlechteren Korrektur durchgeführt, da zu Beginn der Auswertung die Detektoren auf ältere Daten kalibriert wurden und eine Aktualisierung versäumt wurde. Probedurchläufe mit einer verbesserten Zeitsummenkorrektur führen zu den prinzipiell gleichen Ergebnissen, weshalb eine zeitaufwändige neue Analyse nicht notwendig ist.

4.2.2 Flugzeiten

Um aus den gemessenen Relativzeiten die Impulse zu berechnen, müssen zunächst die entsprechenden Flugzeiten der einzelnen Teilchen bestimmt werden. Da Elektronen etwa Flugzeiten vom Reaktionsort zum Detektor von ≤ 200 ns besitzen, die Laserpulse aber einen zeitlichen Abstand (“Pulsspacing“) von 9993,75 ns haben (entspricht ≈ 100 kHz), können Elektronensignale eindeutig einzelnen Laserpulsen zugeordnet werden. Mit einer Restklassen-Analyse der

Art

$$tof_{e, reell} = \text{mod}(t_{e, MCP} - t_{photodiode}; 9993, 75 \text{ ns}) \quad (4.1)$$

kann somit die reale Flugzeit des Elektrons ermittelt werden. TOF ist eine Abkürzung für die englische Flugzeitbezeichnung "Time of Flight". Das Rückstoß-Ion (Recoil) fliegt deutlich länger als der Abstand zwischen zwei Laserpulsen ($tof_{Ar^+} \approx 38000 \text{ ns}$, $tof_{Ar^{2+}} \approx 27000 \text{ ns}$). Daher werden diesen Ionen später Elektronen aus dem gleichen Puls zugeordnet, um sicher zu gehen, dass diese aus der gleichen Ionisation stammen. Die Recoil-Flugzeit berechnet sich nach

$$tof_{Recoil} = t_{R, MCP} - t_{e, MCP} + tof_{e, reell}. \quad (4.2)$$

Durch die Subtraktion der Elektronen-MCP-Flugzeit werden alle Offsets von der Recoil-Flugzeit entfernt. Danach muss die reale Elektronenflugzeit addiert werden, um den Zeitnullpunkt wieder auf den Zeitpunkt der Ionisation durch den Laserpuls ("Bunchmarker") zu setzen. Um aus Flugzeiten auf die Ionenimpulse zu schließen, kann folgende Näherung angewandt werden (tof-Richtung ist die z-Richtung):

$$p_{R,z} [a.u.] = \frac{(tof_{R, reell} [ns] - tof_{R, Mittelwert} [ns]) \cdot q [e] \cdot \vec{E} [V/cm]}{124,4 \frac{eV \cdot ns}{cm}}. \quad (4.3)$$

Angenommen wird hierbei, dass ein linearer Zusammenhang zwischen Zeitdifferenz und Anfangsimpuls der Ionen in z-Richtung besteht. 124,4 fasst alle Konstanten zusammen, die für $p_{R,z}$ die Einheit [a.u.] ergeben. Es wird zusätzlich angenommen, dass die Ionisation in z-Richtung symmetrisch und statistisch verteilt ist. Bei genügend vielen Ereignissen liegt der berechnete Mittelwert daher bei solchen Flugzeiten, die Recoils mit einem Anfangsimpuls von $p = 0$ entsprechen.

Bei den Impulskomponenten in Richtung der Koordinaten x, y , die die Detektorebene beschreiben, wird anders vorgegangen. Da es sich bei einer Beschleunigung im elektrischen Feld, welches in z-Richtung orientiert ist, um einen schiefen Wurf handelt, sind x, y unabhängig von der Beschleunigung und damit nur von den Anfangsimpulsen und der Flugzeit bestimmt. Gyrationen aufgrund des magnetischen Feldes werden vernachlässigt, da das Masse-Ladungsverhältnis der relevanten Ionen zu groß ist. Mit

$$p_{R,x} = \frac{x \cdot m_{Ar} \cdot \text{const}_{Linse}}{tof_R \cdot \text{const}_{au}} \quad (4.4)$$

sind die Impulskomponenten in der Detektor-Ebene zu berechnen. x (bzw. y) ist der Auftreffort auf dem Detektor, $const_{au}$ sind alle Konstanten, die zur Einheit [a.u.] führen, $const_{Linse}$ beschreibt die Wirkung der Linse. Allerdings besitzen die Recoils einen Offset, der vom Jet hervorgerufen wird. Daher müssen zunächst die Auftrefforte von Ar^+ bzw. Ar^{2+} identifiziert und deren Schwerpunkte bestimmt werden. Abhängig vom Ionisationsgrad des gemessenen Ions werden diese Offsets von den gemessenen Orten abgezogen, um das Impulskordinatensystem wieder in den Ursprung des Laborsystems zu schieben. Generell werden sich Symmetrien des Spektrometers, des Laserfeldes und der Ionisation zunutze gemacht, um die Nullpunkts-Findung zu erleichtern. Zum Beispiel führt die Polarisation in Flugzeitrichtung dazu, dass Elektronen bei der Ionisation isotrop in die x-y Ebene emittiert werden. Der Mittelpunkt dieser Verteilung entspricht daher dem Ursprung des Laborsystems in der x-y-Ebene.

4.2.3 Bestimmung des B-Feldes

Der Fish

In der Auswertung haben sich verschiedene Darstellungen der gemessenen Größen als sinnvoll erwiesen. Ein in diesem Zusammenhang besonders wichtiger Graph ist der sogenannte "Fish". Auf der Abszisse ist die Flugzeit eines Teilchens aufgetragen, auf der Ordinate der Ort in einer Dimension, beispielsweise die x-Richtung auf dem Detektor. Für die Ionen ist dies sinnvoll, weil bei gleichen Flugzeiten Ionen verschiedener Ladungen voneinander getrennt werden können. Bei Elektronen können "Wiggles" erkannt werden, also die auf eine Achse projizierten Kreisbahnen im magnetischen Feld. Außerdem sind ATI-Peaks, die in dieser Arbeit gesucht werden, mit bloßem Auge erkennbar. Sie treten im Fish als fischflossenartige Gebilde mit erkennbarem Abstand zueinander auf.

Zeitnullpunkt

Gestreute Photonen aus dem Laserpuls können das MCP treffen. In seltenen Fällen werden dadurch im MCP Elektronen durch den Photoeffekt ausgelöst, die ebenfalls verstärkt werden. Photonen können also auch zu Signalen auf den Detektoren führen. Da sich diese mit Lichtgeschwindigkeit fortbewegen, dienen sie als hervorragender Zeitnullpunkt - also den Zeitpunkt der Reaktion. Im sogenannten "Fish"-Spektrum stellen diese Photonen eine vertikale Linie dar, die im Fall der vorliegenden Messung beim Elektronendetektor bei einer Flugzeit von etwa 1 ns positioniert war. Dieser Offset muss bei allen Elektronenflugzeiten subtrahiert werden. Da die Recoilimpulse in Flugzeitrichtung nicht aus den Absolutwerten der Flugzeiten berechnet werden, sondern aus Relativzeiten zum Maximum der Gaußverteilung, spielt der Offset bei den Recoilflugzeiten keine Rolle.

Magnetisches Feld

Prinzipiell besteht die Möglichkeit, über den Strom, der durch die Helmholtz-Spulen fließt, deren Windungszahl und Abmessungen das wirkende magnetische

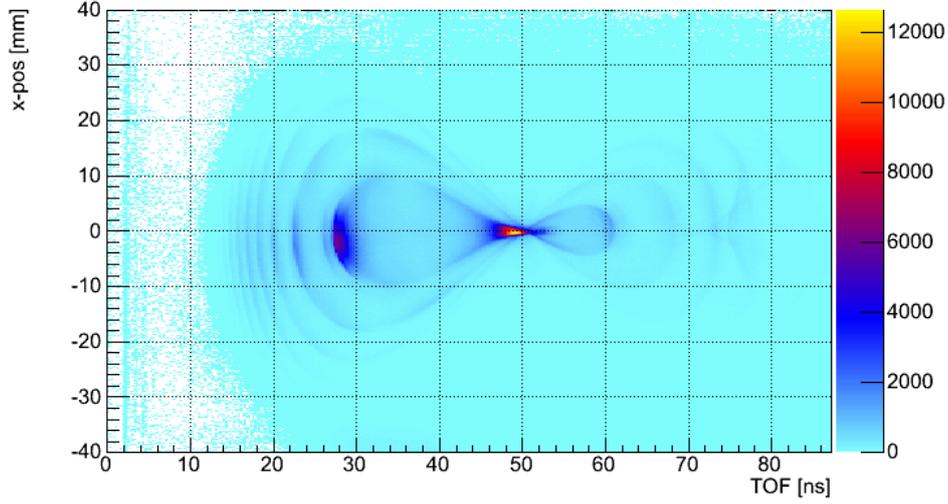


Abbildung 4.2: Fish für Elektronen in x-Richtung. (Abszisse) Flugzeit des Elektrons, (Ordinate) x-Koordinate des Auftreff-Ortes auf dem Detektor

Feld analytisch zu bestimmen. Näherungen und experimentell unbestimmbare Gegebenheiten führen jedoch zu einer Abweichung davon, weshalb durch einen sogenannten Wiggle-Run (Messung mit niedrigem E-Feld) präziser auf das in der Kammer wirkende B-Feld zu schließen ist. Da der Wiggle-Run zu dieser Messung jedoch fehlerhaft ist, muss eine andere Möglichkeit genutzt werden. Abb. 4.2 zeigt einen Fish (siehe 4.2.3) mit einem Knoten. In 3.3.2 wurde beschrieben, wie Elektronen durch das Spektrometer fliegen. Sie führen Gyrationen aus und erreichen nach einer Gyrationperiode wieder ihren Anfangsort in der x,y-Ebene. Dazwischen ähnelt die zeitabhängige Bewegung in einer dieser Koordinaten zwei um 180 Grad phasenverschobenen und übereinandergelegten Sinus-Kurven. Sind zwei Knoten zu sehen, was beim Wiggle-Run der Fall gewesen wäre, so ist deren zeitlicher Abstand bestimmbar, der einer Gyrationperiode entspricht.

Der vorher bestimmte Zeitnullpunkt stellt im vorliegenden Fall den zweiten Knoten dar. Dieser repräsentiert nämlich den Zeitpunkt, an dem sich alle Elektronen in der Reaktionszone befinden und somit auf der x-Achse den Wert 0 haben. So folgt aus der Lage des einzig sichtbaren Knotens direkt die Gyrationperiode. Da diese der Gleichung

$$T_{Gyration} = \frac{2\pi m_e}{eB} = \frac{357,2 Gauss}{B[Gauss]} \quad (4.5)$$

genügt, kann nach B umgestellt und das magnetische Feld berechnet werden. Die Spulen werden während des Experiments mit einem Strom von $I=7,5$ A bei $U=33,9$ V betrieben, was analytisch etwa 7,6 Gauß zur Folge hätte. Mit einer

Gyrationsperiode von 50,5 ns ergibt sich für das reelle B-Feld allerdings $B=7,07$ Gauß, was im Rahmen der Genauigkeit mit der Spulengeometrie bekannt ist.

4.2.4 Elektronen-Impulse

Nachdem alle Offsets durch die Zeitnullpunktverschiebung entfernt wurden, lässt sich der Elektronenimpuls direkt aus der Flugzeit bestimmen. Für diese Komponente ist die Wechselwirkung im elektrischen Feld eine einfache beschleunigte Bewegung der Art

$$s = \frac{1}{2}at^2 + vt = \frac{|\vec{E}|qt^2}{2m} + vt. \quad (4.6)$$

Der Impuls ergibt sich somit aus

$$p_z = \frac{sm}{t} - \frac{|\vec{E}|qt}{2}, \quad (4.7)$$

wobei die positive z-Achse in Richtung des Elektronendetektors zeigt. Die dazu senkrechten Richtungen in Detektorebene x,y sind vom elektrischen Feld unabhängig. Das magnetische Feld jedoch führt aufgrund der Lorentzkraft zu einer kreisförmigen Bewegung senkrecht zur Geschwindigkeit. Die Kreisfrequenz dieser Bewegung ist durch $\omega = \frac{q}{m} |\vec{B}|$ gegeben und führt zu folgenden Bewegungsgleichungen [Tri11]:

$$x(t) = \frac{p_x}{m\omega}(\cos(\omega t) - 1) + \frac{p_y}{m\omega}\sin(\omega t) \quad (4.8)$$

$$y(t) = \frac{p_y}{m\omega}(1 - \cos(\omega t)) + \frac{p_x}{m\omega}\sin(\omega t). \quad (4.9)$$

Aus den gemessenen Orten x,y auf dem Detektor sind die Anfangsimpulse in x- und y- Richtung mit $a = \frac{1 - \cos(\omega t)}{\omega}$ und $b = \frac{\sin(\omega t)}{\omega}$ bestimmbar durch

$$p_x = \frac{m(bx - ay)}{a^2 + b^2} \quad (4.10)$$

und

$$p_y = \frac{m(-ax - by)}{a^2 + b^2}. \quad (4.11)$$

4.2.5 E-B-Drift

Stehen elektrisches Feld des Spektrometers und magnetisches Führungsfeld der Helmholtzspulen nicht exakt parallel, führt dies zur sogenannten E-B-Drift. Das bedeutet, dass ein geladenes Teilchen zusätzlich zur beschleunigten Bewegung in Richtung des elektrischen Feldes und zur Gyrationbewegung senkrecht zum elektrischen Feld auch eine gleichförmige Bewegung ebenfalls senkrecht zum elektrischen Feld mit der Geschwindigkeit [Jac09]

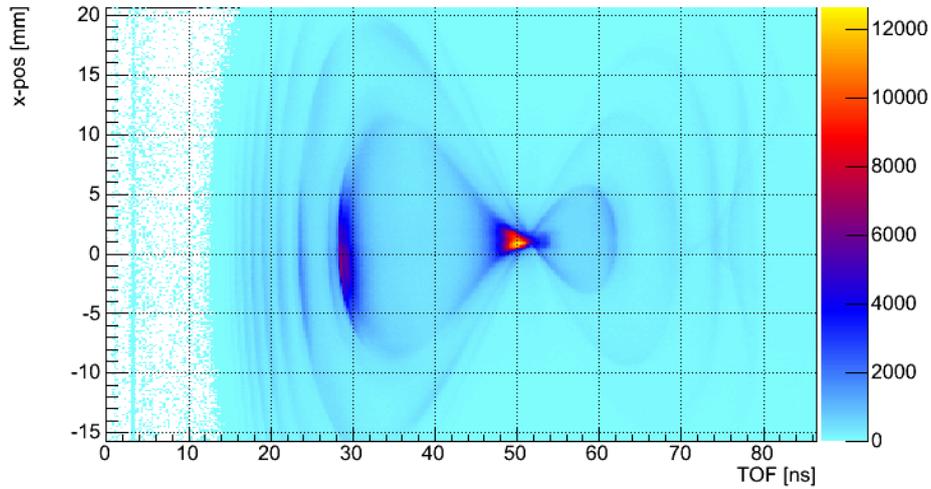


Abbildung 4.3: Unkorrigierter Elektronen-Fish mit E-B-Drift. Der Knoten bei etwa 52 ns liegt nicht bei $x=0$.

$$v_{Drift} = \frac{c(\vec{E} \times \vec{B})}{B^2} \quad (4.12)$$

ausführt. Da v_{Drift} bei homogenem E- und B- Feld konstant ist, ergibt sich ein Fehler bei der Ortsmessung, der linear mit der Flugzeit ansteigt. Dieser Fehler ist im Fish in Abb. 4.3 zu sehen. Der Ursprung des Koordinatensystems in x-y-Richtung wird zuvor in den sogenannten Jetfleck gelegt, also in den Punkt des Ionendetektors, auf dem die meisten Teilchen registriert werden. Ein elektrisches Feld, das exakt senkrecht zur Detektor-Ebene steht, ändert die x- bzw. y-Koordinate des Teilchens nicht. Diese Koordinaten sind dann lediglich durch den Anfangsimpuls des Teilchens und seine Flugzeit bestimmt. Daher sollte auch das Reaktionszentrum im Ursprung des x-y-Koordinatensystems liegen. Offensichtlich ist das aber in der Abbildung nicht der Fall: Der sichtbare Knoten, der das Reaktionszentrum darstellt, besitzt eine x-Koordinate ungleich Null. Während der Propagation durch das E- und B-Feld hat sich das Elektron somit durch die E-B-Drift zusätzlich in diese Richtung bewegt. Mit

flugzeitabhängigen Korrekturtermen kann diese Drift separat von der x- bzw. y-Koordinate entfernt werden.

4.2.6 Drehung der Detektoren

Prinzipiell sind zunächst keinerlei Informationen über die relative Orientierung von Elektronen- und Recoil-Detektor verfügbar. Genauer gesagt sind die Koordinaten x und y des Elektronendetektors grundsätzlich nicht die x - bzw. y -Koordinaten des Ionendetektors und entsprechen auch nicht dem Laborsystem. Es muss also festgestellt werden, in welchem Maße die Koordinatensysteme der Detektoren gegeneinander und absolut verdreht sind. Dazu kann die Jet-Richtung aus den Histogrammen extrahiert werden. Auf dem Recoil-Detektor ist die Jet-Richtung direkt anhand des bevorzugten Detektionsortes des Restgases oder anhand der Position des Ar^+ - bzw. Ar^{2+} -Fleckes relativ zur Mitte des Detektors zu identifizieren. Aus der experimentellen Anordnung ist auch auf dem Elektronendetektor die Jet-Richtung erkennbar, da sie senkrecht zur Laserrichtung orientiert ist. Mit zirkularem Laserlicht ergibt sich, wie in Abb. 2.9 zu sehen, eine donutförmige Verteilung senkrecht zur Laserrichtung. Eine Projektion dieser Verteilung auf die Detektorebene liefert daher eine Gerade, die genau die Jet-Richtung widerspiegelt. Daraus lässt sich im vorliegenden Fall eine relative Verdrehung der Detektoren von 4 Grad bestimmen. Einer der Detektoren wird zunächst um diesen Wert relativ zum anderen gedreht und anschließend das nun gemeinsame Koordinatensystem so angepasst, dass die x -Achse in Jet-Richtung zeigt.

4.2.7 Zeitliche Parameterveränderung

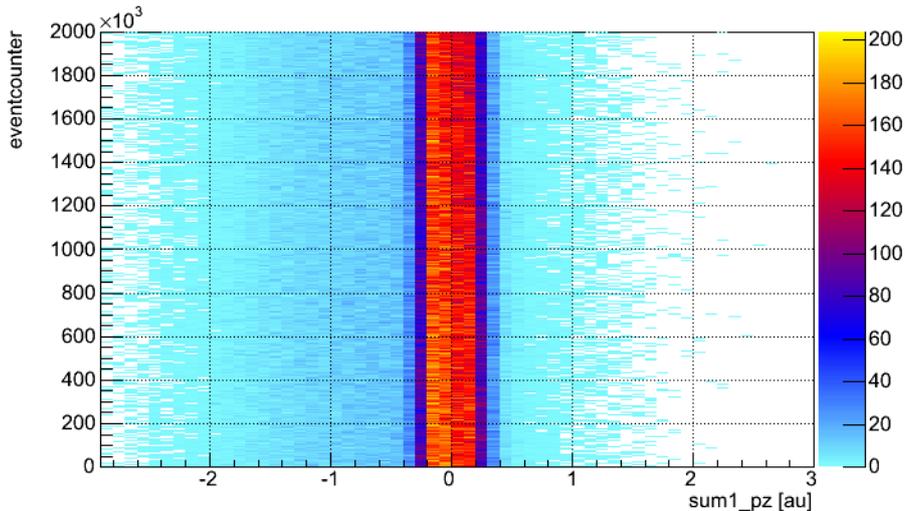


Abbildung 4.4: Zeitliche Änderung der Impulsberechnung. (Abszisse) Eventcounter, (Ordinate) Summenimpuls von Ar^+ und zugeordnetem Elektron

Da das Experiment im Laufe von 4 Tagen durchgeführt wurde, ist nicht sichergestellt, dass alle Parameter über diese Zeit hinweg konstant geblieben sind. Es muss also getestet werden, dass gemessene Größen während der Messzeit gleiche Werte hatten. Dafür ist der sogenannte "eventcounter" nützlich, der die Events aufsteigend mit Nummern versieht. Wird der Eventcounter gegen einen Wert aufgetragen - etwa der Addition der z-Impulskomponente eines Ar^{+} -Ions und der z-Impulskomponente des zugehörigen Elektrons -, sollte sich eine Vertikale ergeben. In Abb. 4.4 ist dieses Beispiel zu sehen. Hier muss keine zeitliche Korrektur vorgenommen werden, da die Impulserhaltung über die betrachtete Messzeit hinweg erfüllt bleibt. Somit kann davon ausgegangen werden, dass sämtliche Werte, die zur Berechnung der Ionen- bzw. Elektronen-Impulskomponente in z-Richtung benötigt werden, keinen signifikanten zeitlichen Veränderungen unterliegen.

4.2.8 CUDA

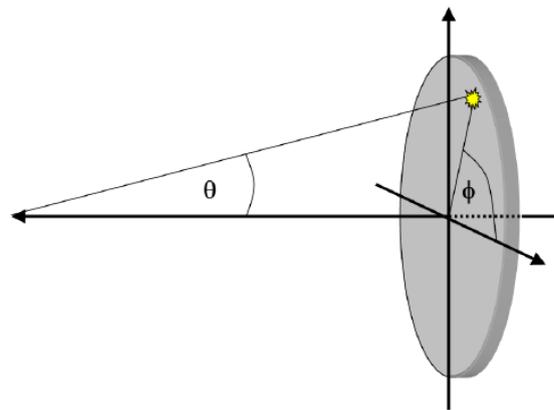


Abbildung 4.5: Darstellung der Winkelbenennung

Ein in dieser Arbeitsgruppe entwickeltes neuartiges Programm, basierend auf der Verwendung von Grafikkarten-Prozessoren zur schnellen Berechnung von Histogrammen, ist CUDA, benannt nach der gleichnamigen Schnittstelle von NVidia (Compute Unified Device Architecture). Hiermit ist es möglich, mit geringem Zeitaufwand experimentelle Parameter sukzessive zu verändern, um die Histogramme so anzupassen, dass sie grundlegenden physikalischen Gesetzen genügen. Zum Beispiel sollte die Kontinuums-Energie der Elektronen für einen bestimmten ATI-Peak unabhängig von der Emissionsrichtung sein. Wird der Winkel Φ (Abb. 4.5) gegen die Elektronenenergie aufgetragen, müssen daher horizontale parallele Linien entstehen. Außerdem sollten diese Linien äquidistant sein, da sie ATI-Peaks darstellen, die energetisch jeweils einen Abstand von einer Photonenenergie aufweisen. Eine falsche Annahme in der Beschleunigungsstrecke führt zu nicht äquidistanten Linien, ein falsches B-Feld zu einer Krümmung dieser Linien. Zu dieser Krümmung führen ebenso ein zu klein oder zu groß angenommener Detektor sowie falsche Nullpunkte. All das wird durch

Anpassung der Parameter verbessert.

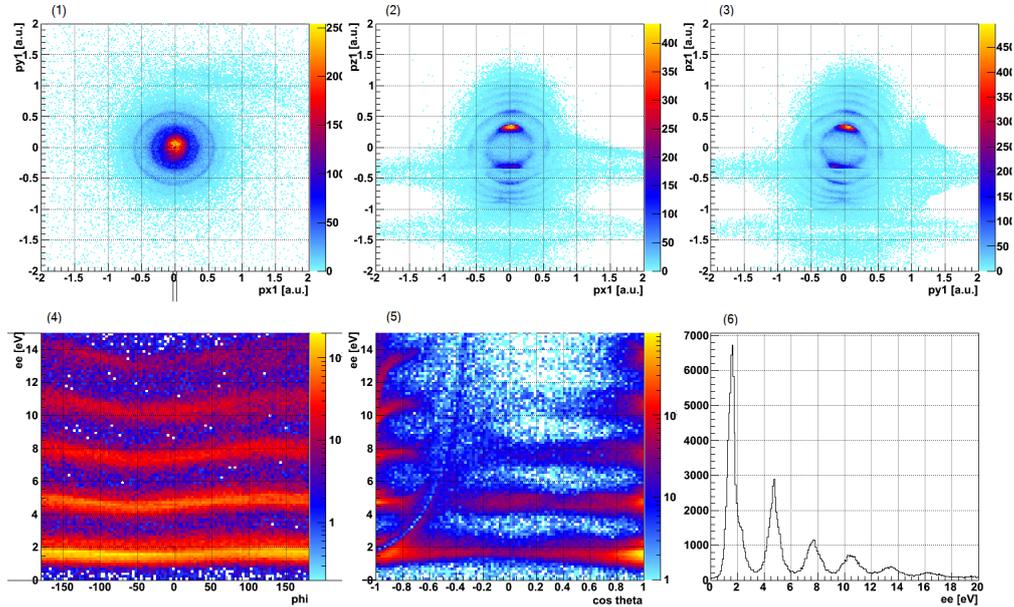


Abbildung 4.6: CUDA-Ansicht: (1) Elektronenimpuls-Komponenten y gegen x , (2) Elektronenimpuls-Komponenten z gegen x , (3) Elektronenimpuls-Komponenten z gegen y , (4) Elektronenenergie in Abhängigkeit des Winkels Φ , (5) Elektronenenergie in Abhängigkeit von $\cos(\Theta)$, (6) Elektronenenergie

In Abb. 4.6 ist die Benutzeroberfläche von CUDA zu sehen. Wird das B-Feld ausgeschaltet, können in (1) die x - und y -Impulse auf Null geschoben werden. Mit angeschaltetem B-Feld wird versucht, in (2) und (3) konzentrische Kreise zu erhalten. Gleichzeitig wird damit auch erreicht, dass in (4) und (5) die horizontalen Linien gerade werden (siehe oben). In (6) sind direkt die Auswirkungen auf die Elektronenenergie und damit ebenfalls auf den Abstand der ATI-Peaks zu sehen. Bei einer Laserwellenlänge von 390 nm muss dieser Abstand genau der Photonenenergie (etwa 3,14 eV) entsprechen.

Ungünstig ist im vorliegenden Fall, dass ein Knoten der Elektronen-Wiggles im wichtigen Impulsbereich liegt. Daher ist die Kalibrierung schwieriger als üblich, außerdem sind mit keinem Parameter-Set perfekte Bedingungen zu erreichen. Wie in der Abbildung erkennbar, können höhere ATI-Peaks winkelabhängig nicht gerade gebogen werden, da die elektrostatische Linse die Trajektorien von Elektronen hoher Energie bei Emission in Richtung des Ionendetektors signifikant beeinflusst. Dennoch werden die ATI-Peaks mit den richtigen Energieabständen mit Hilfe von CUDA rekonstruiert.

4.3 Auswahl der richtigen Ereignisse

Bei einer Repetitions-Rate des Lasers von 100 kHz werden Ionen mit einer Rate von 2 kHz und Elektronen mit 13 kHz auf den Detektoren registriert. Bei einer solchen Vielzahl an Ereignissen und Kombinationsmöglichkeiten von Recoils

und Elektronen folgen etliche Fehlzuordnungen. In den meisten Fällen korrelieren jeweils genau ein Elektron und ein Ar^+ -Ion bzw. genau zwei Elektronen und ein Ar^{2+} -Ion. Jedoch werden teilweise zu einem gemessenen Ion mehr als 10 Elektronen registriert. Davon werden die ersten sechs Elektronen in der Routine der Auswertung rekonstruiert. Für ein Doppelionisations-Ereignis müssen zu dem gemessenen Ar^{2+} daher aus diesen sechs Elektronen die beiden passenden identifiziert werden.

4.3.1 Elektronenauswahl

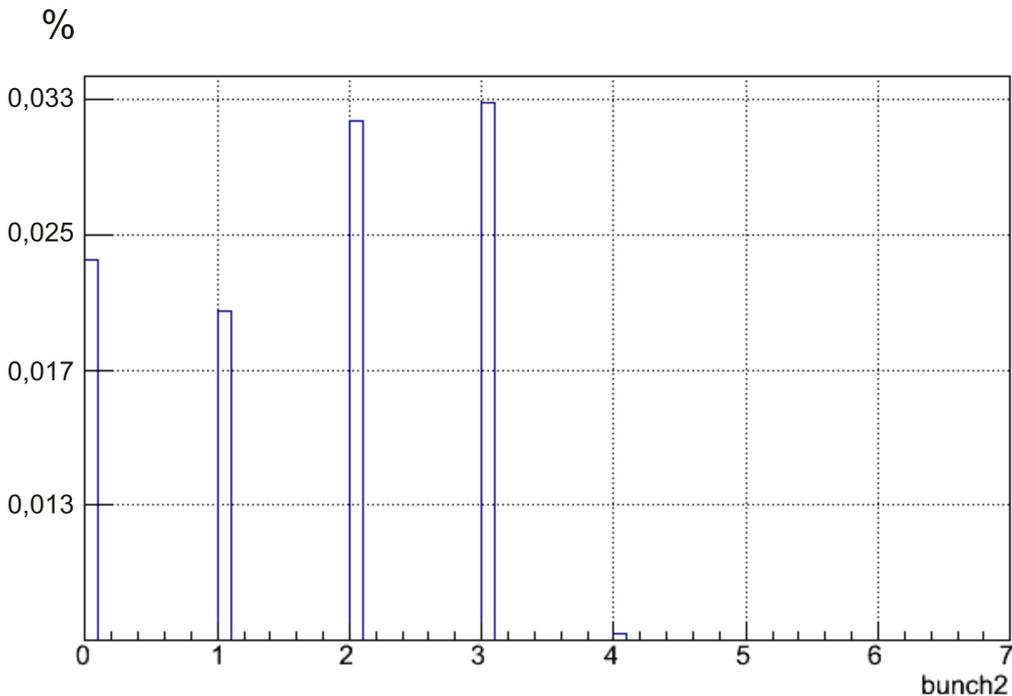


Abbildung 4.7: Zuordnung des jeweils zweiten gemessenen Elektrons zu einem Laserpuls (Bunch). (Abszisse) Bunch-Nummerierung in negative Zeit-Richtung startend bei der Detektion des Ions, 0 entspricht dem zeitlich letzten Bunch zum Detektionszeitpunkt des Ions; (Ordinate) Prozentualer Anteil gemessener Elektronen zu einem gemessenen Ion

Die Flugzeit eines Ions im Spektrometer ist länger als der Abstand zwischen zwei Laser-Pulsen (“Bunchmarker“). Alle Elektronen, die während der Flugzeit registriert werden, sind dem gemessenen Ion zugeschrieben. Der Begriff “Bunch“ steht in diesem Sinne für alle Teilchen, die durch einen Laserpuls ionisiert und auf den Detektoren registriert werden. Der Abstand zwischen zwei Bunches entspricht dem Abstand zwischen zwei Laserpulsen, also etwa $10 \mu s$. Wie in Abb. 4.7 am Beispiel des zweiten gemessenen Elektrons zu sehen ist, ist der Bunch, aus dem das gemessene Elektron kommt, nahezu beliebig. Bunch 1 bedeutet hierbei, dass das Elektron eine Flugzeit relativ zum Ion von 10000 - 20000 ns hatte, Bunch 2 von 20000 - 30000 ns und so weiter. Mit einer Ar^+ -

Flugzeit von etwa 38000 ns und einer Flugzeit des Elektrons von weniger als 200 ns liegen echte Koinzidenz-Elektronen hier im dritten Bunch; Ar^{2+} -Flugzeiten von 27000 ns sind Elektronen aus dem zweiten Bunch zuzuordnen. Da insgesamt sechs Elektronen registriert werden, können mehr als zwei Elektronen Flugzeiten innerhalb des zweiten Bunches aufweisen und prinzipiell als zum Doppelsonisations-Ereignis passend interpretiert werden. Normalerweise könnten über die Impulserhaltung die richtigen beiden Elektronen bestimmt werden. Da der Recoil-Impuls in Flugzeitrichtung (siehe 4.3.2) und Jet-Richtung keine gute Auflösung besitzt, ist hier mit großen Fehlern zu rechnen. Deshalb werden nur solche als "echte" Ar^{2+} -Ereignisse verwendet, bei denen insgesamt genau zwei Elektronen detektiert werden und beide aus dem zweiten Bunch stammen.

4.3.2 Auflösung der Recoil-Flugzeitkomponente

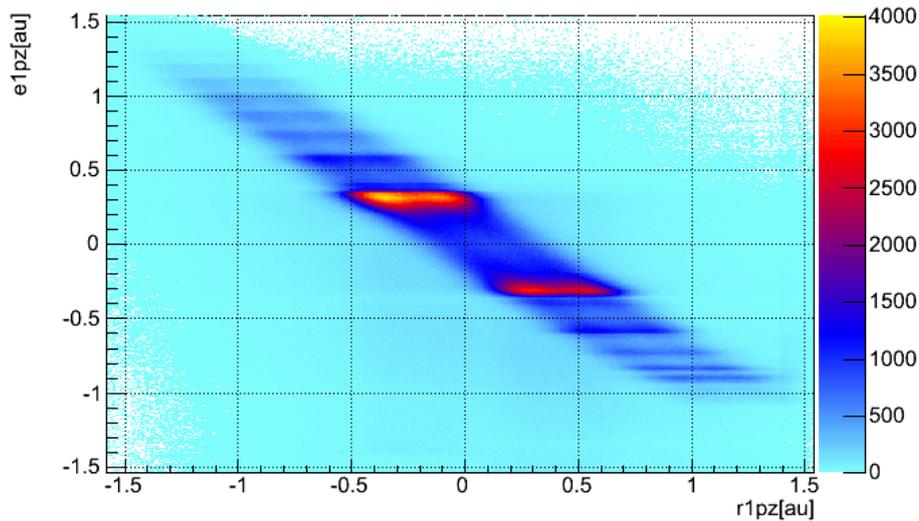


Abbildung 4.8: Koinzidenz durch Impulserhaltung in der Einfachionisation von Argon. (Abszisse) Impuls des Ar^+ -Ions in z-Richtung (Flugzeitrichtung), (Ordinate) z-Impulskomponente des zugehörigen Elektrons

In 3.3.3 wurde diskutiert, welchen Einfluss Gitter auf das Experiment haben. Bei großem Feldunterschied zwischen Vorder- und Rückseite kommt es zu stark ausgebeulten Feldern an jeder Masche, was zur angesprochenen Mikrolinse führt. Das wiederum sorgt für einen ungewollten Nebeneffekt: Recoils, die durch die Mitte der Masche propagieren, erreichen das Gitter schneller als solche, die am Rand entlangfliegen, da sie die Beschleunigungswirkung der Masche früher erreichen [Sch02]. Die Beule ist von der gleichen Größenordnung wie die Maschenweite. Bei 4,4 cm Beschleunigungsstrecke auf der Elektronenseite des Spektrometers fallen etwa 17 V der angelegten Spektrometer-Spannung von 65 V ab. Ionen werden daher mit 48 V beschleunigt. Das entspricht nach

$$qU_{Beschleunigung} = \frac{1}{2}m_{Argon}v_{Argon}^2 \quad (4.13)$$

für einfach geladene Argon-Ionen einer Endgeschwindigkeit beim Erreichen des Gitters von

$$v_{Argon} = \sqrt{\frac{2eU_B}{m_{Argon}}} = 15218 \frac{m}{s}. \quad (4.14)$$

Eine Strecke der Größenordnung der Masche, also $150 \mu m$, durchfliegt ein Teilchen dieser Geschwindigkeit in etwa

$$t = \frac{s}{v} = \frac{150 \mu m}{15218 \frac{m}{s}} \approx 10 ns. \quad (4.15)$$

Die Impulsberechnung führt bei einem Fehler in der Flugzeit zu einem Fehler im Impuls von

$$\Delta p_{R,z} = \frac{\Delta t_{of} \cdot \vec{E}}{124,4} = \frac{10 ns \cdot 3,85 \frac{V}{cm}}{124,4} \approx 0,31 a.u.. \quad (4.16)$$

Abb. 4.8 zeigt einen breiten, diagonalen Balken mit horizontalen Linien, die den ATI-Peaks auf den Elektronen entsprechen. Eigentlich sollte jedoch eine scharfe, diagonale Linie zu sehen sein, da die Impulserhaltung in diesen Größenordnungen exakt erfüllt sein muss. Die beobachtete Breite von 0,6 a. u. liegt in der gleichen Größenordnung wie die obige Abschätzung. Der Mikrolinseneffekt scheint also tatsächlich ausschlaggebend für die schlechte Auflösung zu sein (siehe auch [Wec01]). Die experimentell etwas größere Impuls-Auflösung kann auch damit erklärt werden, dass Teilchen, die durch den Rand der Masche propagieren, wie in einer Linse stark abgelenkt werden. Dadurch vergrößert sich der effektive Weg zum Detektor, wodurch die Flugzeit zusätzlich zum oben beschriebenen Effekt länger wird.

Dass ein Zittern der Spektrometerspannung zur beobachteten Impuls-Auflösung führt, konnte durch das Anschließen einer Batteriebox als Spannungsquelle ausgeschlossen werden. Auch in diesem Fall kam es zur Verbreiterung der Diagonalen und somit zu einer Verschlechterung der Auflösung.

4.3.3 Unterdrückung des Untergrunds

Verschiedenste Effekte innerhalb der Messapparatur sorgen ständig für ionisierte Atome und Elektronen, die nicht aus einem Ionisations-Ereignis durch den Laser innerhalb des Gas-Jets stammen. Diese sind allerdings vernachlässigbar.

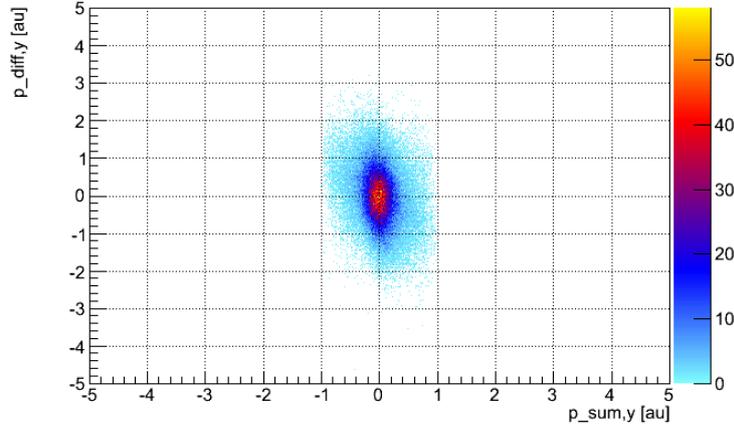


Abbildung 4.9: Impulserhaltung in y-Richtung (Richtung der Propagation des Lasers). (Abszisse) $p_{e1,y} + p_{e2,y} + p_{Ar^{2+},y}$; (Ordinate) $p_{e1,y} + p_{e2,y} - p_{Ar^{2+},y}$

Zusätzlich werden aber zu einem registrierten Ar^{2+} -Ion teilweise auch Elektronen aus einem Einfachionisations-Ereignis, das im selben Laserpuls stattfand, gemessen. Diese falschen Koinzidenzen werden Untergrund genannt und müssen identifiziert und möglichst vollständig entfernt werden.

Die Impulserhaltung reicht zwar zur Identifikation der Koinzidenz-Elektronen zu einem gemessenen Ar^{2+} -Ion nicht aus. Dennoch bietet sie eine sinnvolle Möglichkeit, Untergrund zu unterdrücken. Sollte die Impulserhaltung auch innerhalb der Auflösungsgrenzen nicht erfüllt sein, ist dieses Ereignis mit hoher Wahrscheinlichkeit kein vollständiges Doppelsonenereignis. In Jet-Richtung ist die Auflösung selbst für diese Anwendung zu schlecht, weshalb die Impulserhaltung in den beiden anderen Koordinaten überprüft wird. Diese sind in den Abbildungen 4.9 und 4.10 dargestellt. Auf der Abszisse sind jeweils die Impulssummen aufgetragen. Für echte Ereignisse sollen diese etwa Null sein, da Impulserhaltung erfüllt sein muss (für die y-Richtung: Der Summenimpuls muss dem Impuls der absorbierten Photonen entsprechen. $p_{Photon} \approx 0,001$ a. u., also vernachlässigbar). Im Rahmen der Auflösung auf den verschiedenen Achsen ist das auch der Fall, denn die meisten Ereignisse liegen tatsächlich um die Null verteilt. Auf der Ordinate ist die Differenz zwischen dem Recoil-Impuls und dem Summenimpuls der Elektronen aufgetragen. Das entspricht der in der Reaktion übertragenen Betragsumme. Für alle übertragenen Impulse muss die Impulserhaltung erfüllt sein, was sich in einer Vertikalen in den Diagrammen ausdrücken sollte. Mit einem Fenster von $[-0,6 \text{ a. u.}; +0,6 \text{ a. u.}]$ auf diese beiden Impulskomponenten kann effektiv Untergrund unterdrückt werden.

Anmerkung: Die gezeigten Bilder sind mit einem Fenster von $[-1 \text{ a. u.}; +1 \text{ a. u.}]$ geplottet, die Rohdaten zeigen also auch Untergrund außerhalb dieses Intervalls.

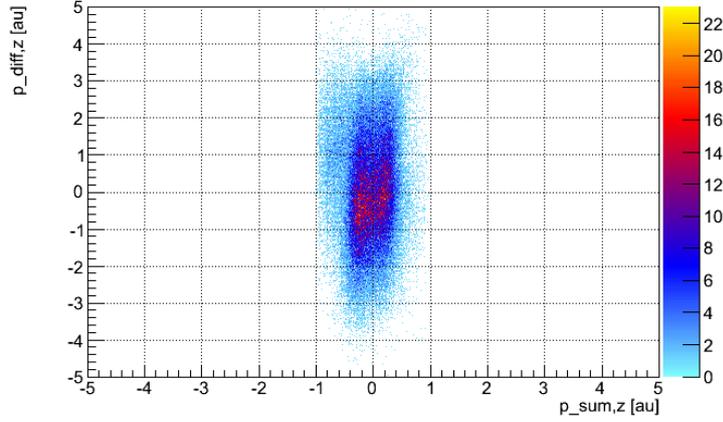


Abbildung 4.10: Impulserhaltung in z-Richtung (Richtung der Laserpolarisation, Flugzeitrichtung). (Abszisse) $p_{e1,z} + p_{e2,z} + p_{Ar^{2+},z}$; (Ordinate) $p_{e1,z} + p_{e2,z} - p_{Ar^{2+},z}$

4.3.4 Falsche Koinzidenzen

Die Wahrscheinlichkeit für falsche Koinzidenzen ist allgemein

$$\begin{aligned}
 & P[\text{Falsche Koinzidenz}] \\
 &= \frac{\text{Wahrscheinlichkeit für falsche Koinzidenzen}}{\text{Wahrscheinlichkeit für alle möglichen Koinzidenzen}} \quad (4.17)
 \end{aligned}$$

Bei einer Elektronenrate von 10 kHz und einer Repetitionsrate des Lasers von 100 kHz ist die Wahrscheinlichkeit, in einem Laserpuls ein Argon einfach zu ionisieren und zu messen, in erster Näherung 0,1. Mit einer Detektionswahrscheinlichkeit von etwa 0,66 ergibt sich eine Einfachionisationswahrscheinlichkeit pro Schuss von 0,15. Da nur Ereignisse als Doppelionisation identifiziert werden, bei denen genau zwei Elektronen gemessen werden und beide aus dem richtigen Bunch kommen, folgt für die Wahrscheinlichkeit für falsche Koinzidenz in Abb. 4.11

$$\begin{aligned}
 & P[\text{Falsche Koinzidenz}] \\
 &= 2 \cdot \frac{0,66 \cdot 0,34 \cdot 0,15 \cdot 0,66 + 0,34 \cdot 0,34 \cdot 0,15 \cdot 0,66 \cdot 0,0225 \cdot 0,66}{0,66 \cdot 0,34 \cdot 0,15 \cdot 0,66 + 0,34 \cdot 0,34 \cdot 0,15 \cdot 0,66 \cdot 0,25 \cdot 0,66 + 0,66 \cdot 0,66} \\
 &= 0,09288 \approx 9,3\% \quad (4.18)
 \end{aligned}$$

Der erste Summand im Zähler entspricht einem nicht gemessenen Elektron aus der Doppelionisation, einem gemessenen Elektron und einem Elektron aus

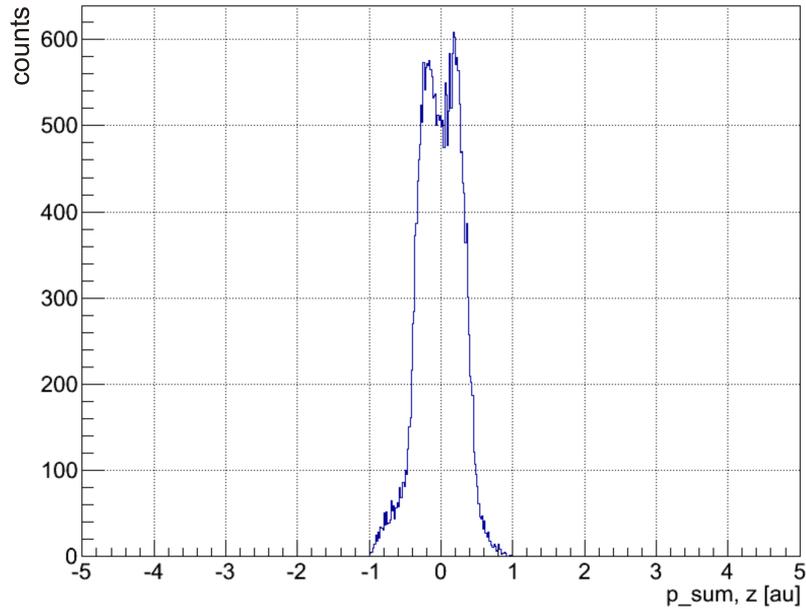


Abbildung 4.11: Projektion von Abb. 4.10 auf die Abszisse. Ordinatenbereich: -0,4 bis 0,4.

einer zufällig im gleichen Puls auftretenden Einfachionisation. Der zweite Summand repräsentiert zwei nicht gemessene Elektronen aus der Doppelionisation und zwei gemessene Elektronen aus zwei auftretenden Einfachionisationen im gleichen Puls. Der letzte Summand im Nenner ist der häufigste Fall, die Messung beider Elektronen aus der Einfachionisation. Es werden also knapp 5% falscher Koinzidenzen dieser Art erwartet.

In Abb. 4.11 ist die Projektion von 4.10 gezeigt. Man erkennt einen scharfen Knick bei etwa -0,5 a. u. und bei 0,5 a. u.. Insgesamt sind 27305 Counts im Diagramm zu sehen, von denen etwa 1700 außerhalb des genannten Intervalls liegen. Mit der Annahme eines gaußartigen Untergrunds ergeben sich damit etwa 7000 falsche Koinzidenzen.

Das entspricht 25,6% und kann somit nicht mit falschen Koinzidenzen der oben diskutierten Art erklärt werden. Daher müssen zusätzlich in der Kammer Elektronen erzeugt worden sein. Die Restgas-Rate von 6 kHz Elektronen ist im Vergleich zu 0,8 kHz Ionen stark erhöht. Dadurch liegt der Schluss nahe, dass der Laserstrahl in der Kammer entweder direkt oder durch Reflexion innerhalb des Spektrometers teilweise zum Beispiel auf eine Kupferplatte stößt und dort Elektronen auslöst, die nicht aus der Ionisation von Argon oder Restgas stammen.

In Abb. 4.12 ist zur Kontrolle die Einfachionisation dargestellt. Zu sehen ist eine Projektion der Impulserhaltung in Flugzeitrichtung für die Einfachionisation. In diesem Fall lässt sich die Zahl der falschen Koinzidenzen relativ genau abschätzen, wenn der Untergrund als symmetrisch angenommen wird. Hier ergibt sich ein Anteil falscher Koinzidenzen von etwa 20%. Wie in der Doppelionisation liegt der Wert über den angenommenen 10%, die sich aus der reinen

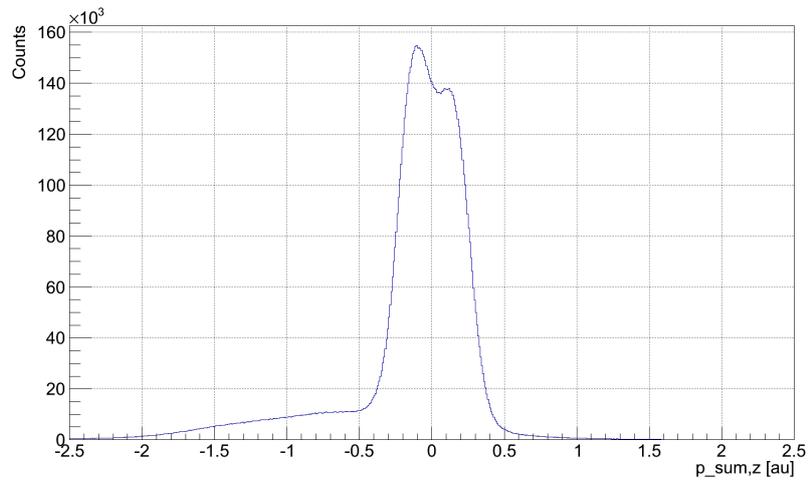


Abbildung 4.12: Projektion der Impulserhaltung in Flugzeitrichtung für die Einfachionisation. Abszisse: $p_e + p_{Ar^+}$, Ordinate: Counts.

Elektronenrate ergibt. Bei 10 kHz Elektronen und einer Laser-Repetitionsrate von 100 kHz sollten falsche Koinzidenzen nicht häufiger vorkommen als deren Quotient. Warum dies trotzdem der Fall ist, konnte nicht geklärt werden.

Kapitel 5

Ergebnisse und Schlussfolgerungen

Dieses Kapitel beschäftigt sich mit der physikalischen Interpretation der Daten. Es wird ein Erklärungsversuch für die beobachteten Effekte geliefert und aufgezeigt, in welchen Grenzen dieses vorgeschlagene Modell gültig ist bzw. welche Fragen offen bleiben.

5.0.1 Intensitätseichung

Besonders wichtig für das Verständnis des Experiments ist die genaue Bestimmung der Intensität der Laserpulse. Dafür stehen prinzipiell einige verschiedene Hilfsmittel zur Verfügung ([Mec11]):

1. Mit den Laserparametern aus 3.2.4 folgt theoretisch eine Obergrenze für die Intensität von $I = 1,33 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$.
2. Die Ar^+ -Impulsverteilung kann mit einer Gaußkurve angenähert werden. Die daraus ablesbare Breite der Verteilung ist abhängig von der Intensität.
3. Elektronen können im Laserfeld direkt maximal $2 \cdot U_p$ Energie aufnehmen, zurückgestreute Elektronen bis zu $10 \cdot U_p$. Das führt zu einem Abfallen des Elektronenenergiespektrums bei $2 \cdot U_p$, einem folgenden Plateau und einem Cutoff bei $10 \cdot U_p$.
4. Mit zirkular polarisiertem Laserlicht wird eine Impulsverteilung für Elektronen generiert, die einem Ring ähnelt (auch "Donut" genannt). Wird diese Verteilung auf den Elektronendetektor projiziert, resultiert eine zweidimensionale Verteilung, deren Breite den Durchmesser des "Donuts" repräsentiert, der wiederum mit der Intensität des Lasers skaliert.

2. Methode

Die folgenden Ausführungen beziehen sich auf die Impulsverteilung der Elektronen. Die Breite dieser Verteilung ist jedoch aufgrund der ATI-Peaks und

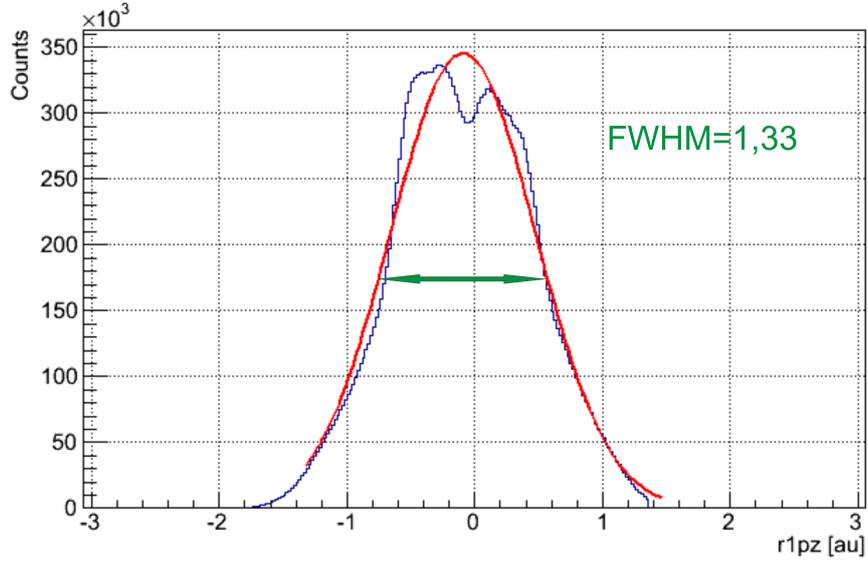


Abbildung 5.1: Fit einer Gauß-Funktion an die Ar^+ -Impulsverteilung in Polarisationsrichtung des Lasers. Grüner Pfeil: Breite beim halben Maximum (FWHM).

des Effekts der elektrostatischen Linse nur ungenau bestimmbar. Da in einem Einfachionisations-Ereignis die Impulserhaltung erfüllt sein muss, kann die Breite der Verteilung aber auch mit den Ionenimpulsen bestimmt werden.

Die Impulsverteilung der Elektronen in der ADK-Theorie ist gegeben durch [DK91]

$$\Gamma(p_{\parallel}, p_{\perp}) = \Gamma_0 \cdot \exp\left[-\frac{1}{3}p_{\parallel}^2\omega^2\left(\frac{\sqrt{2I_p}}{E}\right)^3 - p_{\perp}^2\frac{\sqrt{2I_p}}{E}\right], \quad (5.1)$$

wobei

$$\Gamma_0 = \frac{p\omega^2 D^2}{8\pi^3 n^* E} \exp\left(-\frac{2(2I_p)^{3/2}}{3E}\right) \quad (5.2)$$

sowie

$$n^* = \frac{Z}{\sqrt{2I_p}} \quad (5.3)$$

und

$$D = \left(\frac{4q_e Z^3}{E n^{*4}} \right)^{n^*}. \quad (5.4)$$

E ist das maximale elektrische Feld des Lasers, I_p das Ionisationspotential, Z der Ladungszustand des Ions, p_{\parallel} die Impulskomponente des Elektrons in Richtung der Laserpolarisation, p_{\perp} die Impulskomponente senkrecht dazu. In Glg. 5.1 ist auch die Wechselwirkung des Elektrons mit dem Laserfeld nach der Tunnelionisation eingeschlossen. Somit erlaubt sie eine Aussage über die gemessenen Impulse nach dem Laserpuls.

Wird die Impulsverteilung der Elektronen in Richtung des Laserfeldes (p_{\parallel}) betrachtet, ist für diese eine Breite ablesbar. Da p_{\perp} durch den Laserpuls und auch durch das elektrische Feld des Spektrometers nicht verändert wird, ist der zweite Summand im Argument der Exponentialfunktion in Glg. 5.1 konstant und führt damit zu keiner Verbreiterung der Verteilung. Durch einen Vergleich mit der Gauß-Verteilung

$$x(p_{\parallel}) = a \cdot e^{-\frac{p_{\parallel}^2}{2\sigma_{\parallel}^2}} \quad (5.5)$$

ist erkennbar, dass

$$\frac{\omega^2 \sqrt{2I_P}^3}{3E^3} = \frac{1}{2\sigma_{\parallel}^2}. \quad (5.6)$$

Somit gilt

$$E_0 = \sqrt[3]{\frac{2}{3} \sigma_{\parallel}^2 \omega^2} \cdot \sqrt{2I_P}. \quad (5.7)$$

Für Laserlicht mit einer Wellenlänge von 400 nm gilt

$$I\left[\frac{W}{cm^2}\right] \approx 2,1855 \cdot 10^{13} \cdot I_P[eV] \cdot (FWHM_{\parallel}[a.u.]^{4/3}, \quad (5.8)$$

womit im Fall von Argon mit $I_P = 15,7$ eV und - wie Abb. 5.1 zu entnehmen ist - einer Breite bei halber Höhe des Maximums von 1,33 a. u. für die Intensität folgt

$$I\left[\frac{W}{cm^2}\right] \approx 2,1855 \cdot 10^{13} \cdot 15,7 eV \cdot 1,33 a.u. = 4,6 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}. \quad (5.9)$$

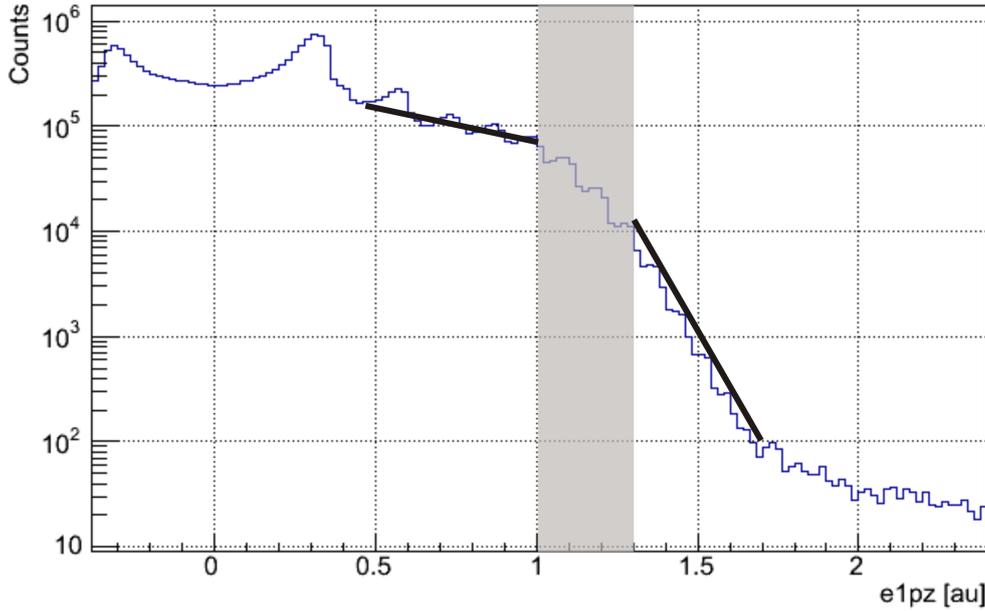


Abbildung 5.2: Elektronenimpuls in Polarisationsrichtung mit deutlichem Abfall bei 1-1,3 a. u. . Schwarz eingezeichnet sind die Steigungen im jeweiligen Abschnitt. Im grau hinterlegten Bereich beginnt der Abfall.

3. Methode

Wie bereits erwähnt, liegt eine weitere Möglichkeit der Intensitätseichung in der Identifikation des $2 \cdot U_p$ -Abfalls im Elektronenimpulsspektrum. Der größte Teil des Elektronenimpulses steckt in der Komponente in Flugzeitrichtung, da die Polarisation des Lasers diese Richtung hat. In Abb. 5.2 ist etwa zwischen 1 a. u. und 1,3 a. u. der Abfall zu erkennen. Das entspricht einer Energie von 0,5-0,845 a. u., also 13,6-23 eV. Somit gilt $U_p = 6,8-11,5$ eV. Mit [Mec11]

$$U_p = \frac{I}{\omega^2} \cdot \frac{q_e^2}{2m_e \epsilon_0 c} \quad (5.10)$$

gilt

$$I [10^{12} \frac{W}{cm^2}] = \frac{U_p [eV]}{9,3375 \cdot 10^{-8} \cdot (\lambda [nm]^2)}. \quad (5.11)$$

Über diesen Weg folgt

$$I = 4,5 - 8 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}. \quad (5.12)$$

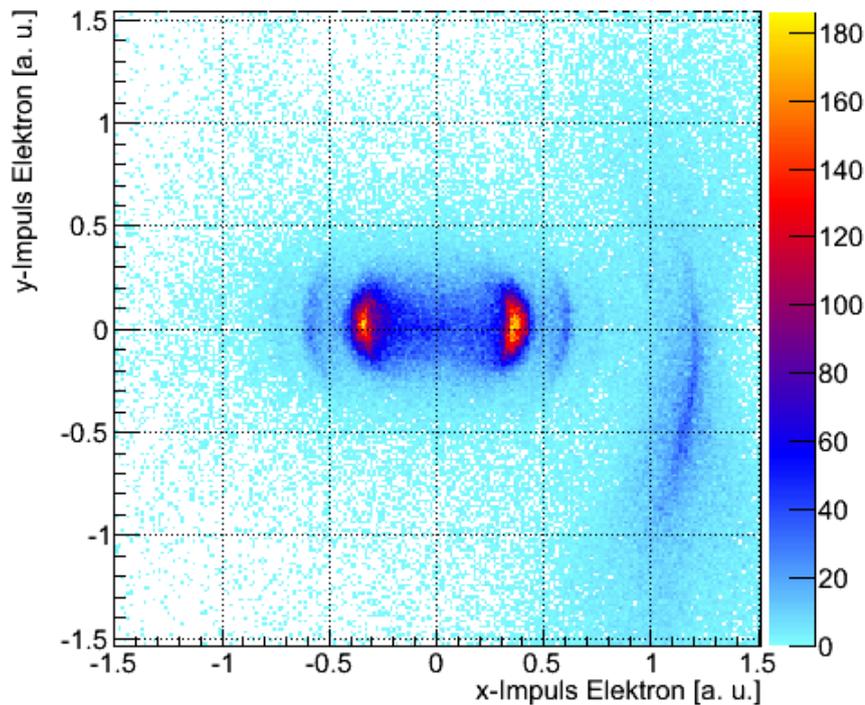


Abbildung 5.3: Elektronenimpuls-Verteilung für zirkulares Laserlicht. Projektion des Elektronenimpulses auf die Detektorebene x-y.

4. Methode

Die vierte Möglichkeit zur Intensitätsbestimmung ist die Verwendung von zirkular polarisiertem Laserlicht [Sta05]. Diese war allerdings nicht durchführbar, da die durch ATI-Peaks entstehenden Kreisringe im Impulsraum zu weit voneinander getrennt sind, um eine Schwerpunktbildung zu ermöglichen (siehe Abb. 5.3 und 5.4).

Schlussfolgerung

Die anwendbaren Methoden haben konsistent eine Intensität von $4,5\text{-}8 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ geliefert. Diese liegt deutlich unter der bestimmten Maximalintensität eines perfekt gauß'schen Strahls von $I = 1,33 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$ und ist daher auch physikalisch plausibel.

5.0.2 Bestätigung für nichtsequentielle Ionisation

Wie im theoretischen Teil besprochen, tritt NSDI nur in einem bestimmten Intensitätsbereich auf. In Abb. 2.15 ist das der Bereich unterhalb des Knie-artigen Abschnitts. Um zu gewährleisten, dass die Messung in diesem Intensitätsintervall stattfand, ist in Abb. 5.5 das $\frac{Ar^{2+}}{Ar^+}$ -Verhältnis für verschiedene Laserleistungen aufgetragen. Dies wurde für 400 nm-Pulse bisher noch nicht dokumentiert,

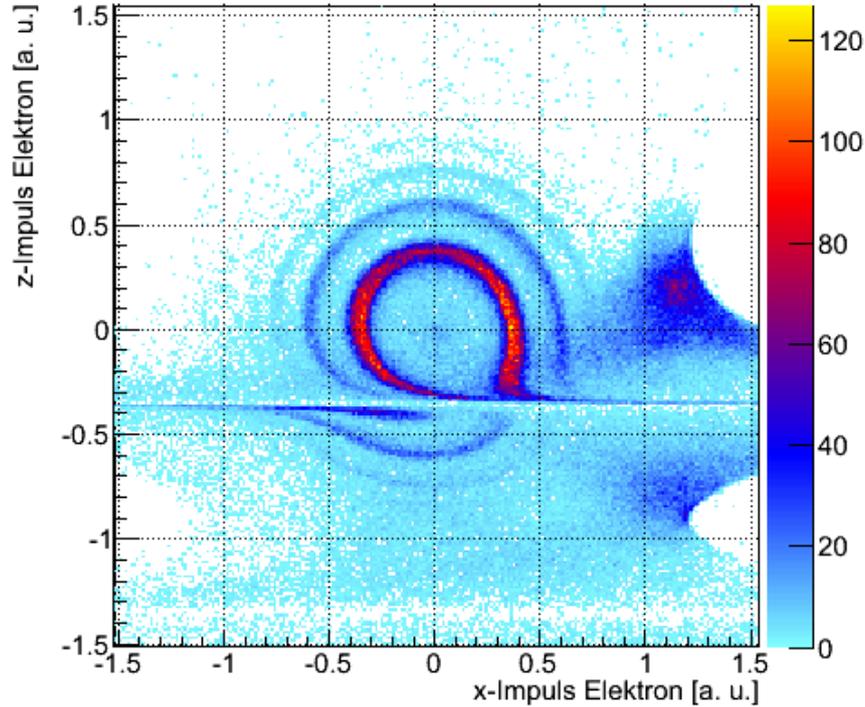


Abbildung 5.4: Elektronenimpuls-Verteilung für zirkulares Laserlicht. Projektion des Elektronenimpulses auf x-z Ebene (z: Flugzeitrichtung).

wodurch keine Vergleichswerte vorhanden sind. Das Knie ist relativ gut daran zu erkennen, dass kein exponentieller Anstieg des $\frac{Ar^{2+}}{Ar^+}$ -Verhältnisses mit der Laserleistung stattfindet, sondern ein Plateau existiert. Dieses liegt im vorliegenden Fall etwa zwischen 400 mW und 600 mW. Bei kleineren Leistungen dominiert NSDI. Da die Messung mit 345 mW durchgeführt wurde, kann mit hoher Sicherheit von nicht-sequentieller Doppelionisation ausgegangen werden. Dies wird im Folgenden durch zwei weitere Beobachtungen unterstützt. Erstens wird eine starke Elliptizitätsabhängigkeit der Doppelionisation beobachtet (Kap. 5.0.3) und zweitens liegen die ATI-Peaks, die für Doppelionisation gefunden werden, bei einer anderen Energie als die aus der Einfachionisation (Kap. 5.0.4).

5.0.3 Hinweis auf Recollision

Der zu untersuchende nicht-sequentielle Prozess, der zur Doppelionisation führt, ist die Recollision (siehe 2.4.1). Ein deutlicher Hinweis für die Validität dieses Modells ist der starke Rückgang des Ar^{2+}/Ar^+ -Verhältnisses bei Verwendung von zirkularem Laserlicht. In diesem Fall gibt es keine Trajektorien des ersten ausgelösten Elektrons, die zum Kern zurückkehren, womit ein Stoß nicht möglich ist. Um das zu überprüfen, wurden Laserpulse verschiedener Elliptizität verwendet und die Verhältnisse der Ladungszustände der Ionen bestimmt. Ver-

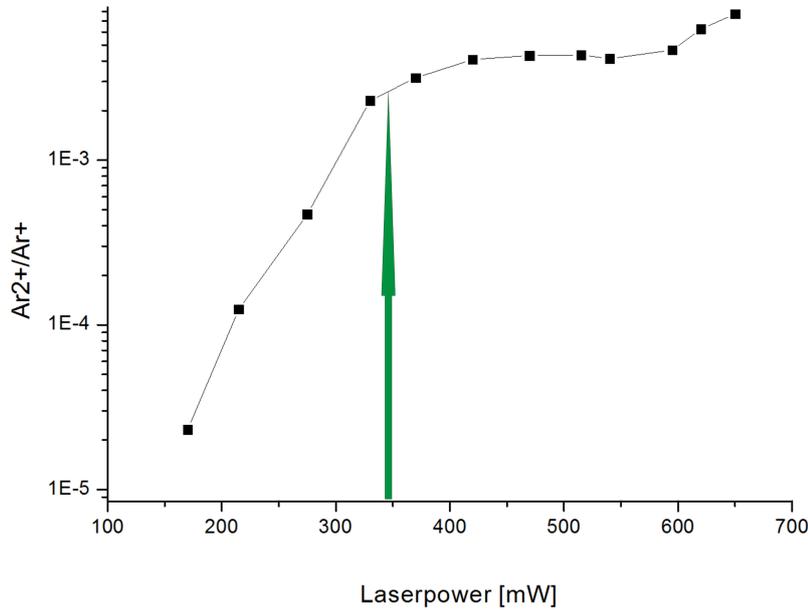


Abbildung 5.5: Ionisationsraten: Verhältnis der Doppelionisation zur Einfachionisation in Abhängigkeit von der Intensität. Grüner Pfeil: Intensität während der Messung

schiedene Elliptizitäten wurden mit der Einbringung einer $\lambda/4$ -Platte realisiert. Die Rohdaten zeigen eine gaußartige Verteilung, die nicht um eine Elliptizität von 0 verteilt, sondern um 9 Grad verschoben ist (Anmerkung: Die Elliptizität wurde mit $\epsilon = \tan(\phi \cdot \frac{\pi}{180})$ bestimmt, wobei ϕ der Winkel zwischen schneller Achse und Polarisationsrichtung ist). Während der Messung war daher die Polarisation des Lasers nicht exakt in Flugzeitrichtung orientiert, wie bisher angenommen. Näherungsweise kann diese Annahme jedoch aufrecht erhalten werden.

In den Abbildungen ?? und 5.7 sind die Abhängigkeiten der Ar^+ - bzw. Ar^{2+} -Rate sowie des Ar^{2+}/Ar^+ -Ionisationsverhältnisses mit korrigiertem Nullpunkt dargestellt. Hier ist zu erkennen, dass bei höherer Elliptizität die Doppelionisationswahrscheinlichkeit niedriger wird, während andere experimentelle Parameter unverändert bleiben. Das ist ein sehr starkes Indiz für Recollision, welche mit zirkularem Licht ausgeschaltet werden kann. Die Breite der Verteilung entspricht mit $\pm 0,25$ etwa den in der Literatur für 800 nm für Doppelionisation und HHG (High-Harmonic-Generation) berichteten Werten [DBIC94].

Der leichte Abfall im Maximum der Verteilungen ist aufgrund der kleinen Fehlerbalken im Diagramm der Ar^+ -Rate wahrscheinlich kein statistischer Effekt sondern ein physikalischer. Die Frage nach dem Grund dieses Effekts kann im Rahmen dieser Arbeit leider nicht geklärt werden.

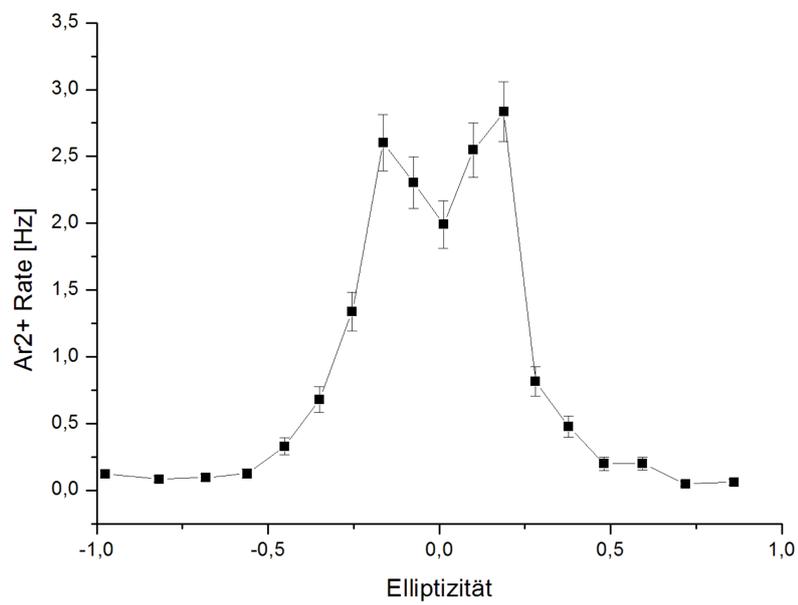
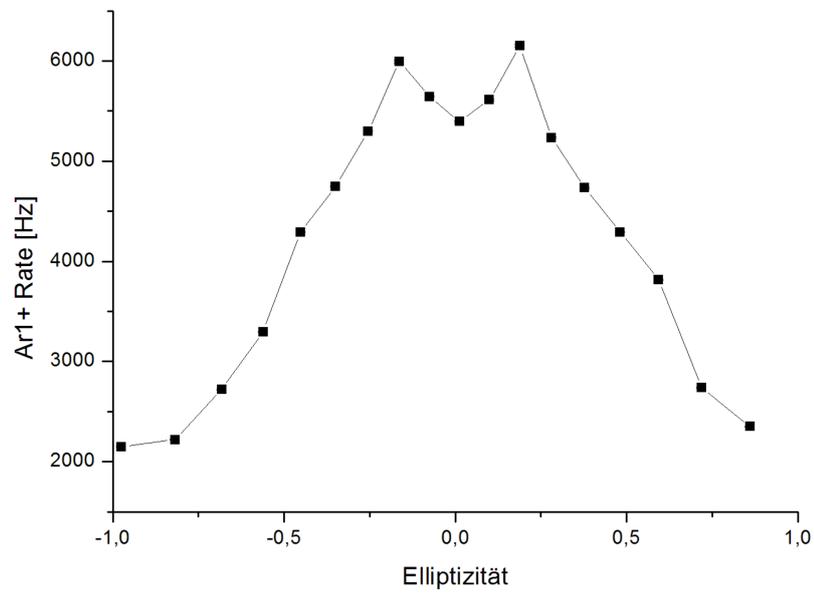


Abbildung 5.6: Abhängigkeit der Rate von der Elliptizität des Laser-Lichts. Oben: Ar^+ -Rate, unten: Ar^{2+} -Rate.

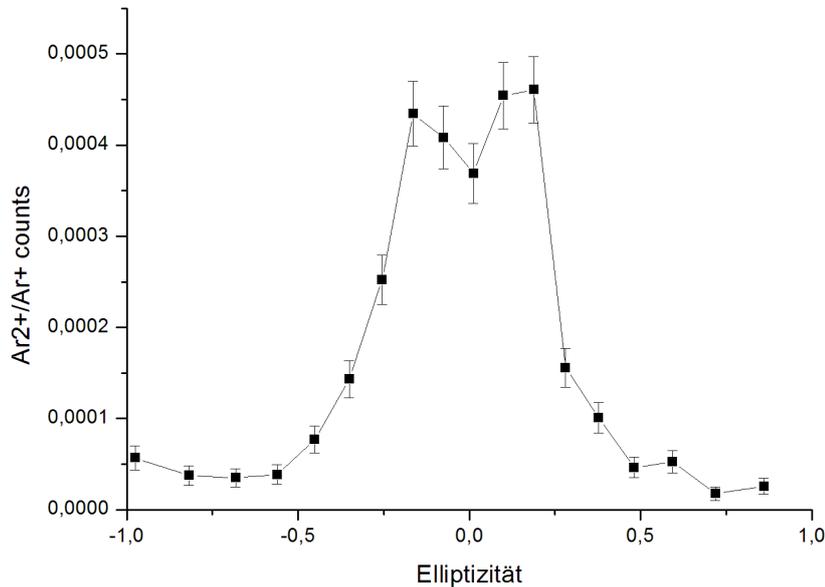


Abbildung 5.7: Abhängigkeit des Ar^{2+}/Ar^{+} -Verhältnisses von der Elliptizität des Laser-Lichts.

5.0.4 Einzel-Elektronen-Energien

Einfachionisation

Um Aussagen über mögliche falsche Koinzidenzen treffen zu können, ist es wichtig, Informationen über Elektronen zu erhalten, die aus der viel stärkeren Einfachionisation stammen. Sollten bei der Doppelionisation Peaks in der Elektronenenergieverteilung sichtbar sein, können diese mit den ATI-Peaks aus der Einfachionisation verglichen werden. Deshalb wird die Einfachionisation in Abb. 5.8 untersucht.

Gut zu sehen sind die äquidistanten Peaks bei etwa 2 eV, 5 eV, 8 eV, 11 eV. Weitere Peaks sind bei 14 eV und 17 eV angedeutet. Die Energiedifferenzen entsprechen in etwa der Photonenenergie von 3,14 eV.

Außerdem ist das Einfachionisations-ATI-Spektrum eine weitere Möglichkeit, U_p zu bestimmen und damit die Intensität zu eichen. Da das ponderomotorische Potential eine Erhöhung der Ionisationsenergie um U_p zur Folge hat, verschieben sich die ATI-Peaks um diesen Wert im gezeigten Diagramm nach links.

Mit einer Photonenenergie von $E = 3,14$ eV addieren sich 5 Photonen zu 15,7 eV, was etwa der Ionisationsenergie von neutralem Argon von $I_p = 15,76$ eV entspricht. Somit sollten die ATI-Peaks ohne ponderomotorische Verschiebung bei ganzzahligen Vielfachen der Photonenenergie liegen, also bei 3,14 eV, 6,28 eV usw. Aus der tatsächlichen Lage der Peaks ergibt sich daher eine Verschiebung um etwa 1,52 eV. Allerdings ist diese nicht von einer 4,66 eV- oder

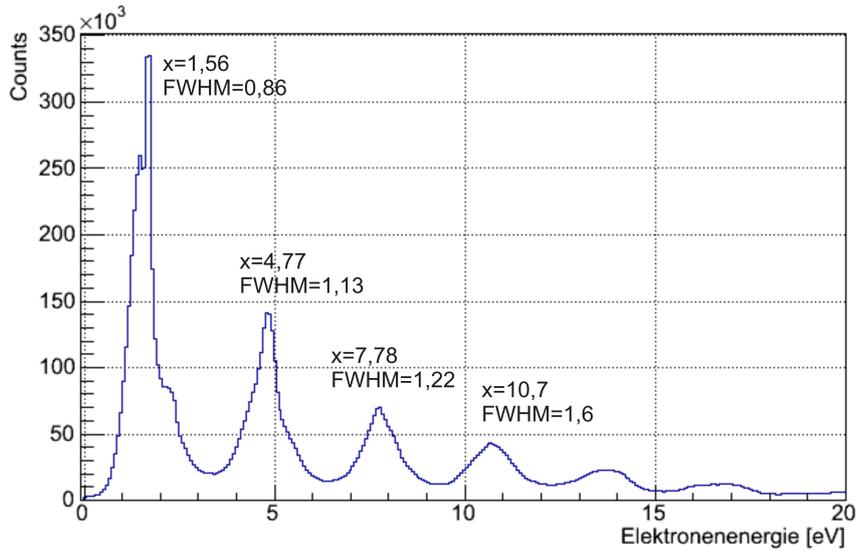


Abbildung 5.8: Elektronenenergie für Ar^+ . (Abszisse) Elektronenenergie, (Ordinate) Zählrate. Gut erkennbar sind ATI-Peaks u.a. bei etwa 2 eV, 5 eV und 8 eV. Die ersten vier Peaks sind mit exakten Werten (Lage und Breite) versehen.

7,8 eV-Verschiebung zu unterscheiden, da die ATI-Peaks durch ihre 3,14 eV-Periode an der gleichen Stelle liegen würden. Letztendlich bleiben - nach grober Abschätzung - ponderomotorische Potentiale von $U_p = 1,52$ eV, 4,66 eV, 7,8 eV, 10,94 eV und 14,08 eV möglich. Höhere Werte sind nicht sinnvoll, da sie Intensitäten entsprechen würden, die über die der 800 nm-Pulse des Lasers hinaus gehen. Genaue Rechnungen finden sich in Tabelle 5.1.

Diese Werte sind weiter einschränkbar durch Betrachtung der Winkelverteilungen der ATI-Peaks. Diese geben Aufschluss über den Drehimpuls der Elektronen. Bei der Einfachionisation von Argon werden am wahrscheinlichsten p-Elektronen ins Kontinuum befördert, für die Drehimpulsquantenzahl gilt somit $l=1$. Jedes aufgenommene Photon addiert zusätzlich $l=1$. Aus der gemessenen Winkelverteilung (Abb. 5.10) kann der Drehimpuls im Endzustand bestimmt werden, also ob die Drehimpulsquantenzahl gerade oder ungerade ist. Für gerade l existiert für 90 Grad-Emission ein Maximum, für ungerade l ein Minimum. In den Winkelverteilungen ist klar zu sehen, dass nur der zweite ATI-Peak ein Maximum bei 90 Grad ($\cos(\Theta=0)$) besitzt, die beiden anderen dagegen ein Minimum. Für Elektronen des zweiten ATI-Peaks ist l somit gerade. Es wurde also eine ungerade Zahl an Elektronen absorbiert. Mit einer ponderomotorischen Verschiebung von $U_p = 1,52$ eV ist dieser zweite ATI-Peak aus Abb. 5.9 mit einer Ionisation durch eine ungerade Zahl von 7 Photonen erklärbar, bleibt also konsistent mit den Beobachtungen. Mit $U_p = 4,66$ eV ist der zweite ATI-Peak nur mit einer geraden Zahl von 6 Photonen zu erreichen; die Beobach-

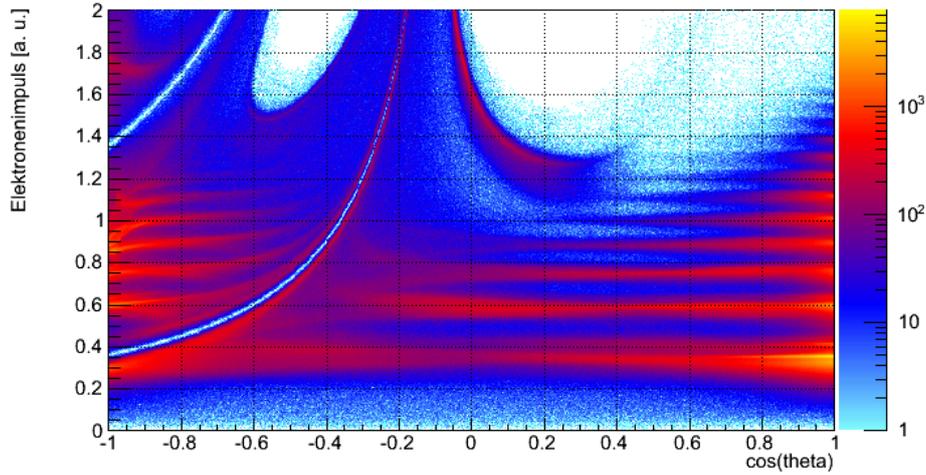


Abbildung 5.9: $\cos(\Theta)$ gegen Elektronenimpuls. Siehe Abb. 4.2.8 zur Definition von Θ

tungen sind bei dieser ponderomotorischen Verschiebung also nicht konsistent. Daher bleiben $U_p = 1,52$ eV, $7,8$ eV und $14,08$ eV als potentielle Kandidaten übrig. Dies entspricht Intensitäten von $I = 1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$, $5,1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ bzw. $9,3 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$. Die kleinste mögliche Intensität ist zu gering für Doppelionisation und passt auch bei Weitem nicht zu den auf anderen Wegen bestimmten Intensitäten. Die größte Intensität liegt dagegen zu nah an der bestimmten Maximalgrenze eines perfekt gauß'schen Strahls und ist nicht konsistent mit den ermittelten Intensitäten aus 3.2.4 und kann dadurch verworfen werden. Daher wird die Intensität mit $I \approx 5,1 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ angenommen, was $U_p = 7,8$ entspricht.

Doppelionisation

Auch in der Doppelionisation (Abb. 5.11) sind deutliche Peaks auf dem Energiespektrum der einzelnen Elektronen erkennbar, die allerdings nicht ganz so stark ausgeprägt sind wie in der Einfachionisation. Im Gegensatz zur Einfachionisation liegen die Peaks hier bei etwa $1,5$ eV, 4 eV, 7 eV, 10 eV und 13 eV. Bei 1 eV und 4 eV sind falsche Koinzidenzen aus der Einfachionisation zu sehen. Jedoch liegen die anderen, dominierenden Peaks deutlich von denen der Einfachionisation entfernt. Dadurch können falsche Koinzidenzen mit Elektronen aus der Einfachionisation für diese Peaks mit großer Sicherheit ausgeschlossen werden.

Außerdem bestätigt dieses Spektrum, dass es sich nicht um sequentielle Doppelionisation handelt. In diesem Fall hätte eines der beiden Elektronen die Verteilung aus der Einfachionisation.

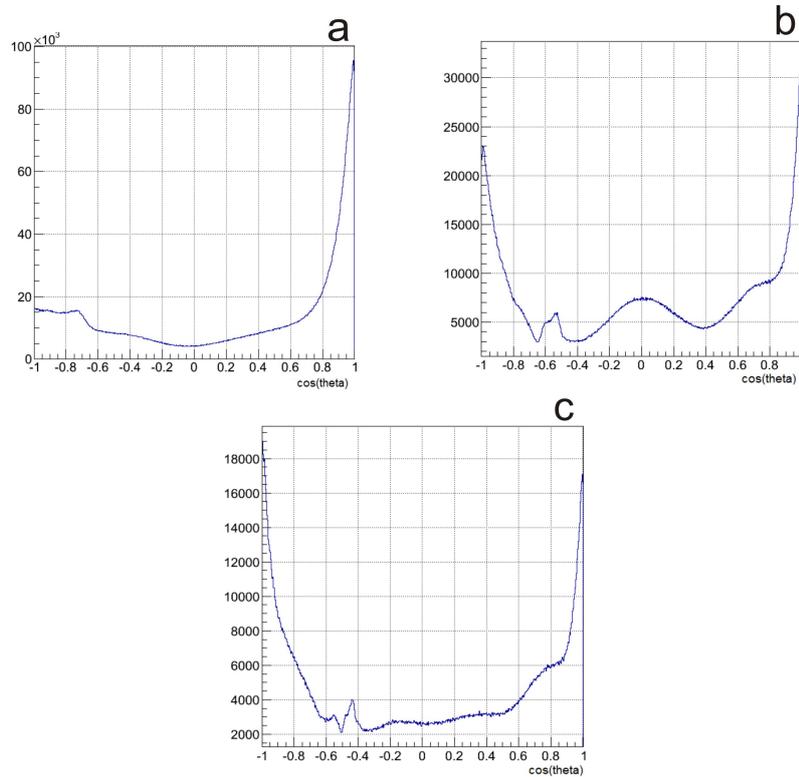


Abbildung 5.10: Winkelverteilungen der ATI-Peaks aus Abb. 5.9. (a) erster, (b) zweiter, (c) dritter sichtbarer ATI-Peak. Die Polarisation des Lasers in Flugzeitrichtung führt zu einem ausgeprägten Maximum bei +1.

Schlussfolgerung

Bei einer NSDI, die vornehmlich durch direkte Recollision-Ionisation stattfindet, sollten die Einzelelektronen ein kontinuierliches Spektrum zeigen. Die Energie des ersten, durch Tunnelionisation ausgelösten Elektrons sollte wie ein Elektron aus der Einfachionisation ATI-Peaks aufweisen. Durch die Coulombwechselwirkung bei der Kollision mit dem zweiten Elektron sollten diese ATI-Peaks jedoch verschwinden, weil der Energieübertrag bei dieser Wechselwirkung nicht gequantelt ist. Da jedoch Peaks beobachtet werden, kann ein reines Recollision-Modell die gemessenen Daten in diesem Intensitätsbereich nicht erklären.

5.0.5 Elektronensummenenergie

Die Gesamtenergie der beiden Elektronen aus der Doppelionisation entspricht einem ATI-Spektrum, welches um einen konstanten Energiebetrag verschoben ist, unabhängig davon, wie diese Energie auf beide Elektronen aufgeteilt ist. Das folgt aus der gequantelten Energieaufnahme aus dem Lichtpuls und dem konstanten Energieaufwand für die Ionisation der beiden Elektronen.

Diese Voraussage wurde im vorliegenden Experiment tatsächlich bestätigt, wie Abb. 5.12 zu entnehmen ist. Die Summenenergie der Elektronen weist offensichtlich Peaks auf, die bei Energien 2 eV, 5 eV, 8 eV, 11 eV und 14 eV liegen.

n	l [\hbar]	$E_{ges,multi}$ [eV]	U_p [eV]	I [$\frac{W}{cm^2}$]
6	7	18,84	1,52	$1 \cdot 10^{14}$
7	8	21,98	4,66	$3,1 \cdot 10^{14}$
8	9	25,12	7,8	$5,1 \cdot 10^{14}$
9	10	28,26	10,94	$7,2 \cdot 10^{14}$
10	11	31,4	14,08	$9,3 \cdot 10^{14}$

Tabelle 5.1: Rechnung für verschiedene Anzahlen an Photonen, die durch Multiphoton-Ionisation für den ersten Peak aus Abb. 5.8 verantwortlich sind. n: Anzahl Photonen, l: Drehimpuls des ausgelösten Elektrons, $E_{ges,multi}$: Gesamtenergie der beteiligten Photonen, U_p : resultierendes ponderomotorisches Potential.

Auch hier entspricht die Energiedifferenz der Peaks der Photonenenergie.

5.0.6 Energiebetrachtung im Recollision(e, 2e)-Modell

Ionisation durch einen Laserpuls tritt nur auf, wenn die Energie, die während des Pulses übertragen wird, größer als die Ionisationsenergie ist. Gleiches gilt auch für die Doppelionisation durch direkte Recollision: Die kinetische Energie des zurückgestreuten Elektrons muss ausreichen, um die Bindungsenergie des Elektrons zu überwinden. Während einer halben Periode des Feldes kann das Elektron maximal eine kinetische Energie von $E=3,17 \cdot U_p$ erhalten [LYL⁺10]. Daher muss

$$3,17 \cdot U_p \geq I_{p,2.elektron} + U_p \quad (5.13)$$

gelten, damit die direkte Recollision-Ionisation energetisch erlaubt ist. Mit einem Ionisationspotential für das gebundene Elektron im einfach ionisierten Argon von $I_p = 27,63$ eV folgt

$$U_p \geq 12,76 \text{ eV}. \quad (5.14)$$

Dies entspricht einer Intensität von etwa $I = 8,5 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$. Da die Intensitäts-eichung kleinere Intensitäten geliefert hat, kann direkte Recollision-Ionisation als dominierender Mechanismus an dieser Stelle aus energetischen Gründen verworfen werden. Somit muss vornehmlich ein anderer Mechanismus für die erhöhte Doppelionisationsrate verantwortlich sein.

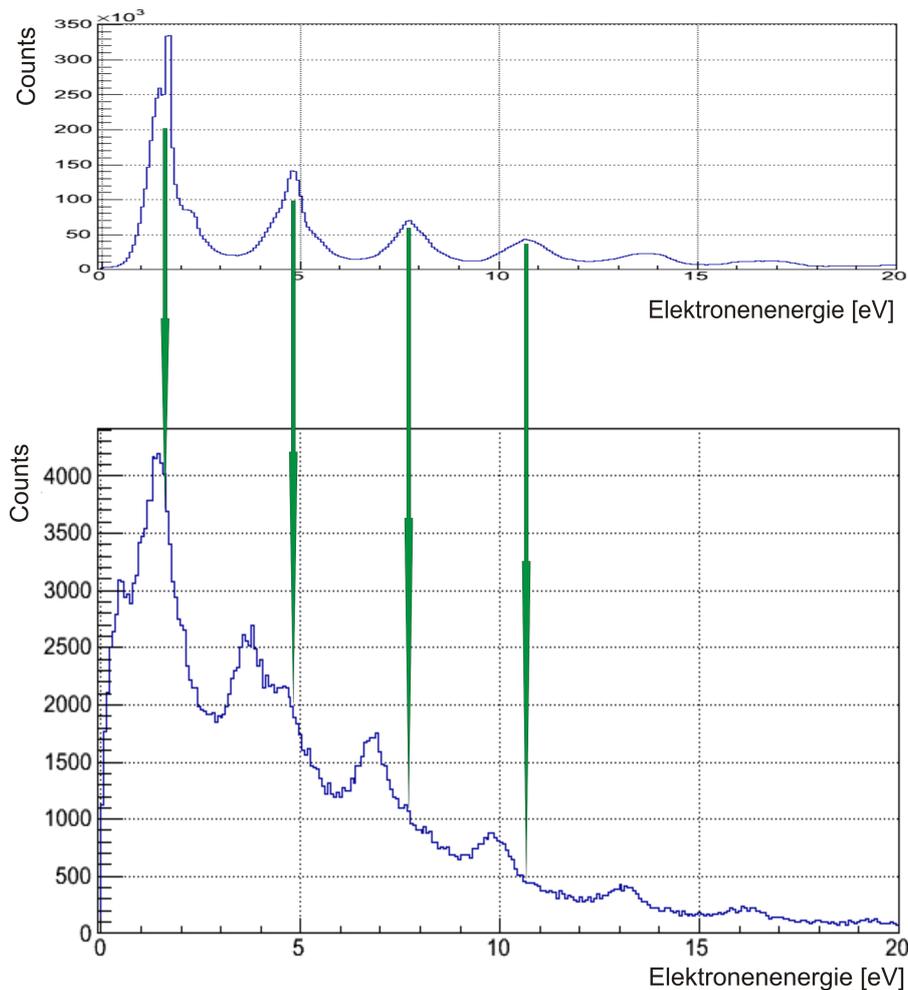


Abbildung 5.11: Unten: Elektronenenergie für Ar^{2+} . (Abszisse) Elektronenenergie, (Ordinate) Zählrate. ATI-Peaks sind u.a. bei 1,5 eV, 4 eV, 7 eV und 10 eV zu sehen. Oben: ATI-Peaks der Einfachionisation zum Vergleich.

5.0.7 Energiekorrelation

Vorüberlegungen

Um mehr über den verantwortlichen Prozess zu erfahren, ist es sinnvoll, die Energiekorrelation der beiden aus einem Doppelsonisationsereignis stammenden Elektronen zu betrachten. Hierzu ist - wie in Abbildung 5.13 dargestellt - die Energie des einen gegen die des anderen detektierten Elektrons aufgetragen. Dazu wurden gemessene Elektronen sowohl auf der x- als auch auf der y-Achse einsortiert, der Graph ist also symmetrisch zur Winkelhalbierenden und es gibt noch keine Unterscheidung zwischen erstem und zweitem Elektron. Für direkte Recollision-Ionisation werden Energieerhaltungsdiagonalen erwartet, da für eine bestimmte Zahl an Photonen, die das zurückstreuende Elektron bei der Wechselwirkung mit dem Feld absorbiert hat, die Gesamtenergie des Elektronenpaares konstant ist. Durch die nicht quantisierte Coulombwechselwir-

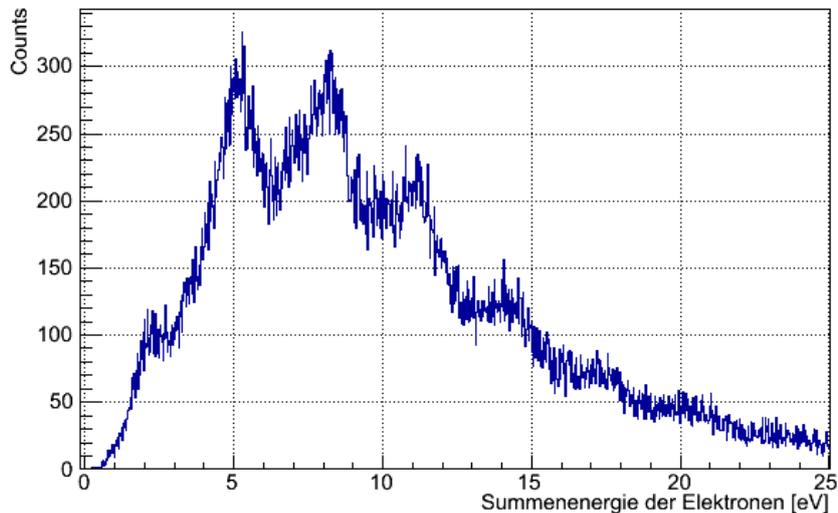


Abbildung 5.12: Energieerhaltung in der Doppelionisation. (Abszisse) Summenenergie der beiden Elektronen aus einem Doppelionisationsereignis, (Ordinate) Zählrate.

kung während des Stoßes wird diese Gesamtenergie kontinuierlich auf die beiden Elektronen aufgeteilt, was zu der erwarteten Diagonale führt.

Schlussfolgerungen

In Abb. 5.13 ist dies nicht zu erkennen. Vielmehr zeigen beide Elektronen unabhängig voneinander Quantisierungsstrukturen. Die intuitiv erste Erklärung für diesen Befund ist, dass es sich um sequentielle Doppelionisation handelt. Bei dieser tunneln beide Elektronen unabhängig voneinander, wodurch sie jeweils ATI-Peaks besitzen. Eine sequentielle Ionisation wurde bereits durch Verifikation des richtigen Intensitätsregimes sowie der nachgewiesenen Abhängigkeit von zirkularem Licht ausgeschlossen. Außerdem müsste dann eines der Elektronen jeweils an der Position der ATI-Peaks der Einfachionisation liegen, was nicht der Fall ist.

Bei RESI (siehe 2.4.2) entstehen allerdings beide Elektronen durch separate Tunnelionisationen. Das erste tunnelt aus dem Grundzustand ins Kontinuum und regt das zweite Elektron bei der Recollision an, wodurch dieses beim nächsten Feldmaximum des Lasers aus dem angeregten Niveau des ionisierten Argon-Atoms tunnelt.

Energiebetrachtung

Eine Betrachtung der Kontinuumsenergien liefert unter Vernachlässigung des Laserfeldes

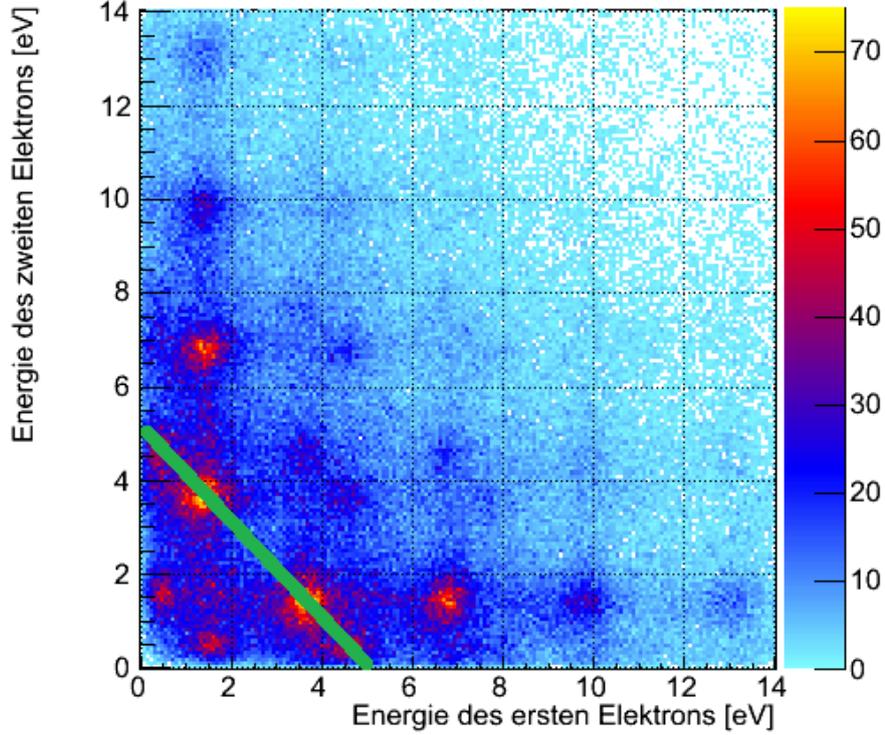


Abbildung 5.13: Energiekorrelation der beiden Elektronen aus Doppelionisationsereignissen. (Abszisse) Energie Elektron a, (Ordinate) Energie Elektron b. Erkennbar sind unabhängige Quantisierungsmuster für beide Energien. In grün ist eine erwartete Energieerhaltungs-Diagonale eingezeichnet.

$$E_{kin,e1} = nh\nu - I_{p,Ar} - U_p - E_{Ar^{+} \rightarrow Ar^{++}} = nh\nu - C_1, \quad (5.15)$$

wobei $E_{Ar^{+} \rightarrow Ar^{++}}$ die Anregungsenergie des zweiten Elektrons ist, sowie

$$E_{kin,e2} = mh\nu - I_{p,Ar^{++}} - U_p = mh\nu - C_2. \quad (5.16)$$

C_1 und C_2 sind Konstanten, die alle konstanten Energieterme zusammenfassen. Allgemein gilt $C_1 \neq C_2$ (außer für $I_{p,Ar^{++}} - I_{p,Ar} = E_{Ar^{+} \rightarrow Ar^{++}}$), $h\nu$ ist jedoch für beide Elektronen gleich. Daher ergeben sich unabhängige ATI-Spektren, deren Peaks zwar den gleichen Abstand haben, die aber gegeneinander um einen Offset $|C_1 - C_2|$ verschoben sind.

Beispielhaft wird der Peak bei etwa (0,5 eV | 1,5 eV) betrachtet. Dieser repräsentiert ein Doppelionisationsereignis, bei dem ein Elektron mit 0,5 eV und das

andere mit 1,5 eV Kontinuumsenergie ionisiert wurden. Wird - wie oben diskutiert - von unabhängigen ATI-Spektren für beide Elektronen ausgegangen, so müssen sowohl in Ordinaten- als auch Abszissen-Richtung im Abstand von einer Photonenenergie Peaks zu sehen sein. Dies ist offensichtlich der Fall und kann unabhängig in beide Richtungen fortgeführt werden. Da ATI-Peaks höherer Ordnung unwahrscheinlicher werden, verschwinden diese für hohe Energien aufgrund mangelnder Statistik. Der "inverse" Peak bei (0,5 eV | 1,5 eV) dient als Startpunkt für ein analoges Muster: In beide Achsenrichtungen finden sich Peaks mit einem Energieabstand von Vielfachen der Photonenenergie. Allein mit diesen beiden Startpunkten lassen sich mit der Annahme unabhängiger ATI-Spektren alle sichtbaren Peaks - abgesehen von (1,5 eV | 1,5 eV) - erklären.

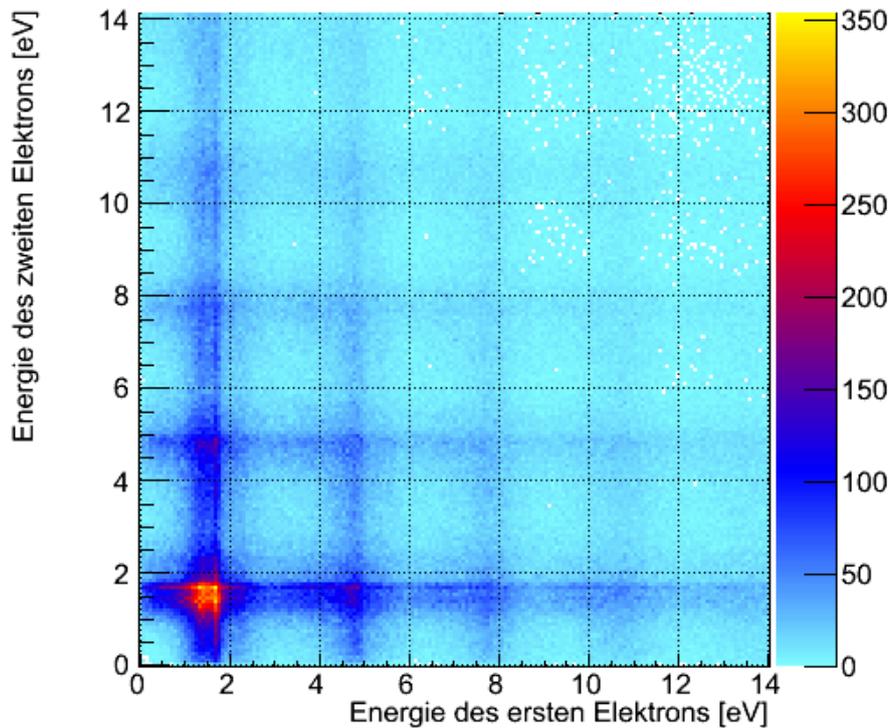


Abbildung 5.14: Eventmixing: Elektron eines Doppelionisationsereignisses und Elektron aus einem Einfachionisationsereignis; (Abszisse) Energie Elektron a, (Ordinate) Energie Elektron b.

Untergrund

Um auszuschließen, dass es sich um falsche Koinzidenzen von Elektronen aus einem Doppelionisationsereignis mit einem aus der Einfachionisation handelt, wurde ein sogenanntes Eventmixing durchgeführt. Ein Elektron aus der Ein-

fachionisation wurde mit einem Elektron aus der Doppelionisation in ein Histogramm gefüllt (Abb. 5.14). Damit erhält man ein gutes Verständnis für den Untergrund an falsch zugeordneten Elektronen. Dieser Untergrund wird anschließend von den Daten subtrahiert (5.15). Dabei wurde das Untergrundspektrum so normiert, dass im entstehenden Spektrum keine negativen Counts auftreten.

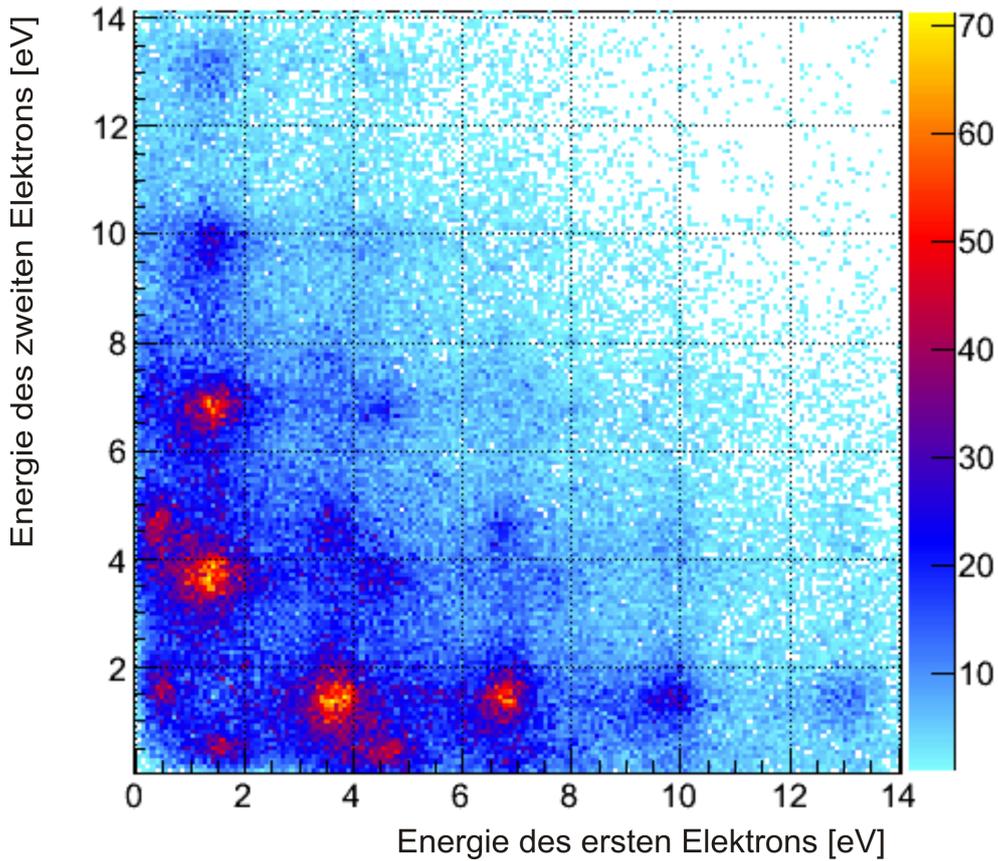


Abbildung 5.15: Von Untergrund bereinigte Energiekorrelation; (Abszisse) Energie Elektron a, (Ordinate) Energie Elektron b.

Der Peak bei (1,5 eV | 1,5 eV) verschwindet durch dieses Verfahren, die anderen bleiben erhalten. Es sind also vermutlich keine falschen Koinzidenzen für diese verantwortlich.

Identifikation des Endzustandes

Für die Summenenergie der Elektronen aus der Doppelionisation gilt

$$E_{kin,sum} = mh\nu - I_{Ar} - I_{Ar^+} - 2 \cdot U_p - E_{exc,Ar^{2+}}, \quad (5.17)$$

mit einer eventuellen Anregung von $E_{exc,Ar^{2+}}$, für die Energie der einzelnen Elektronen aus der Einfachionisation dagegen

$$E_{kin,einzel} = nh\nu - I_{Ar} - U_p. \quad (5.18)$$

Um die Betrachtungen unabhängig von U_p zu machen, wird Glg. 5.18 mit 2 multipliziert und anschließend Glg. 5.17 davon subtrahiert. Es folgt

$$\begin{aligned} 2 \cdot E_{kin,einzel} - E_{kin,sum} &= (2n - m)h\nu - 2 \cdot I_{Ar} + I_{Ar} + I_{Ar^+} + E_{exc,Ar^{2+}} = \\ &= (2n - m)h\nu - I_{Ar} + I_{Ar^+} + E_{exc,Ar^{2+}}. \end{aligned} \quad (5.19)$$

Mit $I_{Ar}=15,76$ eV, $I_{Ar^+}=27,63$ eV, $n=8$ und den jeweils ersten Peaks des Elektronenenergie-Spektrums der Einfachionisation bei $E_{kin,einzel}=1,56$ eV sowie der Summenenergie der Doppelionisation bei $E_{kin,sum}=2$ eV ergibt sich

$$-10,75\text{eV} - E_{exc,Ar^{2+}} = (16 - m)h\nu. \quad (5.20)$$

Physikalisch sinnvoll ist diese Gleichung nur zu lösen mit $E_{exc,Ar^{2+}}=1,73$ eV und $h\nu=3,12$ eV sowie $m=20$. Damit folgt aber, dass Ar^{2+} bevorzugt im Endzustand $3s^23p^4(^1D)$ erzeugt wird.

Zwischenzustand

Es bleibt jedoch mindestens eine wichtige Frage offen: Welcher Zustand wird bei der Recollision angeregt?

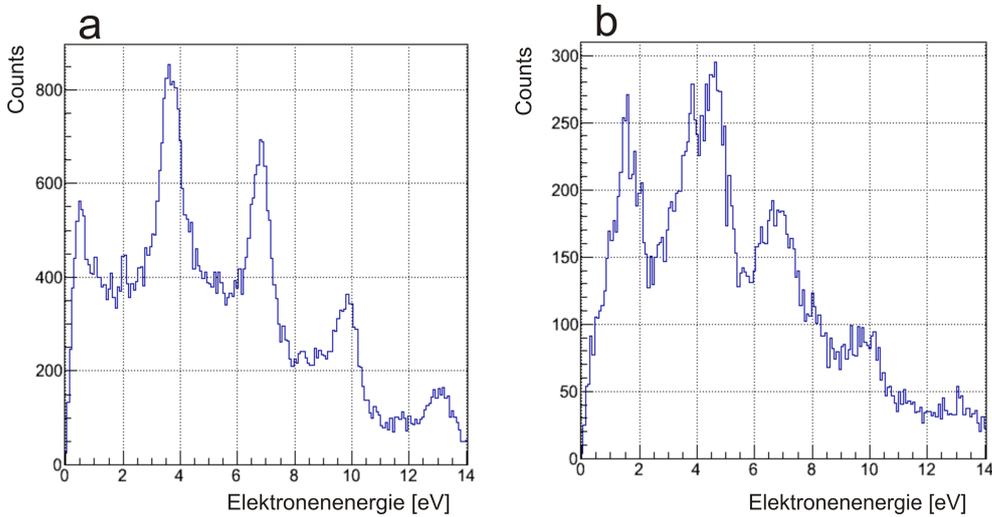


Abbildung 5.16: Projektionen der ATI-Spektren aus Abb. 5.15; (a) oberes ATI-Spektrum um $e2e=1,5$ eV, (b) unteres ATI-Spektrum um $e2e=0,5$ eV

Abb. 5.16 sind die beiden verschobenen ATI-Spektren zu entnehmen. Der jeweilige Vergleichswert ergibt sich aus der Lage des ersten Peaks und beträgt

0,6 eV bzw. 1,6 eV. Mit einer in 5.0.7 bestimmten Photonenenergie von 3,12 eV, einer Intensität von $5,1(\pm 0,1) \cdot \frac{W}{cm^2}$ und dem Endzustand $3s^23p^4(^1D)$ passen nur die Zwischenzustände (a) $3s^23p^4(^1D)4s$ (2D), (b) $3s^23p^4(^3P)3d$ (2D) und (c) $3s^23p^4(^1D)3d$ (2P) zu den gemessenen ATI-Spektren. Jedoch ist der Endzustand $3s^23p^4(^1D)$ nur mit (a) oder (c) zu erreichen, da das angeregte Elektron mit einer viel höheren Wahrscheinlichkeit tunnelionisiert wird.

5.0.8 Verschiebung der ATI-Spektren

Betrachtet werden die ATI-Spektren der Einfachionisation sowie die Summenenergie der Doppelionisation. Die Energie der Elektronen in der Einfachionisation ergibt sich aus

$$E_{e,Einfach} = nh\nu - I_{p,Ar} - U_p = nh\nu - 15,7eV - U_p = nh\nu - C_2. \quad (5.21)$$

Für die Doppelionisation gilt

$$E_{e,Doppel} = mh\nu - I_{p,Ar} - I_{p,Ar+} - 2 \cdot U_p - E_{exc} = mh\nu - 45,12eV - 2 \cdot U_p = mh\nu - C_2. \quad (5.22)$$

Die relative Verschiebung ergibt sich aus dem Rest der Differenz von C_1 und C_2 dividiert durch die Photonenenergie. Mit

$$C_1 - C_2 = 29,36eV + U_p \quad (5.23)$$

und $U_p \text{ mod } 3,12 eV = 1 eV$, folgt

$$(C_1 - C_2) \text{ mod } 3,14 = 2,62eV. \quad (5.24)$$

Die relative Verschiebung der gemessenen Spektren beträgt etwa 0 eV. Eine Verschiebung von 2,62 eV lässt sich im Graphen von einer Verschiebung um -0,52 eV nicht unterscheiden. Im Rahmen des Fehlers in der Photonenenergie und bei der Bestimmung der Restklasse von U_p ist 0,52 eV mit 0 eV verträglich und die Beobachtungen sind somit konsistent mit dem vorgeschlagenen RESI-Modell.

Kapitel 6

Zusammenfassung und Ausblick

6.1 Zusammenfassung

Mit einem COLTRIMS Reaktions-Mikroskop wurde die Doppelionisation von Argon durch Laserpulse gemessen, um die Energiequantisierung im Allgemeinen und den Recollision Mechanismus zu untersuchen. Mit der Abhängigkeit der Doppelionisationsrate von der Elliptizität des Lichts liegt ein starker Hinweis auf ein Modell vor, welches Rescattering beinhaltet. Außerdem ist durch die Messung der Doppelionisationsrate gewährleistet, dass in einem Intensitätsintervall gemessen wurde, welches der nicht-sequentiellen Doppelionisation zugeschrieben wird.

Recollision-Ionization scheint für die in einem bestimmten Intensitätsintervall beobachtete erhöhte Doppelionisation verantwortlich zu sein. Das sollte zu ATI-Peaks in der Summenenergie der ausgelösten Elektronen führen. Diese werden in der vorliegenden Arbeit erstmalig beobachtet. Außerdem sind nicht erwartete ATI-Peaks im Energiespektrum der einzelnen Elektronen sichtbar, welche der direkten Stoßionisation widersprechen.

Dadurch liegt der Schluss nahe, dass der Hauptmechanismus der Doppelionisation in diesem Intensitätsbereich ein anderer Effekt ist: RESI (Recollision Excitation and Subsequent Ionization). Hierbei wird zunächst das zweite Elektron beim Stoß mit dem ersten angeregt. Das erste Elektron bleibt im Kontinuum und wird durch den Laser beschleunigt. Beim nächsten Feldmaximum wird das angeregte Elektron tunnelionisiert, wodurch ebenfalls ATI-Peaks im Energiespektrum dieses Elektrons erzeugt werden.

Als mögliche Zwischenzustände werden $3s^23p^4(^1D)4s$ (2D) und $3s^23p^4(^1D)3d$ (2P) identifiziert, die zu dem beobachteten angeregten Endzustand $3s^23p^4(^1D)$ führen.

6.2 Ausblick

Anschließend an dieses Experiment tun sich neue Fragen auf. Wie hängt das Verhältnis von RESI zu direkter Stoßionisation von der Intensität ab? Gibt es eine Grenzintensität, unter der nur RESI beobachtet wird, weil das erste Elektron nicht genug Energie zur direkten Stoßionisation hat? Welchen Einfluss hat die elektronische Hülle, sprich das Atom, auf die Wahrscheinlichkeit für RESI? Es sollte auch untersucht werden, ob bei genügend guter Auflösung das gleiche Resultat mit 800 nm-Laserpulsen erreicht werden kann. Für die Zukunft sind folgende Verbesserungen geplant, um die offenen bzw. neu entstandenen Fragen zu beantworten: Beispielsweise sollte der Mikrolinseneffekt reduziert werden, wodurch die Auflösung auf der Flugzeitrichtung des Ionendetektors wesentlich verbessert wird. Ebenso wäre Helium als zu ionisierendes Gas interessanter, da es sich um ein reines Drei-Körper-Problem handeln würde. In Verbindung mit der Kühlung des Jets erlaubt die kleine Helium-Masse auch senkrecht zur Flugzeitrichtung eine genügend gute Auflösung, um ATI-Strukturen erkennen zu können.

Eine zusätzliche Frage ist die nach der Auswirkung der Intensität auf die Verschiebung der Energieniveaus im Argon-Atom. Die sogenannte ponderomotorische Verschiebung sollte hierbei für eine intensitätsabhängige Änderung des Ionisationspotentials sorgen. Diese konnte im Zuge dieser Arbeit nicht festgestellt werden. Ebenso steht die Frage offen, ob nicht auch ein doppelt angeregter Zustand nach dem Elektronenstoß vorliegt, welcher von der Gruppe um R. Moshammer beobachtet wurde [CFK⁺12].

Um zu verifizieren, dass es sich tatsächlich um einen angeregten Endzustand handelt und die Zwischenzustände physikalisch sinnvoll sind, sollten Elektron-Stoßanregungs-Querschnitte betrachtet werden.

Grundsätzlich wirft diese Arbeit wieder einmal mehr Fragen auf als sie beantwortet. Das Ziel, die Energiequantisierung in der Doppelionisation nachzuweisen, ist jedoch erreicht.

Literaturverzeichnis

- [Bet04] BETHGE: *Physik der Atome und Moleküle*. Wiley-VCH Verlag, 2004
- [BF00] BECKER, A. ; FAISAL, F. H. M.: *Interpretation of Momentum Distribution of Recoil Ions from Laser Induced Nonsequential Double Ionization*. Phys. Rev. Lett. 84, 2000
- [Boy03] BOYD, Robert W.: *Nonlinear Optics*. elsevier, 2003
- [BT11] BOGOSLOVSKIJ, N.A. ; TSENDIN, K.D.: *Electronic-thermal switching and memory in chalcogenide glassy semiconductors*. Journal of Non-Crystalline Solids, 2011
- [Cer12] CERN: *ROOT*. Version: 2012. root.cern.ch/drupal
- [CFK⁺12] CAMUS, N ; FISCHER, B ; KREMER, M ; SHARMA, V ; RUDENKO, A ; BERGUES, B ; KUBEL, M ; JOHNSON, N G. ; KLING, M F. ; PFEIFER, T ; ULLRICH, J ; MOSHAMMER, R: *Attosecond Correlated Dynamics of Two Electrons Passing through a Transition State*. Physical Review Letters, 2012
- [Che09] CHEREPKOV: *Vorlesungsskript: Photoionization of molecules*. Goethe-Universität Frankfurt, Physik Online - Das eLearning-Portal, 2009
- [CLZ02] CHEN, J. ; LIU, J. ; ZHENG, W. M.: *Characteristic photoelectron spectra and angular distributions of single and double ionization*. Physical Review A, 2002
- [CMD94] COPLAN, M. A. ; MOORE, J. H. ; DOERING, J. P.: *(e,2e) spectroscopy*. Reviews of Modern Physics Vol. 66, 1994
- [DA95] DIMAURO, L.F. ; AGOSTINI, P.: *Ionization Dynamics in Strong Laser Fields*. Academic Press, 1995
- [DBIC94] DIETRICH, P. ; BURNETT, N. H. ; IVANOV, M. ; CORKUM, P. B.: *High-harmonic generation and correlated two-electron multiphoton ionization with elliptically polarized light*. Phys. Rev. A, 1994
- [Des12] DESY: *Desy*. Version: 2012. <http://hasylab.desy.de>

- [DK91] DELONE, N. B. ; KRAINOV, V. P.: *Energy and angular electron spectra for the tunnel ionization of atoms by strong low-frequency radiation*. J. Opt. Soc., 1991
- [DWW⁺02] DÖRNER, R. ; WEBER, Th. ; WECKENBROCK, M. ; STAUDTE, A. ; HATTASS, M. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J. ; BÖCKING, H. S.: *Multiple Ionization in Strong Laser Fields*. In: *Advances in Atomic and Molecular Physics* (2002)
- [FMF⁺01] FEUERSTEIN, B. ; MOSHAMMER, R. ; FISCHER, D. ; DORN, A. ; SCHRÖTER, C. D. ; DEIPENWISCH, J. ; CRESPO LOPEZ-URRUTIA, J. R. ; HÖHR, C. ; NEUMAYER, P. ; ULLRICH, J. ; ROTTKE, H. ; TRUMP, C. ; WITTMANN, M. ; KORN, G. ; SANDNER, W.: *Separation of Recollision Mechanisms in Nonsequential Strong Field Double Ionization of Ar*. Physical Review Letters, 2001
- [Fro07] FROWEIN, H.: Titan-Saphir Laser. In: *Optik & Photonik* (2007)
- [Ger97] GERTHSEN, C: *Gerthsen Physik*. Springer Verlag, 19. Auflage, 1997
- [Gri11] GRISENTI, Robert: *Vorlesung Atomphysik 2*. Universität Frankfurt am Main, 2011
- [Gru10] GRUNDPRAKTIKUM: <https://lp.unigoettingen.de/get/text/4346>. Universität Göttingen, 2010
- [HDPT05] HART, Hugo W. d. ; DOHERTY, B J S. ; PARKER, J S. ; TAYLOR, K T.: *Benchmark multiphoton ionization rates for He at 390 nm*. Letter to the Editor, 2005
- [Hen10] HENRICHS, K.: *Optisch Parametrischer Verstärker*. Bachelorarbeit an der Universität Frankfurt, 2010
- [Her03] HERTEL, Ingolf: *Atome und Moleküle in starken Laserfeldern*. Vortrag an der Universität Berlin, 2003
- [Jac09] JACOBY, Joachim: *Vorlesung Plasmaphysik*. Universität Frankfurt, 2009
- [Jag94] JAGUTZKI, Ottmar: *Entwicklung eines Rückstoßionenimpulsspektrometers zur Untersuchung der Dynamik in Heliumatomen*. Doktorarbeit an der Universität Frankfurt, 1994
- [Jen11] JENSEN, O.: *Frequency Doubling*. Vorlesung an der Technical University of Denmark, 2011
- [KG51] KANTROWITZ, Arthur ; GREY, Jerry: *A High Intensity Source for the Molecular Beam*. Rev. Sci. Instrum. 22, 1951
- [LGE01] LEIN, M. ; GROSS, E. K. U. ; ENGEL, V.: *Discrete peaks in above-threshold double-ionization spectra*. Physical Review A, 2001

- [LL10] LIAO, Qing ; LU, Peixiang: *Energy correlation in above-threshold nonsequential double ionization at 800 nm*. Physical Review A, 2010
- [LLD⁺05] LITVINYUK, I. V. ; LÉGARÉ, F. ; DOOLEY, P. W. ; VILLENEUVE, D. M. ; CORKUM, P. B. ; ZANGHELLINI, J. .. ; PEGARKOV, A. ; FABIAN, C. ; BRABEC, T.: *Shakeup Excitation during Optical Tunnel Ionization*. 2005
- [LLD⁺12] LIU, Yunquan ; LIU, Xianrong ; DENG, Yongkai ; WU, Chengyin ; GONG, Qihuang: *Low-Energy Photoelectron Angular Distributions of Above-Threshold Ionization of Atoms and Molecules in Strong Laser Fields*. IEEE Journal of selected topics in Quantum Electronics, 2012
- [LYL⁺10] LIU, Yunquan ; YE, Difa ; LIU, Jie ; RUDENKO, A. ; TSCHUCH, S. ; DÜRR, M. ; SIEGEL, M. ; MÖRGNER, U. ; GONG, Qihuang ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J.: *Multiphoton Double Ionization of Ar and Ne Close to Threshold*. 2010
- [Mec11] MECKEL, M.: *Laser-Induced Electron Tunneling and Diffraction*. Dissertation an der Universität Frankfurt, 2011
- [MFLSL04] MORISSON FARIA, C. Figueira d. ; LIU, X. ; SANPERA, A. ; LEWENSTEIN, M.: *Classical and quantum-mechanical treatments of nonsequential double ionization with few-cycle laser pulses*. Physical Review A, 2004
- [NIS12] NIST: *Atomic Spectra Database*. <http://physics.nist.gov>, 2012
- [Nol01] NOLTING: *Quantenmechanik - Grundlagen, 6. Auflage*. Springer-Verlag, 2001
- [Obe03] OBERST, Martin: *Optisch-parametrische Verstärkung schmalbandiger Nanosekunden-Laserpulse*. Diplomarbeit an der Technischen Universität Kaiserslautern, 2003
- [PMDT00] PARKER, Jonathan S. ; MOORE, Laura R. ; DUNDAS, Daniel ; TAYLOR, K T.: *Double ionization of helium at 390nm*. J. Phys. B, 2000
- [Rud06] RUDOLPH, Diels: *Ultrashort Laser Pulse Phenomena*. Academic Press, 2006
- [San09] SANN, Hendrik: *Photodoppelionisation von Wassermolekülen*. Diplomarbeit an der Universität Frankfurt, 2009
- [Sch02] SCHÖFFLER, Markus: *Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energien*. Diplomarbeit an der Universität Frankfurt, 2002

- [Sch06] SCHÖFFLER, Markus: *Grundzustandskorrelationen und dynamische Prozesse untersucht in Ion-Helium-Stößen*. Dissertation an der Universität Frankfurt, 2006
- [Smo04] SMOLARSKI, Mathias: *Ionisation von N₂ und O₂ in starken Laserfeldern*. Diplomarbeit an der Universität Frankfurt, 2004
- [SNMF10] SHAARAN, T. ; NYGREN, M. T. ; MORISSON FARIA, C. Figueira d.: *Laser-induced nonsequential double ionization at and above the recollision-excitation-tunneling threshold*. *Physical Review A* 81, 2010
- [Sta05] STAUDTE, Andre: *Subfemtosecond Electron Dynamics of H₂ in Strong Fields*. Dissertation an der Universität Frankfurt, 2005
- [Tho10] THOMSON, Marc: *Vorlesung Laser- und Optoelektronik*. Universität Frankfurt am Main, 2010
- [Tri11] TRINTER, F.: *Doppelter Auger-Zerfall in Kohlenstoffmonoxid*. Masterarbeit an der Universität Frankfurt, 2011
- [Voi09] VOIGTSBERGER, J.: *Bestimmung und Optimierung der Zeitauflösung von Detektoren*. Diplomarbeit an der Universität Frankfurt, 2009
- [Wai11] WAITZ, M.: *Transferionisation in schnellen D⁺-H₂-Stößen*. Masterarbeit an der Universität Frankfurt, 2011
- [Wec01] WECKENBROCK, M: Einfach- und Doppelionisation von Argon in starken Laserfeldern. In: *Diplomarbeit an der Universität Frankfurt* (2001)
- [WGW⁺00] WEBER, Th. ; GIESSEN, H. ; WECKENBROCK, M. ; URBASCH, G. ; STAUDTE, A. ; SPIELBERGER, L. ; JAGUTZKI, O. ; MERGEL, V. ; VOLLMER, M. ; DÖRNER, R.: Correlated electron emission in multiphoton double ionization. In: *letters to nature* (2000)
- [WHC⁺01] WECKENBROCK, M ; HATTASS, M ; CZASCH, A ; JAGUTZKI, O ; SCHMIDT, L ; WEBER, T ; ROSKOS, H ; LÖFFLER, T ; THOMSON, M ; DÖRNER, R: Experimental evidence for electron repulsion in multiphoton double ionization. In: *J. Phys B34* (2001)
- [WWHC03] WIEHLE, Rolf ; WITZEL, Bernd ; HELM, Hanspeter ; CORMIER, Eric: Dynamics of strong-field above-threshold ionization of argon: Comparison between experiment and theory. In: *Physical Review A 67* (2003)
- [WWS⁺00] WEBER, Th ; WECKENBROCK, M ; STAUDTE, A ; SPIELBERGER, L ; JAGUTZKI, O ; MERGEL, V ; AFANEH, F ; URBASCH, G ; VOLLMER, M ; GIESSEN, H ; DÖRNER, R: Sequential and nonsequential contributions to double ionization in strong laser fields. In: *J. Phys* (2000)

- [WWS⁺01] WEBER, Th. ; WECKENBROCK, M. ; STAUDTE, A. ; HATTASS, M. ; SPIELBERGER, L. ; JAGUTZKI, O. ; MERGEL, V. ; BOCKING, H. ; URBASCH, G. ; GIESSEN, Harald ; BRAUNING, H. ; COCKE, C. ; PRIOR, M. ; DÖRNER, R.: *Atomic dynamics in single and multi-photon double ionization*. Optics Express 368, 2001
- [WZS⁺04] WECKENBROCK, M. ; ZEIDLER, D. ; STAUDTE, A. ; WEBER, Th. ; SCHÖFFLER, M. ; MECKEL, M. ; KAMMER, S. ; SMOLARSKI, M. ; JAGUTZKI, O. ; BHARDWAJ, V. R. ; RAYNER, D. M. ; VILLENEUVE, D. M. ; CORKUM, P. B. ; DÖRNER, R.: *Fully Differential Rates for Femtosecond Multiphoton Double Ionization of Neon*. Physical Review Letters, 2004

Anhang A

Atomare Einheiten

Da mit den SI-Einheiten Größen auf atomarer Ebene nur sehr unhandlich dargestellt werden können, wurden in dieser Arbeit auch Atomare Einheiten verwendet. Diese ergeben sich, wenn auf die entsprechenden Größenordnungen im atomaren Bereich normiert wird. Umrechnungen in Atomare Einheiten [a.u.] basieren im wesentlichen auf dem Wasserstoffatom und sind unter anderem

- Elementarladung $e = 1,6022 \cdot 10^{-19} \text{As} = 1a.u.$
- Elektronenmasse $m_e = 9,1095 \cdot 10^{-31} \text{kg} = 1a.u.$
- Bohrscher Elektronenradius im H-Atom $r_{B,e} = 5,2918 \cdot 10^{-11} \text{m} = 1a.u.$
- Elektronengeschwindigkeit im H-Atom $v_{B,e} = 2,1877 \cdot 10^6 \frac{\text{m}}{\text{s}} = 1a.u.$
- Vakuumlichtgeschwindigkeit $c = 2,9979 \cdot 10^8 \frac{\text{m}}{\text{s}} = 137a.u.$

Aus grundlegenden physikalischen Abhängigkeiten kann daraus die Umrechnung für sämtliche SI-Einheiten in Atomare Einheiten erfolgen.

Anhang B

Abkürzungsverzeichnis

Abkürzung	Bedeutung
ATI	Above-Threshold-Ionization (Ionisation über der Schwelle)
COLTRIMS	Cold Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy
CW	Constant Wave
Ti:Sa	Titan-Saphir
LASER	Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation
Recoil	Rückstoß-Ion
TS1	Two-Step-One
TS2	Two-Step-Two
RESI	Recollision Excitation with Subsequent Ionization
SDI	Sequential Double-Ionization
NSDI	Non-Sequential Double-Ionization
BBO	Beta-Bariumborat
MCP	Micro-Channel-Plate
CFD	Constant Fraction Discriminator
NIM	Nuclear Instrument Module
TDC	Time to Digital Converter
LMF	List-Mode-File
TOF	Time of Flight
CUDA	Compute Unified Device Architecture
HHG	High-Harmonic-Generation

Anhang C

Verwendete Zeichen und Symbole

Zeichen	physikalische Größe bzw. Bedeutung
t	Zeit
p	Impuls
E	Energie
m	Masse
r,R	Radialer Abstand
x,y,z	Ortsrichtungen
\hbar	Plancksches Wirkungsquantum, $\hbar = 1,05 \cdot 10^{-34}$ Js
\mathcal{H}	Hamilton-Operator
Ψ, Φ	Wellenfunktion
V	Potential
n	Hauptquantenzahl
l	Drehimpulsquantenzahl
m	Magnetische Quantenzahl
s	Spin-Quantenzahl
j	Gesamt-Drehimpuls-Quantenzahl
\vec{E} , E	Elektrische Feldstärke
\vec{B} , B	Magnetische Flussdichte
\vec{H}	Magnetische Feldstärke
\vec{D}	Elektrische Verschiebungsdichte
\vec{P} , P	Polarisation
\vec{j}	Stromdichte
μ_0	Magnetische Feldkonstante
ϵ_0	Elektrische Feldkonstante
ω	Kreisfrequenz
\vec{k}	Wellenvektor
i	Imaginäre Zahl
χ	Elektrische Suszeptibilität

Zeichen	physikalische Größe bzw. Bedeutung
n	Brechungsindex
I	Intensität
ν	Frequenz
F, f	Fouriertransformierte
\vec{A}	Vektorpotential
Ω	Raumwinkel
σ	Wirkungsquerschnitt
β	Anisotropie-Parameter
P	Legendre-Polynom
Θ, Φ	Winkel
∇	Nabla, Orts-Ableitungs-Operator
I	Ionisationsenergie
Ar^+, Ar^{2+}	Einfach bzw. zweifach positiv geladenes Argon
γ	Keldysh-Parameter
U_p	Ponderomotorisches Potential
P	Wahrscheinlichkeit
E_B	Bindungsenergie
q	Ladung
c, c_0	Lichtgeschwindigkeit
k_z^+, k_z^-	Jacobi-Koordinaten
η_{SHG}	Konversionseffizienz der zweiten Harmonischen
P	Leistung
f	Brennweite
T	Temperatur
k	Boltzmann-Konstante
d	Durchmesser
F	Kraft
Δ	Differenz, Fehler, Unschärfe
a	Beschleunigung
U	Spannung

Anhang D

Experimentelle Parameter

Parameter	Wert
Gas	Argon
Düsentemperatur	300 K
Düsenvordruck	1 bar
Druck 1. Expansionsstufe	$1,5 \cdot 10^{-4}$ mbar
Druck 2. Expansionsstufe	$1,5 \cdot 10^{-7}$ mbar
Druck Hauptkammer	$5 \cdot 10^{-10}$ mbar
Druck 1. Stufe Jetdump	$5 \cdot 10^{-10}$ mbar
Druck 2. Stufe Jetdump	$5 \cdot 10^{-10}$ mbar
Laserwellenlänge	390 nm
Laserdurchmesser	9 mm
Laser-Repetitions-Rate	100 kHz
Laser-Leistung	345 mW
Brennweite des fokussierenden Spiegels	75 mm
Elektronen-Detektor Front	2 M Ω zu Erde
Elektronen-Detektor Anode	2670 V / 42 μ A
Ionen-Detektor Front	-1004 V / 43 μ A
Ionen-Detektor Anode	1831 V / 46 μ A
Spektrometer-Potential Ionen-Seite	-235 V
Spektrometer-Potential Elektronen-Seite	-170 V
Potential des Spiegels	-180 V
Spulen-Strom	7,5 A
Spulen-Spannung	33,9 V
Trigger	Alle Ionen werden gemessen
Rate auf Ionen-Detektor	2,5 kHz (0,8 kHz aus Restgas)
Rate auf Elektronen-Detektor	13 kHz (6 kHz aus Restgas)

Anhang E

Danksagung

An dieser Stelle sollen einige Personen erwähnt werden, ohne die diese Arbeit nicht zu Stande gekommen wäre. Ich danke daher...

- ... zuallererst meinem Professor, Reinhard Dörner, der mir dieses interessante und ambitionierte Thema für die Masterarbeit angeboten hat und ständig mit Rat und Tat zur Seite stand. Ebenso für die Leidenschaft, die mich motivierte und für die menschliche, freundschaftliche Art, mit der er auch die gesamte Arbeitsgruppe prägt.
- ... meinem Betreuer, Dr. Markus Schöffler, der mir mit seiner Erfahrung, seinem Ehrgeiz und seiner Zeit vor allem bei der schwierigen und kraftraubenden Durchführung des Experiments geholfen hat. Die positive Art und die Leichtigkeit während der Arbeit haben mir geholfen, auch nach dem x-ten Fehlversuch nicht aufzugeben.
- ... Dr. Maksim Kunitzki, der den Laser so zuverlässig bereitgestellt hat, wie ich es bisher noch nicht erlebt habe im physikalischen Forschungsalltag. Auch hat er immer wieder interessiert nach dem Stand der Arbeit gefragt und mit seinem Wissen und Tipps weitergeholfen.
- ... der gesamten Arbeitsgruppe, in der zu jeder Zeit eine konstruktive und freundschaftliche Atmosphäre herrschte. Jeder Einzelne stand bei meinen Fragen immer zur Verfügung und hat zur Lösung von Problemen beigetragen. Auch eine solche Gruppenphilosophie habe ich bisher noch nicht erlebt.
- ... meinen Kommilitonen Katharina Gill, Maxi Frei, Miriam Materna und Jan Troß. Ohne den Spaß am Studium mit euch hätte ich die harte Arbeit entweder nicht geschafft, viel schlechter abgeschnitten oder noch ein paar Semester länger gebraucht. Danke für die Zeit mit euch!
- ... der Werkstatt, Feinmechanik, Claudia Freudenberger, Frau Frey und Frau Hebekeuser für die administrative und handwerkliche Unterstützung während des Studiums und der Arbeit.
- ... meinen zahlreichen Korrekturlesern.

- ... und zu guter Letzt meiner Familie, die mir das Studium erst ermöglichte mit ständigem Rückhalt, positivem Zuspruch und dem nötigen Kleingeld.