

Bachelorarbeit

Spin-Orbit-Dynamik in Neon

Achim Rippert

August 2009

Stearie Institute for Molecular Sciences
National Research Council
Ottawa, Canada

und

Institut für Kernphysik
Johann Wolfgang Goethe-Universität
Frankfurt am Main

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Hintergrund	2
2.1 Prozesse von Atomen in starken Laserfeldern	2
2.1.1 Multiphotonenionisation	2
2.1.2 Tunnelionisation	3
2.1.3 Keldysh-Parameter und ADK-Theorie	5
2.2 Das Neon-Atom	6
2.3 Neon im starken Laserfeld	8
2.3.1 Ionisation von Neon	8
2.4 Vorgeschichte: Exkursion zum Krypton	10
2.5 Pump-Probe-Experiment mit Neon	13
3 Experimenteller Aufbau	15
3.1 COLTRIMS	15
3.1.1 Vakuumkammer	16
3.1.2 Gasjet	17
3.1.3 Spektrometer	17
3.1.4 Detektoren	19
3.2 Das Lasersystem	21
4 Messungen und Auswertung	23
5 Zusammenfassung	30
Literaturverzeichnis	32

Kapitel 1

Einleitung

Eines der schnellsten sich entwickelten Wissenschaftszweige ist die Laserphysik im letzten Jahrhundert gewesen. Und sie ist es auch heute noch!

Wenn man sich vor Augen führt, dass vor gerade einmal knapp über 100 Jahren Albert Einstein den photoelektrischen Effekt erstmals quantenphysikalisch richtig gedeutet hat und man heute mittlerweile über Laser verfügt, mit deren Hilfe man im Labor Bedingungen schaffen und Intensitäten erreichen kann, wie sie sonst nur in Sternen vorkommen, kann man davon ausgehen, dass selbst ein Visionär wie Albert Einstein sich nicht hätte erträumen können, dass die Menschheit in so kurzer Zeit soweit mit seiner Hilfe in diesem Bereich vorstoßen können würde. Allein die Vielfalt an Anwendungsmöglichkeiten, die Laser bieten, ist überwältigend.

Sei es in der Informationstechnologie, der Grundlagenforschung, Medizin oder der Industrie. Ohne Laser könnte man Vieles nicht machen bzw. viele Dinge wären schwerer zu realisieren. Materialverarbeitung im Maschinenbau müsste weiterhin von Hand gemacht werden, was länger dauert und auch nicht so präzise gemacht werden kann. Kommunikation über Medien wie Internet oder Fernseher wäre weiter Wunschdenken. Selbst meine eigene Bachelorarbeit müsste ich per Hand schreiben, was gerade in meiner Generation jedem schwer fallen würde.

In dieser Arbeit beschäftigen wir uns mit einem weiteren sehr interessanten und auch wichtigen Thema, das ohne Lasertechnologie nicht durchführbar wäre.

Es geht hier um die Beobachtung von Atomen bzw. ihrer inneren Strukturen. Die Herausforderung in diesem Forschungsgebiet ist sich zu überlegen und dann auch durchzuführen, wie man mithilfe eines Lasers und eines Spektrometers ganze Atome bzw. die Wechselwirkung der kleinsten Teilchen im Universum innerhalb dieser Atome beobachten und visualisieren kann. Man stellt sich die berühmte Faustsche Frage, was die Welt im Innersten zusammen hält, bzw. wie der Mikrokosmos denn wirklich funktioniert.

Im Speziellen widmen wir uns hier dem Neon-Atom, bzw. seinen Ionen und Elektronen zu. Wie schon der Titel andeutet, untersuchen wir in unserer Arbeit die Dynamik innerhalb dieses Atoms. Genauer gesagt, interessieren wir uns für sein Verhalten, sobald es durch einen kurzen Laserpuls ionisiert wird. Dadurch versuchen wir ein Bild des Neonions zu erstellen und somit auch die Theorie zu bestätigen, dass das Ion periodisch seine Form ändert, aufgrund der Oszillation des durch die Ionisation entstehenden Loches in zwei verschiedenen Quantenzuständen.

Kapitel 2

Hintergrund

In diesem Kapitel werde ich zunächst auf die theoretischen Grundlagen eingehen.

Beginnen werde ich mit einem Überblick über die möglichen Prozesse von Atomen in starken Laserfeldern, die entstehen können aufgrund der Wechselwirkung mit kurzen Laserpulsen, sowie über quantitative Methoden zur theoretischen Beschreibungen dieser Vorgänge berichten.

Des Weiteren werde ich das neutrale Neon-Atom in einem elektrisch freien Feld vorstellen und dabei seinen Aufbau in Verbindung mit atomphysikalischen Grundlagen erörtern.

Anschließend beschäftigen wir uns dann speziell mit der Wechselwirkung von Neon in einem starken Laserfeld.

Bevor ich das Kapitel mit der theoretischen Beschreibung unseres Experiments beenden werde, erläutere ich unsere Motivation für dieses Experiment mit einem zuvor durchgeführten Versuch mit Krypton.

2.1 Prozesse von Atomen in starken Laserfeldern

Nach der Entwicklung des Lasers 1960 und Experimenten mit verschiedenen Atomen wurden im Laufe der Zeit bestimmte Phänomene beobachtet, auf die ich in diesem Kapitel näher eingehen will. Man kam zu der Erkenntnis, dass es nützlich ist, Erklärungen für die beobachteten Phänomene in zwei verschiedene Regimes zu unterteilen. Die Rede ist hier vom quantenmechanischen und vom klassischen Bild und die daraus folgenden Prozesse:

- Multiphotonionisation (quantenmechanisches Bild)

- Tunnelionisation (klassisches Bild)

Aus diesen Bildern gehen weitere Prozesse hervor, wie Over the Barrier Ionization, Above Threshold Ionization oder High Harmonic Generation. Diese werde ich neben den beiden Regimes auch nochmal kurz ansprechen.

2.1.1 Multiphotonionisation

Bei der Multiphotonionisation (MPI) werden mehrere niederenergetische Photonen absorbiert um ein Elektron aus einem Atom zu emittieren.

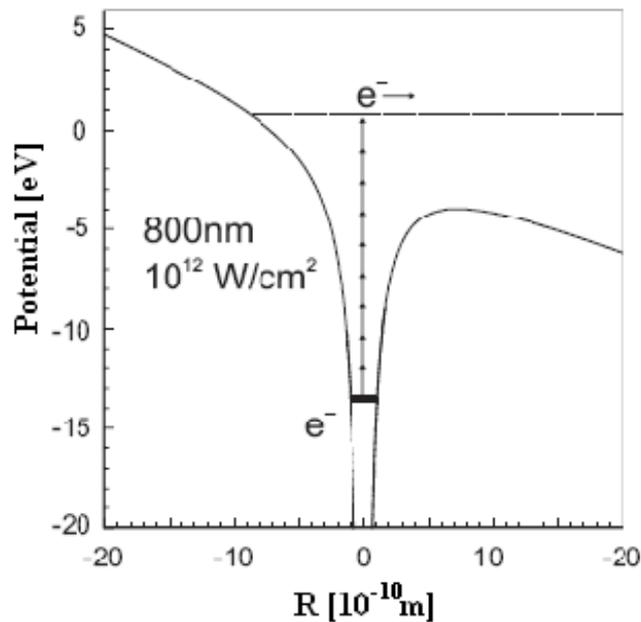


Abbildung 2.1 Multiphotonionisation am Beispiel des Wasserstoffatoms:
Die Pfeile stellen die absorbierten niederenergetischen Photonen dar, mit deren Energie ein Elektron emittiert werden kann. Aus [18] entnommen.

Man kann diesen Effekt bei Intensitäten von $< 10^{13}$ W/cm² beobachten [3]. Für die Beziehung Ionisationsrate und Intensität gilt folgende Formel:

$$\Gamma_n = \sigma_n \cdot I^n$$

n bezeichnet dabei die minimale Anzahl an Photonen, die absorbiert wird um ein Atom zu ionisieren. σ_n beschreibt den n -Photonen-Wirkungsquerschnitt. I^n gibt die Intensität des Lasers an. Man erkennt anhand dieser Formel, dass die Ionisationsrate nicht-linear zur Intensität des Lasers ist. Jedoch wird diese Beziehung unbrauchbar, sollte eine bestimmte Intensität, die so genannte Sättigungsintensität I_s , überschritten werden. Denn dadurch findet MPI nicht mehr nur direkt im Fokus, sondern auch an den Randbereichen des Fokuses [17] statt.

Man hat weiter die Beobachtung gemacht, dass Atome bzw. das emittierende Elektron nicht immer genau die „richtige“ Anzahl an Photonen absorbieren, sondern auch Photonenenergie über der Ionisationsschwelle hinaus erhalten können. Dies führt dann zu einem Spezialfall von MPI, nämlich der *Above Threshold Ionisation* (ATI) [5]. Man nimmt dabei an, dass das Elektron noch nahe genug am Kern ist, um mit diesem Drehimpuls auszutauschen, andernfalls würden Impuls- und Drehimpulserhaltungssatz verletzt werden, wenn ein Elektron außerhalb des Atoms noch Photonen absorbieren würde.

2.1.2 Tunnelionisation

Bei der Tunnelionisation gehen wir von niedrigen zu höheren Intensitäten über.

Hier verlässt das Elektron sein Atom nicht aufgrund Absorption mehrerer niederenergetischer Photonen, sondern durch einen so genannten Tunneleffekt.

Das Coulomb-Potential wird aufgrund der hohen Intensität des elektrischen Laserfeldes derart stark deformiert, dass ein Elektron im gebunden Zustand nahe genug an seinem Ionisationspotential an der einen Seite des Potentialwalls herankommt, so dass die Wahrscheinlichkeit groß wird, durch die herab gesenkte Seite des Potentialwalls zu tunneln. Wegen des oszillierenden Laserfeldes wird

abwechselnd eine Seite herab gesenkt, bzw. die andere Seite erhöht.

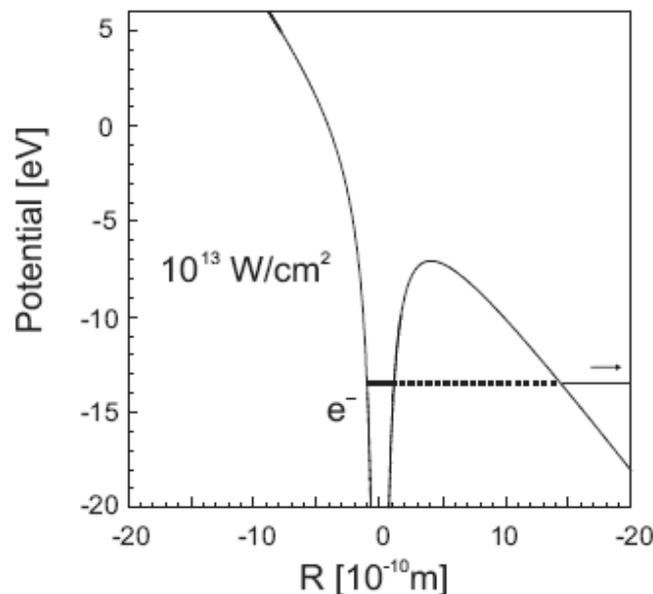


Abbildung 2.2 Tunnelionisation am Beispiel des Wasserstoffatoms:
Hier ist gut zu sehen, wie die eine Wand aufgrund der höheren Intensität nach unten gedrückt wird, so dass das Elektron eine größere Wahrscheinlichkeit erhält, durch diese Wand zu tunneln.
Aus [18] entnommen

Man kann sich nun leicht vorstellen, wenn man ein Laserfeld mit noch höherer Intensität mit einem Atom wechselwirken lässt, dass die eine Wand noch weiter abgesenkt wird, bis sie sogar unter das Niveau des gebundenen Elektrons gelangt. Dabei kann das Elektron quasi ohne zusätzlich Energie aufgenommen zu haben, bzw. ohne den Tunneleffekt das Atom verlassen. Dies ist die *Over the Barrier Ionisation*.

Nun hat man also ein freies Elektron mit einer gewissen kinetischen Energie im Kontinuum. Durch das oszillierende elektrische Feld des Lasers nimmt dieses Elektron weiter kinetische Energie auf, jedoch kann es ab einem gewissen Zeitpunkt zu seinem Ausgangsion zurückgebracht werden, aufgrund des Vorzeichenwechsels der Wellenfunktion des elektrischen Feldes. Dabei kann Rekombination mit dem Ausgangsion stattfinden. Hier sendet das Elektron nun ein hochenergetisches Photon, dessen Energie der Summe aller absorbierten Photonen entspricht. Im Tunnelbild ist das die Summe von Bindungspotential und kinetischer Energie im Laserfeld. Man spricht hier dann von der *High Harmonic Generation*.

Dies kann man sowohl nach der *Multiphotonionisation*, als auch nach der *Tunnelionisation* beobachten. Man hat noch einen weiteren Prozess entdeckt, um die Beobachtungen bei der Ionisation von Helium besser verstehen zu können (ich werde darauf näher im nächsten Unterkapitel eingehen).

Dieses Modell beschreibt wieder ein freies Elektron, das in diesem Fall auch durch das elektrische Feld wie bei der *High Harmonic Generation* zu seinem Ausgangsion zurückgebracht wird, jedoch mit diesem nicht rekombiniert, sondern bei genügend hoher ponderomotiver Energie, ein weiteres Elektron aus dem Atom befreit, so dass das Atom zweifach ionisiert wird. Die ponderomotive Energie U_p beschreibt hierbei die mittlere kinetische Energie, die ein Elektron in einem oszillierenden elektrischen Feld eines Lasers erhalten kann.

Man leitet sie her durch Aufstellen der Bewegungsgleichungen, Einsetzen der Geschwindigkeit in die kinetische Energie und Integrieren über den Phasenwinkel [15]:

$$U_p = \frac{1}{4} * \frac{E_0^2 * e^2}{m_e * \omega^2}$$

E_0 sei das elektrische Feld, e die Ladung des Elektrons, m_e die Elektronenmasse und ω die Laserfrequenz.

Die Ionisation eines Elektrons durch ein zuvor Emittiertes wird *Recollision* oder *Rescattering* bezeichnet. Dieses Modell wurde von Corkum 1993 entwickelt [2].

2.1.3 Keldysh-Parameter und ADK-Theorie

Es ist im Allgemeinen schwer zu unterscheiden welche Art von Prozess zur Ionisation eines Atoms geführt hat. Der russische Physiker Keldysh hat versucht mithilfe einer klassischen Perspektive dieses Problem zu lösen [6]. Er entwickelte ein Modell bei dem man Aussagen machen kann, wann *Tunnelionisation* und *Multiphotonionisation* stattfinden kann. Dazu hat er den so genannten Keldysh-Parameter γ definiert, der das Verhältnis von Laserfrequenz und Tunnelfrequenz beschreibt.

Dadurch ist er abhängig vom Ionisationspotential des Atoms und von der ponderomotiven Energie bzw. von der Laserintensität und der Wellenlänge in der Form:

$$\gamma = \sqrt{\frac{I_p}{U_p}} = \sqrt{\frac{I_p \epsilon_0 m_e c \omega^2}{e^2 I}} = 2.31 \times 10^9 \sqrt{\frac{I_p}{I \lambda^2}}$$

Der Übergang zwischen *Tunnelionisation* und *Multiphotonionisation* findet bei $\gamma \approx 1$ statt. Diesen Wert erhält man beim Wasserstoffatom bei einer Wellenlänge $\lambda = 800$ nm, Intensität $I = 10^{14}$ W/cm² und Ionisationspotential $I_p = 13,6$ eV.

Bei $\gamma \ll 1$ handelt es sich um Tunnelionisation, was man sich klar machen kann, wenn man berücksichtigt, dass gerade bei hohen Intensitäten das Coulomb-Potential so stark deformiert wird, dass die Tunnelwahrscheinlichkeit erhöht wird. Dies ist dann auch völlig konsistent mit der oben stehenden Formel. Gerade bei $I > 10^{14}$ W/cm² beginnt der Übergang zu Tunnelionisations-Prozessen.

Folglich handelt es sich dann für $\gamma \gg 1$ um Multiphotonionisation, was man anhand der niedrigeren Intensitäten gut nachvollziehen kann.

Der Keldysh-Parameter ist jedoch keine absolut genaue Lösung, denn im Bereich um $\gamma \approx 1$ ist es schwer zu sagen, um welchen Ionisationsprozess sich handelt, da hier die quantenmechanische Betrachtungsweise außen vor gelassen wird. Deshalb bedeutet ein Wert von z.B. $\gamma = 0.98$ nicht zwangsläufig, dass hier eine Tunnelionisation stattfindet.

Eine andere quantitative Methode befasst sich mit der theoretischen Beschreibung der Tunnelionisation von Ammosov, Delone und Krainov, die uns zur ADK-Theorie führt [1]. In diesem Modell wird eine Beziehung aufgestellt zwischen der Tunnelionisationsrate, der Amplitude des elektrischen Feldes, Ladung des Ions und der effektiven Hauptquantenzahl bzw. des Ionisationspotentials.

Experimente haben gezeigt, dass die ADK-Theorie besonders für kleine Intensitäten gute Voraussagen macht bei einfacher Ionisation. Jedoch bei der Ionisation eines zweiten Elektrons aus dem Atom stimmen die Vorhersagen erst bei großer Ionenausbeute und bei höherer Intensität wieder wie es in der Abbildung für Helium ersichtlich ist. Die Ergebnisse brachten dann Corkum auf die Idee ein neues Modell in Betracht zu ziehen. Daraus entstand das bereits beschriebene Recollision-Modell [2].

2.2 Das Neon-Atom

Neon kommt selten auf der Erde vor (im Gegensatz zum Universum) und ist nur aus der Luft zu gewinnen.

Es gehört im Periodensystem zur 8. Gruppe und ist somit ein Edelgas. Es besitzt zwei Schalen, wobei jede Schale, die erste mit zwei und die zweite mit 8 Elektronen, voll besetzt ist. Dies macht dieses Element besonders reaktionsträge. Es beherbergt also insgesamt 10 Elektronen. 2 im 1s-Orbital, 2 im 2s-Orbital und 6 im 2p-Orbital, wobei sich diese sechs auf die drei Raumrichtungen p_x , p_y und p_z mit jeweils zwei Elektronen verteilen.

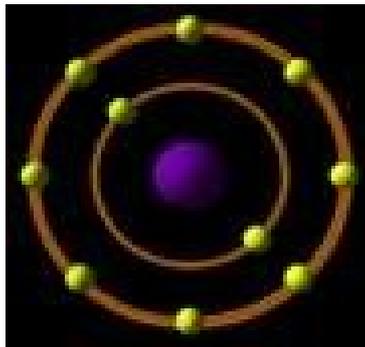


Abbildung 2.3 Schalenmodell von Neon. Bild entnommen von www.library.thinkquest.com

Die Eigenschaften bzw. Zustände von Teilchen werden durch Quantenzahlen beschrieben. Man unterscheidet dabei zwischen:

- Hauptquantenzahl n , die angibt in welchem Orbital sich ein Elektron befindet. Sie kann nur ganze, positive Zahlen, größer als Null annehmen
- Drehimpulsquantenzahl l , die die Form des Orbitals beschreibt, in dem sich das Elektron befindet. Sie kann positive, ganze Zahlen, sowie die Null annehmen, da sie über $l = 0, \dots, n-1$ definiert ist. Man kann den bestimmten l -Werten auch bestimmte Buchstaben zuordnen. So bedeutet $l=0$, dass das Elektron im s-Orbital ist.
- Magnetische Quantenzahl m_l , die die Orientierung des Bahndrehimpulses des Elektrons angibt. Sie kann nun auch negative, ganze Zahlen annehmen, darf jedoch nicht größer sein als l
- Spinquantenzahl s , die die Orientierung des Spins des Elektrons angibt. Sie nimmt nur die Werte $\frac{1}{2}$ und $-\frac{1}{2}$ für Elektronen (halbzahlige Spins für Fermionen, ganzzahlige für Bosonen) an, wodurch unterschieden wird zwischen einem Spin-Up-Elektron und einem Spin-Down-Elektron.
- Gesamtdrehimpulsquantenzahl j , die sich zusammensetzt aus der Summe der Drehimpulsquantenzahl l und der Spinquantenzahl s .

Die Unschärferelation besagt, dass je genauer ein Teilchen örtlich erfasst werden kann, desto größer ist seine Impulsunschärfe und andersherum. Mathematisch gilt folgende Relation:

$$\Delta x \cdot \Delta p \geq h$$

Hier ist h das Plancksche Wirkungsquantum.

Wir betrachten nun Elektronen im p-Orbital:

Das p-Orbital besteht aus drei zueinander senkrechten „Hanteln“, deren Achsen die x,y,z-Achsen sind. Die ovalen Figuren auf jeder Achse sind die Regionen in denen sich jeweils ein Elektron befindet. Die Hauptquantenzahl ist $n=2$ in diesem Orbital. Die Drehimpulsquantenzahl ist dann $l=1$. Nun haben wir nicht nur eine magnetische Quantenzahl m_l , sondern drei. Sie kann hier die Werte $-1,0,1$ annehmen. Hier sieht man ein weiteres Phänomen in der Quantenmechanik. Man kann nicht mehr sagen, dass die Elektronen nur diesen einen Zustand haben kann. Alle drei Möglichkeiten sind gleich wahrscheinlich. Man kann zumindest sagen, dass wenn die Elektronen die $m_l=0$ haben, dann halten sie sich bevorzugt auf eine der drei Raumachsen auf. Bei $m_l= -1,1$ halten sie sich um eine der Raumachsen, in einem Torus auf. Jedoch hat man hier nicht nur drei mögliche Konfigurationen, sondern 6, da man auch die zwei Spinquantenzahlen berücksichtigen muss.

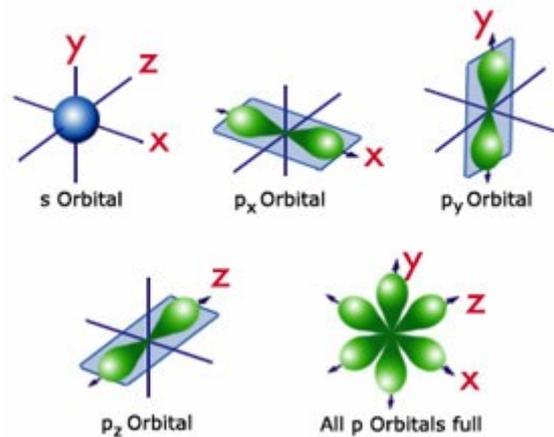


Abbildung 2.4 Illustration von s- und p-Orbitalen.

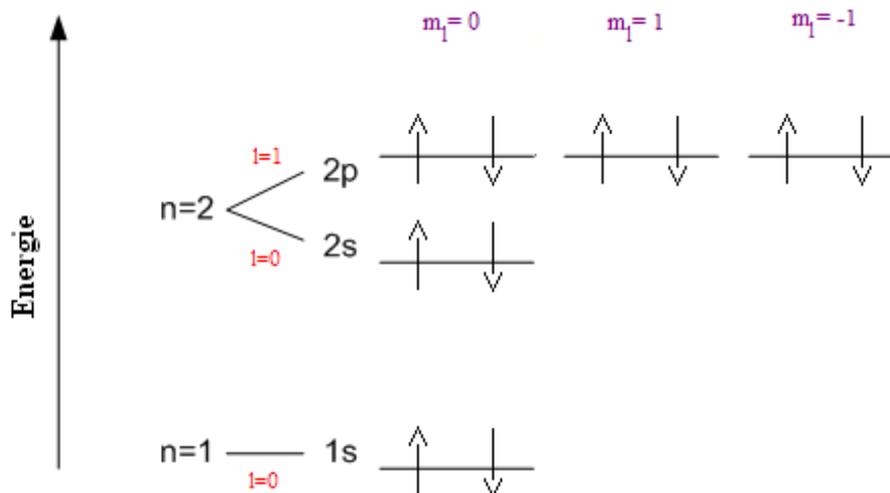


Abbildung 2.5 Termschema des Neon-Atoms mit Spin-Up und Spin-Down Elektronen.

2.3 Neon im starken Laserfeld

Nachdem ich bereits allgemein erklärt habe, wie Atome in starken Laserfeldern wechselwirken, werde ich hier ausschließlich die bereits vorhandenen Kenntnisse und Beobachtungen über Neon-Ionisationen in einem starken Laserfeld erklären.

2.3.1 Ionisation von Neon

Larochelle et al haben 1997 [10] mehrere Edelgase in einem intensiven Laserfeld untersucht und dabei das Modell der nicht-sequenziellen mehrfachen Ionisation angenommen. Nicht-Sequenziell bedeutet, dass bei einer Doppelionisation das zweite Elektron, aufgrund der Wechselwirkung mit dem bereits emittierten und zurückkehrenden ersten Elektron innerhalb eines Laserpulses, aus dem Ion befreit wird. Dabei haben sie dieses Phänomen versucht zu erklären, indem sie zwei Modelle betrachtet haben: das Recollision- und das Shake-off-Modell. Letztendlich hat sich das bereits oben beschriebene Recollision-Modell durchgesetzt, auch aufgrund der Beobachtung von Kondo et al 1993 [7], dass die Ionisationsrate nicht nur von der Intensität, sondern auch von der Wellenlänge abhängig ist.

Einer der untersuchten Stoffe war Neon. Bei diesem Gas haben sie die Ionisationsrate mit der Intensität in Beziehung gebracht und experimentelle mit den durch die ADK-Theorie berechneten Ergebnissen verglichen.

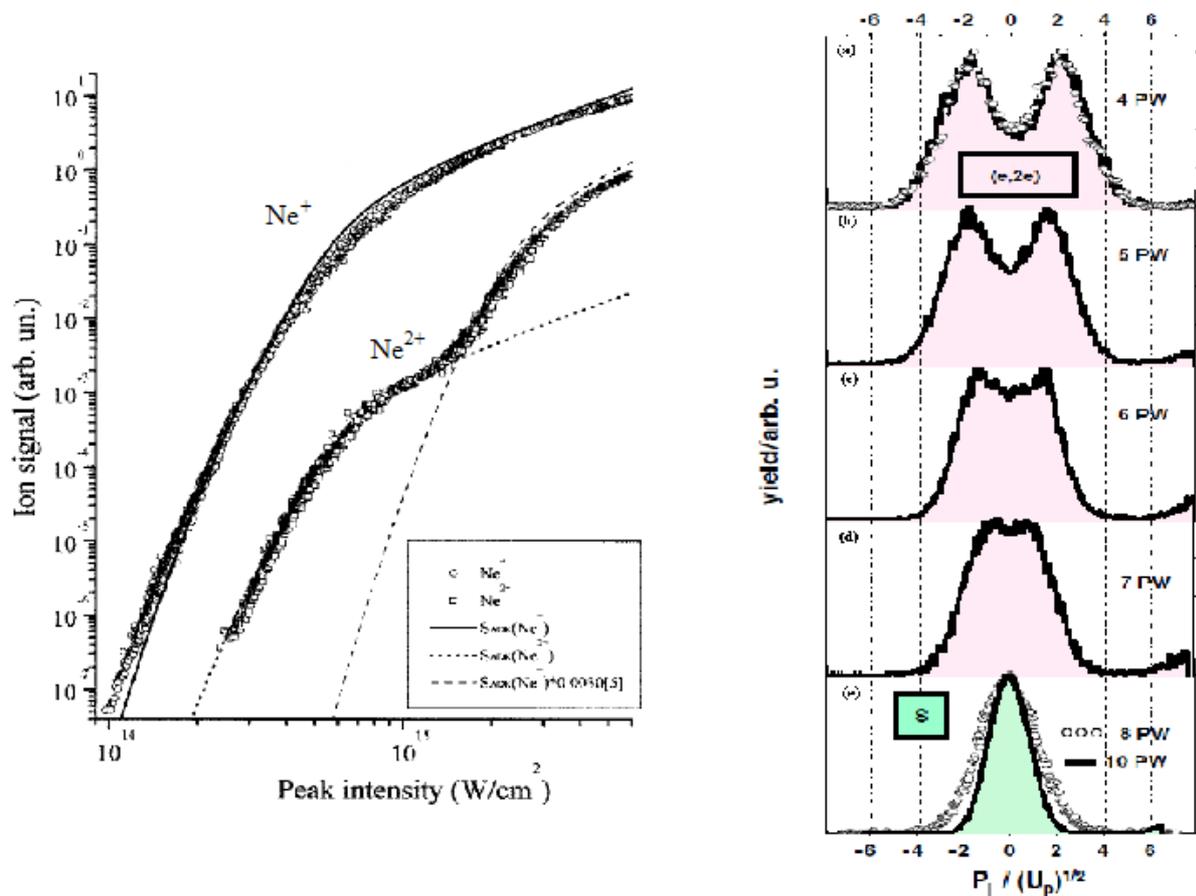


Abbildung 2.6 links: Die Ionisationsraten von Ne⁺ und Ne²⁺ in Abhängigkeit von der Laserintensität. Die Linien sind durch ADK berechneten Kurven für beide Ionen. Von [10] entnommen
rechts: Impulsverteilungen von Ne²⁺ bei verschiedenen Intensitäten. Entnommen aus [13]

Auffällig ist hier die „Knie“-Struktur beim zweifach ionisierten Neon bei höheren Intensitäten. Vergleicht man nun die ADK-Rate mit der Zähl-Rate, so sieht man bei einfacher Ionisation des Neons eine ziemlich gute Übereinstimmung. Bei Ne^{2+} ist die Übereinstimmung bei niedriger Ionisationsrate und etwas höherer Intensität noch gut. Jedoch kann man Abweichungen beobachten, wenn die Intensität weiter zunimmt und somit auch die Ionisationsrate. In diesem Bereich ist die ADK-Rate viel niedriger als die eigentliche Zählrate.

Eine Erklärung für diese Diskrepanz ist, dass bei hohen Intensitäten das zweite Elektron, unabhängig von der ersten Ionisation, aus dem Neon emittiert. Dies wird eine Sequenzielle Ionisation genannt. Somit hat man bei diesen Intensitäten die Sequenzielle Ionisation als dominierenden Prozess.

Es wurde eine weitere ADK-Kurve hinzugefügt, die entsteht wenn man die ADK-Rate für Ne^+ mit dem Verhältnis aus ADK-Raten Ne^{2+} und Ne^+ multipliziert. So stimmt dann diese Kurve nahezu wieder überein mit der Zählrate bei hohen Intensitäten.

Rudenko et al haben 2008 genauere Untersuchungen zum Übergang von nicht-sequenzieller zur sequenziellen Ionisation bei Recollision gemacht [13].

Ihre Beobachtung war, wie man in der Abbildung 2.6 sehen kann, konsistent mit den Ergebnissen von Larochelle [10]

In (a) hat man noch deutliche Impulsmaxima für beide Elektronen bei $4 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$, was im Einklang ist, sowohl mit den Beobachtungen von Weckenbrock et al [20] bei nicht-sequenzieller Ionisation, als auch mit denen von Larochelle et al [10] bei noch nicht „zu hohen“ Intensitäten. Mit steigender Intensität kommen sich diese Maxima zunehmend näher bis schließlich der Übergang zur sequenziellen Ionisation stattfindet und nur noch ein Maximum sichtbar ist, was die Ergebnisse von Larochelle bei höheren Intensitäten bestätigt.

Weckenbrock et al machten 2004 im NRC ein Experiment mit COLTRIMS, um die Impulse der Elektronen bei zweifacher Ionisation von Neon zu untersuchen [20].

Sie verwendeten einen Titan-Saphir-Laser mit 40 fs Pulslänge bei einer Energie von $3.9 \mu\text{J}$, 30 kHz Repetitionsrate und Intensität von $1.9 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

Dabei benutzten sie das Modell der nicht-sequenziellen Ionisation bei Recollision. Die Laserpolarisation wurde entlang des Gasjets ausgerichtet, um die Impulsauflösung senkrecht zur Polarisation zu maximieren.

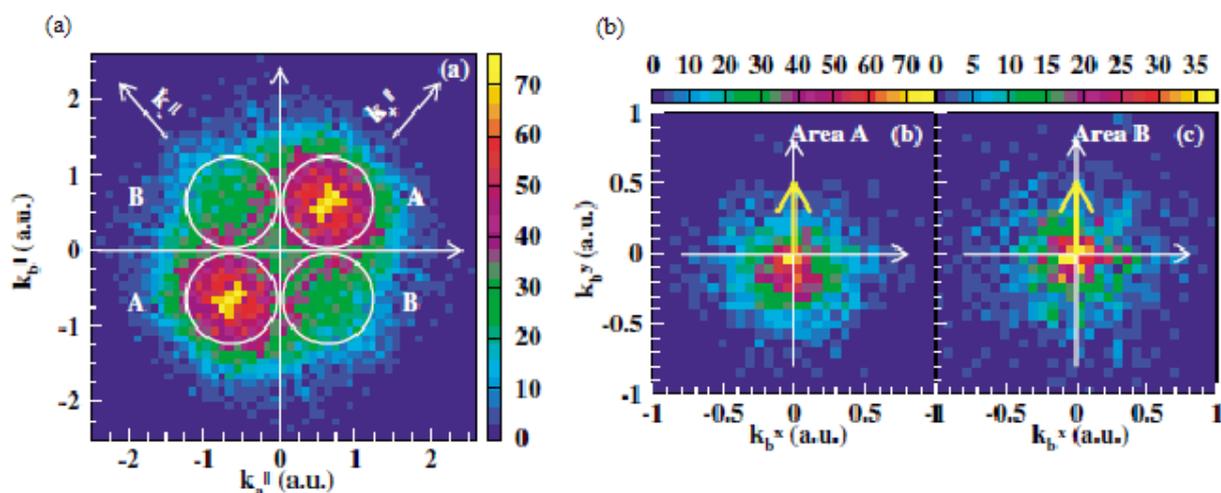


Abbildung 2.7 (a) Impulsverteilung für zwei emittierende Elektronen von einem Neon-Atom nach Recollision. Die horizontale Achse zeigt die Impulsverteilung für das eine Elektron, parallel zur Polarisationsrichtung. Dasselbe für das andere Elektron auf der vertikalen Achse. (b) Das linke Bild zeigt die Impulskomponenten des einen Elektrons in der Ebene senkrecht zur Polarisationsrichtung. Der senkrechte Impuls des anderen Elektrons ist entlang der positiven y-Achse mit dem gelben Pfeil gekennzeichnet. Dasselbe gilt für das rechte Bild in umgekehrter Richtung.

In der Abbildung (a) kann man gut die Maxima (1. und 3. Quadrant) erkennen, wenn beide Elektronen auf derselben Seite mit ähnlichen Impulsen von fast 1 a.u. das Atom verlassen. Dies führt dann gleichzeitig zu einem Stoß auf das Ion in die entgegengesetzte Richtung.

Im 2. und 4. Quadranten sieht man den Fall, wenn beide Elektronen fast gleichzeitig in entgegengesetzte Richtungen emittiert werden mit einem jeweils relativ geringem Impuls von 0.1 a.u.. In diesem Fall bleibt das Ion relativ in Ruhe.

2.4 Vorgeschichte: Exkursion zum Krypton

Um zu verstehen, warum wir diese Experimente machen, muss ich ein wenig ausholen und zu einem anderen Edelgas, dem Krypton, übergehen.

Krypton besitzt mit 36 Elektronen weit mehr als Neon. Auch sind die energetischen Abstände der Orbitale größer als in Neon.

Young et al haben 2006 ein Pump-Probe-Experiment mit Krypton durchgeführt [21].

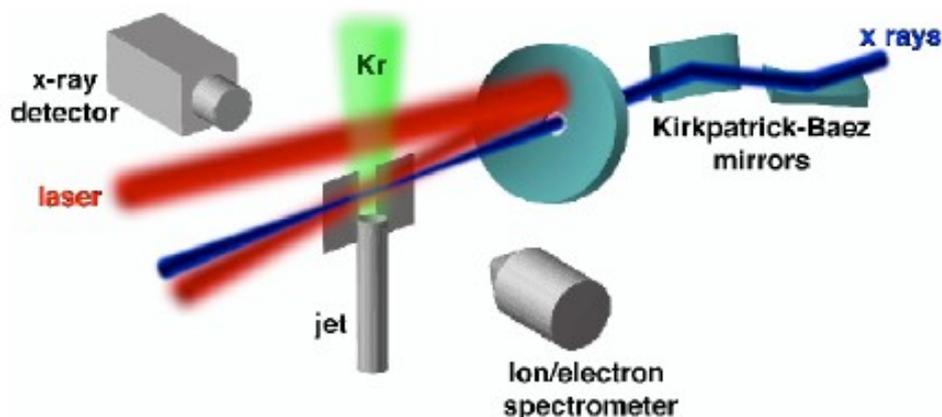


Abbildung 2.8 Aufbau des Pump-Probe-Experiments mit Krypton. Der 14,3 keV starke Röntgenstrahl wird durch eine Öffnung auf den Krypton-Jet fokussiert. Der Laserstrahl wurde starr entlang der z-Achse auf den Jet ausgerichtet. Entnommen von [21]

Ihr Ziel war es orbitale Ausrichtungseffekte von Krypton-Ionen, welche durch ein starkes Feld ionisiert wurden, zu beobachten. Der Pump-Laserpuls war mit einigen Femtosekunden sehr kurz und emittierte ein Elektron aus dem 4p-Orbital. Dadurch entstand ein Loch an dieser Stelle. Mit einem Probe-Röntgenstrahlpuls hat man dann ein Elektron aus der innersten Schale im s-Orbital angeregt und an die vakante Stelle im p-Orbital angehoben.

Berechnungen durch die ADK-Theorie für Edelgase ergaben, dass ein entlang der z-Achse ausgerichteter Laserstrahl Elektronen, die sich auf dieser Achse befinden mit der magnetischen Quantenzahl $m_l=0$, mit 95%-iger Wahrscheinlichkeit angeregt werden, wenn parallel zu dieser Achse der Röntgenstrahl sich ausbreitet [19]. Bei $|m_l|=1$, d.h. wenn sich die Elektronen um die z-Achse in einem Torus befinden, beträgt die Wahrscheinlichkeit 5%. Dies ist der Zustand, wenn der Röntgenstrahl senkrecht zum Laserstrahl ausgerichtet ist. Daraus folgt ein Verhältnis von 38:1 zwischen zur z-Achse parallelem und senkrechtem Röntgenstrahl für die Absorptionswahrscheinlichkeit. Dieser Quotient ergibt sich, wenn man $95/2,5$ rechnet. Warum nicht durch 5 geteilt wird hat den Grund, dass wenn p_x entlang der Laser/Röntgenstrahl

Ausbreitungsrichtung liegt, so kann nur p_y in die senkrechte Polarisationskonfiguration eingestellt werden. Deswegen dividiert man durch 2,5 [16].

Experimentell haben Young et al jedoch nur ein Verhältnis von 2:1 nachgewiesen bei $1s \rightarrow 4p$ Anregung. In allen anderen Regionen ergab sich das Verhältnis von 1:1.

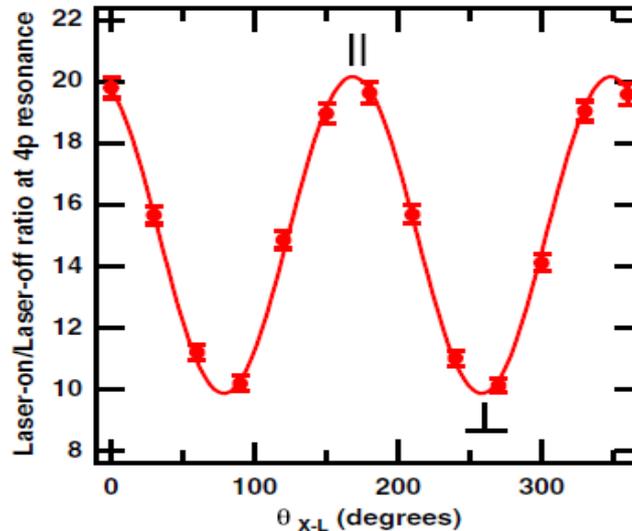


Abbildung 2.9 Laser-on/Laser-off Verhältnis in der 4p Resonanz in Abhängigkeit Winkel zwischen Laser und Roentgenstrahl. Gut sichtbar ist das 2:1 Verhältnis zwischen 0 und 90 Grad bzw. zwischen paralleler und senkrechter Ausrichtung der Laser/Roentgenstrahlen.

Orbitale Ausrichtungseffekte wurden mit diesem Experiment somit bestätigt, jedoch mit großer Abweichung zur Theorie. Die Erklärung dafür ist, dass die ADK-Theorie keine Spin-Bahn-Kopplung der Elektronen berücksichtigt.

Santra et al haben im selben Jahr theoretisch erklärt, warum der Quotient nur 2:1 ist. Dazu haben sie eine Formel hergeleitet, die die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen in verschiedenen Zuständen bei paralleler und senkrechter Stellung des Laserstrahls zum Röntgenstrahl berechnet. Die Elektronen können zwei Drehimpulsquantenzahlen annehmen im p-Orbital. Je nach Spinausrichtung sind die möglichen Werte $j=3/2$ und $j=1/2$. Dadurch können die m Quantenzahlen (Summe aus m_l und m_s) die Werte $-3/2, -1/2, 1/2, 3/2$ für $j=3/2$ annehmen und für $j=1/2$ hat man die Möglichkeiten $m=\pm 1/2$. Wie bereits oben erwähnt ist die Anregungswahrscheinlichkeit in Richtung der z-Achse ($m_l=0$) 95% und bei $m_l=\pm 1$ 5%. Aufgrund der Feinstrukturaufspaltung verteilen sich die Wahrscheinlichkeiten nach Santra et al. Berechnungen auf 69% im Zustand $j=3/2$ und $m=\pm 1/2$, während die restlichen 26% für $j=1/2$ und $m=\pm 1/2$ berechnet wurde. 5% Wahrscheinlichkeit bleibt dann übrig für $j=3/2$ und $m=\pm 3/2$.

Letzteres ist klar, da wir in diesem Zustand die magnetische Quantenzahl $|m_l|=1$ haben. Auch ist ersichtlich im Vergleich dazu, dass die anderen beiden Zustände mit der jeweiligen magnetischen Quantenzahl $m_l=0$ höhere Anregungswahrscheinlichkeiten bedeuten. Dass nun der Wert im Zustand $j=3/2$ größer ist als bei $j=1/2$ lässt sich wohl damit erklären, dass der Abstand zwischen diesen beiden Orbitalen mit 0.7 eV relativ groß ist und somit Elektronen bei $j=3/2$ aufgrund ihrer schwächeren Bindungsenergie besser angeregt werden können als im tieferen Zustand $j=1/2$. Dass letzterer Zustand dennoch besser angeregt werden kann als $j=3/2$ und $m=\pm 3/2$ verdeutlicht die starke Abhängigkeit zur magnetischen Quantenzahl und die herausragende Wirkung der Spin-Bahn-Kopplung für die orbitalen Ausrichtungseffekte.

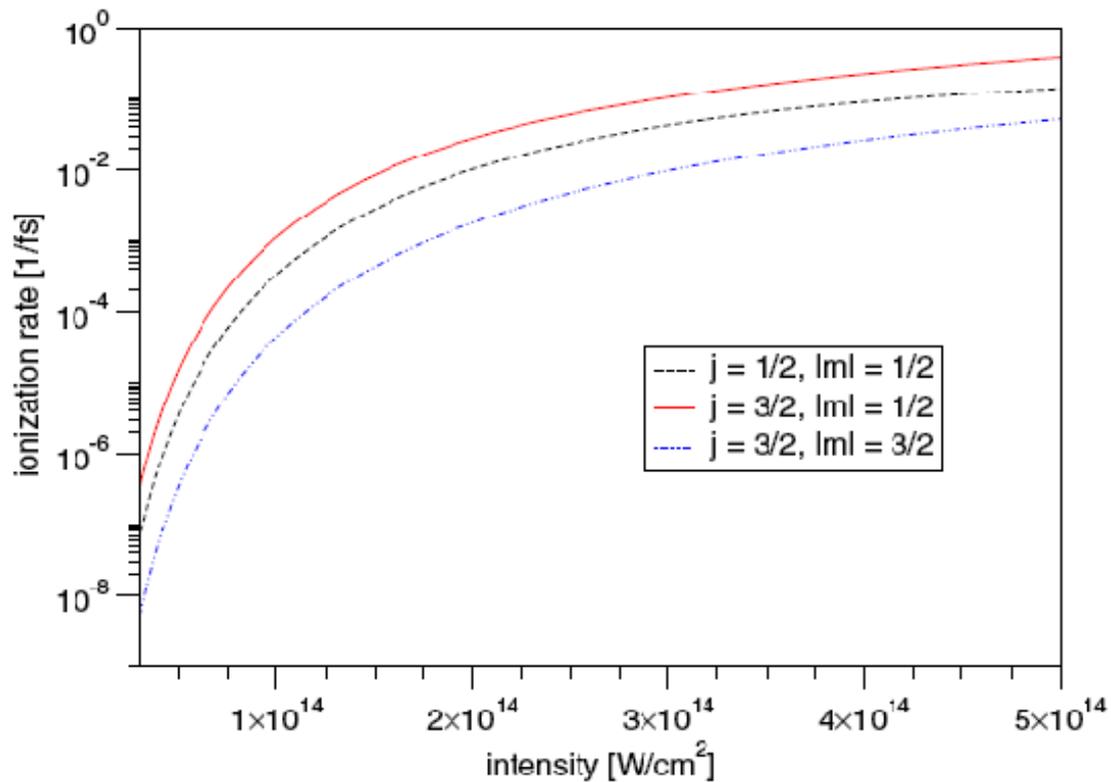


Abbildung 2.10 Graph der Ionisationsrate vom 4p-Orbital des Kryptons in Abhängigkeit der Laserintensität. Berechnet für linear polarisiertes Licht. Von [16]

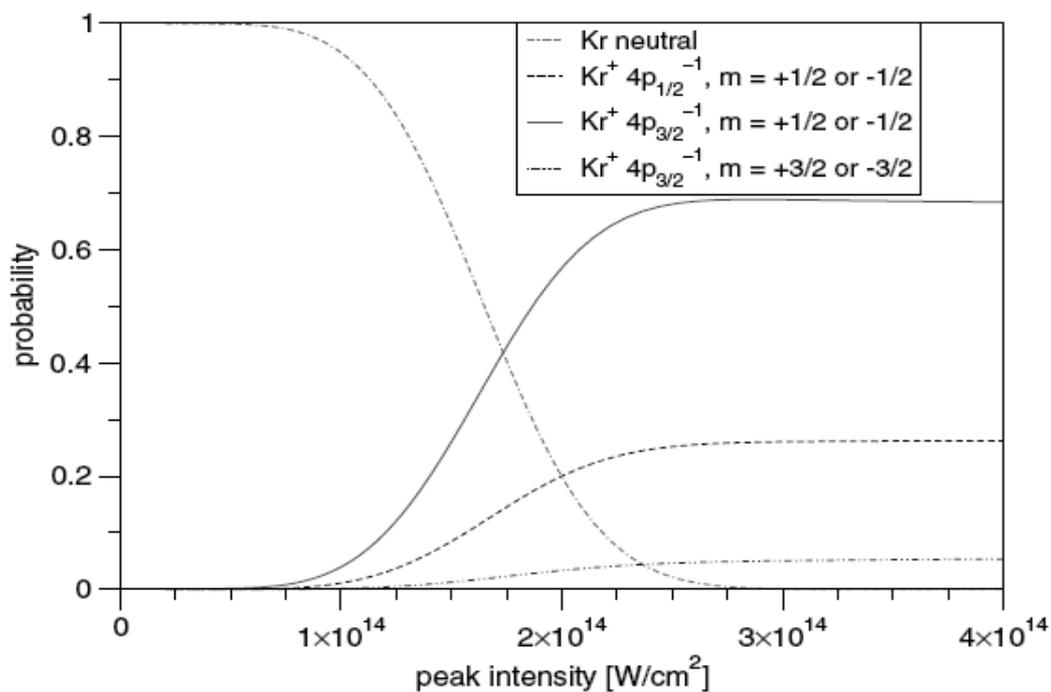


Abbildung 2.11 Wahrscheinlichkeit, als Funktion der Höchstintensität, sowohl neutrales Krypton als auch die $4p$ -Zustände von Kr^+ zu finden nach Bestrahlung des neutralen Kryptons mit einem Laserpuls von 40 fs. $4p_j^{-1}$ bedeutet, dass ein Loch im $4p_j$ Orbital vorhanden ist. Von [16]

2.5 Pump-Probe-Experiment mit Neon

In unserem Experiment wollen wir einen Schritt weiter gehen und mithilfe eines Pump-Probe-Experiments am COLTRIMS die Spin-Orbit-Dynamik im Neon-Atom beobachten.

Man hat sich überlegt, dass sobald ein Elektron im p-Orbital durch einen Laserpuls befreit wird, das entstehende Loch in den beiden Zuständen $j=3/2$ und $j=1/2$ oszilliert. Dieses so genannte Spin-Orbit-Splitting dauert ungefähr 42 fs. Diese Zeit entspricht der energetischen Differenz von ca. 0,097 eV, welche der Abstand zwischen den beiden Niveaus im p-Orbital bedeutet.

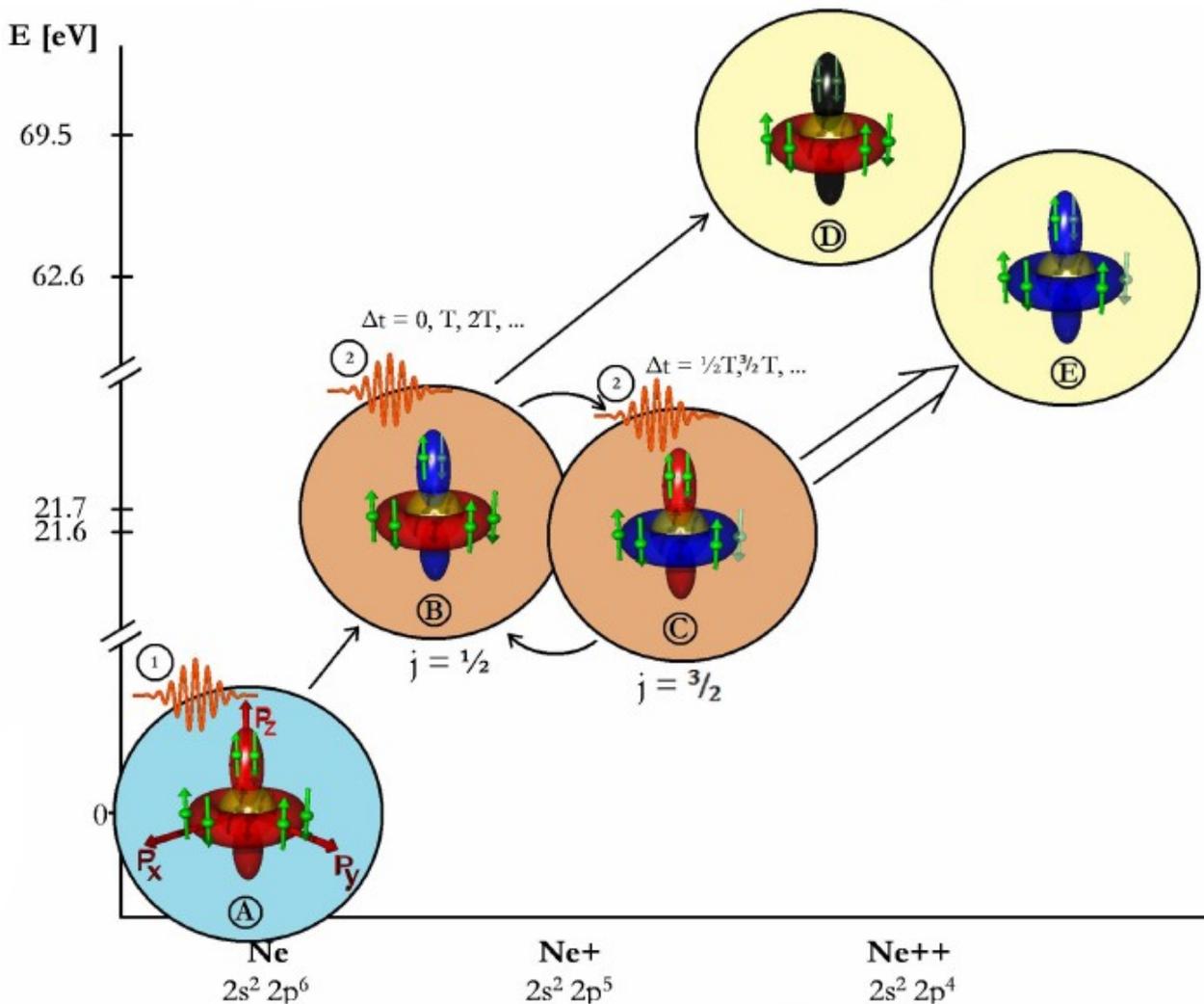


Abbildung 2.12 Abbildung zeigt die Entwicklung der Ionisationszustände von Neon. Die „Pump“ (1) und „Probe“ (2) Stufen des Experiments sind auch dargestellt. Auf der vertikalen Achse sind die Energiezustände aufgetragen. Die Valenz der „s“- (gelb) und „p“- (rot, blau oder schwarz) Orbitale ist auf der horizontalen Achse.

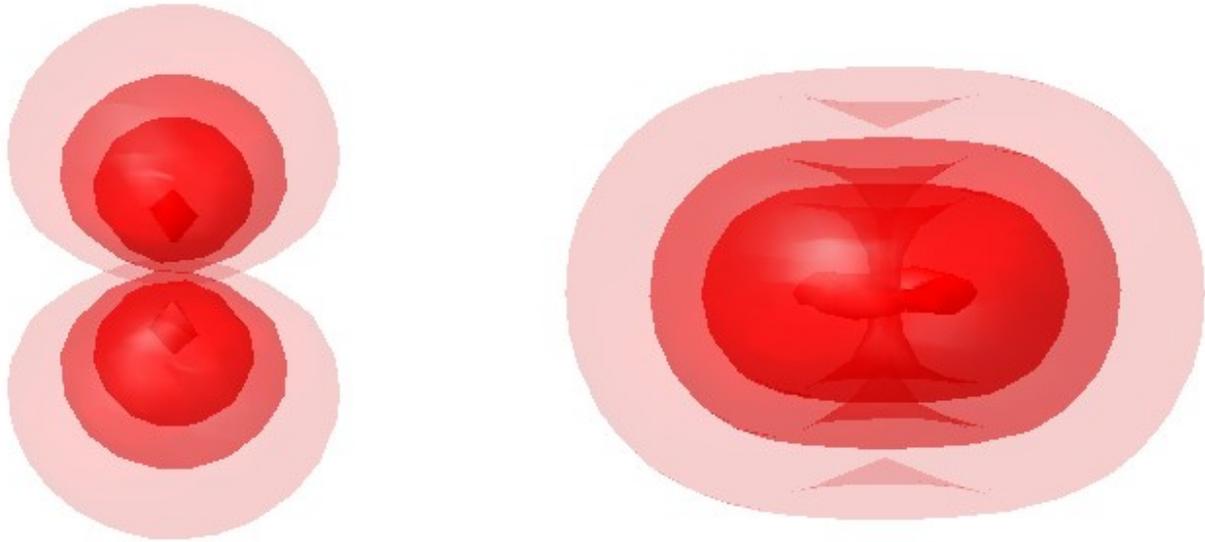


Abbildung 2.13 links: Form des Loches nach 42 fs bzw. Vielfache davon. Das Loch befindet sich entlang der Polarisationsachse mit der magnetischen Quantenzahl $m_l=0$.
rechts: Form des Loches nach ca. 21 fs bzw. ungeradzahlige Vielfache davon. Das Loch befindet sich in einem Torus um die Polarisationsachse mit der magnetischen Quantenzahl $|m_l|=1$

Im Gegensatz zum Experiment von Young et al wollen wir hier kein Elektron aus den inneren Orbitalen auf die vakante Stelle im p-Orbital anheben, sondern mit einem zum Pump-Puls identischen Probe-Puls ein zweites Elektron ionisieren. Wir befinden uns hier im sequenziellen Regime ohne Recollision.

In neutralen Edelgasen ist der Gesamtdrehimpuls Null, aufgrund der entgegengesetzten Spins der Elektronen. Wird ein Elektron aus diesem Atom entnommen, so ist der Gesamtdrehimpuls nicht länger Null. Tunnelionisation durch starke Laserpulse führt zu einer Superposition von zwei Drehimpulskonstellationen, die energetisch getrennt durch $\Delta E = h/T$ sind, nämlich in eine, wenn Spin- und Bahndrehimpuls parallel sind, und eine, wenn sie anti-parallel sind. So eine Superposition wird ein Wellenpaket genannt. Die Quanteninterferenz zwischen den zwei Drehimpulskonstellationen verursacht eine periodische Neuverteilung der Elektronen im Ion.

Aufgrund der Ionisation des ersten Elektrons und der darauf folgenden Oszillation des Loches, entsteht ein elektronisches Wellenpaket, das die Ionisationswahrscheinlichkeit des zweiten Elektrons in bestimmte Richtungen bestimmt.

Will man z.B. das zweite Elektron in dieselbe Richtung wie das erste Elektron ionisieren, also parallel zur Polarisationsachse, so ist die Wahrscheinlichkeit am höchsten, wenn der Probe-Puls das Wellenpaket nach ca. 21 fs trifft, d.h. dann, wenn das Loch sich um die Polarisationsachse in einem Torus befindet. Sie ist folglich minimal unmittelbar nach der Ionisation bzw. nach einer kompletten Oszillation nach 42 fs, da das Loch sich zu diesen Zeitpunkten entlang der Polarisationsachse aufhält und dadurch kein zweites Elektron entlang dieser Achse befreit werden kann.

Kapitel 3

Experimenteller Aufbau

In diesem Kapitel wenden wir uns dem COLTRIMS zu. Genauer gesagt seinem Aufbau und seiner Funktionsweise.

Auch werde ich den Aufbau des benutzten Lasersystems erklären, sowie in deren Zusammenhang die Erzeugung kurzer Pulse erläutern.

3.1 COLTRIMS

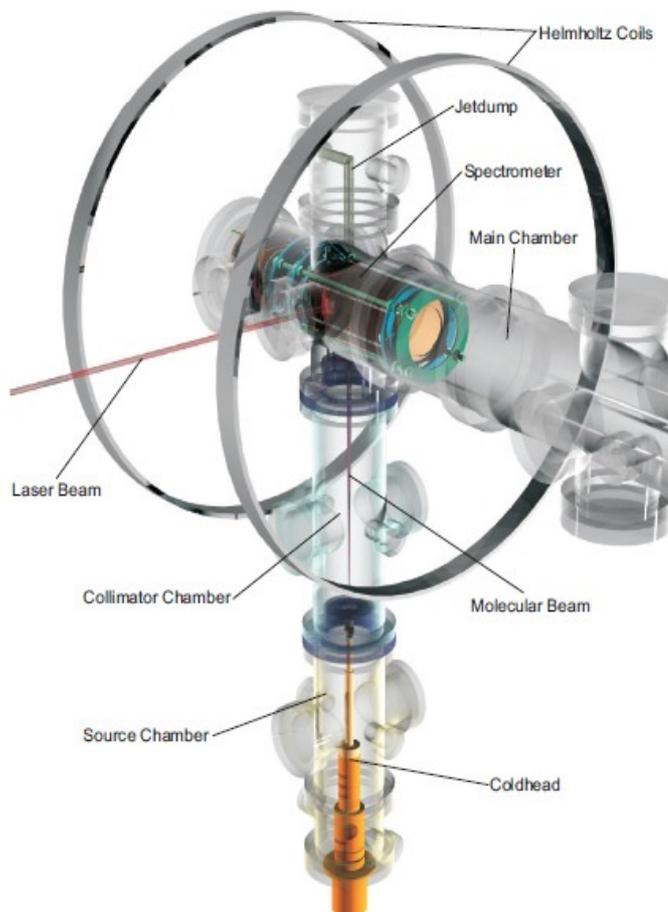


Abbildung 3.1 Schematischer Aufbau des COLTRIMS. In der horizontalen Hauptkammer befindet sich das Spektrometer. In den vertikalen Röhren darunter sind die Vakuummessung durch die der Gasjet sich bewegt. Der Laserstrahl (rot) kommt von links und gelangt durch eine Öffnung in die Hauptkammer. Die Helmholtz-Spulen sorgen für ein konstantes Magnetfeld parallel zum elektrischen Feld. Entnommen aus [11]

COLTRIMS ist eine Abkürzung für COLd Target Recoil Ion Momentum Spectroscopy. Mit seiner Hilfe können Flugzeiten von Elektronen und ihren Ausgangsionen, sowie ihre Auftrefforte auf den jeweiligen Detektoren bestimmt werden. Dadurch ist es möglich Rückschlüsse zu machen, was für einen Anfangsimpuls die Elektronen und Ionen hatten, um aus diesen

Fragmenten schließlich ein Bild des kompletten Atoms zu erhalten. Dabei handelt es sich um sehr kalte Atome bzw. Gase, die sich im COLTRIMS zu einem Gasjet ausbilden. „Kalt“ heißt in dem Fall nicht, dass sich die Atome langsamer bewegen, sondern mit sehr geringer gegenseitiger Wechselwirkung durch einen hochgradig evakuierten Raum fliegen.

Um diese Atome zu ionisieren, verwendet man ultrakurze Laserpulse mit hohen Intensitäten, die senkrecht zum Gasjet geschossen werden. Wird nun ein Atom von so einem Laserpuls getroffen, so wird es angeregt und gebundene Elektronen können sich von diesem lösen. Dadurch fliegen die Elektronen in eine Richtung zu einem installierten Detektor und durch den Rückstoßimpuls bewegen sich Ionen in die andere Richtung zu einem weiteren Detektor.

Dies ist der große Vorteil des COLTRIMS. Man kann mit diesem Apparat quasi zwei Teilchen gleichzeitig messen und damit ein Bild eines einmal existierenden Atoms erhalten.

3.1.1 Vakuumkammer

Um gute Daten zu erhalten, muss gewährleistet werden, dass vorwiegend Neon-Atome ionisiert werden. Dies erreicht man, indem die Hauptkammer, wo der Laserstrahl das Neon-Atom trifft, evakuiert wird bis zu einem Druck im 10^{-10} mbar-Bereich. Dafür verwendet man Turbopumpen, die insgesamt mit 1500 l/s z.B. Sauerstoff- oder Stickstoffatome aus den Kammern befördern. Des Weiteren erhitzt man diese Kammern auf ungefähr 120 Grad. Dieser Vorgang wird „Baking“ bezeichnet.

Wichtig hierbei ist, dass die Pumpgeschwindigkeit der roughing und high vacuum pumps zu der gesamten Gasmenge passt. Das gesamte Vakuumsystem des COLTRIMS ist in zwei Bereiche unterteilt. In den Quell- und Kollimator-kammern ist die Gasmenge sehr hoch, aufgrund des durch eine Düse einströmenden Gasjets, während das Vakuum noch sehr niedrig ist (10^{-4} - 10^{-6} mbar-Bereich). Dieser Gasjet wird auf seinem Weg zur Hauptkammer dünner (dazu später mehr). Dadurch haben wir in der Hauptkammer eine vergleichsweise kleine Gasmenge, jedoch durch Ausheizen und Turbopumpen ein sehr hohes Vakuum.

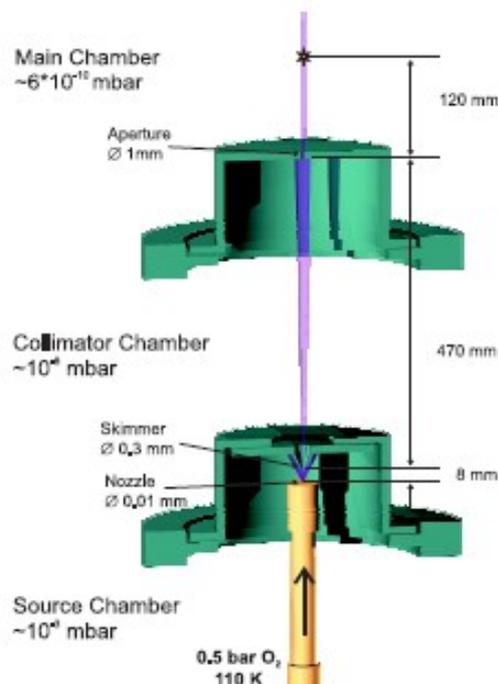


Abbildung 3.2 Skizze vom zwei Stufen Jet. Hier gut zu sehen ist der dünner werdende Gasstrahl nach dem Skimmer. Entnommen aus [17]

3.1.2 Gasjet

Im vorherigen Kapitel habe ich bereits kurz erwähnt, dass der Gasjet auf dem Weg zur Hauptkammer dünner wird. Wie das genau passiert, werde ich im Folgenden erläutern.

Der Gasjet wird, bevor er durch eine Düse in die Quellkammer befördert wird, durch ein Coldhead gekühlt. Auf diesem Coldhead befindet sich die Düse mit einem Loch in der Mitte von $30\ \mu\text{m}$ Durchmesser. Aufgrund des enormen Drucks der Düse findet eine adiabatische Überschallgasexpansion in der evakuierten Quellkammer statt. In diesem Bereich breitet sich die Zone of Silence aus. Dort bewegen sich die Atome mit gleicher Geschwindigkeit ohne miteinander wechselzuwirken. Die innere Temperatur des Gases nimmt dabei ab.

In diese Zone of Silence taucht ein trichterförmiger Skimmer ein mit einem Loch in der Mitte von $0,3\ \text{mm}$ Durchmesser. Durch diesen Skimmer gelangt nun der Gasjet in die Kollimator-kammer. Dabei wird die Gasdichte stark verringert. Auf dem Weg durch den Kollimator wird der Jet ein wenig breiter. Damit man in der Hauptkammer einen sehr dünnen Gasstrahl bekommt, hat man am Ende der Kammer ein weiteres Loch in der Mitte mit $1\ \text{mm}$ Durchmesser. In dieses Loch wird eine Lochblende mit Durchmesser im μm -Bereich eingesetzt, um schließlich den Gasjet sehr dünn in die Hauptkammer zu befördern.

Der Vorteil davon ist, dass man weniger Ionisationsevents insgesamt hat, da der Fokus meist kleiner ist als der Jet. Somit kann man besser sehen, ob gemessene Elektronen wirklich von einem Neon-Atom oder von einem anderen Atom stammen. Technisch gesehen ist es eine aufwendige Arbeit diesen dünnen Gasjet so auszurichten, dass er durch den Skimmer und die Lochblende gelangt, da oft die Düse verstopft ist nach einer gewissen Zeit oder durch thermische Einflüsse z.B. der Finger, auf dem die Düse montiert ist, leicht verbogen wird, so dass der Strahl nicht mehr 100%-ig senkrecht nach oben durch den Skimmer geht, was, wenn man die Dimensionen des Durchmessers und des Gasjets bedenkt, zu Komplikationen für die Ausrichtung des Jets führen kann.

3.1.3 Spektrometer

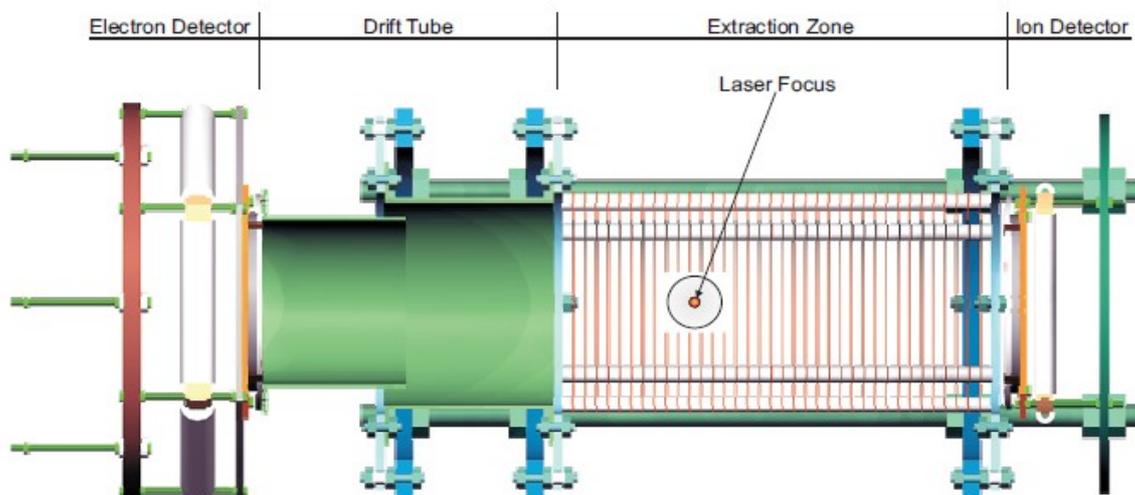


Abbildung 3.3 Schematischer Aufbau eines Spektrometers bestehend aus Ionen- bzw. Elektronendetektor, Driftstrecke, Beschleunigungsstrecke und Reaktionszone. Die positiv geladenen Ionen werden nach ihrer Entstehung zum Ionendetektor gelenkt, während die Elektronen über eine Beschleunigungs- und Driftstrecke zum Elektronendetektor am anderen Ende des Spektrometers gelangen. Grafik entnommen aus [11]

Das Spektrometer ist in die Hauptkammer eingebaut. Dort finden die Ionisationsprozesse statt, wenn der Gasjet mit einem zu ihm senkrecht einfallenden Laserstrahl gekreuzt wird. Mithilfe eines elektrischen Feldes (1 – 30 V/cm) werden die Elektronen und Ionen zu gegenüberliegenden Detektoren beschleunigt. Zusätzlich zum elektrischen Feld ist parallel ein magnetisches Feld (10G) angelegt, damit die sehr viel leichteren und somit schnelleren Elektronen den Detektor treffen. Der Durchmesser beider Detektoren beträgt jeweils 80 mm. Die Beschleunigungsstrecke besitzt eine Länge von 21 cm, während die Driftstrecke 15 cm misst.

Das homogene elektrische Feld entsteht im Innenraum mehrerer nebeneinander sich befindenden Kupferplatten, die mit hochohmigen Widerständen gleicher Größe miteinander verbunden sind. In diesen Kupferplatten ist jeweils in der Mitte ein Loch mit derselben Größe wie die Detektoren eingearbeitet. Mithilfe des Feldes werden Elektronen und Ionen in entgegengesetzter Richtung zu den beiden Detektoren beschleunigt. Von Interesse sind hierbei die Flugzeiten (TOF), sowie die Auftrefforte (x-, y-Ebene) beider Fragmente.

Die Anfangsimpulse erhält man dann über die Lösung der Newtonschen Bewegungsgleichungen.

Nach ein weiteren Berechnungen bekommt man für die Bewegung der positiv geladenen Ionen senkrecht zum elektrischen Feld folgende Beziehungen:

$$p_{x_i} = m_i * \left(\frac{x_i}{TOF_i} \right) \quad ; \quad p_{y_i} = m_i * \left(\frac{y_i}{TOF_i} \right)$$

bzw. parallel dazu:

$$p_{z_i} = \sqrt{2q_i E m_i z_i + (q_i E * TOF_i)^2}$$

Dabei ist q_i die Ladung des Ions, m_i die Ionenmasse, E das elektrische Feld und TOF_i die Ionenflugzeit.

In x- und y-Richtung sind die Anfangsimpulse oben bereits gegeben. Um den Anfangsimpuls in z-Richtung zu erhalten, muss theoretisch eine etwas komplizierte kubische Gleichung gelöst werden, auf die ich hier nicht näher eingehen werde (siehe dazu mehr [9]). Praktisch wird dieser Anfangsimpuls iterativ bestimmt, was hinuzufügend die Kontrolle der erhaltenen Rechnungen durch die vorhandenen Parameter verbessert.

Bei der Herleitung konnte aufgrund der relativ großen Masse die Wirkung des magnetischen Feldes vernachlässigt werden.

Dieses wird bei der Betrachtung des Elektrons jedoch wichtig, da ohne das magnetische Feld viele Elektronen, aufgrund ihrer geringen Masse, die Detektorebene nicht treffen würden. Die Elektronen durchlaufen dabei eine spiralförmige Bahn (siehe Abbildung 3.5). Die Elektronenimpulse in der Detektorebene (siehe Herleitung in [4]) sind dann:

$$p_{x_e} = \frac{m_e * \omega}{2} * \left(\frac{x_e}{\tan\left(\frac{\omega * TOF_e}{2}\right)} - y_e \right) \quad ; \quad p_{y_e} = \frac{m_e * \omega}{2} * \left(\frac{y_e}{\tan\left(\frac{\omega * TOF_e}{2}\right)} + x_e \right)$$

Die Elektronenmasse hier ist m_e . Die Auftrefforte auf dem Elektronendetektor sind x_e und y_e . TOF_e sei die Flugzeit der Elektronen und ω sei die Gyrationfrequenz, die sich aus folgender Beziehung

ergibt:

$$\omega = \frac{q_e * B}{2\pi * m_e}$$

Die Gyrationfrequenz ist die Frequenz, mit der ein Elektron eine Kreisbewegung in einem Magnetfeld durchführt, während er auf den Detektor zufliegt.

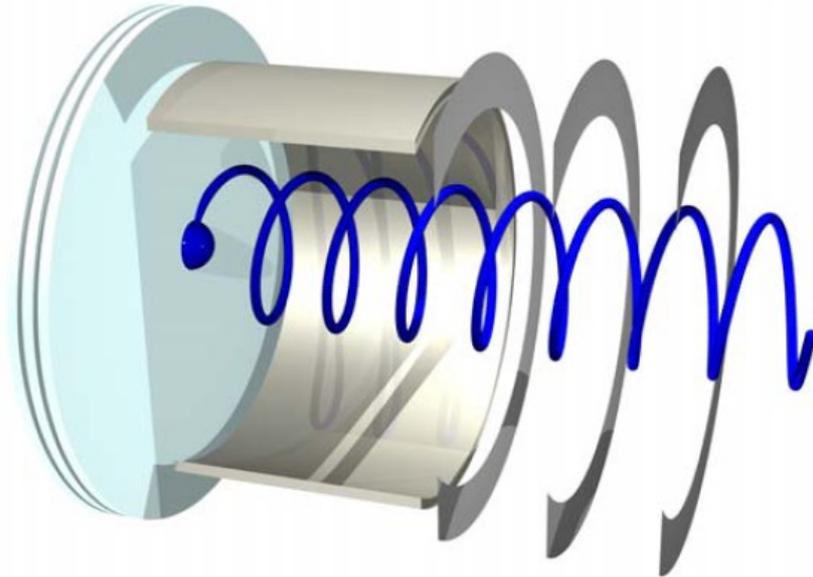


Abbildung 3.4 Flugbahn eines Elektrons bei einem zum elektrischen Feld parallelen magnetischen Feld. Entnommen von [14].

3.1.4 Detektoren

Wir verwenden eine Kombination aus Microchannel Plate (MCP) und Delayline Detektoren.

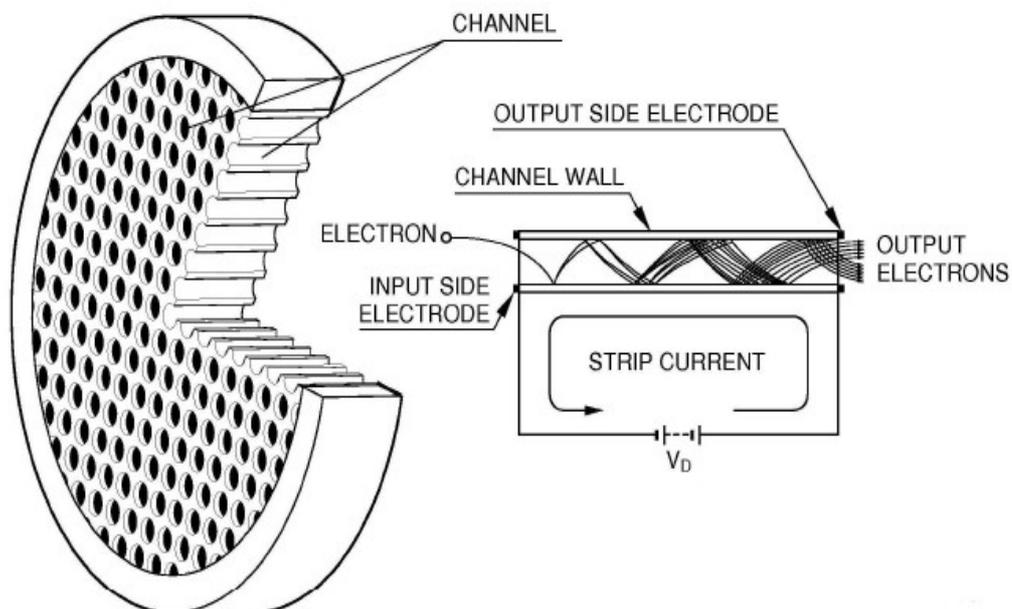


Abbildung 3.5 Skizze einer Microchannel Plate. Die Löcher stellen die einzelnen Kanäle dar, in denen auftreffende Elektronen vervielfacht werden und dabei ein messbarer Strom entsteht. Entnommen aus [11].

MCPs sind dünne Bleiglasscheiben bestehend aus vielen winzigen Kanälen, wobei jeder Kanal als Elektronenmultiplier fungiert. Trifft nun ein Elektron einen dieser Kanäle so entstehen viele weitere Elektronen lawinenartig und man ist dann in der Lage einen Strom zu messen mit deren Hilfe man die Flugzeit des einfallenden Elektrons messen kann.

Die Kanäle sind $10\ \mu\text{m}$ voneinander entfernt. Das Bleiglas besitzt einen hohen Widerstand. Die Scheibenoberfläche ist metallummantelt, so dass sie als Elektrode dienen kann. Die Innenseite eines jeden Kanals hat halbleitende Eigenschaften. Bei genügend hoher MCP-Spannung (Größenordnung 1 kV) und genügend hoher kinetischen Energie des einfallenden Elektrons kann ein Elektron aus der Innenseite eines Kanals emittiert werden, welches dann durch die MCP-Spannung beschleunigt auf eine andere Stelle der Wand stößt, um dann dort wieder ein neues Elektron frei zu setzen usw. So erhält man eine große Menge an Elektronen, die den Kanal durchfliegen.

Diese besetzen dann einen Draht am Ort u_0 und ermöglichen Pulse, die sich von u_0 bis zum Ende des Drahtes mit konstanter Geschwindigkeit v_p ausbreiten. Wenn die Ankunftszeiten t_1 und t_2 an den Enden des Drahtes bekannt sind, ist es möglich die Startposition der Ladung auf dem Draht zu berechnen:

$$u = \frac{1}{2f} * (t_1 - t_2)$$

Dabei ist $f = 1/v_p$ der Skalenfaktor.

Eine Delayline Anode besteht aus zwei Drähten (Signal und Referenz), die um einen Halter gebunden sind. Zusammen bilden sie eine Lecherleitung mit einer definierten Impedanz. Der Signal-Draht ist gegenüber dem Referenz-Draht positiv geladen, um bedeutend mehr Elektronen anzuziehen.

Die beobachtete Signalausbreitungsrichtung verläuft nicht direkt entlang des Drahtes, sondern entlang der Kante des Halters, senkrecht zum Draht. Das verringert die effektive Geschwindigkeit des Signals, was zur Folge hat, dass sich die räumliche Auflösung verbessert bei einer gegebenen Genauigkeit der Ankunftszeiten des Pulses. Außerdem verbreiten sich die Elektronen so über mehr als nur eine Windung.

So bekommt eine Ortsinformation in zwei Dimensionen.

Die beiden gewickelten Drahtebenen stehen bei der Rechteckanode (Ionendetektor) senkrecht zueinander. Sie sind etwa 1 mm auseinander. Bei der Hexanode (Elektronendetektor) sind drei gewickelte Drahtebenen vorhanden, die im Winkel von 60° zueinander angeordnet sind.

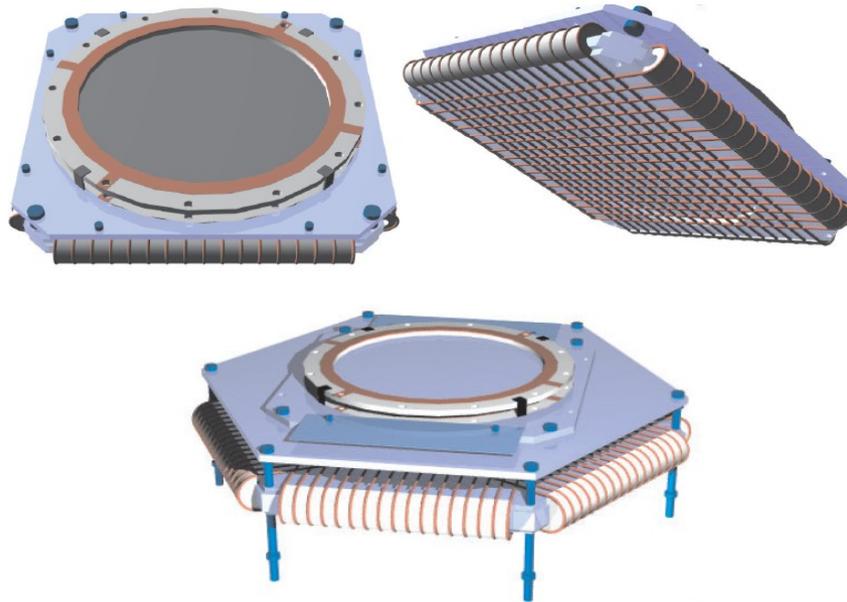


Abbildung 3.6 oben: Delayline Anode mit MCPs (links), Blick auf die gewickelte Drahtspirale (rechts)
 unten: Hexanode mit MCPs und Trägerplatte, sowie den drei Drahtebenen.
 Entnommen aus [20].

3.2 Das Lasersystem

Das im NRC-Labor allgemein benutzte Lasersystem ist ein Titan-Saphir-System.

In den Experimenten werden meist Laserstrahlen mit der Wellenlänge von 800nm verwendet. Eine wichtige Komponente in diesem Lasersystem ist der Oszillator, der Pulse von 15 fs und Energien von 3 nJ liefert. Seine Repetitionsrate beträgt 84 MHz. Gepumpt wird der Oszillator durch einen Coherent Verdi V5 Laser. Um die auftretenden Dispersionen im Resonator zu minimieren, werden Prismen verwendet. Eine weitere wichtige Komponente ist der Verstärker. Zunächst werden die Pulse dort auf einige Pikosekunden „gestretcht“. Diese verlängerten Pulse durchlaufen einen zweiten Titan-Saphir-Kristall mehrfach, welches von einem Photonics Industries DM20 Laser gepumpt wird. Dadurch erreicht man eine Repetitionsrate von 500 Hz, und die Energie steigt auf bis zu 1.2 mJ an. Die Pulse sind hier dann ungefähr 50 fs lang..

Im Folgenden werde ich nun den optischen Aufbau speziell für unser Experiment und die damit verbundene Erzeugung kurzer Pulse erklären.

Direkt nach dem oben beschriebenen Lasersystem wird der herauskommende Laserstrahl zunächst in eine Hohlfaser gelenkt, mithilfe von Spiegeln, Linse und einer Blende.

Die Spiegel befinden sich direkt vor der Linse. Dadurch wird an dieser Stelle der Laserstrahl auf die Achse der Faser gelenkt. Die Linse ist in allen drei Raumrichtungen veränderbar durch einen Verschiebetisch. Direkt vor der Faser ist ein Rohr angebracht, um ein Vakuum am Hohlfasereingang erzeugen zu können, welches eine Ionisation durch den fokussierten Laser verhindert.

Durch diesen Aufbau ist es möglich, das Einkoppeln und die Transmission zweier verschiedener Strahlengänge zu optimieren. Wichtig hierbei ist, dass die entstehende Mode am Ausgang symmetrisch ist und der Leistungsverlust so gering wie möglich gehalten wird. Der ganze Vorgang um dieses zu erreichen wird Alignment bezeichnet.

Um einen spektral verbreiterten und auch energiereicheren Puls zu verkürzen, werden „gechirpte“ Spiegel hinter der Hohlfaser verwendet. Diese komprimieren den Puls wieder, indem sie die einzelnen Frequenzen aufeinander schieben.

Bevor die Laserpulse in den Spektrometer gelenkt werden durchlaufen diese noch ein Mach Zehnder Interferometer, welches den Strahl in Pump- und Probe-Puls aufteilt.

Der Pump-Puls wird durch einen fixierten Arm des Interferometers geleitet, während der Weg des Probe-Pulses durch eine computergesteuerte Delaystage variiert wird.

Anschließend gehen die Pulse durch ein Teleskop, wo sie zuerst durch den ersten Spiegel verbreitert werden, um dann durch den zweiten Spiegel wieder fokussiert zu werden. Der Fokus wird dann dadurch im COLTRIMS noch kleiner.

Mit dem SPIDER (Spectral Phase Interferometry for Direct Electric-field Reconstruction) kann die relative Phase von benachbarten Frequenzen bestimmt und, zusammen mit der spektralen Amplitude, der Puls rekonstruiert werden [8].

Schließlich gehen dann die Pump- und Probe-Pulse, die im Bereich von 10 fs lang sind, mit einer zeitlichen Verzögerung in das Spektrometer und werden dort an der hinteren Wand von einem parabolischen Spiegel zurück reflektiert, so dass sie im Gasjet fokussiert sind.

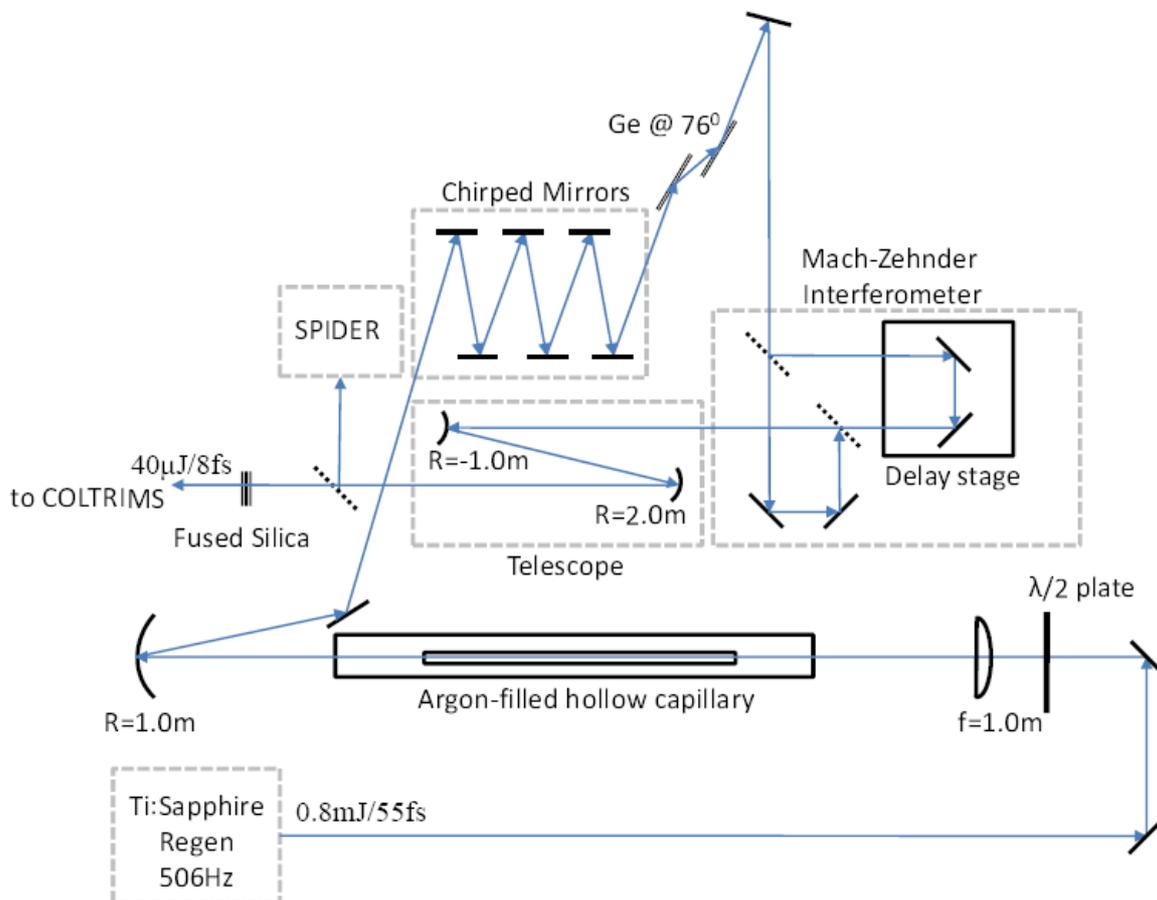


Abbildung 3.7 Schema des Laseraufbaus. Vom Oszillator verläuft der Strahl durch eine mit Argon gefüllte Hohlleiter. Anschließend wird er zu einer Serie von „chirped mirrors“ gelenkt, um dann in einem Mach-Zehnder Interferometer in Pump- und Probe-Puls aufgeteilt zu werden. Schließlich durchqueren die zwei Strahlen mit geringer zeitlicher Verzögerung zueinander einen Quarzblock und gelangen dann in das Spektrometer.

Kapitel 4

Messungen und Auswertung

In diesem Kapitel werde ich Messergebnisse und Interpretationen von einer Messreihe präsentieren. Hier haben wir ein pp-Experiment gemacht, d.h. die Polarisationsrichtung des zweiten (Probe-) Strahls ist dieselbe wie die des ersten (Pump-). Die Temperatur in der Kammer betrug 150K, der Druck in der Düse, aus der der Gasstrahl in die Kammer befördert wird, wurde auf 6.89 Bar eingestellt. Des Weiteren war die Spannung 342 V. Die magnetische Feldstärke betrug 10 G. Und es wurde eine $\lambda/2$ -Waveplate, auf 16° justiert, verwendet, um den Pump- und Probe-Strahl parallel zueinander auszurichten. Das Intervall in Millimeter in dem die Translationstage bewegt wurde ist $-0.3:0.001:0.3$. Die Intensität war im Bereich von $4 \cdot 10^{15}$ W/cm² und die Pulsenergie betrug ca. 20 μ J. Hier wurde eine Lochblende mit 30 μ m Durchmesser verwendet.

Im Folgenden ist eine Tabelle angefertigt, die einen Überblick der Zählraten für Ionen und Elektronen bei verschiedenen Konfigurationen gibt. Dabei hat man grob die Werte, vom Ratemeter ablesend, gemittelt.

	ohne Strahl		1. Strahlarm (Pump)		2. Strahlarm (Probe)		beide Strahlarme	
	Ionen	Elektronen	Ionen	Elektronen	Ionen	Elektronen	Ionen	Elektronen
Zählrate [Hz]	25	560	270	1700	270	1700	330	1800
P [mW]			9.5 \pm 0.2		9.3 \pm 0.1		19.0 \pm 0.3	

Tabelle 4.1 Gemessene Zählraten für Elektronen und Ionen, sowie Leistung P, ohne Laser, mit nur dem ersten Strahl, mit nur dem zweiten Laserstrahl und mit beiden Laserstrahlen gleichzeitig.

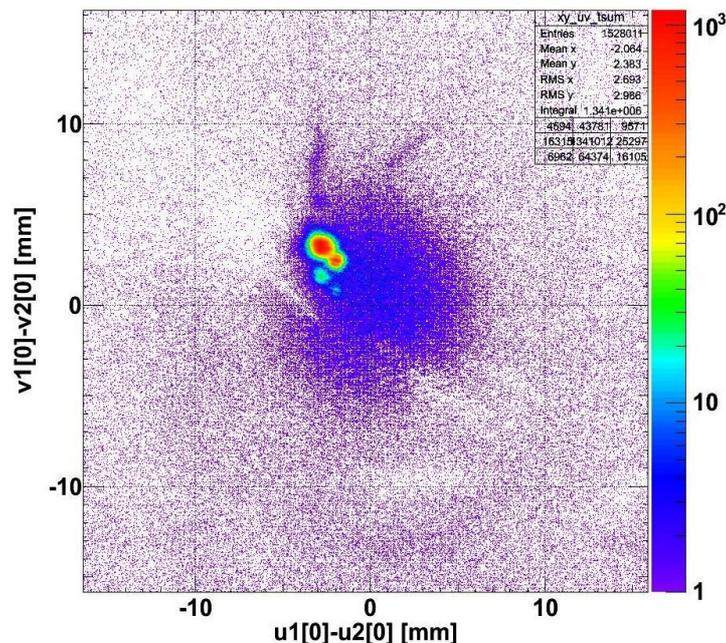


Abbildung 4.1 Graph eines Neon-Jets, welcher durch länglichen, roten Flecken dargestellt wird. Man weiß dadurch, dass hauptsächlich Neon-Atome ionisiert werden und somit ist auch das Alignment des Jets korrekt und man kann mit den Messungen beginnen.

Flugzeiten für Neon-Ionen und Elektronen:

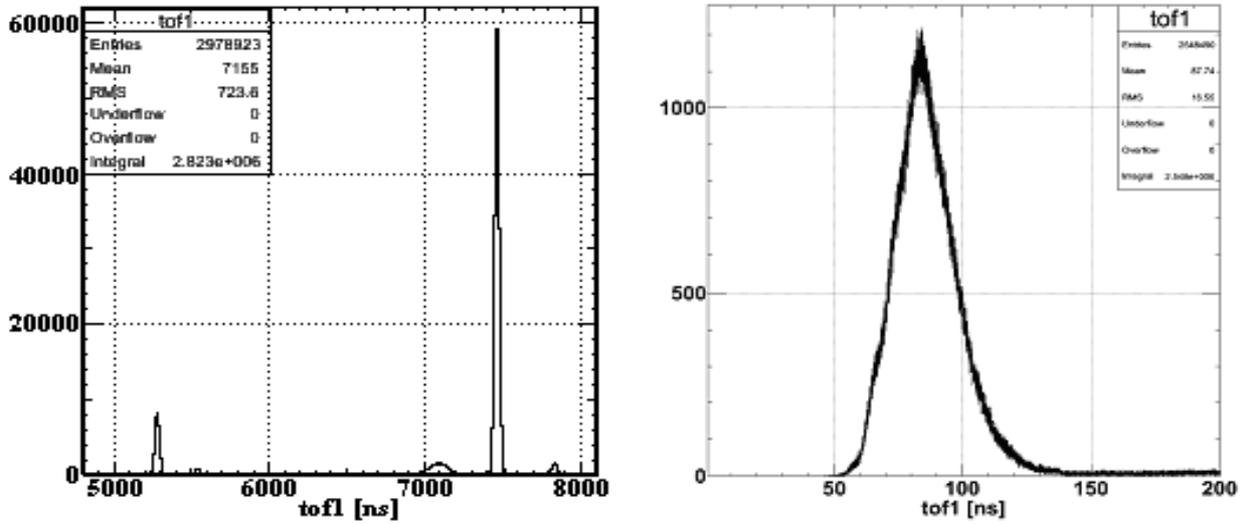


Abbildung 4.2 links: Flugzeiten für Ne^+ und Ne^{2+} . Schön zu sehen ist der größere Peak von Ne^+ bei längerer Flugzeit als beim leichteren Ne^{2+} .
rechts: Flugzeitspektrum für die Elektronen.

Impulsspektren für Ne^+ und Ne^{2+} :

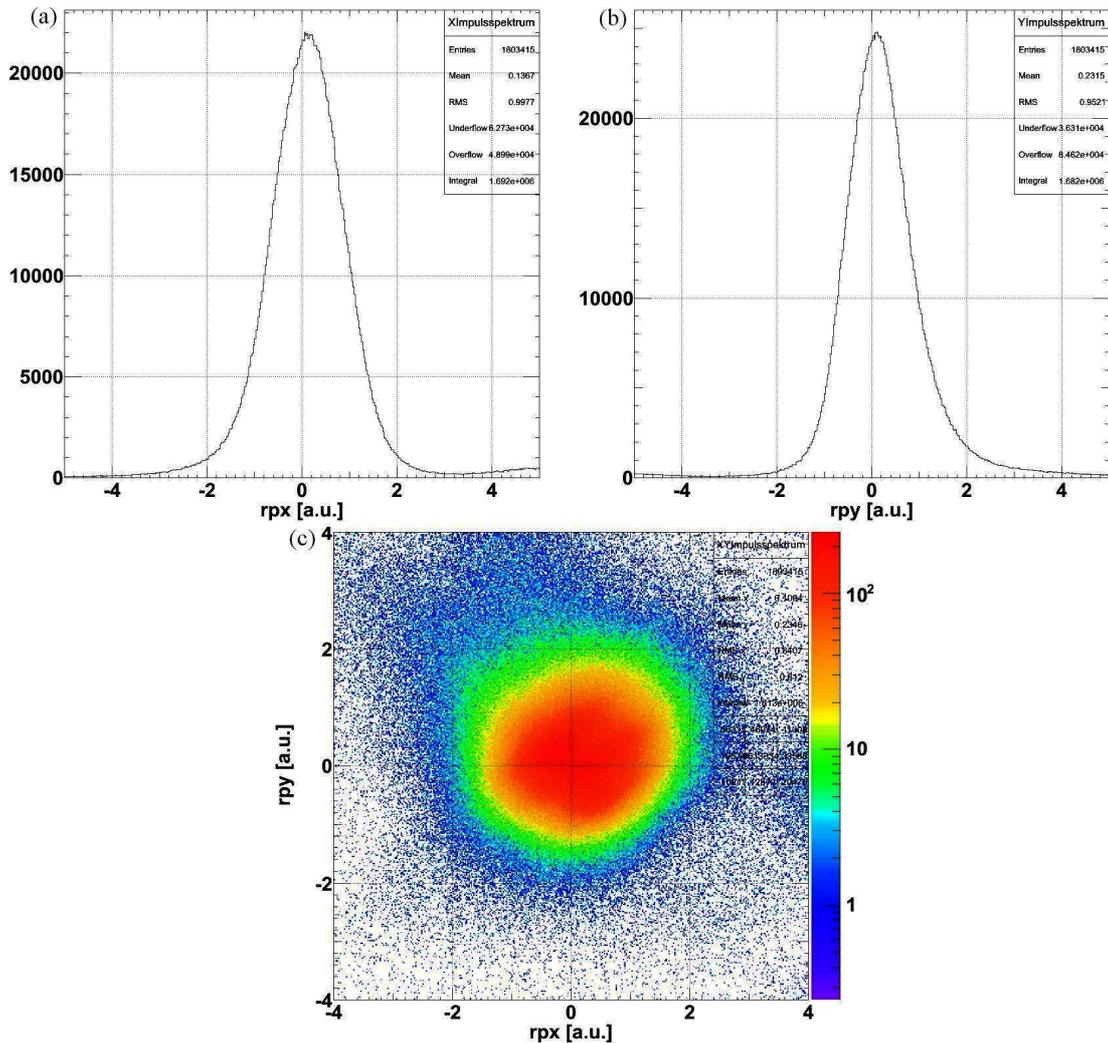


Abbildung 4.3 (a) Impulsspektrum in x-Richtung für Ne^+
 (b) Impulsspektrum in y-Richtung für Ne^+
 (c) XY-Impulsspektrum für Ne^+ .

Man sieht anhand der Spektren, dass die Impulse von Ne^+ ca. 1.2 a.u. betragen (FWHM des Gaussfits).

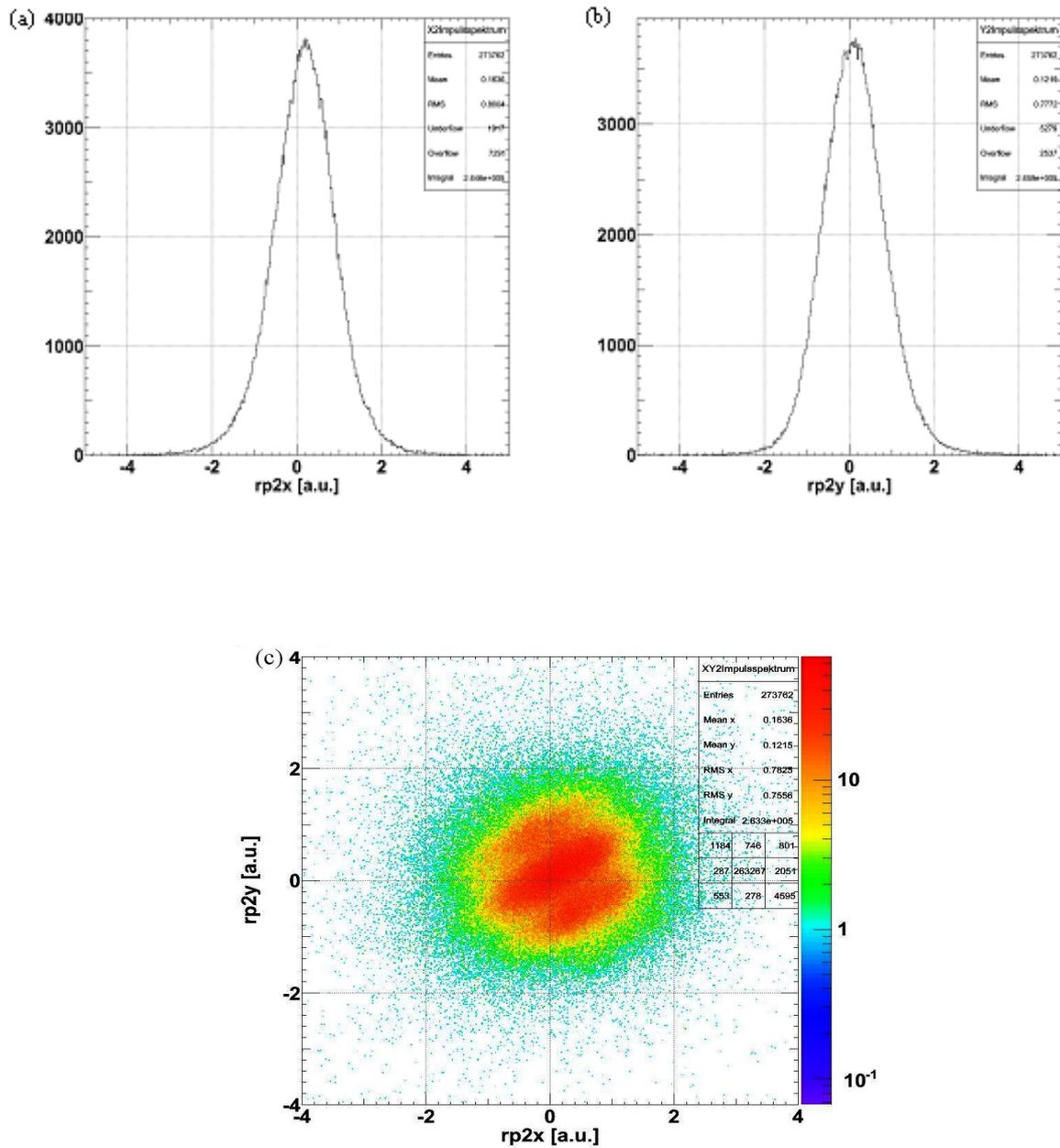


Abbildung 4.4 (a) Impulsspektrum in x-Richtung für Ne^{2+}
 (b) Impulsspektrum in y-Richtung für Ne^{2+}
 (c) XY-Impulsspektrum für Ne^{2+} .

Hier erhält man für Ne^{2+} Impulse von ungefähr 1 a.u.

Orts- bzw. Impulsspektren für Elektronen:

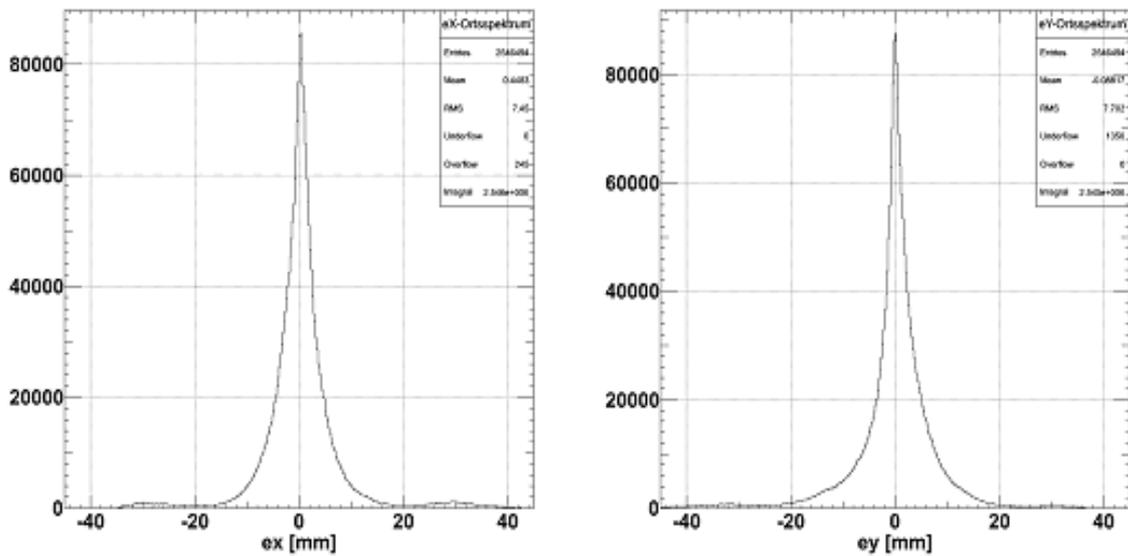


Abbildung 4.5 links: Ortsspektrum in x-Richtung. Spektrum verläuft nicht ganz korrekt von -40 mm bis 40 mm, aufgrund nicht so perfekter Fokussierung.
rechts: Dasselbe gilt auch für das Ortsspektrum in y-Richtung.

Elektronenflugzeiten vs ihre Auftrefforte:

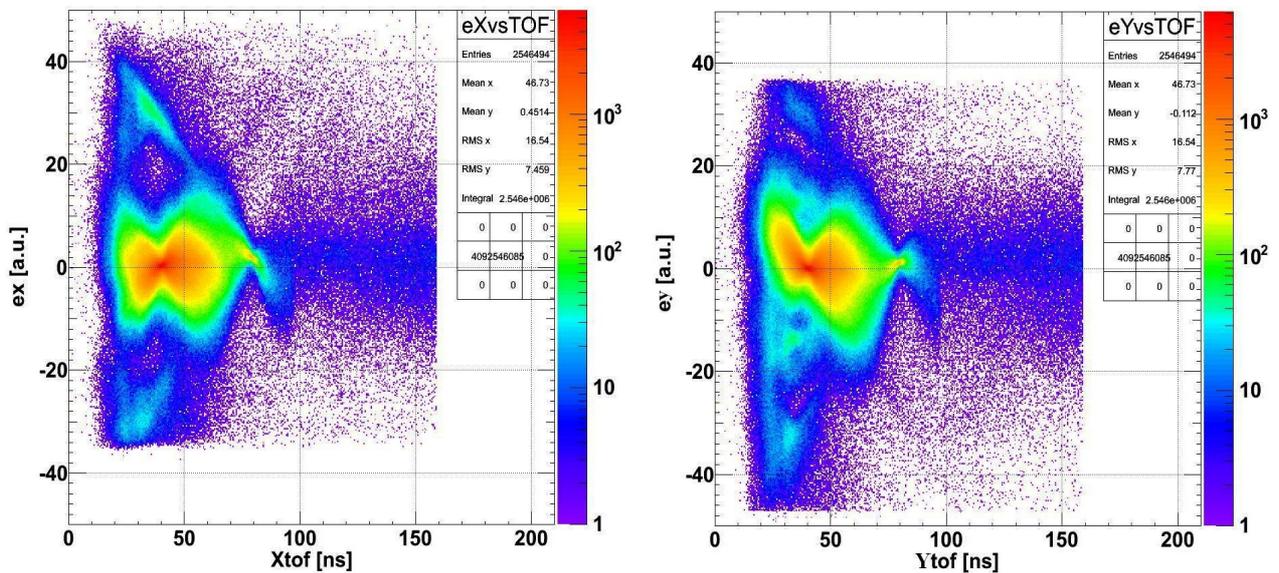


Abbildung 4.12 Auftreffort gegen Flugzeit aufgetragen in x- und y-Richtung für Elektronen.

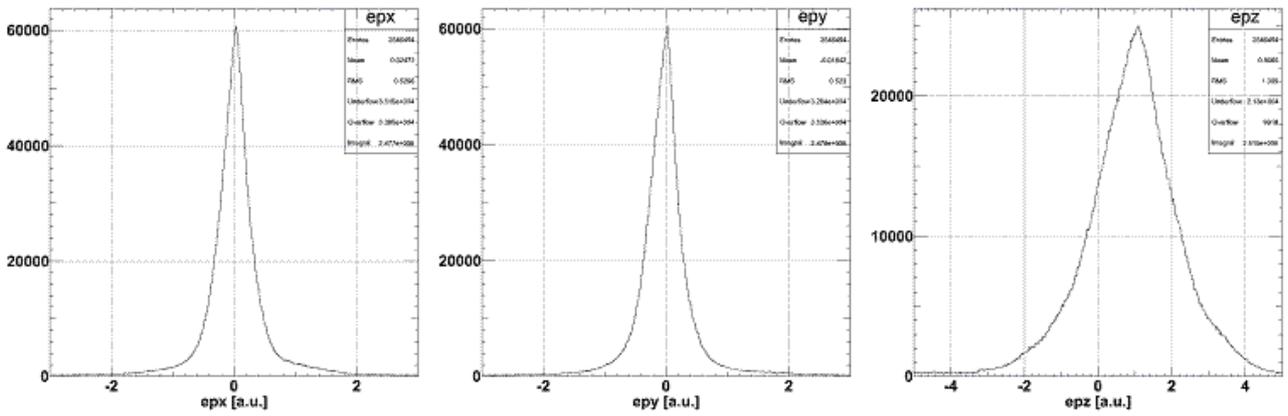


Abbildung 4.13 Elektron-Impulsspektren in alle drei Raumrichtungen.

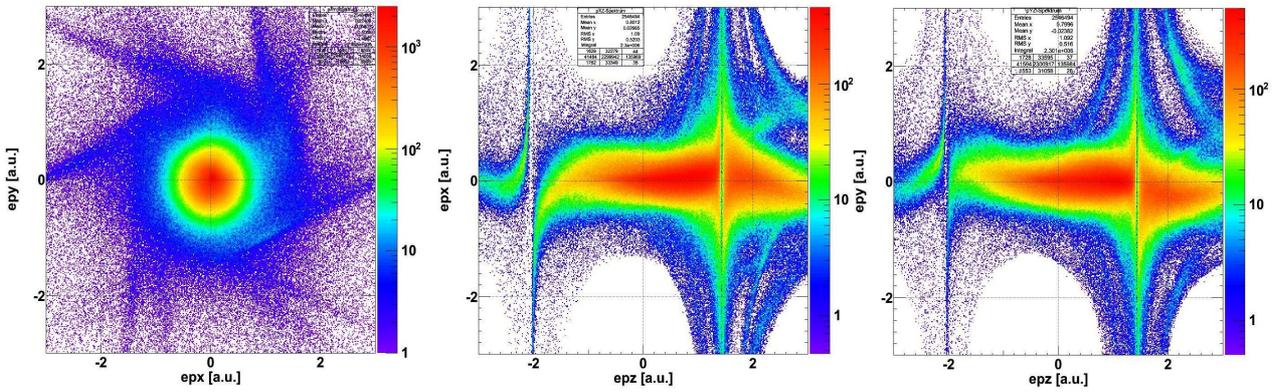


Abbildung 4.14 In der Reihenfolge XY-, ZX- und ZY-Impulsspektren für Elektronen.

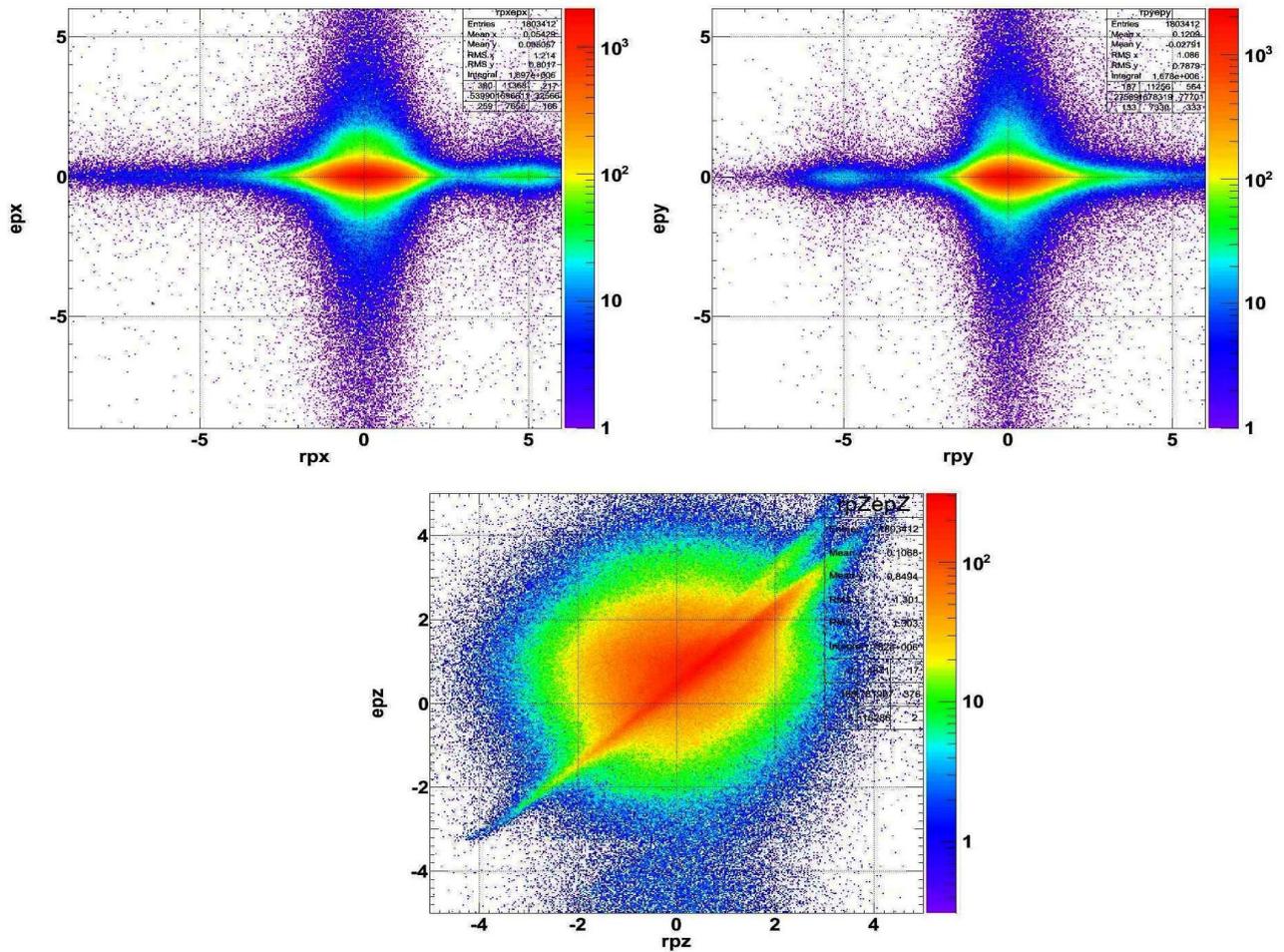


Abbildung 4.15 oben: Elektronen- gegen Ne^+ -impulse aufgetragen jeweils in x- und y-Richtungen.
unten: Elektronen- gegen Ne^+ -Impulse aufgetragen in z-Richtung.

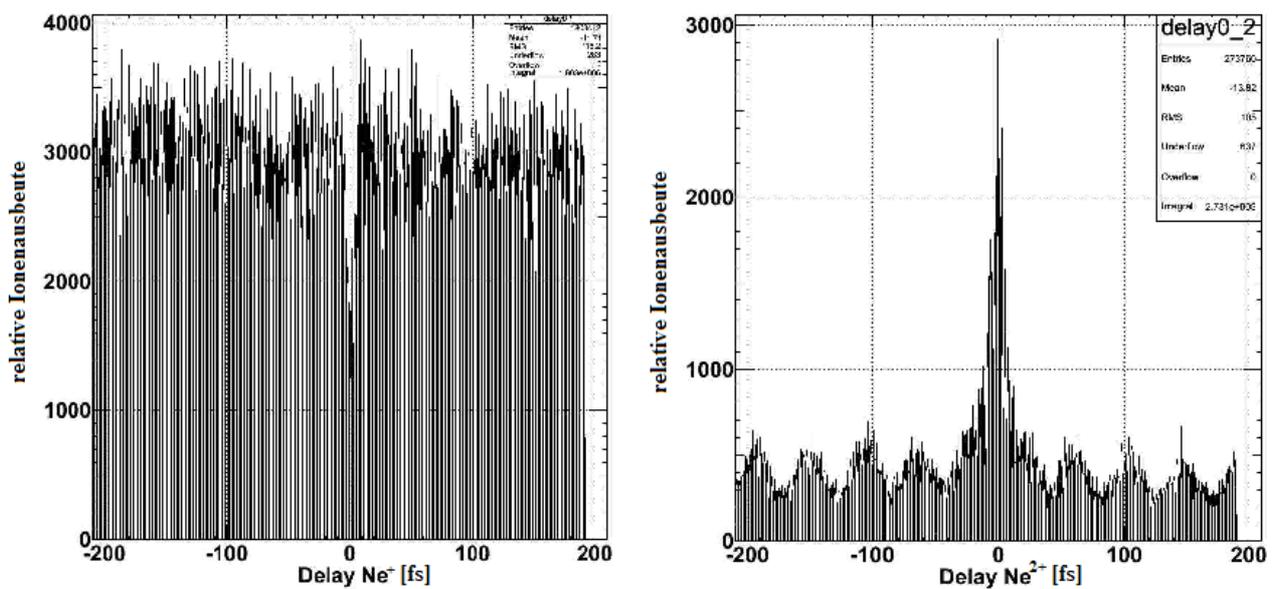


Abbildung 4.16 links: Anzahl Ne^+ -Ionen als Funktion des Pump-Probe-Delays.
rechts: Anzahl Ne^{2+} -Ionen als Funktion des Pump-Probe-Delays.

Anhand der Graphen der Delaystages sieht man gut die Konsequenzen des Spin-Orbit-Splitting. Bei $t=0$ für Ne^{2+} würde man ein Minimum vermuten, da zu diesem Zeitpunkt sich das gerade entstandene Loch noch auf der Polarisationsachse befindet und somit die Ionisation eines weiteren Elektrons entlang dieser Achse weniger wahrscheinlich ist. Jedoch sieht man einen sehr hohen Peak was damit zu erklären ist, dass beim Auftreffen des Probe-Pulses eine Überlappung mit dem Pump-Puls stattfindet und somit das elektrische Feld verdoppelt, also die Intensität vervierfacht wird. Jedoch nach 21 fs bzw. 42 fs, sieht man aber dann die Abhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit des Elektrons vom Ort des Loches deutlich, wenn alle 21 fs sich Maximum und Minimum abwechseln, was auf die Oszillation des Loches in die beiden Zustände $j=1/2$ und $j=3/2$ zurückzuführen ist. Eine gute Kontrolle dieses Experiments ist der Vergleich mit dem Delaystage-Graphen von Ne^+ . Gerade da wo die Ionisationsrate zu Ne^{2+} höher ist, ist sie bei Ne^+ konsequenterweise niedriger, was die Korrektheit dieses Experiments bestätigt.

Kapitel 5

Zusammenfassung

Gegenstand dieser Bachelorarbeit war die Untersuchung des Neon-Atoms, speziell des einfach ionisierten Neons, auf die Abhängigkeit der Ionisation eines Elektrons entlang einer Polarisationsrichtung von dem Zustand des durch die Ionisation entstehenden Loches. Man hat dazu ca. 10 fs lange Laserpulse verwendet, um die Atome zunächst einfach zu ionisieren und innerhalb des Spin-Orbit-Splittings, welches 42 fs andauert bei Neon, dann ein weiteres Elektron zu befreien. Durch die Detektion der entstehenden Ionen und Elektronen im COLTRIMS konnte nachgewiesen werden, dass die Ionisationswahrscheinlichkeit gering ist, so lange das Loch sich noch entlang der Polarisationsachse befindet und sich erhöht, wenn das Loch beginnt in den andern Zustand um die Polarisationsachse herum zu bewegen, um dann nach 21 fs tatsächlich die maximale Wahrscheinlichkeit zu messen. Das darauf folgende Abnehmen der Ionisationswahrscheinlichkeit bestätigt die oszillierende Bewegung des Loches und die Abhängigkeit der Ionisation vom Ort dieses Loches.

Nach dieser Entdeckung ist nun der nächste Schritt nicht nur das Loch zu sehen, sondern alle übrigen Elektronen im Ion nach der Ionisation des ersten. Dazu soll der Jet noch verdünnter in die Reaktionszone gelangen, um noch besser Rückschlüsse machen zu können, von wo die einzeln detektierten Elektronen ursprünglich stammen. Dafür haben wir bereits eine Lochblende mit 10 μm Durchmesser in das Loch in der Kollimator-kammer eingefügt, jedoch konnten wir bisher den Jet nicht gut genug ausrichten für dieses Lochblende und somit noch keine richtige Messung machen.

Danksagung

Ich möchte mich bei Reinhard Dörner bedanken, der es mir ermöglicht hat diese tolle Erfahrung in Kanada machen zu können, sowie Moritz Meckel und Achim Czasch, die mir aus der Ferne sehr geholfen haben mit computertechnischen Dingen ohne die eine Analyse der Daten unmöglich gewesen wäre.

Auch geht mein Dank an alle Mitglieder der Arbeitsgruppe von Paul Corkum und David Villeneuve am National Research Council, Ottawa.

Besonders möchte ich mich bei meinen Betreuern André Staudte und Avner Fleischer bedanken, die sich sehr gut um mich gekümmert und von denen ich sehr viel gelernt habe und auch bei Lee Liu, mit dem ich oft verzweifelt den Jet gesucht habe und Bauteile auseinander und zusammen bauen durfte.

Literaturverzeichnis

- [1] M.V. Ammosov, N.B. Delone, and V.P. Krainov, Sov. Phys. JETP 64 (1986), 1191.
- [2] P.B. Corkum, Phys. Rev. Lett. 71 (1993), 1994.
- [3] F. Fabre, G. Petite, P. Agostini, and M. Clement, J. Phys. B 15 (1982), 1353.
- [4] L. Foucar, Ionisation und Anregung von Wasserstoff- und Deuteriummolekülen mit Synchrotronstrahlung, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2003).
<http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/LutzFoucar2003.pdf>
- [5] R.R. Freeman and P.H. Bucksbaum, J. Phys. B 24 (1991), 325.
- [6] L.V. Keldysh, Soviet Physics JETP 20 (1965), 1307.
- [7] K. Kondo, A. Sagisaka, T. Tamida, Y. Nabekava and S. Watanabe, Phys. Rev. A 48 (1993), R2531.
- [8] B. Körbitzer, Erzeugung ultrakurzer Laserpulse mittels einer gasgefüllten Hohlaser, Bachelorarbeit, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2008).
<http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/LutzFoucar2003.pdf>
- [9] K. Kreidi, Photodoppelionisation von H₂ - eine Analogie zum Doppelspalt, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2005).
<http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/KatharinaKreidi2005.pdf>
- [10] S. Larochelle, A. Talebpour, and S. L. Chin, J. Phys. B 31 (1998), 1201-1214.
- [11] M. Meckel, Strong-Field Ionization of Aligned Oxygen, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2006).
http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/Moritz_Meckel_2006.pdf
- [12] R. Nörenberg, Aufbau und Test einer COLTRIMS Apparatur zur Untersuchung der Ionisation von metastabilem Helium, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2007).
http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/Ralf_Noerenberg_2007.pdf
- [13] A. Rudenko, L. Foucar, M. Kurka, Th. Ergler, K. U. Kühnel, Y. H. Jiang, A. Voitkiv, B. Najjari, A. Kheifets, S. Lüdemann, T. Havermeier, M. Smolarski, S. Schössler, K. Cole, M. Schöffler, R. Dörner, S. Düsterer, W. Li, B. Keitel, R. Treusch, M. Gensch, C. D. Schröter, R. Moshhammer, and J. Ullrich, Phys. Rev. Lett. 101 (2008), 073003
- [14] M. Schöffler, Entwicklung und Aufbau eines Abbildungssystems zur Messung von Elektronen jenseits niedriger Energien, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2002).

<http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/MarkusSchoeffler2002.pdf>

- [15] M. Smolarski, Ionisation von N₂ und O₂ in starken Laserfeldern, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2004).
<http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/MathiasSmolarski2004.pdf>
- [16] R. Santra, R. W. Dunford, and L. Young, Phys. Rev. A. 87 (2006), 043403
- [17] A. Staudte, Subfemtosecond Electron Dynamics of H₂ in Strong Fields, Ph.D. thesis, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2005).
<http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/AndreStaudte2005.pdf>
- [18] A. Staudte, D₂ in ultrakurzen, hochintensiven Laserpulsen, Diplomarbeit, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2000).
<http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/AndreStaudte-2000.pdf>
- [19] R. Taieb, V. Vénier, and A. Maquet, Phys. Rev. Lett. 87 (2001), 053002.
- [20] M. Weckenbrock, Mehrelektronenprozesse in starken Laserfeldern – Ein kinematisch vollständiges Experiment, Dissertation, Institut für Kernphysik, J. W. Goethe Universität, Frankfurt am Main, Germany (2004).
http://www.atom.uni-frankfurt.de/web/publications/files/Matthias_Weckenbrock_2004.pdf
- [21] L. Young, D.A Arms, E.M. Dufresne, R. W. Dunford, D. L. Ederer, C. Höhr, E. P. Kanter, B. Krässig, E. C. Landahl, E. R. Peterson, J. Rudati, R. Santra, and S. H. Southworth, Phys. Rev. Lett. 97 (2006), 083601.