





# Zeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie an Kaliumatomen in intensiven Femtosekundenlaserfeldern

Dissertation  
zur Erlangung des akademischen Grades eines  
Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
im Fachbereich Naturwissenschaften  
der Universität Kassel

von  
Dirk Wilhelm Liese

Kassel  
Januar 2007

Eingereicht beim Fachbereich Naturwissenschaften der Universität Kassel im Januar 2007.

Erster Gutachter und erster Prüfer:	Prof. Dr. Thomas Baumert
Zweiter Gutachter und zweiter Prüfer:	Prof. Dr. René Matzdorf
Dritter Prüfer:	Prof. Dr. Martin Garcia
Vierter Prüfer:	Prof. Dr. Frank Träger

Tag der Disputation: 18. April 2007

# Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	9
2	Theoretische Grundlagen	12
2.1	Einleitung	12
2.2	Das Kaliumatom	12
2.3	Das Laserfeld	15
2.3.1	Das schwache Feld	15
2.3.2	Das starke Feld	15
2.3.2.1	Die Multiphotonenionisation	15
2.3.2.2	Die Above-Threshold-Ionisation	16
2.3.2.3	Die Ponderomotive Energie	16
2.3.2.4	Der AC-Stark-Shift	18
2.3.2.5	Rabi-Oszillationen und bekleidete Zustände (im Zweiniveaumatom)	19
3	Apparativer Aufbau	25
3.1	Einleitung	25
3.2	Die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS	25
3.2.1	Die magnetische Flasche	26
3.2.2	Das Flugzeitmassenspektrometer	27
3.2.3	Atomstrahlgenerierung	27
3.3	Verwendete Lasersysteme	28
3.3.1	Das Femtosekundenlasersystem	28
3.3.2	Das Nanosekundenlasersystem	28

3.3.3	Das Farbstofflasersystem	28
4	Interferenzen von freien ultrakurzen Elektronenwellenpaketen	31
4.1	Einleitung	31
4.2	Experiment	32
4.3	Theorie	34
4.3.1	Grundlagen und Bedingungen	34
4.3.2	Die raumzeitliche Entwicklung des Wellenpakets	36
4.3.3	Wellenpaket und Photoelektronenspektrum	39
4.4	Experimentelle Ergebnisse	40
4.4.1	Parallele Polarisation / Thresholdelektronen	40
4.4.2	Senkrechte Polarisation / ATI Elektronen	51
4.5	Diskussion	51
4.6	Zusammenfassung	55
5	Interferenzkontrolle in einem Autler-Townes Doublet: Symmetrie der Kontrollparameter	57
5.1	Einleitung	57
5.2	Experiment	58
5.3	Theorie	60
5.4	Experimentelle Ergebnisse	61
5.4.1	Variation des Pulsabstandes bei konstanter Laserenergie	61
5.4.2	Variation der Laserenergie bei konstanten Pulsabstand	67
5.5	Diskussion der Messergebnisse	76
5.6	Zusammenfassung	76
6	Intensitätsabhängigkeit von Photoelektronenspektren: Vom schwachen zum starken Feld	79
6.1	Einleitung	79
6.2	Experiment	79
6.3	Experimentelle Ergebnisse	83
6.3.1	Datenaufnahme	83
6.3.1.1	Time-Of-Flight Spektren	83
6.3.1.2	Kalibrierte Spektren	90
6.3.2	Autler-Townes-Aufspaltung	97
6.3.3	Signalstärke, Steigungsgesetz und reduzierte Parameter	105
6.4	Zusammenfassung	118

7 Zusammenfassung	120
A Die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS	122
A.1 Gesamtüberblick	122
A.2 Pumpen, Ventile und Druckmessung	124
A.3 Atom- und Molekularstrahlöfen	127
A.3.1 Alkalimetallkartuschen	127
A.3.1.1 Kartuschenpräparation	129
A.3.2 Generierung von Atom- und Molekularstrahlen	133
A.3.2.1 Theorie	133
A.3.2.2 Allgemeines	137
A.3.2.3 Kaliumatome	137
A.3.2.4 Kaliumdimere	138
A.3.2.5 Natriumdimere	139
A.3.2.6 Ofenabkühlung	140
A.3.3 Atomstrahljustage	141
A.4 Alkalimetalldispenser	142
A.5 Die magnetische Flasche	149
A.5.1 Grundlagen	149
A.5.2 Aufbau der magnetischen Flasche	151
A.5.3 Zeit- und Energieauflösung	156
A.5.4 Kalibrierung	159
A.5.4.1 Modellfunktion, phänomenologischer Ansatz	159
A.5.4.2 Kalibrierung mit bekannten Elektronenenergien	161
A.5.4.3 Schnellkalibrierung	166
A.6 Flugzeitmassenspektrometer	168
A.6.1 Aufbau	168
A.6.2 Kalibrierung	170
A.6.2.1 Kalibrierung mit bekannten Ionenmassen	172
A.7 Datenaufnahme	176
A.8 MaBoS Startup und Shutdown	176
A.8.1 Startup	176
A.8.2 Shutdown	181

B Gewichtungsmethoden beim Fitten von Signal-Laserenergie-Messserien	184
Literaturverzeichnis	188
Liste der Veröffentlichungen	196
Lebenslauf	198
Danksagung	200
Erklärung	202



## Kapitel 1

### Einleitung

Der Mensch sieht: Sicherlich das Auge ist nur eines von fünf Sinnesorganen, welches dem Menschen zur Verfügung steht. Doch gerade das Sehen und die Wahrnehmung von Licht, aber auch von Dunkelheit, haben den Menschen seit jeher beschäftigt. Schnell lernte es der Mensch die Nacht (mit Hilfe von Feuer) zu erhellen. Altsteinzeitliche Menschen benutzten bereits Öllampen, mit welchen es ihnen möglich war in verzweigte Höhlensysteme vorzudringen, in denen sie, wie z. B. in Chauvet (30000 v. Chr., Ardeche, Frankreich), Altamira (18000 v. Chr., Kantabrien, Spanien) oder Lascaux (17000 v. Chr., Perigord, Frankreich) phantastische Höhlenmalereien anbrachten. Schnell wurden die Begriffe Licht und Finsternis metaphysisch überhöht: Licht (und damit verbundene Wärme) als lebenserweckendes „Medium“, welches nach dunklen Wintermonaten die Todesstarre aus der Natur vertreibt. In der Jungsteinzeit wurden bereits bedeutende Bauwerke (Steinkreise), wie in Stonehenge (3100 v. Chr. - 2000 v. Chr., Wiltshire, England) oder in Carnac (Normandie, Frankreich) angelegt, welche wohl mit den Jahreszeiten und deren Wechsel sowie dem mit diesem verbundenen Lichteinfall im Zusammenhang standen. In vielen Mythologien, in den Schöpfungsgeschichten vieler Religionen spielt Licht eine zentrale Rolle: „Es werde Licht! Und es ward Licht. Und Gott sah, dass das Licht gut war. Da schied Gott das Licht von der Finsternis und nannte das Licht Tag und die Finsternis Nacht.“ heißt es z. B. in der Genesis (1. Buch Mose, Kapitel 1, Vers 3-5).

Sehr früh bereits begann der Mensch die Beschaffenheit des Lichts zu erforschen. Bereits in der Antike waren wesentliche Prinzipien des Lichtes bekannt. Euklid [1], der im 3. Jahrhundert vor Christus an der Platonischen Akademie im griechischen Alexandria in Ägypten wirkte, beschrieb in seinem Werk wichtige Grundsätze der geometrischen Optik, wie z.B. das Gesetz über die Reflexion von Licht. Archimedes [2], der um 280 v. Chr. ebenfalls in Alexandria ansässig war, soll durch Bündelung des Sonnenlichtes mit großen Brennsiegeln Teile der römischen Flotte vernichtet haben. Später, im 2. Jahrhundert nach Christus, war es Ptolemäus (wieder in Alexandria) der wesentliche Erkenntnisse von Euklid und Heron (1. Jahrhundert nach Christus) zusammenfasste und ergänzte (wie z.B. das Phänomen der Brechung des Lichtes zwischen Medien unterschiedlicher Dichte.). Später war es der aus Basra stammende Ibn al-Haitham (im Abendland Alhazen genannt), der um 1000 n. Chr. in Kairo wesentliche Entdeckungen zur Optik formulierte: Er kannte bereits die vergrößernde

Wirkung von Linsen und die sphärische Aberration. Er behandelte parabolische Spiegel, beschrieb den Regenbogen und konnte beweisen, dass das Licht des Mondes von der Sonne herrührte.

Wesentliche Erkenntnisse zum Verständnis von Licht erhielten Robert Boyle (25. 1. 1627 – 30. 12. 1691) [3] und Robert Hooke (18. 7. 1635 – 3. 3. 1703) durch ihre Beobachtungen der Interferenzerscheinungen des Lichtes. Christian Huygens (14. 4. 1629 – 8. 7. 1695) [4] gilt als Begründer der Wellentheorie des Lichtes. In Analogie zu Wasser- und Schallwellen, welche sich in einem Medium ausbreiten, dachte er sich als Träger der Lichtwellen einen alle Körper durchdringenden Lichtäther. Alternativ zur Wellentheorie entwickelte Isaac Newton (4. 1. 1643 – 31. 3. 1727) [5] seine oft als Emissionstheorie bezeichnete Teilchentheorie. In der folgenden Zeit kam es zu vielen Erfolgen für die Wellentheorie des Lichtes: Thomas Young (13. 6. 1773 – 10. 5. 1829) [6] führte sein berühmtes Doppelspaltexperiment durch und veröffentlichte seine Ergebnisse zur Interferenz des Lichtes, Louis Malus (23. 6. 1775 – 23. 2. 1812) entdeckte die Polarisation des Lichtes.

Da die Wellentheorie aber hinsichtlich von Absorptions- und Emissionsvorgängen von Atomen keine schlüssigen Erklärungen bot, musste das bewährte Wellenbild modifiziert werden. Wie wir wissen, war es Albert Einstein (14. 3. 1879 – 18. 4. 1955) [7], der 1905 bei der Erklärung des Photoeffekts das Planksche Energiequantum aufgriff (zuvor von Max Planck (23. 4. 1858 – 4. 10. 1947) [8] in seiner Quantenhypothese eingeführt.): Ein Lichteilchen, welches später als Photon bezeichnet werden sollte. Der Welle-Teilchen-Dualismus war geboren.

Eine der bedeutendsten Erfindungen des letzten Jahrhunderts ist sicherlich der Laser [9-11]. Dies gilt nicht nur für seine technische Anwendbarkeit sondern auch gerade für die durch ihn erreichte Vertiefung unseres Verständnisses von Licht. Im Laufe der letzten Jahrzehnte konnten Lasersysteme entwickelt werden, mit deren Hilfe die Generierung von immer kürzer werdenden Laserpulsen möglich wurde [12-14]. Mittlerweile ist es möglich Pulse zu generieren, deren Länge im Attosekundenbereich liegt [15-18]. Mit Hilfe von Femtosekundenlaserpulsen ist es z.B. möglich, die Bewegung von Elektronen und Molekülen zu beobachten. Analog zur Stroboskoptechnik geschieht dies in sogenannten Pump-Probe-Experimenten [19-26]. Komplizierte Reaktionsdynamiken können mit Hilfe von ultrakurzen Lichtpulsen untersucht werden: Eben hier wurde Ahmed H. Zewail 1999 mit dem Chemie Nobelpreis ausgezeichnet [27-29]. Der Nobelpreis der Physik wiederum ging im Jahre 2005 anteilig an Roy J. Glauber sowie an John L. Hall und Theodor W. Hänsch [30]. Sie wurden für ihre Entwicklungen in der Laser basierten Präzisionsspektroskopie bzw. Frequenzmetrologie ausgezeichnet, wo Femtosekundenlaser von besonderer Bedeutung sind. Dies trifft im übrigen auf die gesamte Quantenoptik, in welcher äußerst kurze Laserpulse interessante Experimente ermöglichen, zu. Kohärente bzw. Quantenkontrolle erfordert die Herstellung von geeignet geformten Laserfeldern mit deren Hilfe ein System möglichst effektiv aus seinem Grundzustand  $|g\rangle$  in den Zustand  $|e\rangle$  gehoben werden kann. Mit Hilfe geeigneter Felder lassen sich Interferenzen von Materiewellen beeinflussen. Je nachdem ob man sich im schwachen (Brumer-Shapiro [31], Tannor-Kosloff-Rice [32]) oder im starken Feld (rapid adiabatic passage (RAP), stimulated Raman adiabatic passage (STIRAP)) befindet, wurden dabei unterschiedliche Kontrollmechanismen entwickelt [33-35].

Nach einem kurzen Überblick über theoretische (Kapitel 2) und experimentelle (Kapitel 3) Grundlagen, beschreibt diese Dissertation drei im Bereich der Quantenoptik durchgeführte Ultrakurzzeitexperimente, deren Grundlage die zeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie ist. In Kapitel 4 wird zunächst noch ein Experiment beschrieben, welches im schwachen Feld verwirklicht wurde: Thema sind Interferenzen von freien Elektronenwellenpaketen. In diesem Kapitel wird der Frage nachgegangen, ob Kohärenzeigenschaften von Femtosekundenlaserpulsen auf Elektronenwellenpakete übertragen werden können, die sich im Kontinuum befinden. Hierzu wird analog zu Thomas

Youngs Doppelspaltexperiment ein Interferenzexperiment durchgeführt. In Kapitel 5 geht es um die Interferenzkontrolle im Starkfeldregime: Untersucht wird das Autler-Townes-Douplet im Photoelektronenspektrum des Kaliumatoms. Unter der zusätzlichen Überschrift „Die Symmetrie der Kontrollparameter“ wird gezeigt, dass sowohl durch das starke Laserfeld, als auch auf Grund der optische Phase der beiden Laserpulse, die quantenmechanische Phase eines Atomzustandes in gleicher Weise manipuliert werden kann. In Kapitel 6 wird schließlich aufgezeigt, wie das Autler-Townes-Douplet im Photoelektronenspektrum des Kaliumatoms bei unterschiedlich großer Laserfeldstärke modifiziert wird. Mit Hilfe von Laserenergien zwischen 0,1  $\mu\text{J}$  und 12  $\mu\text{J}$  wurde Kalium hier direkt aus dem Grundzustand ionisiert. An einem resonanzunterstützten Ionisationsprozeß konnte der Übergang vom schwachen zum starken Laserfeld beobachtet werden. In bislang durchgeführten Laser-Starkfeld-Experimenten konzentrierte man sich hingegen auf die nichtresonante Ionisation. Nach der Zusammenfassung im Kapitel 7 schließt sich der Arbeit ein größerer Anhang an, in welchem detailliert auf die technischen Aspekte der Vakuumanlage (MaBoS: Molecular Bottle Spectrometer) eingegangen wird, in welcher die beschriebenen Experimente durchgeführt wurden.

## Kapitel 2

# Theoretische Grundlagen

### 2.1 Einleitung

In diesem Kapitel sollen kurz die theoretischen Grundlagen veranschaulicht werden, welche im weiteren Verlauf dieser Dissertation zum besseren Verständnis der physikalischen Vorgänge von Nutzen sein können. Zunächst möchte ich kurz auf das Kaliumatom eingehen, welches die Basis für die drei Experimente abgibt, die in Kapitel 4, 5 und 6 beschrieben werden. Danach wird es um das Zusammenspiel von Teilchen (in unserem Falle des Atoms) mit einem durch einen Laser verursachten Wechselfeld gehen. Erst soll kurz auf die Physik im schwachen Laserfeld eingegangen werden. Den größeren Teil dieses Kapitel nimmt jedoch die Physik im starken Feld ein, wo störungstheoretische Ansätze nicht immer zum Ziel führen. Behandelt werden kurz die Multiphotonenionisation, die Above-Threshold-Ionisation, die ponderomotive Energie sowie der AC-Stark Shift, bzw. die AC-Stark Aufspaltung (Autler Townes Aufspaltung).

### 2.2 Das Kaliumatom

Wie soeben erwähnt, bildet das Kaliumatom die Basis für die drei in dieser Dissertation beschriebenen Experimente.

Kalium [al kalja (arab.) Pflanzenasche] ist das viert schwerste Element der Hauptgruppe I des Periodensystems und somit das dritt schwerste Alkalimetall. Sein Atomgewicht beträgt 39,098, die Ordnungszahl ist 19. Wie bei seinen Alkalimetallkollegen werden die besonderen chemischen Eigenschaften des Kaliums, wie niedriger Schmelz- und Siedepunkt, niedrige Dichte, niedrige Sublimations-, Verdampfungs- und Dissoziationsenergien, aber auch andere Eigenschaften, wie eine hohe thermische und elektrische Leitfähigkeit [36-38], durch seine besondere Elektronenkonfiguration mit dem schwach gebundenen einzelnen Valenzelektron  $ns^1$  verursacht. Der höchste im unangeregten Falle besetzte Kalium Zustand

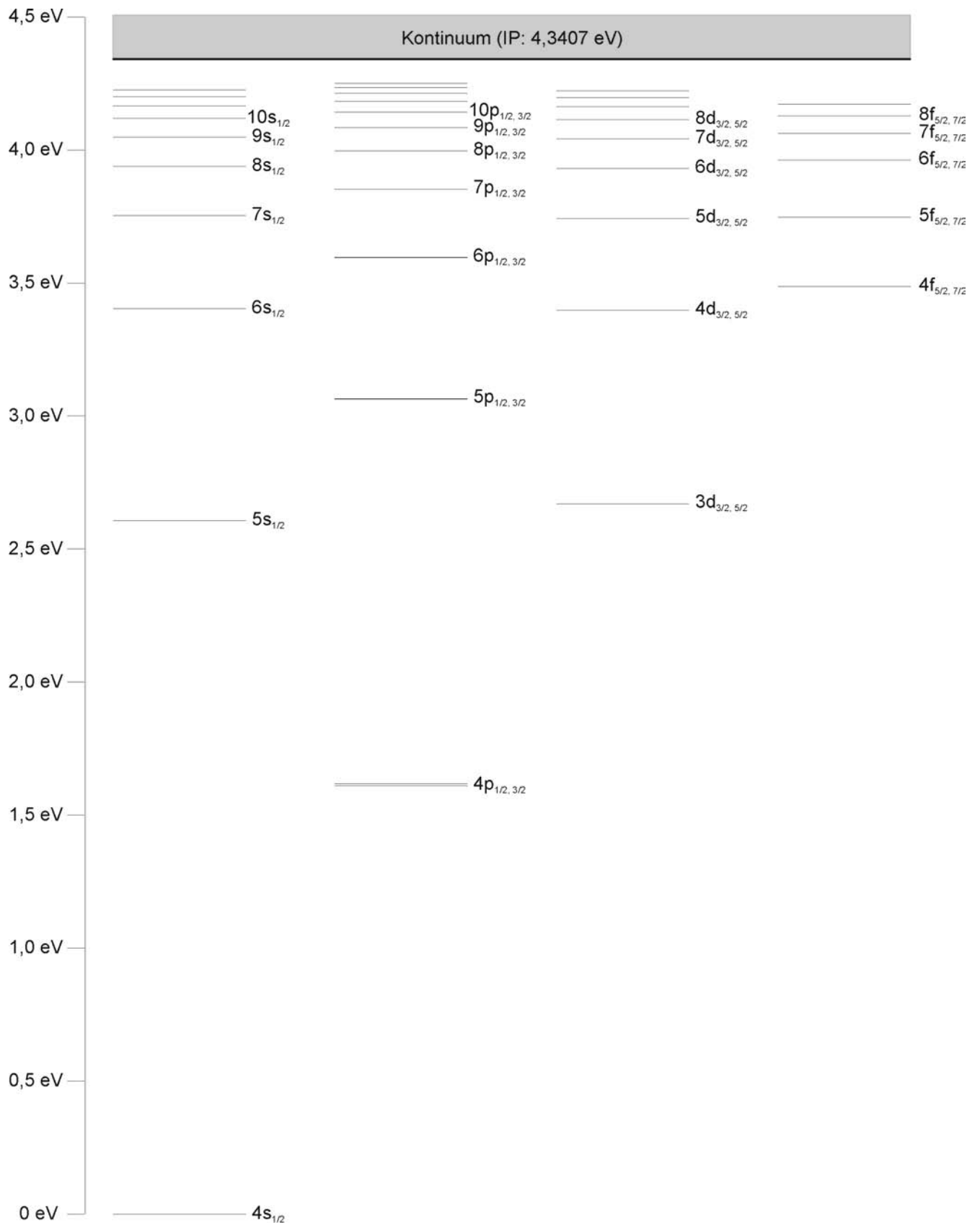


Abbildung 2.1: Grotrian-Diagramm des Kaliumatoms

ist  $4s^1$ . Diese besondere Elektronenkonfiguration ist es, die das Kalium auch für die hier beschriebenen Experimente zum Kandidaten erster Wahl gemacht hat: Zum einen ist die Ionisationsenergie mit 4,340663 eV sehr niedrig (nur die schwereren Alkalimetalle Rubidium, Caesium und Francium haben geringere Ionisationsenergien), zum anderen können ausgehend vom  $4s$  Zustand mehrere interessante Zustände angeregt werden, welche mit Hilfe der fundamentalen Wellenlänge unseres Femtosekundenlasersystems leicht zugänglich sind. Ein Grotrian-Diagramm des Kaliums zeigt die Abbildung 2.1. Die zugehörigen Energien (in Differenz zum  $4s_{1/2}$  Zustand) sind in der folgenden Tabelle eingetragen [39]:

	[eV]		[eV]		[eV]		[eV]
$4s_{1/2}$	0	$4p_{1/2}$	1,609956	$3d_{3/2}$	2,670246	$4f_{5/2}$	3,487409
$5s_{1/2}$	2,606960	$4p_{3/2}$	1,617110	$3d_{5/2}$	2,669960	$4f_{7/2}$	3,487409
$6s_{1/2}$	3,403454	$5p_{1/2}$	3,062581	$4d_{3/2}$	3,396937	$5f_{5/2}$	3,794751
$7s_{1/2}$	3,753528	$5p_{3/2}$	3,064906	$4d_{5/2}$	3,396804	$5f_{7/2}$	3,794751
$8s_{1/2}$	3,938405	$6p_{1/2}$	3,595451	$5d_{3/2}$	3,742555	$6f_{5/2}$	3,961688
$9s_{1/2}$	4,047879	$6p_{3/2}$	3,596497	$5d_{5/2}$	3,742493	$6f_{7/2}$	3,961688
$10s_{1/2}$	4,118039	$7p_{1/2}$	3,852176	$6d_{3/2}$	3,929823	$7f_{5/2}$	4,062317
$11s_{1/2}$	4,165690	$7p_{3/2}$	3,852734	$6d_{5/2}$	3,929791	$7f_{7/2}$	4,062317
$12s_{1/2}$	4,199528	$8p_{1/2}$	3,995693	$7d_{3/2}$	4,041692	$8f_{5/2}$	4,127607
$13s_{1/2}$	4,224419	$8p_{3/2}$	3,996024	$7d_{5/2}$	4,041672	$8f_{7/2}$	4,127607
		$9p_{1/2}$	4,084064	$8d_{3/2}$	4,113576	$9f_{5/2}$	4,172356
		$9p_{3/2}$	4,084278	$8d_{5/2}$	4,113564	$9f_{7/2}$	4,172356
		$10p_{1/2}$	4,142340	$9d_{3/2}$	4,162413		
		$10p_{3/2}$	4,142485	$9d_{5/2}$	4,162405		
		$11p_{1/2}$	4,182792	$10d_{3/2}$	4,197068		
		$11p_{3/2}$	4,182895	$10d_{5/2}$	4,197063		
		$12p_{1/2}$	4,212017	$11d_{3/2}$	4,222534		
		$12p_{3/2}$	4,212092	$11d_{5/2}$	4,222530		
		$13p_{1/2}$	4,233816				
		$13p_{3/2}$	4,233872				
		$14p_{1/2}$	4,250508				
		$14p_{3/2}$	4,250552				

Interesse in dieser Arbeit finden im Grotrian-Diagramm im besonderen die Zustände  $4p$  (siehe Kapitel 5) und  $5p$  (siehe Kapitel 4) die vom Grundzustand aus mittels Laserpulsen der Wellenlänge 785 nm bzw. 405 nm angeregt werden können.

## 2.3 Das Laserfeld

In dieser Arbeit wird der Einfluss eines Laserfeldes auf ein bis dato freies Atom (Kalium) untersucht. Je nach der Größe der Feldstärke können die dabei beobachtbaren Effekte durchaus unterschiedlich sein. Folgend soll daher zwischen einem schwachen und einem starken Feld unterschieden werden.

### 2.3.1 Das schwache Feld

Die Effekte die bei der Wechselwirkung eines Atoms mit einem schwachen Feld beobachtbar sind, lassen sich mit Hilfe der Störungstheorie deuten. Mit Hilfe dieser erhält der Hamiltonoperator  $\hat{H}$  der Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{\partial \psi}{\partial t} = \hat{H} \psi \quad (2.1)$$

einen zusätzlichen Term  $\hat{V}$ . Es ist somit also

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{V} \quad (2.2),$$

wobei  $\hat{H}_0$  den Hamiltonoperator des ungestörten freien Atoms darstellt. Solange der zusätzliche Term  $\hat{V}$  klein gegenüber  $\hat{H}_0$  ist stellt er nur eine kleine Störung für das System dar: Störungsrechnung ist dann möglich. Beispiele für störungstheoretische Betrachtungen finden sich in vielen Lehr- [40-42] und Fachbüchern [43-45].

### 2.3.2 Das starke Feld

Das starke Feld ist das Regime, in welchem störungstheoretische Betrachtungen niedriger Ordnung nicht immer zu einer akzeptablen Beschreibung der Kopplung Atom – Feld führen. Neben einer vollständigen quantenmechanischen Beschreibung kann aber der Einfluss des intensiven Lichtfeldes auch oft durch einfache und anschauliche Konzepte erläutert werden. In den folgenden Unterkapiteln sollen einige Starkfeldeffekte näher betrachtet werden.

#### 2.3.2.1 Die Multiphotonenionisation

Von Multiphotonenionisation (MPI) spricht man dann, wenn für die Ionisation eines Systems mehrere Photonen einer Energie  $\hbar\omega$  benötigt werden [46]. Der Vorgang kann mit Hilfe der Störungsrechnung (höherer Ordnung) beschrieben werden: Für eine nichtresonante Multiphotonenionisation ist die Ionenausbeute  $Y$  unter Verwendung von  $N$  Photonen proportional zur  $N$ -ten Potenz der Intensität des ionisierenden Lasers:

$$Y \sim I^N \quad (2.3)$$

Hierbei gibt  $N$  die kleinstmögliche Anzahl von Photonen an, welche für die Ionisation bzw. für das Erreichen eines realen, langlebigen Eigenzustandes des Systems benötigt werden [47]. Geschieht die Multiphotonenionisation über einen solchen Eigenzustand resonant, spricht man von *Resonant Enhanced Multi Photo Ionisation* (REMPI) oder auch von einem resonant überhöhten MPI-Prozess. Die in (2.3) beschriebene potentielle Abhängigkeit ist allerdings nicht gegeben, wenn es durch das elektrische Laserfeld zu einem AC-Stark-Shift (siehe Kapitel 2.3.2.4) kommt: In der störungstheoretischen Entwicklung können nun Resonanzen induziert werden.

### 2.3.2.2 Die Above-Threshold-Ionisation

Ein Spezialfall der Multiphotonenionisation ist die *Above Threshold Ionization* (ATI). Bei hoher Laserleistung ( $I \approx 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>) können manche der durch Multiphotonenionisation freigesetzten Elektronen noch eine weitere Zahl an Photonen einer Energie  $\hbar\omega$  aufnehmen und hierdurch an kinetischer Energie gewinnen.[48, 49]. Im Elektronenspektrum sind somit neben dem Signal der Threshold-Elektronen noch weitere Signale zu sehen. Wie ist die Aufnahme von zusätzlichen Photonen aber möglich, ohne dass die Impuls- bzw. Drehimpulserhaltung verletzt wird? Man geht davon aus, dass sich das quasifreie Elektron zum Zeitpunkt der zusätzlichen Photonaufnahme noch innerhalb des Einflusses des Kernpotentials befindet. Somit kann der Atomkern den Elektronenimpuls kompensieren.

Zum ersten mal wurde die Above Threshold Ionisation von Agostini et al. im Jahre 1979 mit Hilfe von intensiven Nanosekundenlaserpulsen bei der Ionisation von Xenon beobachtet [48]. Auch andere Edelgase wurden in Folge so ionisiert, dass ATI-Signale sichtbar wurden. Ionisiert wurde in den verschiedenen Experimenten dabei mit Laserlicht, dessen Bandbreite vom ultravioletten bis zum infraroten reichte [50-53]. Längst ist der Effekt auch durch die Ionisation einer Vielzahl anderer Atome und Moleküle bekannt [46, 54-56].

Die mathematische Beschreibung kann mit Hilfe unterschiedlicher Ansätze erfolgen: Eine gute Übersicht über diese bietet [54]. Gemeinsam ist diesen Beschreibungen jedoch, dass ein Elektron betrachtet wird, welches nur schwach vom atomaren (oder molekularen) Potential beeinflusst wird. Die Bewegung des Elektrons wird hingegen durch das anliegende intensive Laserfeld dominiert. Dementsprechend werden bei den meisten Berechnungen des AT-Schrittes die bekannten Lösungen eines sich im oszillierenden Laserfeld bewegenden Elektrons (Volkov-Zustand [57]) als Grundlage benutzt. Außerdem wird die Dipolnäherung zur Beschreibung der Bewegung herangezogen: Da bei den verwendeten Intensitäten die Geschwindigkeit klein gegenüber der Lichtgeschwindigkeit ist und somit die Amplitude der Bewegung klein im Gegensatz zur Wellenlänge ist, kann dies erfolgen.

### 2.3.2.3 Die Ponderomotive Energie

Später, nachdem es möglich war noch höhere Laserenergien zu erzeugen, konnten Abweichungen [58-60] zur bisherigen Theorie bezüglich der Above-Threshold-Ionisation festgestellt werden: In intensiven Laserfeldern kommt es bei vielen Atomen zu einer Verschiebung der elektronischen Zustände. Diese Verschiebung, welche im Elektronenspektrum durch eine Verminderung der kinetischen Energie der Signale ersichtlich wird, kann mit Hilfe des Begriffes der ponderomotorischen Energie und / oder des AC-Stark-Shifts (siehe auch Kapitel 2.3.2.4) erklärt werden. Nach [61] bestehen zwei grundlegende Voraussetzungen für das Eintreffen einer Linienverschiebung: Zum einen muss die Photonenenergie des einwirkenden Laserlichts größer als die Energiedifferenz zwischen den einzelnen gebundenen Zuständen sein, zum anderen muss diese Photonenergie deutlich kleiner als die Energiedifferenz zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten



Zustand sein. Eine ponderomotive Verschiebung kann für Alkaliatome somit nicht beobachtet werden. Wohl aber tritt sie bei Edelgasatomen und atomaren Wasserstoff auf.

Die ponderomotive Verschiebung kann mittels der klassischen Elektrodynamik erklärt werden. Im intensiven und oszillierenden Laserfeld wird jedes geladene Teilchen zu einer Zitterbewegung gezwungen. Ein Elektron mit der Masse  $m_e$  folgt dabei im elektrischem Feld  $E = E_0 \sin(\omega t)$  der klassischen Bewegungsgleichung

$$m_e \frac{\partial^2 x}{\partial t^2} = -e \cdot E(t, x) \quad (2.4).$$

Mittelt man die Energie einer solchen Bewegung über einen optischen Zyklus erhält man die ponderomotive Energie, welche sich zu

$$U_p = \frac{e^2 E_0^2(x)}{4m_e \omega^2} \quad (2.5)$$

ergibt. Da die ponderomotive Energie im nichtrelativistischen Grenzfall linear von der Laserintensität abhängig ist, ergibt sich die Gesamtenergie eines Elektrons im Laserfokus zu

$$E_{el} = \frac{1}{2} m_e v^2 + U_p = n\hbar\omega - IP + U_p \quad (2.6).$$

Ob schlussendlich diese Energie während eines Experimentes beobachtet wird, hängt von der Zeit ab, welche das Elektron benötigt, um das durch den Laser gestaltete Wechselwirkungsvolumen zu verlassen: Das Beobachten des zusätzlichen Energiebetrags ist somit also von der Pulsdauer und dem Fokusbereich abhängig. Es können hierdurch zwei Grenzfälle beobachtet werden:

Erster Grenzfall: Die Gesamtenergie des Elektrons eines ionisierten Atoms setzt sich aus zwei verschiedenen Energiebeiträgen zusammen: Dies sind die gerichtete kinetische Energie sowie die potentielle Energie, welche dem Elektron im Laserfeld auf Grund seiner Zitterbewegung zugeführt wird. Verlässt nun das Elektron den Laserfokus bevor sich die ponderomotive Energie  $U_p$  signifikant verändert hat, wird seine potentielle Energie in kinetische überführt: Beim Durchlaufen des elektrischen Feldgradienten erfährt das Elektron eine Beschleunigung. Es erhält somit eine kinetische Energie, welche genau seiner ursprünglichen Gesamtenergie  $E_{el} = n \cdot \hbar\omega - IP$  entspricht. Ein Elektron mit einer kinetischen Energie von typischerweise 1 eV benötigt bei einem Strahldurchmesser von 100  $\mu\text{m}$  etwa 10 ps um das elektrische Laserfeld zu verlassen. Vollständige Energiekonversion erfolgt daher typischerweise bei Laserpulsen größer bzw. gleich 10 ps [66].

Zweiter Grenzfall: Wenn die Laserpulsdauer kurz im Vergleich zu der Zeit ist, welche das Elektron benötigt, um den Laserfokus zu verlassen, also kleiner gleich 500 fs ist, kann dem Elektron aus dem Laserfeld keine Energie mehr zugeführt werden. Die kinetische Energie wird hier also um die „Zitterenergie“ abgesenkt. Andersherum kann man auch schreiben, dass das Ionisationspotential um die ponderomotive Energie erhöht wurde.

### 2.3.2.4 Der AC-Stark-Shift

Wie bereits im vorherigen Unterkapitel soll hier noch einmal untersucht werden, ob und wie sich Energielagen in einem elektromagnetischen Wechselfeld ändern können. Ausgangspunkt hierfür soll die quadratische Stark Verschiebung sein. Diese unterscheidet eigentlich gar nicht zwischen positivem und negativem Feld. Berücksichtigt man die zusätzliche, vom Photon eingebrachte Energie (wir haben es mit einem sogenannten „dressed Atom“ zu tun (siehe Abschnitt 2.3.2.5)), kann man den Effekt leicht auf das Wechselfeld übertragen.

Auch bei der Betrachtung von nur einem Niveau, muss die Möglichkeit in Betracht gezogen werden, dass kurzfristig eine virtuelle Emission oder Absorption eines Photons geschieht. Dies ist auch möglich, wenn wir nicht in Resonanz mit einem atomaren Übergang einstrahlen. Es gilt natürlich die Unschärferelation

$$\Delta E \Delta t > \hbar \quad (2.7)$$

und somit

$$\Delta E > \frac{\hbar}{\Delta t} \quad (2.8)$$

Für sehr kurze Zeit können daher die Niveaus beliebig unscharf, also quasi angeregt werden. Unsauber könnte von einem virtuellem Zwischenniveau gesprochen werden. Bei der statischen Stark Verschiebung wird die Polarisierbarkeit beschrieben durch [62]

$$\alpha = 2e_0^2 \sum_{k \neq i} \frac{|z_{ki}|^2}{E_k - E_i} \quad (2.9),$$

wobei  $z_{ki}$  das Wechselwirkungsmatrixelement der Störung zwischen den Zuständen  $i$  und  $k$  ist ( $z = r \cos \vartheta$ ). Im dynamischer Fall muss die Gesamtenergie des Systems  $E_i$  (ob nun vor einer Absorption oder vor einer Emission eines eingestrahlten Photons mit der Frequenz  $\omega$ ) durch  $E_i + n\hbar\omega$  ersetzt werden. Die Zwischenzustandsenergie  $E_k$  wird je nachdem ob ein Photon absorbiert oder emittiert wird somit zu  $E_k + (n \mp 1)\hbar\omega$ . Wird über alle möglichen Absorptions- und Emissionsprozesse summiert, erhält man

$$\alpha = 2e_0^2 \sum_{k \neq i} \left[ \frac{|z_{ki}|^2}{E_k - E_i - \hbar\omega} + \frac{|z_{ki}|^2}{E_k - E_i + \hbar\omega} \right] \quad (2.10).$$

In dieser Gleichung steht der erste Term für die Absorption und der zweite Term für die Emission. Mit  $E_k - E_i = \hbar\omega_{ki}$  erhält man

$$\alpha = 2e_0^2 \sum_{k \neq i} \left[ \frac{|z_{ki}|^2}{\hbar(\omega_{ki} - \omega)} + \frac{|z_{ki}|^2}{\hbar(\omega_{ki} + \omega)} \right] = 2 \frac{e_0^2}{\hbar} \sum_{k \neq i} \frac{\omega_{ki} |z_{ki}|^2}{\omega_{ki}^2 - \omega^2} \quad (2.11).$$

Für eine elektromagnetische Strahlung mit der Intensität  $I$  erhält man somit mit

$$W = -\frac{\alpha}{2} \mathcal{E}_{eff}^2 = -\frac{\alpha}{4} \mathcal{E}_0^2 = -\frac{\alpha}{2} \frac{I}{\epsilon_0 c} \quad (2.12)$$

folgende Verschiebung der Atomaren Niveaus:

$$W = \frac{e_0^2 I}{\hbar \epsilon_0 c} \sum_{k \neq i} \frac{\omega_{ki} |z_{ki}|^2}{\omega_{ki}^2 - \omega^2} \quad (2.13)$$

Wie in [59] beschrieben wird, entspricht die AC-Stark Verschiebung exakt der Ponderomotiven Kraft (siehe Abschnitt 2.3.2.3) und kann somit mit dieser identifiziert werden. Man kann somit interpretieren, dass im Langpulsregime die ponderomotive Energie die Wirkung des AC-Stark Shifts gerade aufhebt, während im Kurzpulsregime die ponderomotive Energie nicht berücksichtigt werden braucht. Die Zustände erfahren den Effekt des AC-Stark Shifts dann vollständig: Die Energie der freiwerdenden Elektronen wird geringer.

### 2.3.2.5 Rabi-Oszillationen und bekleidete Zustände (im Zweiniveaumatom)

Im Hinblick auf die in den Kapiteln 5 und 6 beschriebenen Experimente sollen in diesem Kapitel die Begriffe Rabi-Oszillationen und bekleidete Zustände (dressed states) kurz erläutert werden. Eine Annäherung an die beiden Termini soll dabei über das Modell des Zweiniveaumatoms im starken Laserfeld erfolgen. Im Gegensatz zum störungstheoretischen Fall ist also eine Entvölkerung des Grundzustands durch die Laseranregung möglich. Weiterführende Erläuterungen der Thematik finden sich in [62, 94, 106].

Für die Darstellung der hier zu erläuternden physikalischen Effekte ist ein Zweiatomsystem, wie es in der Abbildung 2.2 dargestellt wird, hinreichend. Aus der Schrödingergleichung

$$i\hbar \frac{d}{dt} c(t) = (\hat{H}_0 + \hat{V}(t))c(t) \quad (2.14),$$

in welcher der Hamiltonoperator  $\hat{H}_0$  und der Wechselwirkungsoperator  $\hat{V}$  in Matrixdarstellung stehen und in welcher  $c(t)$  für den Vektor der Amplitude steht, lässt sich das Schrödingerbild

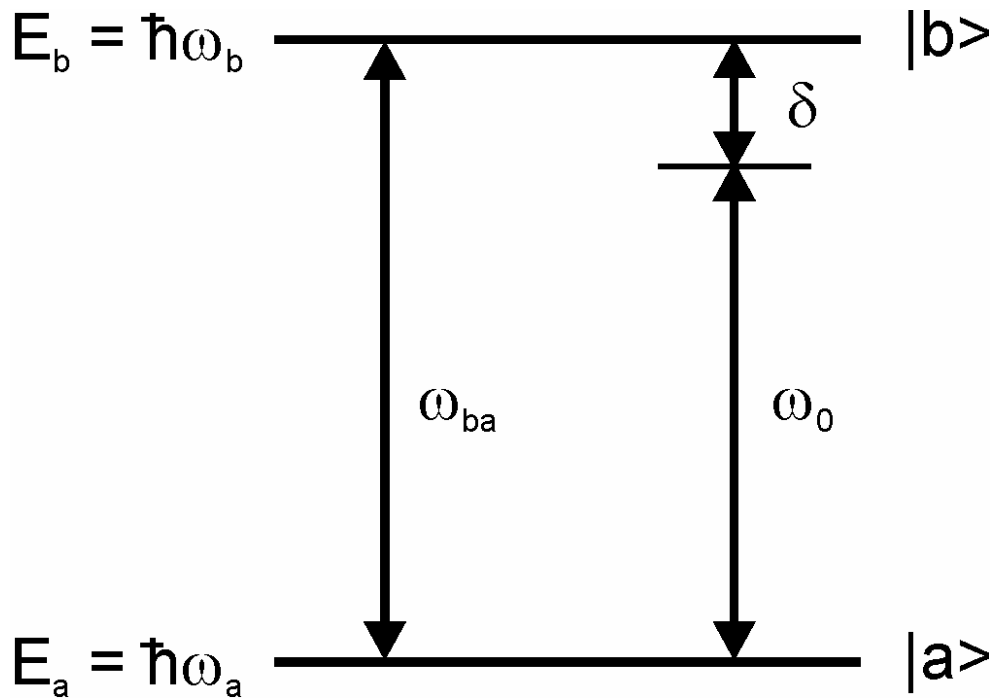


Abbildung 2.2: Zweiniveausystem mit den beiden Zuständen  $|a\rangle$  und  $|b\rangle$ . Die Laserfrequenz  $\omega_0$  unterscheidet sich von der Übergangsfrequenz  $\omega_{ba}$  durch die Frequenzverstimung  $\delta$ .

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} c_a(t) \\ c_b(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} E_a & V_{ab} \\ V_{ba} & E_b \end{pmatrix} \begin{pmatrix} c_a(t) \\ c_b(t) \end{pmatrix} \quad (2.15)$$

entwickeln [63]. Mit Hilfe der Transformation

$$\hat{T} = \begin{pmatrix} e^{i\omega_a t} & 0 \\ 0 & e^{i\omega_b t} \end{pmatrix} \quad (2.16)$$

gelangt man in das Wechselwirkungsbild

$$i\hbar \frac{d}{dt} \begin{pmatrix} a_a(t) \\ a_b(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & V_{ab} e^{-i\omega_{ba} t} \\ V_{ba} e^{i\omega_{ba} t} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_a(t) \\ a_b(t) \end{pmatrix} \quad (2.17).$$

Unter Berücksichtigung der Rotating-Wave-Approximation [63] ergibt sich

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} a_a(t) \\ a_b(t) \end{pmatrix} = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} 0 & \Omega(t)e^{-i\delta t} \\ \Omega^*(t)e^{-i\delta t} & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} a_a(t) \\ a_b(t) \end{pmatrix} \quad (2.18),$$

wobei die Rabi-Frequenz

$$\Omega(t) = \frac{\mu}{\hbar} \mathcal{E}(t) \quad (2.19)$$

eingeführt wird.  $\mu$  steht für das Dipolmoment,  $\mathcal{E}$  für das eingestrahlte Laserfeld. Gleichung (2.18) gilt für den resonanten Anregungsfall. Im nicht-resonanten Anregungsfall, also dann wenn die Übergangsfrequenz des anregenden Lasers um  $\delta$  verstimmt ist, erhält man mit Hilfe der unitären Transformation

$$\hat{T}' = \begin{pmatrix} e^{i\delta t/2} & 0 \\ 0 & e^{-i\delta t/2} \end{pmatrix} \quad (2.20)$$

aus (2.18) die folgende modifizierte Form:

$$\frac{d}{dt} \begin{pmatrix} C_a(t) \\ C_b(t) \end{pmatrix} = \frac{i}{2} \begin{pmatrix} \delta & \Omega(t) \\ \Omega^*(t) & -\delta \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_a(t) \\ C_b(t) \end{pmatrix} \quad (2.21)$$

Die zeitabhängige Schrödingergleichung kann in vielen Fällen für das Zweiniveaumatom analytisch gelöst werden. Dies ist zum Beispiel für die kontinuierliche Anregung durch ein Continuous-Wave-Feld (CW-Feld) der Fall [63, 106]. Ein anderer Fall ist die resonante, gepulste Anregung mit konstanter zeitlicher Phase  $\chi$  [106]: Wenn wir die zeitabhängige Pulsfläche

$$\theta(t) = \int_{t_0}^t |\Omega(t')| dt' \quad (2.22)$$

eingeführen, erhalten wir die Lösung

$$\begin{pmatrix} C_a(t) \\ C_b(t) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \cos\left(\frac{\theta(t)}{2}\right) & ie^{i\chi} \sin\left(\frac{\theta(t)}{2}\right) \\ ie^{-i\chi} \sin\left(\frac{\theta(t)}{2}\right) & \cos\left(\frac{\theta(t)}{2}\right) \end{pmatrix} \begin{pmatrix} C_a(t_0) \\ C_b(t_0) \end{pmatrix} \quad (2.23).$$

Der Verlauf dieser Lösung wird für einen resonanten Puls der Fläche  $\theta = \theta(\infty) = 4\pi$  in Abbildung 2.3 dargestellt: Nach zwei Rabizyklen kehrt das Zwei-Niveau-Atom in seinen Grundzustand zurück.

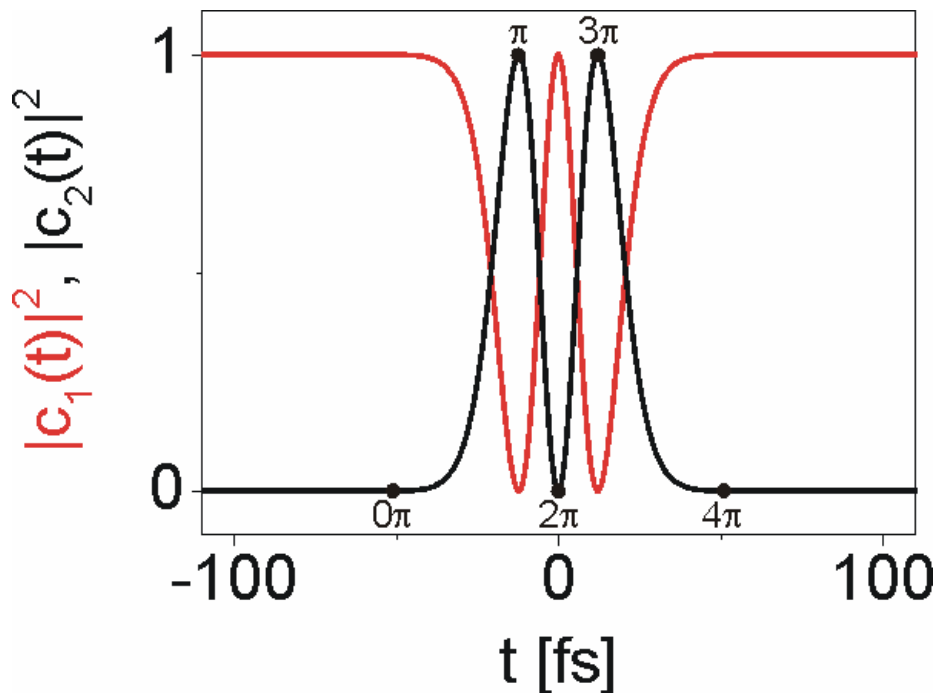


Abbildung 2.3: Zeitlicher Verlauf der Besetzungen  $|c_n(t)|^2$  bei Anregung mit einem resonanten, reellen Puls, welcher die Pulsfläche  $4\pi$  besitzt.

Das bislang besprochene Bild, in welchem der Hamiltonoperator  $\hat{H}_0$  ungestört angenommen wurde, in dem also nur diabatische Zustände bzw. bare states besprochen wurden, soll nun erweitert werden. Die folgende Darstellung umschließt die Eigenzustände des Hamiltonoperators inklusive der Wechselwirkung. Die resultierenden gestörten Zustände werden bekleidete Zustände (dressed states) oder auch adiabatische Zustände genannt.

Ausgegangen wird hier vom modifizierten Wechselwirkungsbild, wie es durch Gleichung (2.21) veranschaulicht wird [106]. Der Hamiltonoperator

$$\hat{H}(t) = -\frac{\hbar}{2} \begin{pmatrix} \delta & |\Omega(t)|e^{i\chi(t)} \\ |\Omega(t)|e^{-i\chi(t)} & -\delta \end{pmatrix} \quad (2.24)$$

wird durch die Matrix

$$\hat{A}(t) = \begin{pmatrix} \cos(\Theta)e^{-i\chi/2} & \sin(\Theta)e^{i\chi/2} \\ -\sin(\Theta)e^{-i\chi/2} & \cos(\Theta)e^{i\chi/2} \end{pmatrix} \quad (2.25)$$

diagonalisiert, wobei der Mischungswinkel  $\Theta(t)$  durch die Gleichung

$$\tan[2\Theta(t)] = \left( \frac{|\Omega(t)|}{\delta} \right) \quad (2.26)$$

gegeben ist. Man erhält

$$\hat{A}\hat{H}\hat{A}^+ = \begin{pmatrix} \varepsilon_1(t) & 0 \\ 0 & \varepsilon_2(t) \end{pmatrix} \quad (2.27),$$

wobei die Diagonalelemente die Eigenenergien der bekleideten Zustände sind. Führt man die generalisierte Rabi-Frequenz

$$\Omega_g(t) = \sqrt{|\Omega(t)|^2 + \delta^2} \quad (2.28)$$

ein, erhält man diese Eigenenergien (siehe Abbildung 2.4):

$$\varepsilon_1(t) = -\frac{1}{2} \text{sign}(\delta) \hbar \Omega_g(t) \quad (2.29)$$

$$\varepsilon_2(t) = +\frac{1}{2} \text{sign}(\delta) \hbar \Omega_g(t) \quad (2.30)$$

Die Größe der Aufspaltung ist somit

$$\Delta\varepsilon(t) = |\varepsilon_2(t) - \varepsilon_1(t)| = \hbar \Omega_g(t) \quad (2.31).$$

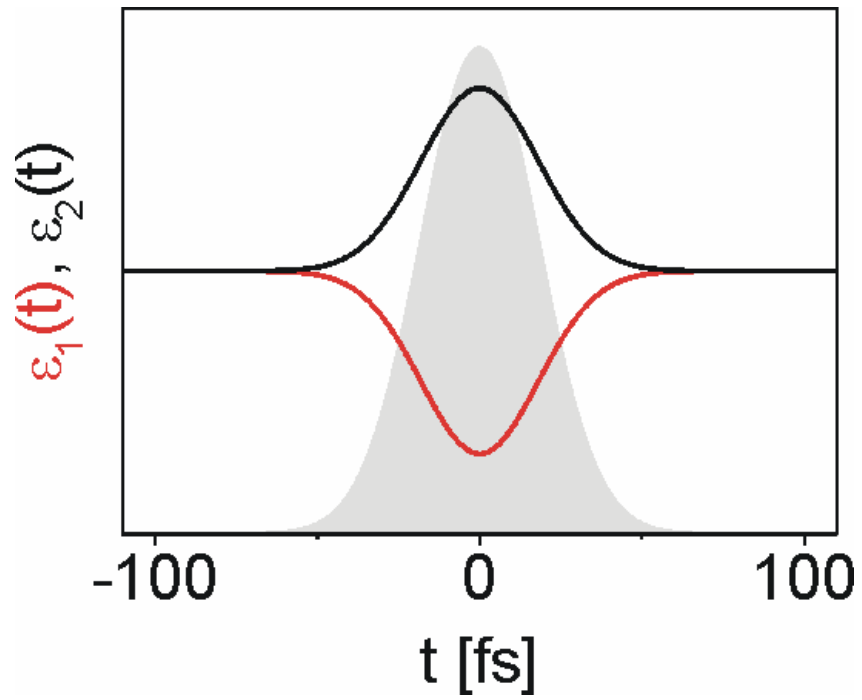


Abbildung 2.4: Eigenenergien der bekleideten Zustände eines resonanten, reellen  $4\pi$ -Pulses. Während der Wechselwirkung wird die Entartung der beiden Energien aufgehoben, so dass sie gemäß der Gleichung (2.31) aufspalten.



## Kapitel 3

# Apparativer Aufbau

### 3.1 Einleitung

Dieses Kapitel bietet einen kurzen Überblick über die experimentellen Techniken, welche für die Experimente, die in den Kapiteln 4 bis 6 beschrieben werden, benötigt werden: Grundlage aller Experimente ist zunächst die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS (Magnetic Bottle Spectrometer), welche von Dirk Wössner [64], M. Hoffmann [65] und Thomas Frohnmeyer [66] an der Universität Würzburg entwickelt bzw. verwendet wurde. In der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS befinden sich der Ofen zur Generierung eines Atom- oder Molekularstrahls sowie ein Photoelektronen-Spektrometer zur Analyse der im Experiment emittierten Photoelektronen. Dritter unabdingbarer Arm der durchgeführten Experimente ist das Femtosekundenlasersystem, ohne welches man die beobachteten, auf einer sehr kleinen Zeitskala stattfindenden Effekte nicht hätte abbilden können. Kombiniert fügen sich Atomstrahl, Laserstrahl und Spektrometerachse zu einem dreidimensionalen Kreuz zusammen, welches in Abbildung 3.1 zu sehen ist.

### 3.2 Die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS

Die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS besteht aus zwei Hauptkammern, welche differentiell bepumpt werden sowie der dazwischen liegenden Spektrometereinheit. In den quaderförmigen Kammern wird ein Hochvakuum bis hinunter auf  $10^{-8}$  mbar erreicht. In der Ofenkammer, deren Vakuum mit Hilfe einer großen Diffusionspumpe (Varian VHS-10, Saugleistung 5300 l/s) erreicht wird, befindet sich ein Ofen zum Zwecke der Atomstrahlegenerierung. Ofenkammer und Spektrometereinheit sind durch einen Skimmer, welcher einen Öffnungsdurchmesser von 1,5 mm besitzt, getrennt. In der Spektrometereinheit, mit dem orthogonal zum Atomstrahl nach oben zeigenden Magnetischen Flasche (Flugzeitelektronenspektrometer) sowie dem ebenfalls orthogonal aber nach unten gerichteten Flugzeitmassenspektrometer, befinden sich die beiden Polplatten, welche je nach

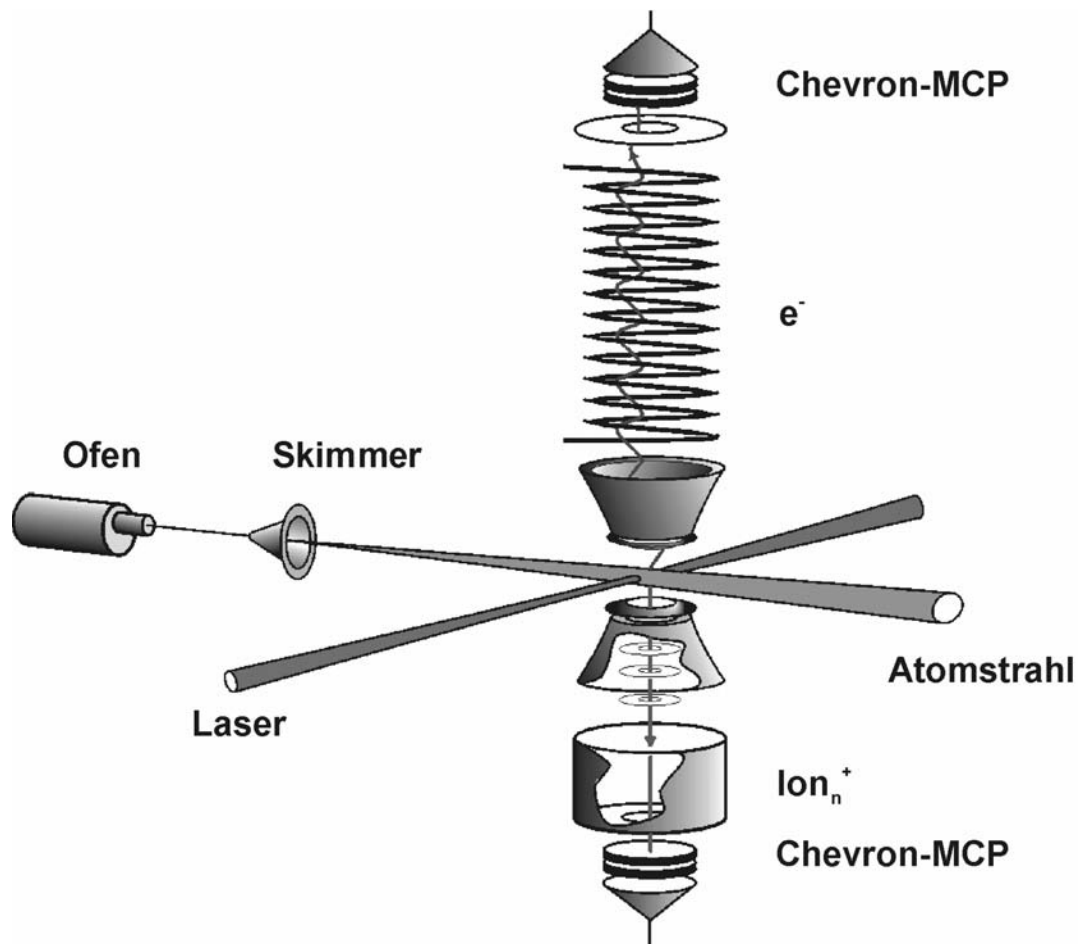


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung des Zusammenspiels von Atomstrahl, Laserstrahl und den beiden Spektrometern. Im Wechselwirkungsgebiet trifft der Laserstrahl auf den Atomstrahl und ionisiert Atome. Die dabei entstehenden Ionen driften nach unten und werden mit dem Flugzeitmassenspektrometer nachgewiesen, die emittierten Elektronen werden hingegen oben mit Hilfe der magnetischen Flasche registriert.

Bedarf mit verschiedenen Spannungen versorgt werden können. Vor den Polplatten befindet sich ein weiterer Skimmer. Spektrometereinheit und Hauptkammer sind durch einen 250 ISO-K-Flansch verbunden. Spektrometereinheit und Hauptkammer können somit gemeinsam, über eine sich unter der Hauptkammer befindende Turbomolekularpumpe (Varian V550), evakuiert werden. Zum Ausfrieren des Atomstrahles befindet sich am anderen Ende der Hauptkammer eine mit flüssigen Stickstoff befüllbare Kühlfalle.

Im Rahmen dieses Kapitels werden bezüglich der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS sowie derer Komponenten (Ofen, magnetische Flasche, Flugzeitmassenspektrometer) nur die wesentlichen Details genannt. Eine ausführlichere Betrachtung dieser Techniken befindet sich im Anhang A.

### 3.2.1 Die magnetische Flasche

Die magnetische Flasche wurde von Pieter Kruit [67, 68] am AMOLF Institute for Atomic and Molecular Physics in Amsterdam entwickelt. Gegenüber einem linearen Flugzeitspektrometer, welches kein elektromagnetisches Führungsfeld besitzt, ist die Elektronensammelrate sehr hoch, da Elektronen über einen Raumwinkel von  $2\pi$  detektiert

werden können. Somit ist es möglich Messungen auch bei geringen Teilchendichten im Atom- oder Molekülstrahl durchzuführen. Andererseits ist es ebenfalls möglich Messungen im schwachen Feld bei geringen Laserintensitäten durchzuführen, bzw. die Messzeiten solcher Experimente im Gegensatz zu denen beim linearen Flugzeitspektrometer deutlich zu verkürzen. In der magnetischen Flasche werden die unterschiedlichen Flugbahnen der emittierten Elektronen mit Hilfe eines inhomogenen magnetischen Feldes der Größe 1 Tesla parallelisiert. Dies geschieht auf einer Strecke von wenigen Millimetern. Auf der nun folgenden Driftstrecke, welche 0,5 m lang ist, werden die Elektronen mit Hilfe eines schwachen magnetischen Führungsfeldes der Größe 1 mT geleitet. Schließlich treffen sie dort am Ende auf einen Chevron-MCP (Microchannelplate) des Typs Hamamatsu F1094. Hier werden sie vervielfacht, das entstehende elektrische Signal wird ausgekoppelt und mit Hilfe eines Verstärkers des Typs Phillips Scientific 6954 verzehnfacht. Bei einer Elektronenenergie von 0,5 eV beträgt die Energieauflösung der magnetischen Flasche etwa 20 meV.

### 3.2.2 Das Flugzeitmassenspektrometer

Ergänzend zum Nachweiß von Elektronen mit der magnetischen Flasche ist es in der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS ebenso möglich mit Hilfe eines Flugzeitmassenspektrometers Ionen nachzuweisen. Hierdurch können Rückschlüsse über den Ursprung der bei den Photoelektronenexperimenten emittierten Elektronen gemacht werden. Die Anordnung des Flugzeitmassenspektrometers entspricht der eines typischen Wiley-McLaren-Aufbaues. Unterschiedlich hierzu ist allerdings eine auf die Ionen wirkende Fokussierung, welche durch die von uns gewählte Form der Blenden und Polschuhe (siehe Anhang A) bewirkt wird. Der Nachweiß der Ionen erfolgt durch einen Chevron-MCP des Typs Burle APD 3025 12/10/12 D STD. Die in den einzelnen Kanälen des MCP's herausgelösten Elektronen werden gegen eine Anode beschleunigt, das entstehende elektrische Signal wird ausgekoppelt und ebenfalls mit Hilfe eines Verstärkers des Typs Phillips Scientific 6954 verzehnfacht.

### 3.2.3 Atomstrahlgenerierung

Der Kaliumatomstrahl wird mit Hilfe eines Ofens generiert, der Baugleich mit dem ist, der von R. Möller [69] an der Universität Freiburg entwickelt wurde. Einige Gramm Kalium werden in eine zylinderförmige Stahlkartusche eingefüllt, an deren Vorderseite sich ein weiterer kleinerer Zylinder mit aufgeschweißten Düsenplättchen befindet. Der in den folgend beschriebenen Experimenten verwendete Düsendurchmesser beträgt 200  $\mu\text{m}$ . Die Kartusche, wird während des Experimentes mit Hilfe eines Keramikkörpers, in welchem sich eine Tantalwiderstandsheizwicklung befindet, geheizt. Mit Hilfe eines ebenso aufgebauten kleineren Keramikzylinders kann die Düsentemperatur höher als die der Kartusche gehalten werden. Dies verhindert ein Verstopfen der Düse. Für das Generieren eines Kaliumatomstrahles hat sich eine Kartuschestemperatur von 300°C, bzw. eine Düsentemperatur von 350°C als sinnvoll erwiesen. Der Dampfdruck beträgt in der Kartusche bei diesen Temperaturen ca. 1 mbar. Für das Generieren anderer Atom – bzw. Molekularstrahlen kann der Ofen bis auf 700°C geheizt werden. Außerdem ist es möglich ein Carriergas (in der Regel Argon) in die Kartusche einzuführen, so dass die Ausbildung von Dimeren, Trimeren, etc. gefördert wird (Seeded-Beam-Technik). Der entstehende Überschallatom- bzw. Molekularstrahl kann mit Hilfe eines Manipulators, welcher von der Firma VA-TEK hergestellt wurde, innerhalb der Vakuumapparatur justiert werden.

### 3.3 Die verwendeten Lasersysteme

Auf Grund der auf einer sehr kleinen Zeitskala stattfindenden Dynamik ist für die Durchführung der in den nächsten Kapiteln beschriebenen Experimente ein Femtosekundenlasersystem unabdingbar. Für Vorexperimente, als auch für die Spektrometerkalibrierungen wurden außerdem ein Nanosekundenlaser des Typs Spectra Physics Quanta-Ray INDI-30 sowie ein Farbstofflaser des Typs Sirah Cobra-Stretch verwendet.

#### 3.3.1 Das Femtosekundenlasersystem

Das Herzstück des in unserer Arbeitsgruppe verwendeten Femtosekundenlaserssystems ist ein Ti:Saphir-Oszillator des Typs Femtolasers Femtsource Scientific Pro [70]. Er wird von einem Nd:YVO<sub>4</sub> Laser des Typs Coherent Verdi V-5 [71] gepumpt. Der Oszillator liefert bei einer Repetitionsrate von 75 MHz Pulse mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm, einer Pulsdauer von 12 fs und einer Energie von 12 nJ. Diese Pulse werden in den Multipass-CPA-Verstärker (Femtolasers Femtopower Pro [72]) eingekoppelt. Einzelne Ausgangspulse des Oszillators werden hier mit Hilfe eines Nd:YLF Lasers des Typs B.M.Industries Nd:YLF 621-D [73] verstärkt, so dass Pulse mit weniger als 30 fs Länge, bei einer Repetitionsrate von 1 kHz geliefert werden können. Die Pulsenergie beträgt hierbei 800 µJ. Wahlweise kann der verstärkte Strahl im Anschluss mit einer Frequenzkonversionseinheit HHG des Typs Light Conversion Harmonic Generator [74] in ihre Harmonischen (400nm, 266 nm, 200 nm) oder mittels des Optisch-Parametrischen-Verstärkers (Light Conversion TOPAS [75] in Wellenlängen zwischen 300 nm und 2400 nm konvertiert werden. Zusätzlich können, mit Hilfe eines in unserer Arbeitsgruppe von Andreas Präkelt entwickelten und gebauten Phasenmodulators, komplexe Laserpulsformen generiert werden [76, 77]. Eine genaue Übersicht des Lasersystems findet sich in Abbildung 3.2.

#### 3.3.2 Das Nanosekundenlasersystem

Zur Kalibrierung der magnetischen Flasche sowie des Flugzeitmassenspektrometers wurde ein Nd:YAG Nanosekundenlaser des Typs Spectra Physics Quanta-Ray INDI-30 [78] verwendet. Ebenfalls wurde dieser Laser zum Pumpen eines Farbstofflasers der Marke Sirah Cobra-Stretch [79] benutzt, welcher ebenfalls für die Kalibrierung seine Verwendung fand. Bei einer Repetitionsrate von 20 Hz sowie einer Pulslänge von 7 ns stellt dieser Laser Licht der Wellenlängen 1064 nm (fundamentale Wellenlänge), 532 nm (zweite Harmonische), 355 nm (dritte Harmonische) und 266 nm (vierte Harmonische) zur Verfügung. Hierbei ist die dritte Harmonische parallel bezüglich der Elektronenspektrometerachse polarisiert, während die Polarisierung der zweiten Harmonischen senkrecht zu dieser steht. Maximal können die folgenden Laserenergien erreicht werden: 1064 nm: 300 mJ / 532 nm: 135 mJ / 355 nm: 75 mJ / 266 nm: 30 mJ

#### 3.3.3 Das Farbstofflasersystem

Der Farbstofflaser vom Typ Sirah Cobra-Stretch [79] wird wie bereits oben erwähnt mit Hilfe des Nd:YAG Lasers gepumpt. Je nach eingekoppelter Wellenlänge (355 nm oder 532 nm) sowie verwendeten Farbstoff kann Licht zwischen 377 nm und 900 nm erzeugt werden, wobei hierbei die Effizienz zwischen 9 % und 28 % liegt. Für die Kalibrierung der magnetischen Flasche verwendeten wir den Farbstoff Fluorescein 27 (0,64 g / l Ethanol +

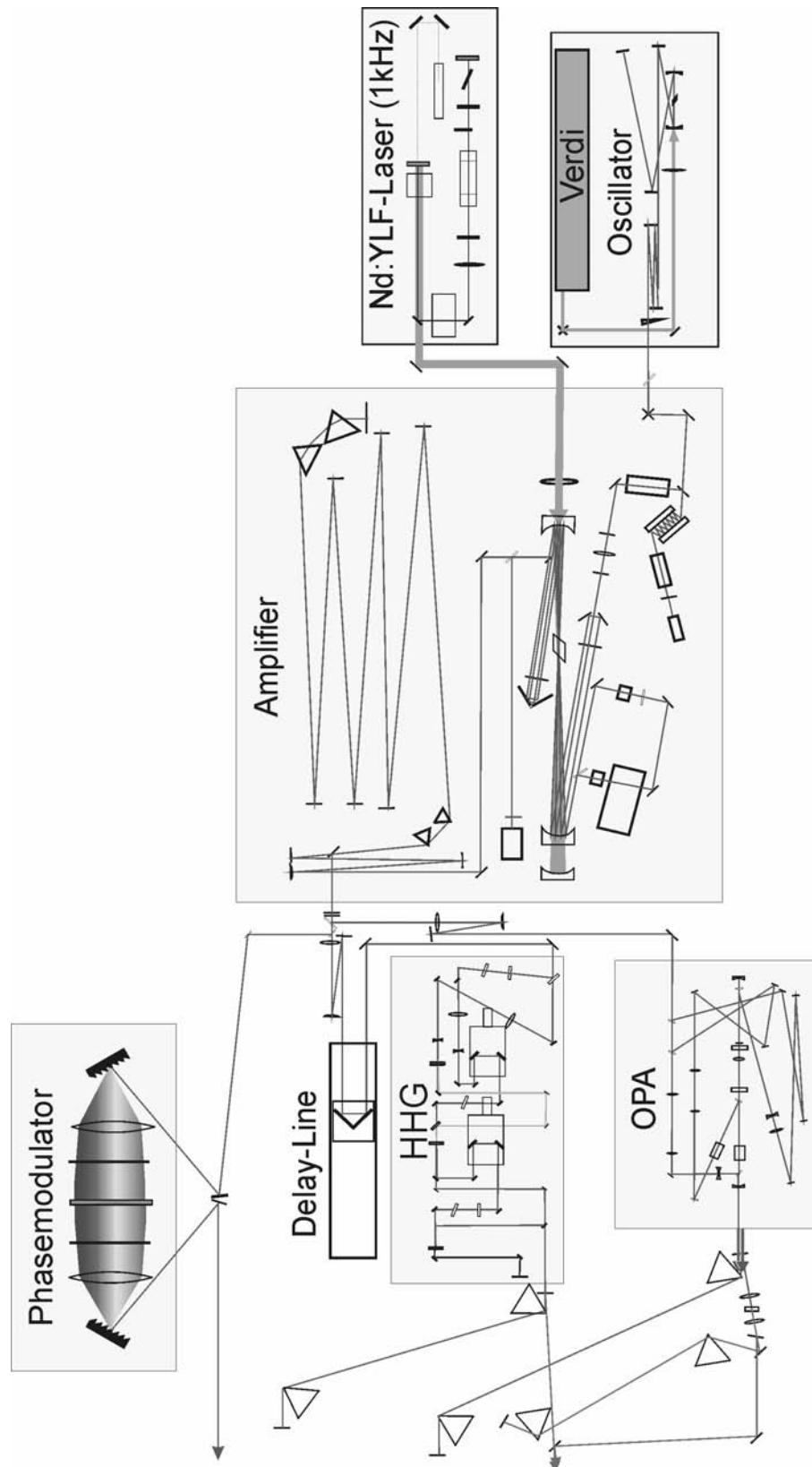


Abbildung 3.2: Das verwendete Femtosekundenlasersystem besteht aus einem Pumplaser „BMI YLF 621I“, einem Ti:Saphir Oszillator „Femtolasers Femtosource Scientific Pro“, welcher von einem Pumplaser „Coherent Verdi V-5“ gepumpt wird. Weiterhin aus einem Multi-Pass Verstärker „Femtolasers Femtopower Pro“, einem Harmonischen Generator der Firma „Light Conversion“ sowie einen Optisch Parametrischen Verstärker „Light Conversion TOPAS“. Außerdem beinhaltet das System einen Phasenmodulator, der in unserer Arbeitsgruppe entwickelt worden ist [76, 77].

0,2 g NaOH / 1 Ethanol), der mit Hilfe der zweiten Harmonischen (532 nm) gepumpt wird und der Licht von 541 nm bis 571 nm Wellenlänge produzieren kann. Die maximale Effizienz von 27 % wird hierbei bei der Wellenlänge 550 nm erreicht. Bei einer maximalen Laserenergie des pumpenden Nd:YAG-Lasers von 135 mJ stehen bei einer Wellenlänge von 550 nm somit noch maximal 36,5 mJ zur Verfügung.

## **Kapitel 4**

# **Interferenzen von freien ultrakurzen Elektronenwellenpaketen**

### **4.1. Einleitung**

An Hand der Beugung eines Elektronenstrahls an einem Nickelkristall [80] konnten Clinton Davisson und Lester Germer im Jahre 1927 die berühmte, von Louis-Victor de Broglie vier Jahre zuvor aufgestellte Gleichung zum „Welle-Korpuskel-Dualismus“ [81] bestätigen. In dieser bekannten Gleichung zeigt de Broglie, dass auch massereiche Teilchen einen Wellencharakter besitzen. 1952 konnte L. Marton mit Hilfe seiner Elektroneninterferometrie erste Belege für räumliche Interferenz von Elektronen veröffentlichen [82]. 1961 gelang es ebenfalls Claus Jönsson, in Analogie zum klassischen Doppelspaltexperiment von Thomas Young, Elektronen zu interferieren [83]. Die Feststellung dieser fundamentalen Materieeigenschaft und die damit verbundenen Konsequenzen haben im ausgehenden 20. Jahrhundert, aber auch in den ersten Jahren dieses Jahrhunderts, zu einer Reihe von interessanten Experimenten und Veröffentlichungen geführt: Erlangt man doch gerade durch Interferenzexperimente die Möglichkeit, Messungen mit hoher Empfindlichkeit durchzuführen. Beispiele hierfür sind z.B. die Beobachtung der Ramsey-Fringes [84, 85], die Messung des Brechungsindizes von Atomwellen [86] oder das Beobachten der Interferenzen von Wellenpaketen in gebundenen Atom- oder Molekülzuständen [87, 88], wie auch in Rydbergzuständen [89-91], als auch bei der Spin-Bahn-Kopplung [92].

In diesem Kapitel wird ein Experiment beschrieben, in welchem die zeitliche Entwicklung von freien Elektronen beobachtet wurde: Freie Elektronenwellenpakete werden durch Ionisation des angeregten Kalium 5p-Zustandes mit Hilfe zweier zeitlich getrennter Femtosekundenlaserpulse erzeugt. Während der Entwicklung der Wellenpakete interferieren diese. Die Interferenzen (Fringes) werden mit der magnetische Flasche (time-of-flight) detektiert. Beschrieben wird dieses Experiment ebenfalls in der Veröffentlichung „Interferences of ultrashort free electron wave packets“, welche in Physical Review Letters 89, 173001 (2002) [93] zu finden ist.

## 4.2 Experiment

Basis des Experimentes ist die im Kapitel 3 und Anhang A beschriebene Atom- bzw. Molekularstrahlapparatur MaBoS. In dieser wird bei einer Ofentemperatur von 285°C (Düsentemperatur 400°C) ein Ultraschallatomstrahl kreiert. Der Druck in der Ofen- bzw. Hauptkammer der Apparatur beträgt hierbei ca.  $1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar. Senkrecht zum Atomstrahl wird ein Femtosekundenlaserstrahl in die Apparatur eingekoppelt, so dass es zur Wechselwirkung zwischen beiden kommt. Die einzelnen Atome werden hierbei photoionisiert, die Photoelektronen werden mit Hilfe einer magnetischen Flasche, die orthogonal zu Atom- und Laserstrahl steht, zeitaufgelöst detektiert (time-of-flight, TOF). Die an den Polschuhblenden angelegte Spannung beträgt  $U_{pp} = -0,65$  V. Innerhalb der Driftstrecke der magnetischen Flasche werden die Elektronen mit Hilfe des Grids beschleunigt. Die anliegende Abzugsspannung beträgt in den Telexperimenten  $U_g = 1,0$  V bzw. 0,7 V (siehe Kapitel 4.4). Für Elektronen mit einer kinetischen Energie von 1 eV beträgt die Energieauflösung des Spektrometers 25 meV.

Der Femtosekundenlaserstrahl, welcher durch einem verstärkten 1 kHz Titan-Saphir-Oszillator hergestellt wird (siehe Kapitel 3), wird in zwei Teilstrahlen getrennt. Einer dieser Teilstrahlen ist frequenzverdoppelt, so dass bei einer Pulslänge von 100 fs und einer Pulsenergie von 0,25  $\mu$ J eine Wellenlänge von 405 nm erreicht wird. Dieser Strahl, der senkrecht bezüglich der TOF-Achse polarisiert ist, wird via Einphotonenabsorption zum präparieren des K(5p) Zustandes benutzt, welcher der Anfangszustand unseres Experimentes ist. Der zweite Teilstrahl, welcher bezüglich des ersten eine Verzögerung von 3 ns besitzt, wird in ein Mach-Zehnder-Interferometer eingekoppelt, mit dessen Hilfe ein Paar völlig identischer Laserpulse (1  $\mu$ J,  $<10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>, 30 fs, 790 nm) erzeugt wird, deren zeitlicher Abstand  $\tau$  genau definiert werden kann. Im Falle des Experimentes mit den Threshold Elektronen liegt Einphotonenionisation vor. Um hingegen Multiphotonenionisation aus dem K(4s) Grundzustand zu verhindern, wurde die Laserintensität für die beiden 790 nm Pulse sehr gering gehalten. Die Laserenergien wurden kontinuierlich mit Hilfe einer Photodiode überwacht. Zusätzlich ist es möglich, die Polarisation eines der beiden 790 nm Strahlen mit Hilfe eines Periskops um 90° zu rotieren. Somit kann man ein Paar orthogonal zueinander polarisierte Laserstrahlen erzeugen. Optische Interferenzen sind in einem solchen Arrangement ausgeschlossen. Zur Überwachung des zeitlichen Abstands der beiden Laserpulse wurde zusätzlich das Spektrum der Laserpulssequenz aufgenommen. Aus der Separation der Interferenzen (Fringes) konnte auf diese geschlossen werden.



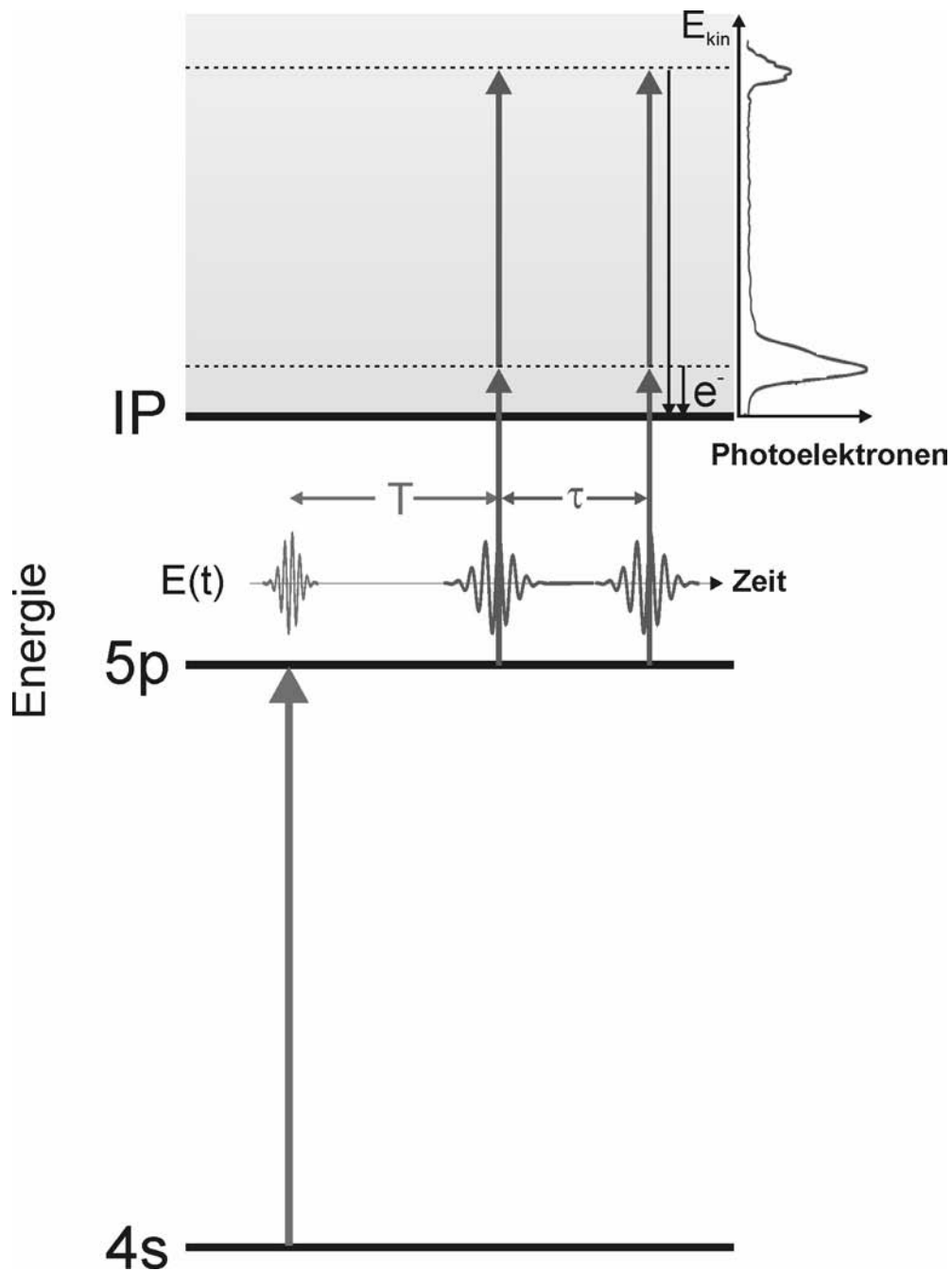


Abbildung 4.1: Anregungsschema: Vom 4s Grundzustand wird das Kaliumatom mittels eines 405 nm Femtosekundenlaserpulses in den 5p Zustand angeregt. Dieser Zustand bildet den Anfangszustand unseres Experimentes. Nach  $T = 3$  ns folgt dem 405 nm Puls ein Paar von 790 nm Femtosekundenlaserpuls, zwischen welchen eine genau definierte Zeitverzögerung  $\tau$  besteht. Im Photoelektronenspektrum ist das Signal der Threshold Elektronen (Einphotonenionisation) sowie der erste ATI-Peak (Zweiphotonenionisation) zu sehen.

### 4.3. Theorie

#### 4.3.1 Grundlagen und Bedingungen

Das Laserfeld  $E(t)$  koppelt den 5p Eingangszustand mit dem  $k$ -ten Niveau des Ionisationskontinuums, wobei zum Erreichen von diesem die Energie  $\hbar\omega_k$  benötigt wird. Während der Ionisation werden somit Photoelektronen mit einer überschüssigen Energie von  $\hbar\omega_e = \hbar\omega_k - \hbar\omega_{5p}$  ins Kontinuum entlassen. Im Regime des schwachen Feldes können die zeitabhängigen Amplituden  $c(\omega_k, t)$  der ionischen Zustände wie folgt geschrieben werden:

$$c(\omega_k, t) \propto \int_{-\infty}^t \exp i(\omega_k - \omega_{5p})t' \cdot E(t') dt' \quad (4.1)$$

Im Experiment wird die Überschussenergie  $\hbar\omega_e$  gemessen und somit erhalten wir aus (4.1)

$$c(\omega_e, t) \propto \int_{-\infty}^t \exp i(\omega_e + \omega_{IP} - \omega_{5p})t' \cdot E(t') dt' \quad (4.2).$$

Nach dem Puls, also wenn  $c(\omega_e) = c(\omega_e, \infty)$ , ist die Photoelektronenverteilung  $P_e(\omega_e) \propto |c(\omega_e)|^2$  gleich

$$P_e(\omega_e) \propto \left| \tilde{E}(\omega_e + \omega_{IP} - \omega_{5p}) \right|^2 = PSD(\omega_{ph}) \quad (4.3).$$

Dies bedeutet, dass das Photoelektronenspektrum  $P_e(\omega_e)$  bei der Frequenz  $\omega_e$  proportional zur spektralen Strahlungsdichte (Power Spectral Density – PSD) des anregenden elektrischen Feldes bei der Photonenfrequenz  $\omega_{ph} = \omega_e + (\omega_{IP} - \omega_{5p})$  ist. Wenn das Photoelektronenspektrum in eV gemessen wird, kann

$$P_e(\hbar\omega_e) \propto PSD(\hbar\omega_e + 1,28\text{eV}) \quad (4.4)$$

geschrieben werden. Im Experiment wird im Ionenkontinuum mit Hilfe zweier zeitlich verzögerter ultrakurzer Laserpulse, welche durch das elektrische Feld  $E'(t) = E(t) + E(t - \tau)$  charakterisiert werden können, ein Elektronenwellenpaket generiert, welches zwei Peaks besitzt. Durch Fouriertransformation ( $FT(f(t - \tau)) = \exp i\omega\tau \cdot FT(f(t))$ ) bei Verwendung der Gleichungen (4.1) und (4.4) erhält man

$$c'(\omega_e) \propto [1 + \exp(i\omega_{ph}\tau)]\tilde{E}(\omega_{ph}) \quad (4.5).$$

Somit bekommt man für das Photoelektronenspektrum des Pulsaares

$$P_e(\hbar\omega_e) \propto (1 + \cos(\omega_{ph}\tau))PSD(\hbar\omega_e + 1,28\text{eV}) \quad (4.6).$$

Auf Grund dieser Gleichung erwarten wir, dass das Photoelektronensignal bei gegebener Photoelektronenenergie in Abhängigkeit von dem zeitlichen Pulsabstand  $\tau$  als Funktion der Photonenfrequenz sinusförmig oszilliert. Ebenso sollten in den Photoelektronenspektren bei konstanten Pulsabstand  $\tau$  Fringes zu sehen sein, welche im Abstand von  $h/\tau$  separiert sein sollten (siehe Abbildung 4.2 [94]). Wenn man den zeitlichen Abstand der beiden Pulse variiert, wird also das Interferenzmuster des Photoelektronenspektrums verändert: Trägt man das energieaufgelöste Photoelektronensignal als eine Funktion des Pulsabstandes  $\tau$  auf, lässt sich eine Struktur von gekippten Ellipsen erkennen (siehe Abbildung 4.8).

Sinnvoll wird das Experiment dann, wenn zwei Bedingungen erfüllt werden: Erstens sollte natürlich die Energieauflösung  $E_{res}$  des Spektrometers (magnetische Flasche) gut genug sein, um die einzelnen Fringes aufzulösen ( $E_{res} < h/\tau$ ), zweitens sollte die spektrale Laserbreite  $\Delta\omega$  die Herausbildung der Fringes unterstützen. Es sollte also

$$E_{res} < \frac{h}{\tau} < \hbar\Delta\omega_l \quad (4.7)$$

gelten. Die Abbildung 4.2 zeigt kalkulierte Photoelektronenspektren, welche für verschiedene Pulslängen (FWHM) bzw. verschiedene zeitliche Pulsabstände  $\tau$  berechnet wurden [94]. In den vier Teilabbildungen sind die für eine Ionisation mittels zwei Pulsen berechneten Spektren durchgehend und fett gezeichnet; die diese einhüllenden Spektren, welche für die Ionisation mittels eines einzigen Femtosekundenlaserpulses berechnet wurden, sind gepunktet gezeichnet; gestrichelt gezeichnet sind Faltungen der durchgezogen gezeichneten Spektren (Ionisation mittels zweier Pulse) mit der Spektrometerauflösung. In manchen der Teilabbildungen wurden die Spektrometerauflösung  $E_{res}$ , der jeweilige Fringeabstand  $h/\tau$  sowie die jeweilige spektrale Laserbreite  $\hbar\Delta\omega_l$  eingezeichnet. Die Anregungsbedingungen in Teilbild a) entsprechen denen aus dem Experiment. Da die spektrale Laserbreite  $\hbar\Delta\omega_l$  eines 25 fs Laserpulses etwa 73 meV beträgt und die Fringes bei einem Pulsabstand von 100 fs einen Abstand von  $h/\tau \approx 41$  meV besitzen, die Energieauflösung des Spektrometers aber bei  $E_{res} = 25$  meV liegt, können hier sowohl einige Fringes erzeugt, als auch aufgelöst werden. In der Teilabbildung b), für welche im Gegensatz wie für a) mit einem Pulsabstand von 500 fs gerechnet wurde, ist  $E_{res}$  deutlich größer als  $h/\tau \approx 8$  meV: Eine Auflösung der Fringes ist also nicht möglich. Bezüglich der Limitierung des Experimentes durch die Laserpulslänge ist in Teilbild c) ein Beispiel zu sehen. Die theoretische Anzahl der Fringes kann zwar bei großen Pulslängen erhöht werden (Teilbild d)), eine Auflösung wird aber im Experiment nicht möglich sein.

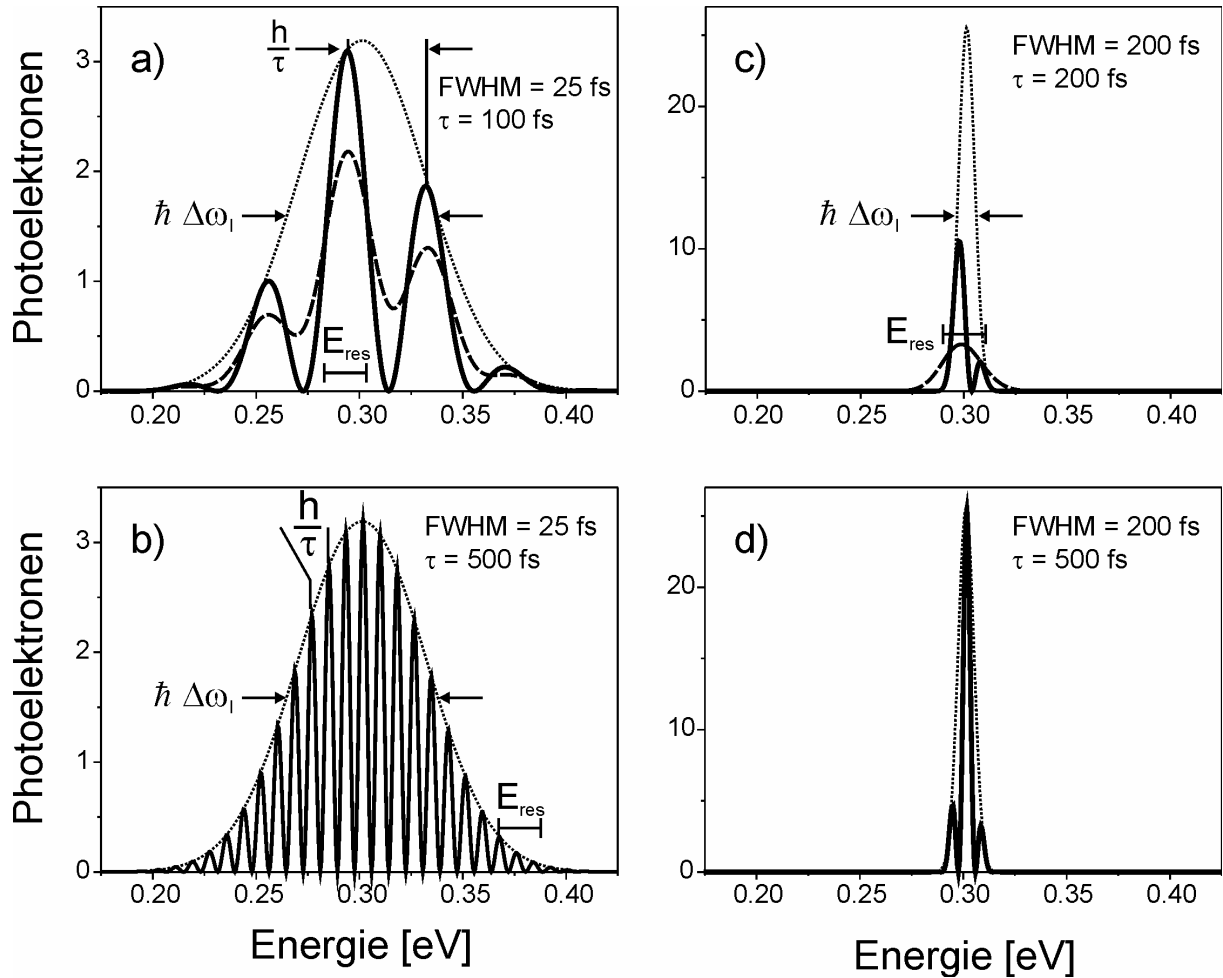


Abbildung 4.2: kalkulierte Photoelektronenspektren, welche für verschiedene Pulslängen (FWHM) bzw. verschiedene zeitliche Pulsabstände  $\tau$  berechnet wurden. In den vier Teilabbildungen sind die für eine Ionisation mittels zwei Pulsen berechneten Spektren durchgehend und fett gezeichnet; die diese einhüllenden Spektren, welche für die Ionisation mittels eines einzigen Femtosekundenlaserpulses berechnet wurden, sind gepunktet gezeichnet; gestrichelt gezeichnet sind Faltungen der durchgezogen gezeichneten Spektren (Ionisation mittels zweier Pulse) mit der Spektrometerrauflösung. Außerdem wurden teilweise die Spektrometerrauflösung  $E_{res}$ , der Fringeabstand  $h/\tau$  sowie die spektrale Laserbreite  $\hbar\Delta\omega_l$  eingezeichnet [94].

#### 4.3.2 Die raumzeitliche Entwicklung des Wellenpaketes

Um die raumzeitliche Entwicklung der Elektronenwellenpakete beschreiben zu können, wurden die Wellenfunktionen der quasifreien Elektronen mit Hilfe von eindimensionalen ebenen Wellen der Frequenz  $\omega_e$  approximiert:

$$\psi_{\omega_e}(x, t) \approx \exp i(k_e x - \omega_e t) \quad (4.8)$$

Eine solche Annäherung ist gerechtfertigt, da eine Interaktion von Elektronen, welche 0,3 eV oberhalb des Thresholds liegen, mit den ionisierten Kaliumatomen vernachlässigbar ist. Es besteht kein Effekt bezüglich der Langzeitentwicklung. Als Superposition der ebenen Wellen  $\psi_{\omega_e}(x,t)$ , welche die Amplituden  $c(\omega_e,t)$  besitzen, erhalten wir ein Elektronenwellenpaket:

$$\psi_{\omega_e}(x,t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_0^{\infty} c(\omega_e,t) \exp i(k_e x - \omega_e t) \cdot d\omega_e \quad (4.9)$$

Nach der nichtlinearen Dispersionsrelation für Materiewellen

$$\omega(k) = \frac{\hbar k^2}{2m_e} \quad (4.10)$$

ist hierbei  $k_e = \sqrt{2m_e \omega_e / \hbar}$ . Für theoretische Zwecke ist es sinnvoll die zeitliche Entwicklung eines Wellenpakets in der Form

$$\psi_{\omega_e}(x,t) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{\psi}(k) \exp i \left( kx - \frac{\hbar k^2}{2m_e} t \right) \cdot dk \quad (4.11)$$

zu schreiben, wobei hier  $\bar{\psi}(k) dk = c(\omega_e,t) d\omega$  und  $|\bar{\psi}(k)|^2$  die Impulsverteilung beschreibt. Im Impulsraum wird die zeitliche Entwicklung des Wellenpakets, vorausgesetzt die Impulsverteilung  $|\bar{\psi}(k)|^2$  ist stationär, mit Hilfe des Phasenfaktors  $\exp(-i\hbar k^2 t / 2m_e)$  beschrieben [94, 95].

In Abbildung 4.3 ist für ein zwei Peaks besitzendes Wellenpaket, welches durch zwei in einem Abstand von 150 fs aufeinander folgende gausförmige Laserpulse mit einer jeweiligen Länge von 25 fs (FWHM) und einer Wellenlänge von 785 nm generiert wurde, die raumzeitliche Entwicklung dargestellt. Damit wir die Wellenpaketdynamik mit der klassischen Bewegung von Teilchen vergleichen können, studieren wir die Bewegung dreier Teilchen, welche die folgenden kinetischen Überschussenergien besitzen [94]:

Im roten Bereich des Spektrums:  $\hbar \omega_e - \frac{\hbar \Delta \omega_l}{2}$

Im zentralen Bereich des Spektrums:  $\hbar \omega_e$

Im blauen Bereich des Spektrums:  $\hbar \omega_e + \frac{\hbar \Delta \omega_l}{2}$

Wenn  $m_e v^2 / 2 = \hbar \omega_e$  ist, bewegen sich die „klassischen“ Elektronen mit den Geschwindigkeiten 0,305  $\mu\text{m}/\text{ps}$ , 0,326  $\mu\text{m}/\text{ps}$  und 0,345  $\mu\text{m}/\text{ps}$ . In der Abbildung 4.3 sind

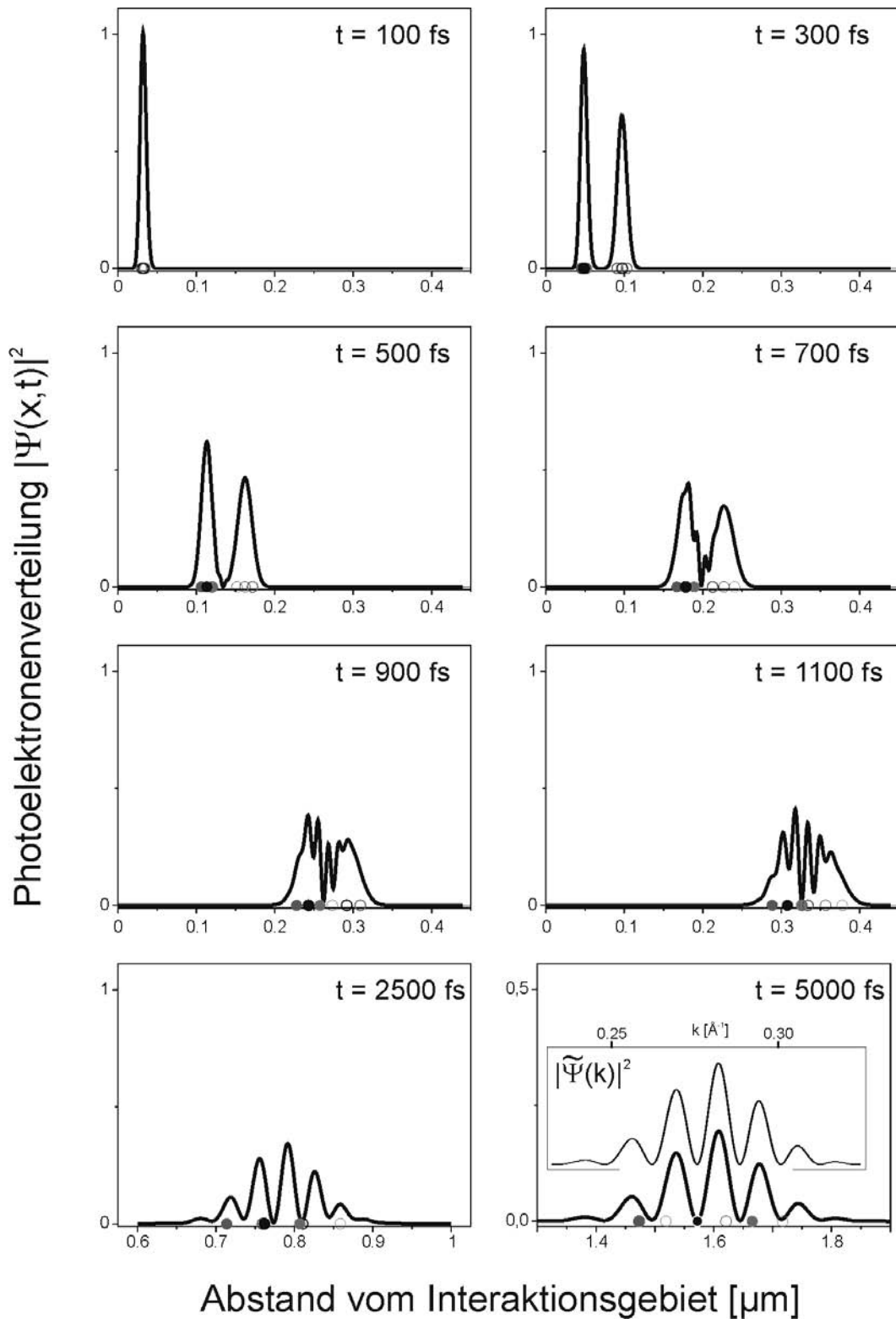


Abbildung 4.3: Zeitliche Entwicklung eines Elektronenwellenpaketes, welches mit Hilfe zweier Laserpulse (785 nm, 25 fs), die in einem Abstand von  $\tau = 150$  fs aufeinander folgen, generiert wurde. Die Position der „klassischen“ Elektronen ist mit nicht ausgefüllten (erster Puls) und ausgefüllten (zweiter Puls) Kreisen angezeigt. Die Positionen der Elektronen mit mittlerer kinetischer Energie sind schwarz gedruckt, die Positionen der „roten“ bzw. „blauen“ Elektronen sind grau gekennzeichnet. Für den Zeitpunkt  $\tau = 5000$  s wird zum Vergleich die stationäre Impulsverteilung  $|\tilde{\Psi}(k)|^2$  gezeigt.

die Positionen der „klassischen“ Elektronen des ersten Pulses durch nicht gefüllte Kreise und die des zweiten Pulses durch gefüllte Kreise dargestellt. Die Kreise für die schnellen (blauen) und langsamen (roten) Elektronen sind jeweils in Graustufen geplottet, die Kreise für die Elektronen mit „zentraler Geschwindigkeit“ sind schwarz gedruckt. Auf Grund des ersten Laserpulses existiert zum Zeitpunkt  $t = 100$  fs das erste Wellenpaket: Die räumliche Gestalt des Wellenpakets entspricht der zeitlichen Form des Laserpulses. Zum Zeitpunkt  $t = 300$  fs ist auf Grund des zweiten Laserpulses ein zweites, dem ersten völlig identisches Wellenpaket entstanden, welches dem ersten nachläuft. Auf Grund der Dispersion verbreitern sich nun die Wellenpakete: Die räumliche Verteilung wächst auf Kosten der Höhe der Wellenpakete. Klassisch ausgedrückt wächst der Abstand der verschiedenen Teilchen auf Grund ihrer verschiedenen Geschwindigkeiten. Schließlich kommt es auf Grund der Dispersion zu einem Überlapp der partiellen Wellenpakete, welcher der Grund für die nachfolgend sichtbare transiente Interferenzstruktur ist (siehe Abbildung 4.3:  $t = 700$  fs,  $t = 900$  fs und  $t = 1100$  fs). Im klassischen Bild passiert dies, wenn die blauen Photoelektronen des zweiten Pulses die roten Photoelektronen des ersten erreichen. Bei  $t = 2500$  fs haben die schnellen Komponenten des zweiten Laserpulses die langsamen des ersten überholt. Bei etwa  $t = 5000$  fs ist die Form des Wellenpakets quasistationär: Das Wellenpaket dehnt sich zwar weiterhin im Raum aus und verliert an Höhe, aber die eigentliche Form des Wellenpaketes bleibt nun konserviert.

### 4.3.3 Wellenpaket und Photoelektronenspektrum

In der Abbildung 4.3 ist für die Zeit  $t = 5000$  s zu sehen, wie die Form des Wellenpaketes in Richtung des räumlichen Photoelektronenspektrums konvergiert, d. h. wie die Wahrscheinlichkeitsverteilung  $|\psi(x)|^2$  im Koordinatenraum in Richtung der Impulsverteilung  $|\bar{\psi}(k)|^2$  im Koordinatenraum konvergiert [95]:

Gleichung (4.11), also die zeitliche Entwicklung eines Wellenpaketes wird mit

$$k_0 = \frac{xm}{\hbar t} \quad (4.12)$$

und

$$\Delta k = \sqrt{\frac{2m}{\hbar t}} \quad (4.13)$$

substituiert, so dass wir

$$\psi(x, t) = \sqrt{\frac{m}{\hbar t}} \exp i \frac{mx^2}{2\hbar t} \int_{-\infty}^{\infty} \bar{\psi}(k) \frac{1}{\sqrt{\pi \Delta k}} \exp -i \left( \frac{k - k_0}{\Delta k} \right)^2 \cdot dk \quad (4.14)$$

erhalten. Wie in [94] gezeigt, konvergiert die Exponentialfunktion des Integrals in (4.14) zu einer Deltafunktion

$$\lim_{\Delta k \rightarrow 0} \left( \frac{1}{\sqrt{\pi \Delta k}} \exp - i \left( \frac{k - k_0}{\Delta k} \right)^2 \right) = \delta(k - k_0) \exp \frac{-i\pi}{4} \quad (4.15),$$

wodurch wir die Langzeitannäherung

$$\psi(x, t) = \bar{\psi} \left( \frac{xm}{\hbar t} \right) \sqrt{\frac{m}{\hbar t}} \exp \left( i \frac{mx^2}{2\hbar t} - \frac{\pi}{4} \right) \quad (4.16)$$

erhalten: Das Wellenpaket im Koordinatenraum konvergiert also (wenn man den Phasenfaktor nicht berücksichtigt) zu seiner eigenen Fouriertransformation, welche nichts anderes als das Wellenpaket im Impulsraum darstellt. Wie oben bereits geschrieben, ist (4.16) eine Langzeitannäherung und somit keine gute Beschreibung des Wellenpaketes zu frühen Zeiten. Die Genauigkeit der Gleichung wächst aber mit fortschreitender Zeit.

## 4.4 Experimentelle Ergebnisse

Sowohl bei dem Experiment mit parallel polarisierten Laserpulsen, als auch bei dem mit senkrecht zueinander polarisierten Laserpulsen dient der Kalium 5p Zustand als Ausgangszustand. Vom K (4s) Grundzustand wird dieser Zustand mittels einer Einphotonenabsorption erreicht. Wie in 4.2 erwähnt, wird hierzu ein 100 fs langer 405 nm Laserpuls benutzt, der eine Pulsenergie von 0,25  $\mu$ J besitzt.

Die in diesem Kapitel durchgeführten Scans wurden mit einer Pulsabstandschrittweite von 0,1 fs durchgeführt. Gemittelt wurde für jeden Schritt dabei über 4 x 862 Aufnahmen. (Die ungewöhnliche Anzahl der Laserschüsse wird dabei durch die interne Software des LeCroy Oszilloskops mitbestimmt.)

### 4.4.1 Parallele Polarisation / Thresholdelektronen

In diesem Telexperiment sind die beiden gegeneinander zeitverzögerten 790 nm Laserpulse parallel zueinander polarisiert gewesen. Mittels einer Einphotonenionisation wurden die Elektronen vom K (5p) Zustand aus ins Kontinuum gehoben. Die resultierenden Photoelektronenspektren wurden als Funktion der Verzögerungszeit  $\tau$  zwischen den beiden Pulsen aufgenommen. Die Abbildung 4.4 zeigt eine Messung, bei welcher der Pulsabstand  $\tau$  im Bereich -3 fs bis 47 fs durchgefahren wurde. Sie zeigt also den Bereich, in welchem noch optische Interferenzen zu erwarten sind. Bei der Messung lag an den Polschuhblenden die Spannung  $U_{pp} = -0,65$  V an, am Grid lag die Beschleunigungsspannung  $U_g = 1,0$  V an. Die Gleichen Spannungen wurden auch für eine zweite Messung verwendet, bei welcher der Pulsabstand  $\tau$  in einem Bereich zwischen 47 fs und 97 fs durchgefahren wurde. Bei Pulsabständen dieser Größe sollten optische Interferenzen nicht mehr möglich sein. Die Abbildung 4.5 zeigt diese Messung. Mit Hilfe einer Kalibrierung, wie sie im Anhang A.5.4.2



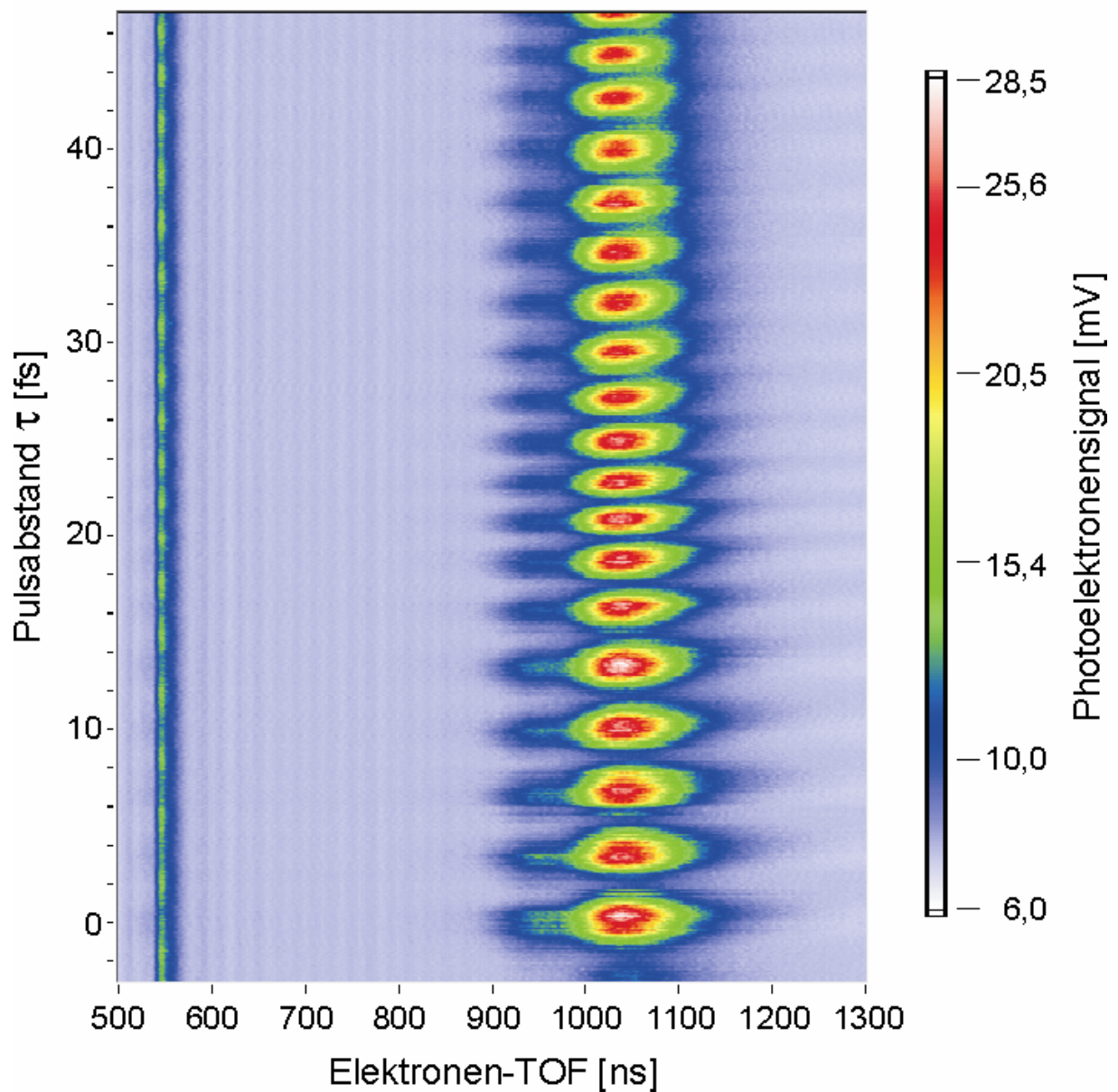


Abbildung 4.4: Unter Variierung des Pulsabstandes  $\tau$  zwischen  $-3$  fs und  $+47$  fs bezüglich den beiden 790 nm Femtosekundenlaserpulsen wurden in einer Messserie eine Vielzahl von Flugzeitelektronenspektren aufgenommen, welche hier gemeinsam aufgetragen sind. Die beiden 790 nm Pulse waren hierbei parallel zueinander polarisiert.

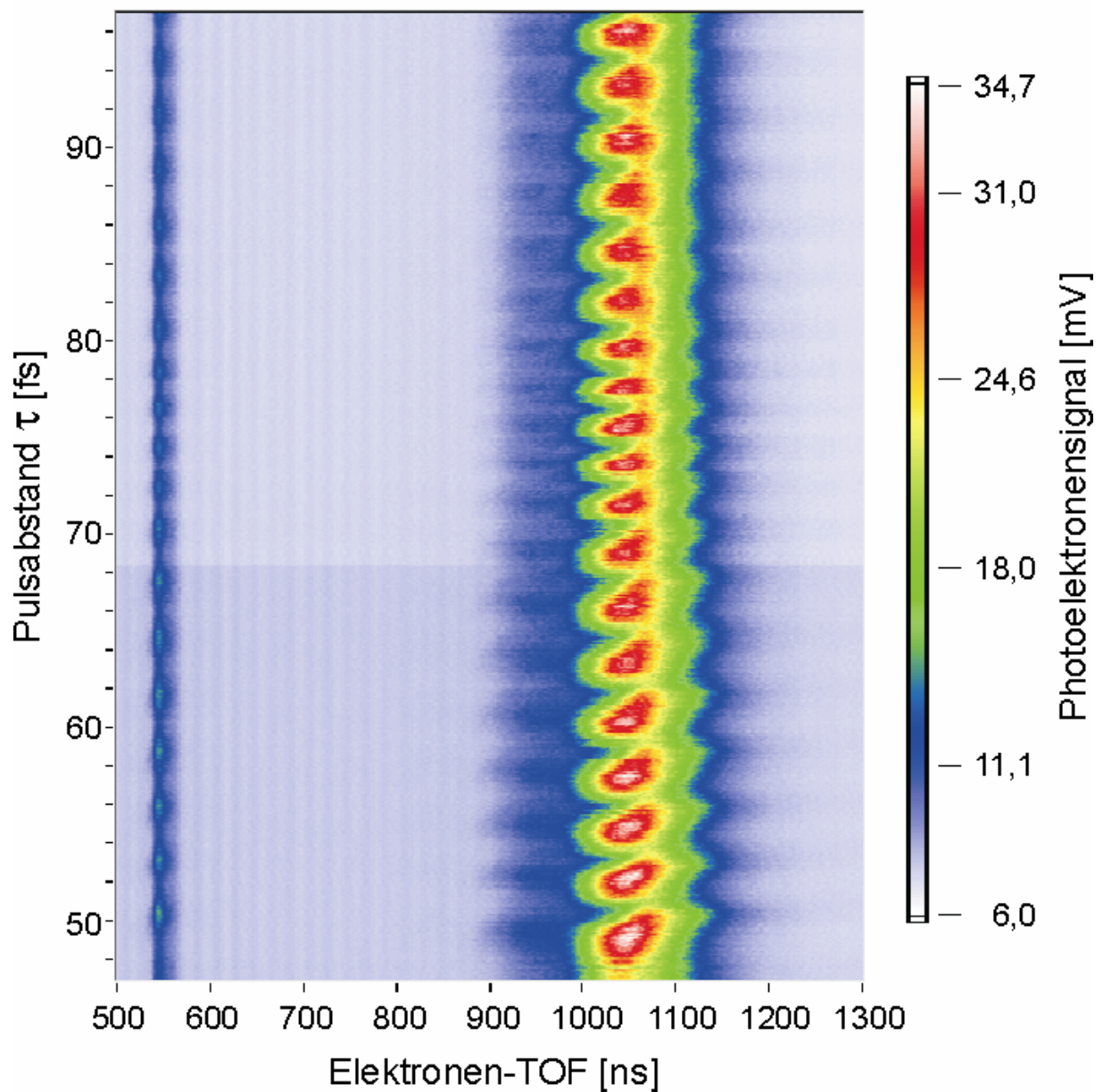


Abbildung 4.5: Wie in Abbildung 4.4 sind auch hier eine Vielzahl von Flugzeitelektronenspektren dargestellt, welche innerhalb einer Messerie aufgenommen wurden. Auch hier sind die beiden 790 nm Pulse parallel zueinander polarisiert. Variiert wurde der Pulsabstand  $\tau$  allerdings im Bereich +47 fs bis +97 fs. Also in einem Bereich wo keine optischen Interferenzen mehr zu erwarten sind.

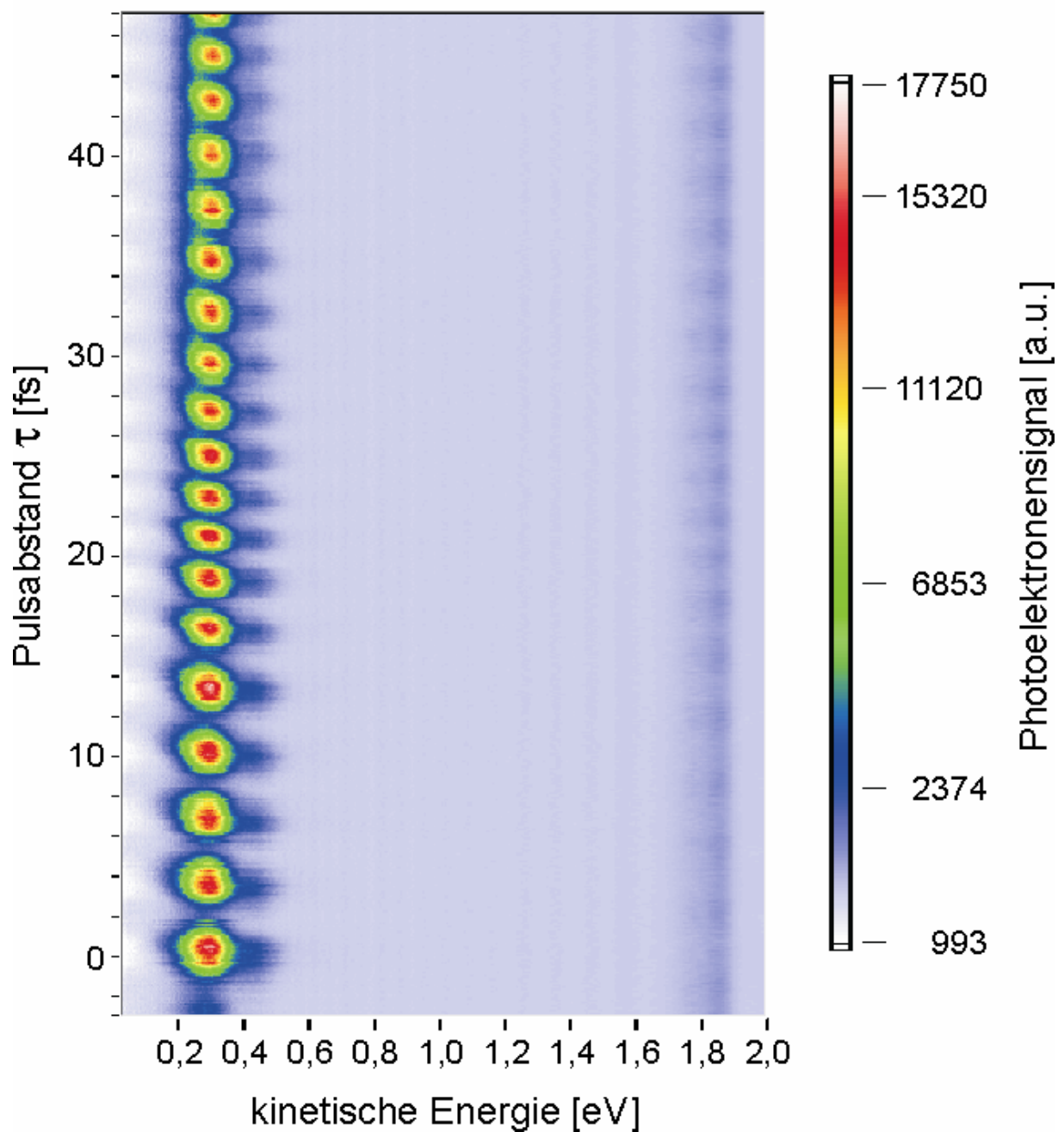


Abbildung 4.6: In dieser Abbildung sind die in Abbildung 4.4 zu sehenden Messergebnisse in kalibrierter Form zu sehen. Bei etwa 0,29 eV befindet sich das Signal der Threshold Elektronen, bei etwa 1,85 eV ist das Signal der ATI Elektronen zu sehen. Abgebildet sind die Elektronenspektren, die im Pulsabstandsbereich von  $-3$  fs bis  $+47$  fs entstanden sind.

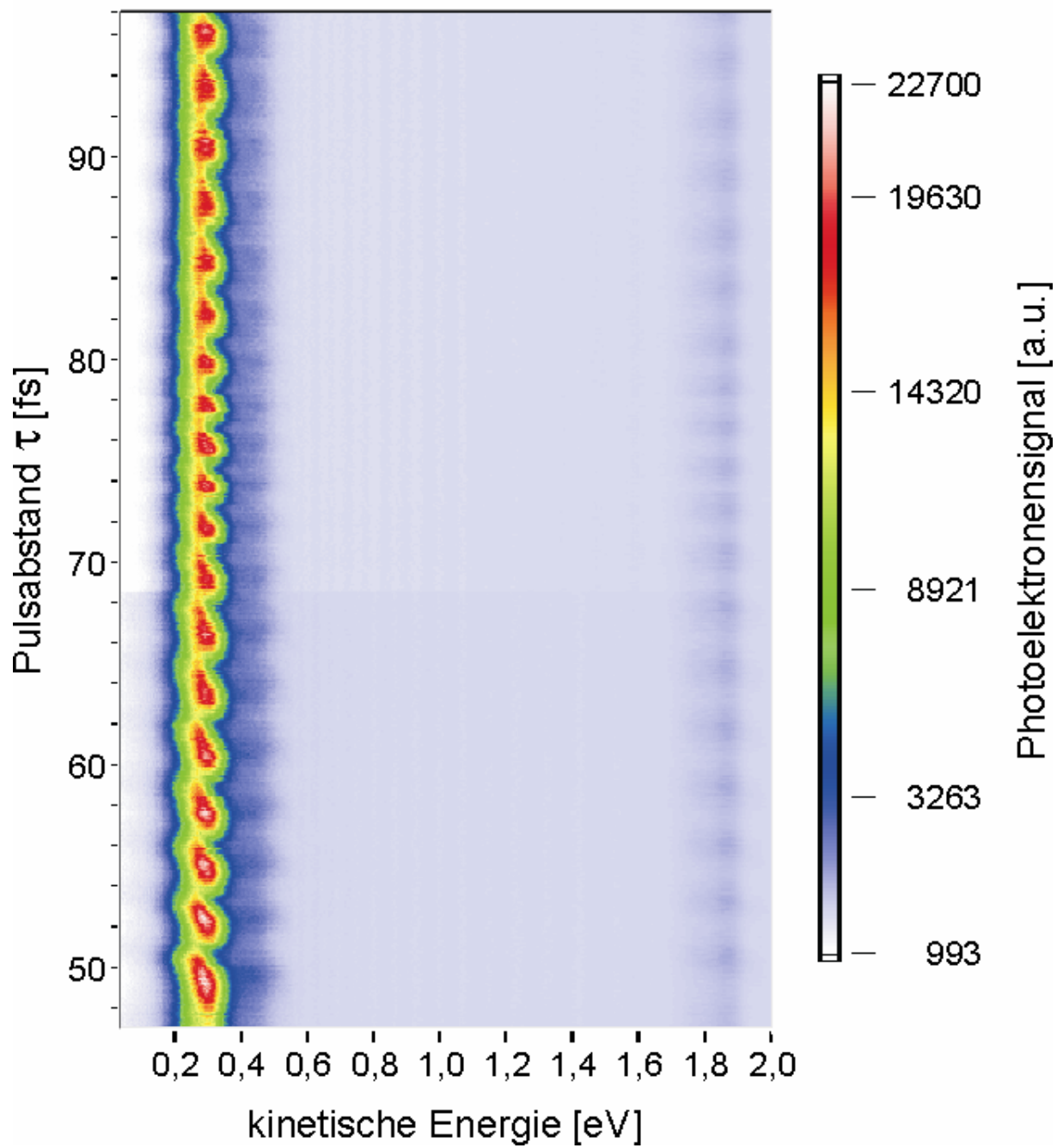


Abbildung 4.7: Hier die kalibrierten Messergebnisse die im Pulsabstandsbereich von +47 fs bis +97 fs entstanden sind, also in dem Bereich wo keine optischen Interferenzen mehr erwartbar sind.

beschrieben ist, wurden die gemessenen Elektronenflugzeiten in kinetische Energien umgerechnet. Die Abbildungen 4.6 und 4.7 zeigen die übertragenen Spektren. In diesen sind in dem Bereich zwischen 0,2 eV und 0,4 eV die Teilspektren der Threshold Elektronen zu erkennen, im Bereich zwischen 1,8 eV und 1,9 eV sehen wir die Teilspektren der ATI Elektronen.

Die Elektronenspektren zeigen mit der Veränderung des Pulsabstandes  $\tau$  eine periodische Intensitätsmodulation. Eine Modulation ist ebenso für kurze Pulsabstände, wie auch für größere Abstände, wo optische Interferenzen auszuschließen sind, zu sehen. Es sind Ellipsen zu erkennen, welche mit zunehmenden Pulsabstand  $\tau$  „kippen“. In der Abbildung 4.8 sind die experimentellen Daten aus einer weiteren Messung den theoretisch ermittelten Werten [94] gegenüber gestellt: Die experimentellen Ergebnisse stimmen gut mit den theoretischen überein, wobei für die Theorie die Gleichung (4.6) Verwendung fand. Die spektrale Strahlungsdichte wurde dabei angenommen. Mit Hilfe einer Fourieranalyse wurden die Frequenzkomponenten der Modulation ermittelt. Durchgeführt wurden Fourieranalysen für die Threshold Elektronen als auch für die ATI Elektronen jeweils in zwei unterschiedlichen Zeitintervallen. Die Abbildungen 4.9 bis 4.12 zeigen die mittels einer LabView-Anwendung (FourierAnalysis3.vi), die in [129] beschrieben wird, durchgeführten Analysen, bei welchen die in den Abbildungen 4.6 und 4.7 zu sehenden Daten Verwendung fanden. In allen vier Fällen wurde eine Photonenfrequenz  $\omega_{ph}$  ermittelt, deren Wert sich innerhalb der Bandbreite ( $\Delta\lambda \approx 50$  nm) des verwendeten Laserlichtes ( $\lambda = 790$  nm,  $\omega_{ph} = 12658$  cm<sup>-1</sup>) befindet. Bestimmt wurde  $\omega_{ph}$  wie folgt:

	Threshold Elektronen		ATI Elektronen	
„Optischer Bereich“	12664 cm <sup>-1</sup>	(789,64 nm)	12694 cm <sup>-1</sup>	(787,77 nm)
„Nichtoptischer Bereich“	12500 cm <sup>-1</sup>	(800 nm)	12430 cm <sup>-1</sup>	(804,51 nm)

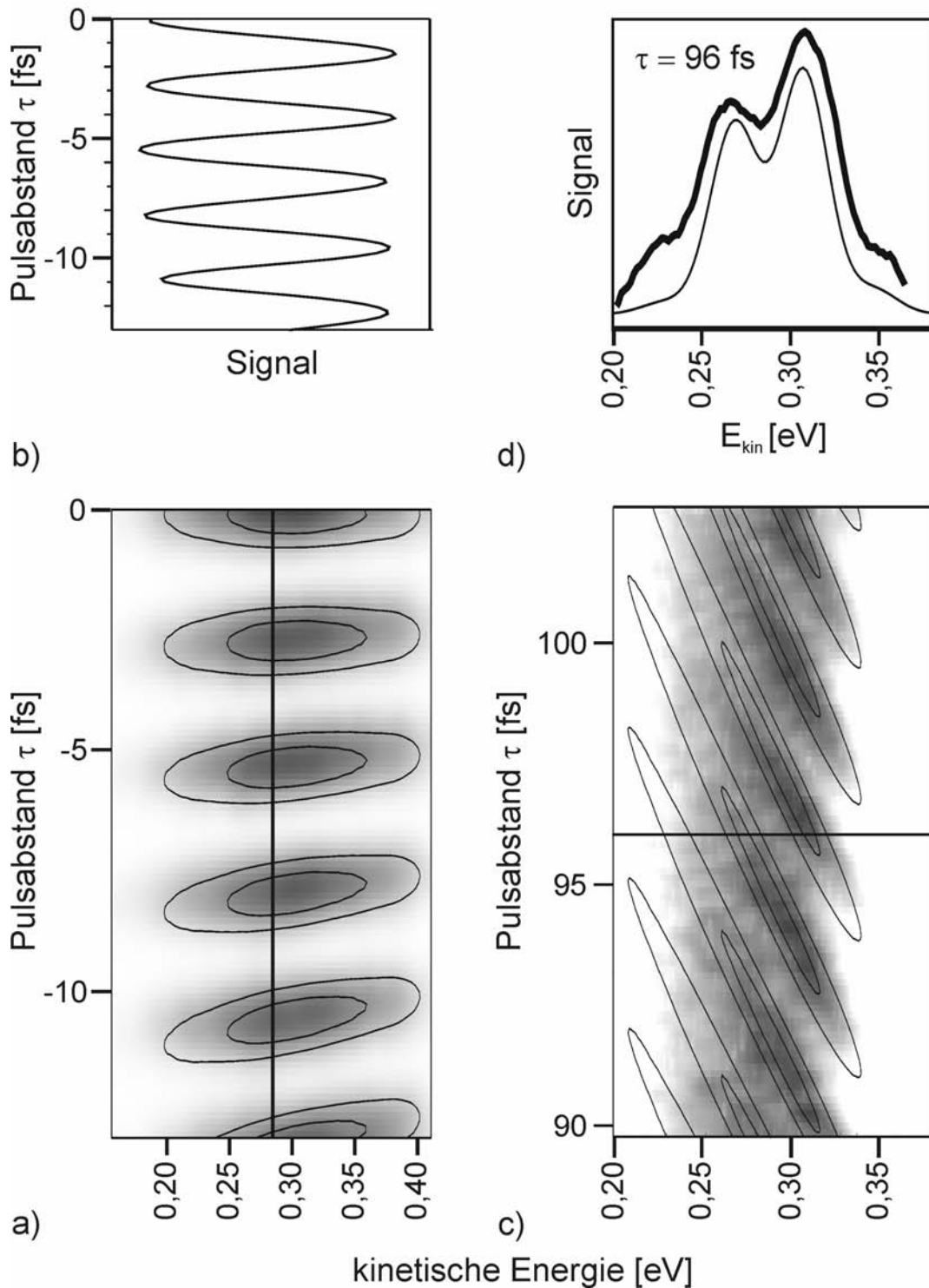


Abbildung 4.8: In dieser Abbildung sind experimentelle sowie theoretische Ergebnisse für unterschiedliche Pulsabstände  $\tau$  gegenübergestellt. Die theoretischen Ergebnisse, welche sich aus Gleichung (4.6) ergeben, sind mit Hilfe dünner Linien über die experimentellen Ergebnisse gezeichnet worden. Während in der Teilabbildung a) die Ellipsen von Threshold Elektronen zu sehen sind, welche mit Hilfe eines Pulsabstandes  $\tau$  gemessen worden sind, wo beide 790 nm Femtosekundenlaserpulse praktisch zeitgleich den Kaliumatomstrahl erreichen, sind in Teilabbildung c) stark geneigte Ellipsen zu sehen, welche charakteristisch für große Pulsabstände sind (hier im Bereich von 100 fs). Die Teilabbildung b) zeigt wie bei gleichbleibender Energie das Photoelektronensignal oszilliert, wenn der Pulsabstand verändert wird. Abbildung d) zeigt ein einzelnes Photoelektronenspektrum, welches der gesamten Messserie für den Pulsabstand  $\tau = 96$  fs entnommen wurde.

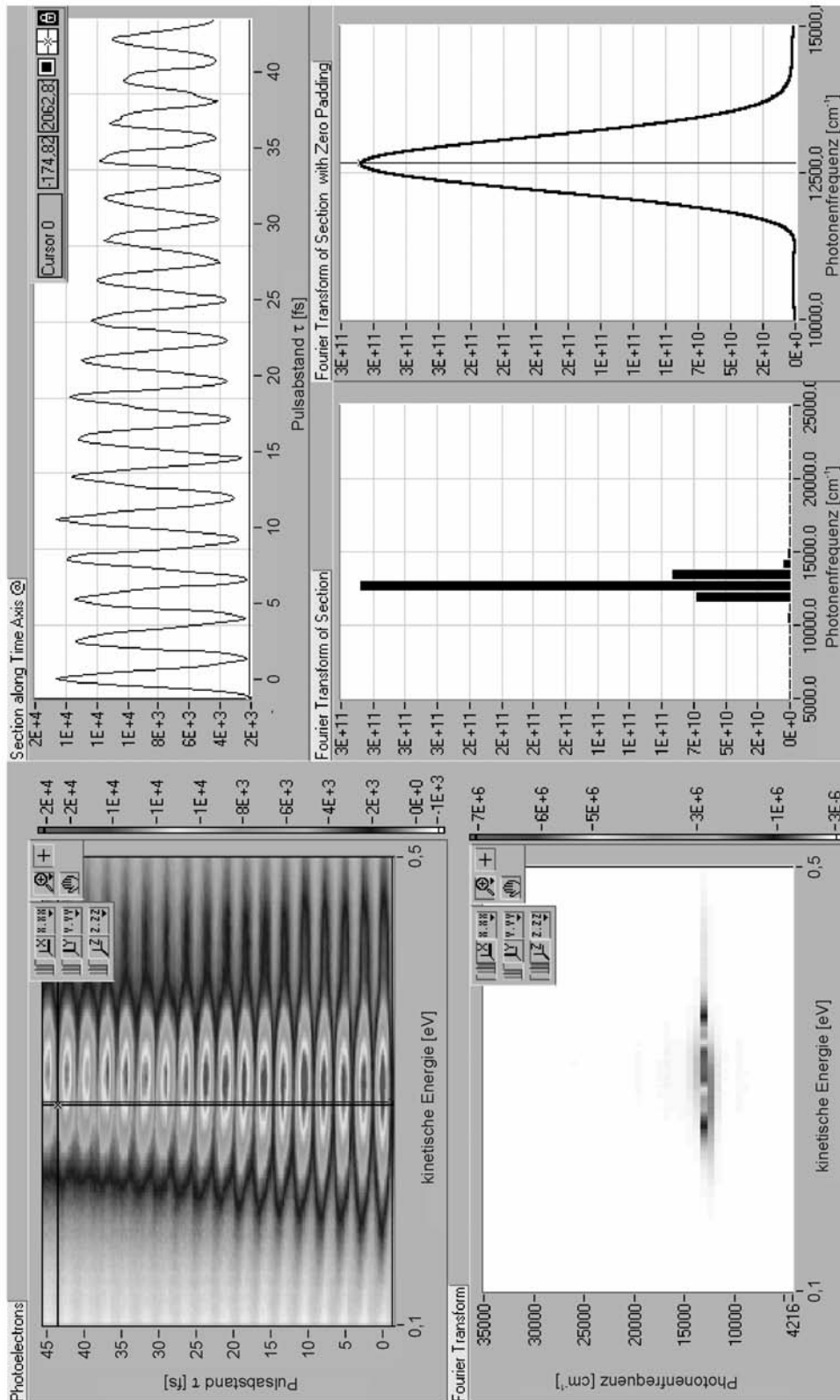


Abbildung 4.9: Zu sehen ist die Oberfläche der LabView Anwendung FourierAnalysis3.vi, mit deren Hilfe die Fourieranalysen durchgeführt wurden. In dem links oben sich befindenden Fenster sind Details der Photoelektronenspektren aufgezeigt, wie sie im Ganzen in den Abbildungen 4.6 und 4.7 zu sehen sind. Rechts daneben findet sich analog zu Abbildung 4.8b ein Fenster, welches zeigt, wie bei gleichbleibender Energie bei Veränderung des Pulsabstandes das Photoelektronensignal oszilliert. Links unten ist die eigentliche Fourieranalyse zu sehen. In den beiden sich hiervon rechts befindenden Fenstern ist eine einzelne Sektion aus der Analyse herausgenommen worden. Diese Abbildung zeigt eine Fourieranalyse, welche für Threshold Elektronen in einem Pulsabstandsbereich zwischen etwa  $-2$  fs und  $+43$  fs durchgeführt wurde: Es wurde dabei eine Modulation mit einer Photonenfrequenz von  $\omega_{ph} = 12664 \text{ cm}^{-1}$  ermittelt.

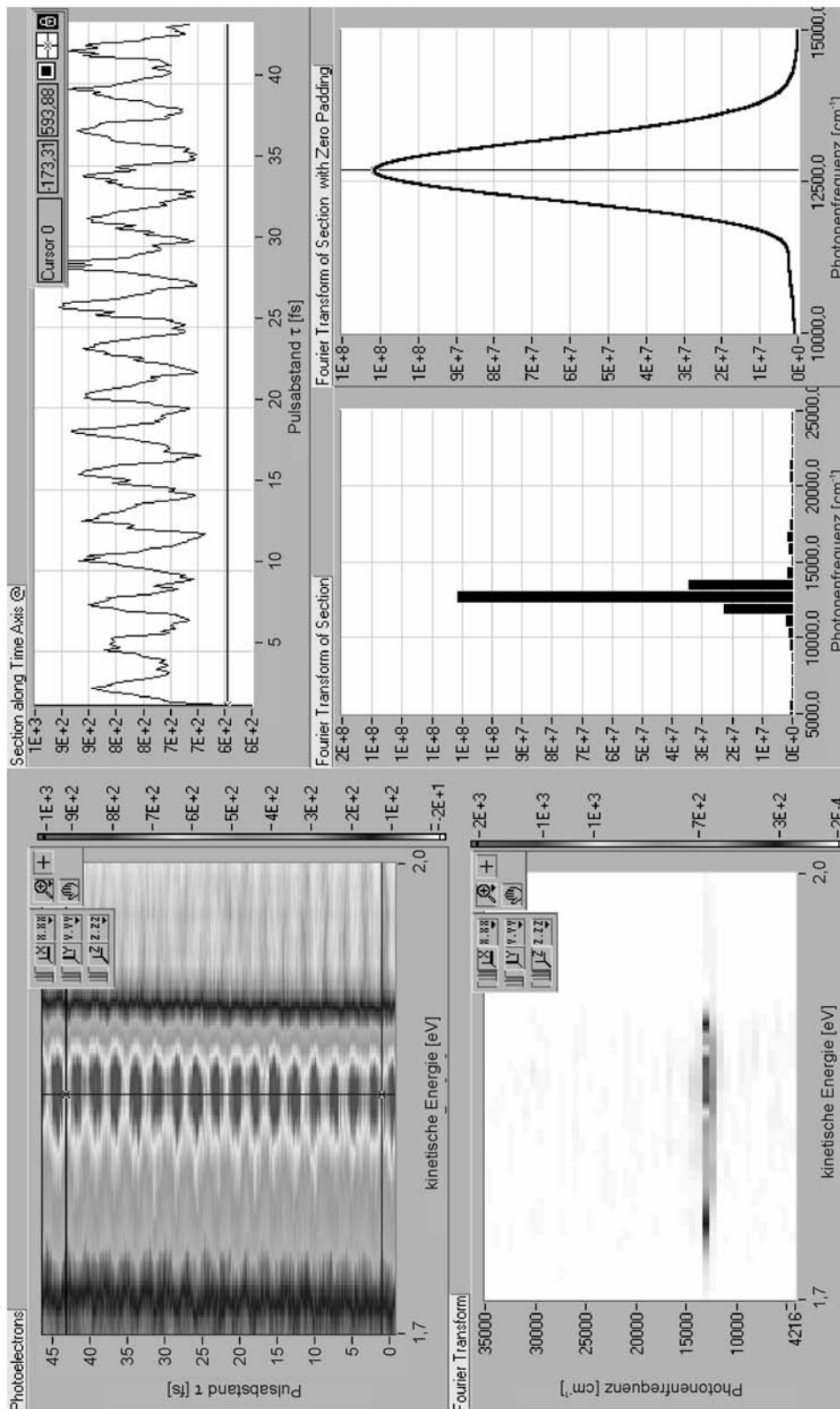


Abbildung 4.10: Die Fourieranalyse für die ATI Elektronen, die in einem Pulsabstandsbereich zwischen etwa +2 fs und +43 fs durchgeführt wurde, zeigte im gleichen Bereich wie für die Threshold Elektronen eine starke Modulation. Ermittelt wurde die Photonenfrequenz  $\omega_{\text{ph}} = 12694 \text{ cm}^{-1}$ .



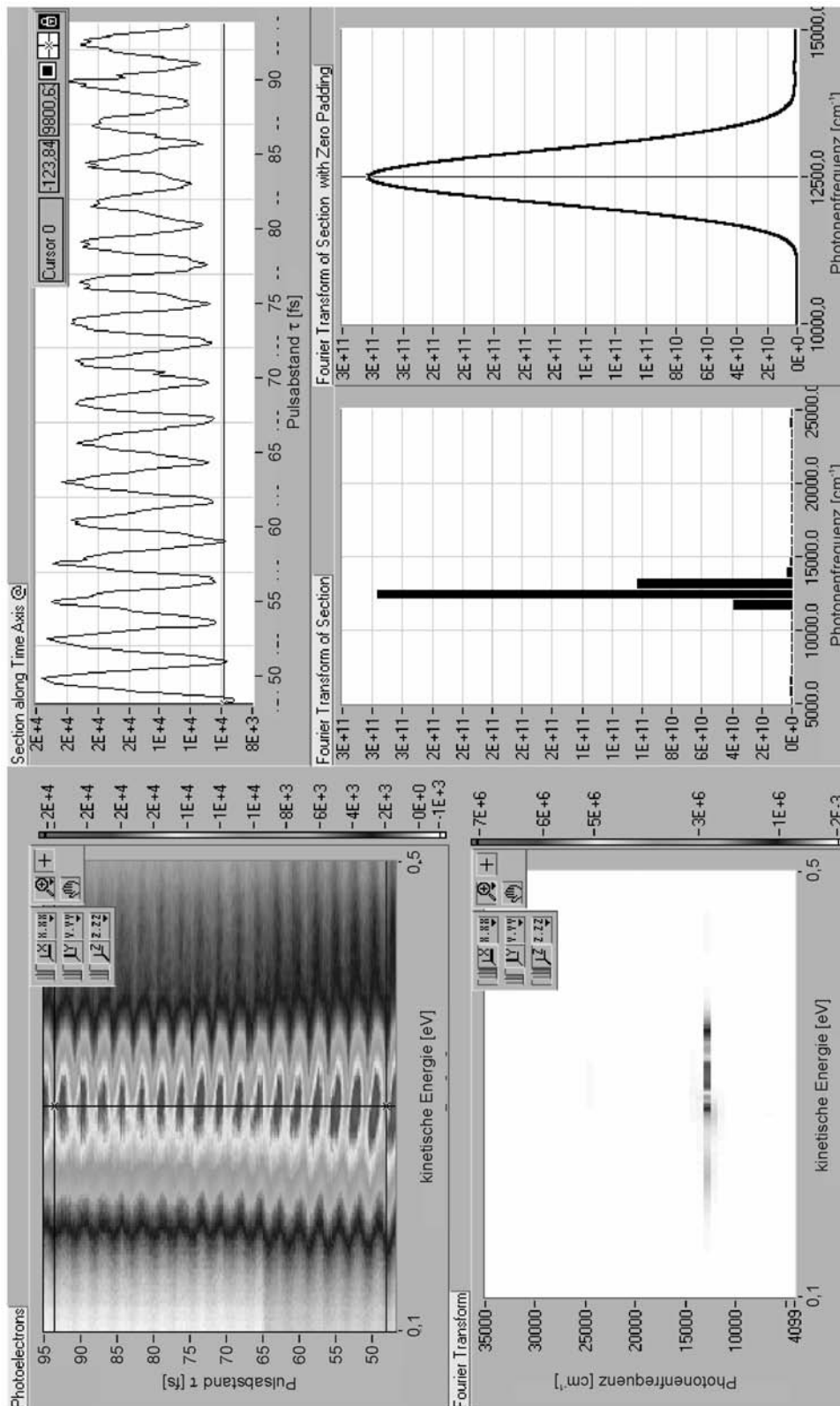


Abbildung 4.11: Im Bereich fern der Null, also in dem Bereich wo optische Interferenzen auszuschließen sind, wurde für die Threshold Elektronen eine starke Modulation bei der Photonenfrequenz  $\omega_{ph} = 12500 \text{ cm}^{-1}$  ermittelt.

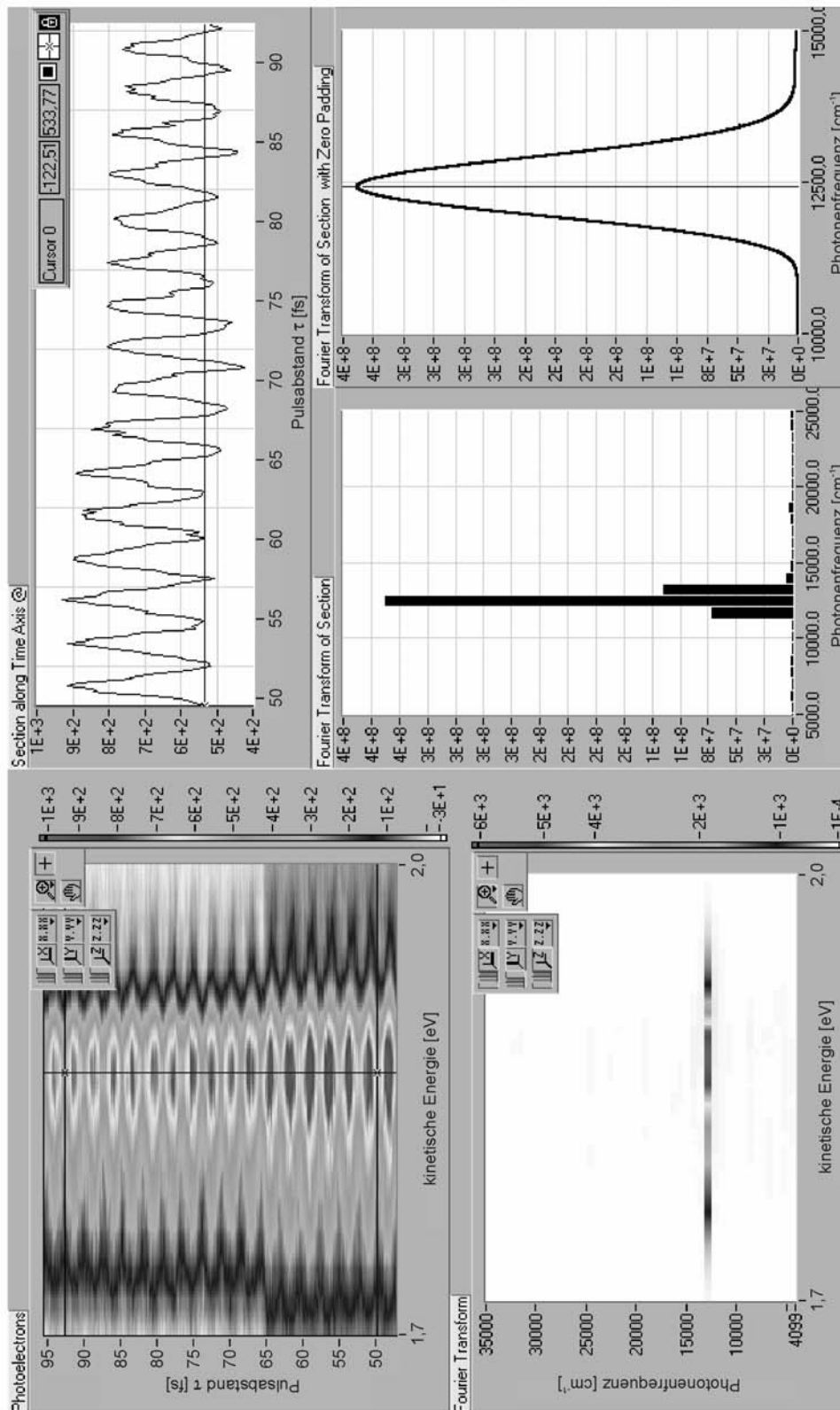


Abbildung 4.12: Für die ATI Elektronen wurde für den Bereich fern der Null eine starke Modulation bei der Photonenfrequenz  $\omega_{ph} = 12430 \text{ cm}^{-1}$  ermittelt.

#### 4.4.2 Senkrechte Polarisation / ATI Elektronen

In diesem Telexperiment sind die beiden gegeneinander zeitverzögerten 790 nm Laserpulse senkrecht zueinander polarisiert. Die Abbildung 4.13 zeigt die gemessenen Elektronenflugzeiten in Abhängigkeit des zeitlichen Pulsabstandes  $\tau$ . Bei dieser Messung lag an den Polschuhblenden die Spannung  $U_{pp} = -0,65$  V an, am Grid lag die Beschleunigungsspannung  $U_g = 0,7$  V an. Aus der Kalibrierung folgen die in Abbildung 4.14 gezeigten Photoelektronenspektren, wo die kinetische Energien der Elektronen in Abhängigkeit des Pulsabstandes  $\tau$  aufgetragen sind. Mit Hilfe der LabView-Anwendung FourierAnalysis3.vi wurden auch hier Fourieranalysen sowohl für die Threshold Elektronen, als auch für die Above-Threshold-Ionisation Elektronen (ATI Elektronen), welche mit Hilfe von zwei Photonen ins Ionisationskontinuum treten, durchgeführt. Während aber für die Threshold Elektronen keine signifikante Modulation feststellbar war, konnte im Falle der ATI Elektronen eine solche gemessen werden: Die Abbildung 4.15 zeigt die Fourieranalyse, die im Bereich 1,5 eV bis 2,2 eV, sprich im Bereich der ATI Elektronen, durchgeführt wurde. Da auf Grund des einfarbigen 405 nm Photoionisationssignals, welches bei etwa 1,78 eV (2 Photonen á 405 nm) liegt, das sich etwa bei 1,85 eV befindende ATI Signal (1 Photon á 405 nm und 2 Photonen á 790 nm) überlappt wird, ist die Signifikanz der bestimmten Modulation für die ATI Elektronen deutlich geringer, als die, welche in 4.4.1 für die Threshold Elektronen sowie die ATI Elektronen bei paralleler Polarisation beschrieben wurde. (Zur Veranschaulichung zeigt die Abbildung 4.16 drei Spektren, von welchen eines nur mit Anregung durch die Wellenlänge 405 nm aufgenommen wurde, für eines nur die Wellenlänge 790 nm verwendet wurde und für das dritte beide Wellenlängen zum Einsatz kamen.) Ermittelt wurde für die ATI Elektronen bei „senkrechter Polarisation“ eine Photonenfrequenz von  $25333\text{ cm}^{-1}$ . Im Gegensatz zu der in 4.4.1 (Parallele Polarisation / Thresholdelektronen) beschriebenen Photonenfrequenz  $\omega_{ph} = 12658\text{ cm}^{-1}$  wurde hier also die doppelte Frequenz  $2\omega_{ph}$  gemessen.

#### 4.5 Diskussion

Auf Grund des durchgeführten Experimentes mit den aufeinanderfolgenden Pulsen, welche parallel zueinander polarisiert sind, sind zwei unterschiedliche Schlussfolgerungen möglich: Die in den Abbildung 4.8 gut sichtbaren gekippten Ellipsen könnten mit Hilfe von spektralen Interferenzen erklärt werden, welche in das ionische Kontinuum projiziert werden. Solche Interferenzen sollten aber auch mit inkohärenten Licht sichtbar sein. Mit der Hilfe von Multiphotonübergängen kann allerdings zwischen optischen sowie Wellenpaketinterferenzen unterschieden werden. Im Falle des zweiten durchgeführten Telexperimentes (siehe 4.4.2: Senkrechte Polarisation / ATI Elektronen) können optische Interferenzen ausgeschlossen werden. Auf Grund der Übergangsauswahlregeln ( $\Delta M = 0$  im Falle des parallel polarisierten Pulses und  $\Delta M = \pm 1$  für den senkrecht hierzu polarisierten Puls) werden Threshold Elektronen in orthogonal zueinander stehenden Quantenzuständen generiert. Somit können hier Quanteninterferenzen ausgeschlossen werden. In einem nichtlinearen Zweiphotonenübergang ist im Falle des parallel polarisierten Laserpulses ebenfalls  $\Delta M = 0$ , im Falle des hierzu senkrecht polarisierten Pulses besagen die Auswahlregeln aber nun, dass  $\Delta M = 0, \pm 2$  ist. Es können also hier ATI Elektronen in die gleichen Quantenzustände gehoben werden und somit interferieren. Die jetzt zu beobachtende Anregungsenergie muss nun das doppelte der Laserfrequenz betragen (also  $2\omega_{ph}$ ), was die gemessenen  $25333\text{ cm}^{-1}$  erklärt. Während die aufgenommenen Spektren bezüglich der Threshold Elektronen keine Anzeichen bezüglich einer Modulation hervorgerufen durch optische Interferenzen erkennen lassen, findet man bei den ATI Elektronen eine ausgeprägte Modulation mit der Frequenz

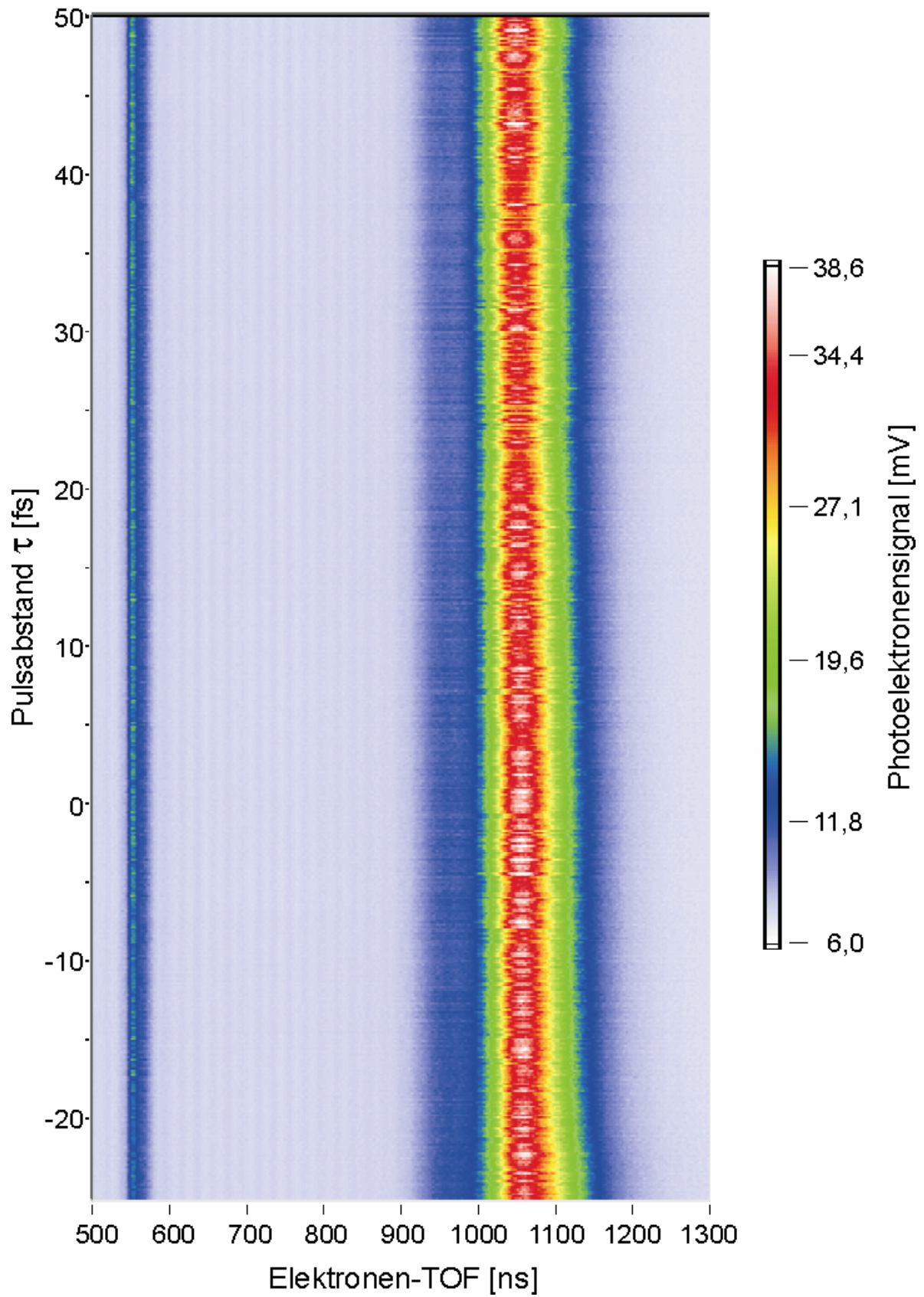


Abbildung 4.13: Die Flugzeitelektronenspektren für zwei zeitlich verzögerte 790 nm Femtosekundenlaserpulse, welche senkrecht zueinander polarisiert sind. Der Pulsabstand  $\tau$  wurde im Bereich  $-25$  fs bis  $+50$  fs variiert.

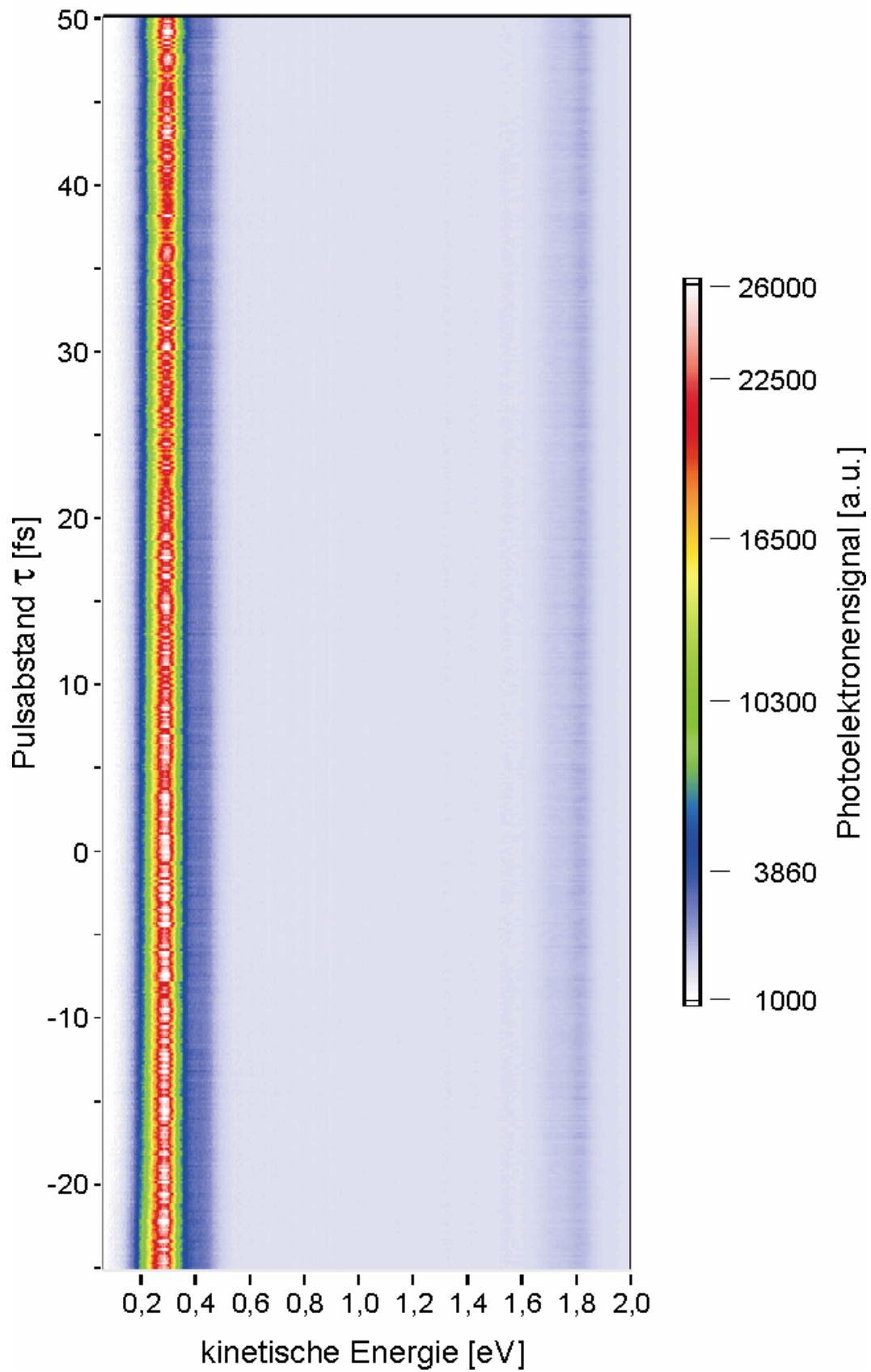


Abbildung 4.14: In dieser Abbildung sind die in Abbildung 4.13 zu sehenden Messergebnisse in kalibrierter Form zu sehen. Bei etwa 0,29 eV befindet sich das Signal der Threshold Elektronen, bei etwa 1,85 eV ist das Signal der ATI Elektronen zu sehen. Abgebildet sind die Elektronenspektren die im Pulsabstandsbereich von -25 fs bis +50 fs entstanden sind.

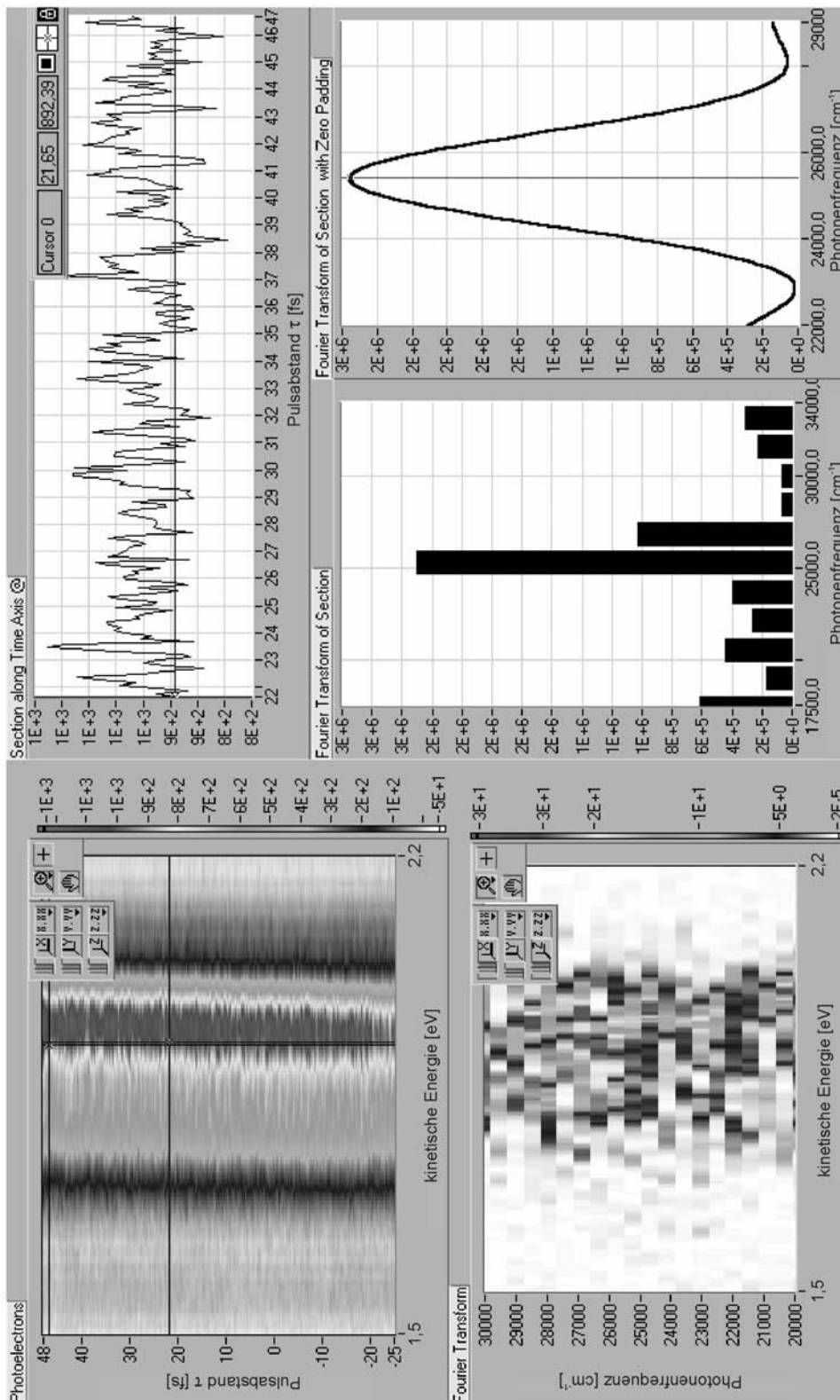


Abbildung 4.15: Hier die Fourieranalyse der ATI Elektronen Spektren, welche mit Hilfe von zweier zeitlich verzögerter senkrecht zueinander polarisierter 790 nm Femtosekundenlaserpulse aufgenommen wurden. Die Analyse wurde für einen Pulsabstandbereich zwischen etwa +22 fs und +47 fs durchgeführt. Da das ATI Signal vom Einfarbensignal des Ausgangszustand bereitenden 405 nm Laserpulses überlagert wird, ist die Signifikanz der gemessenen Modulation mit der Photonenfrequenz  $2\omega_{ph} = 25333 \text{ cm}^{-1}$  deutlich geringer, als die welche für parallel zueinander polarisierte 790 nm Pulse gemessen wurde.

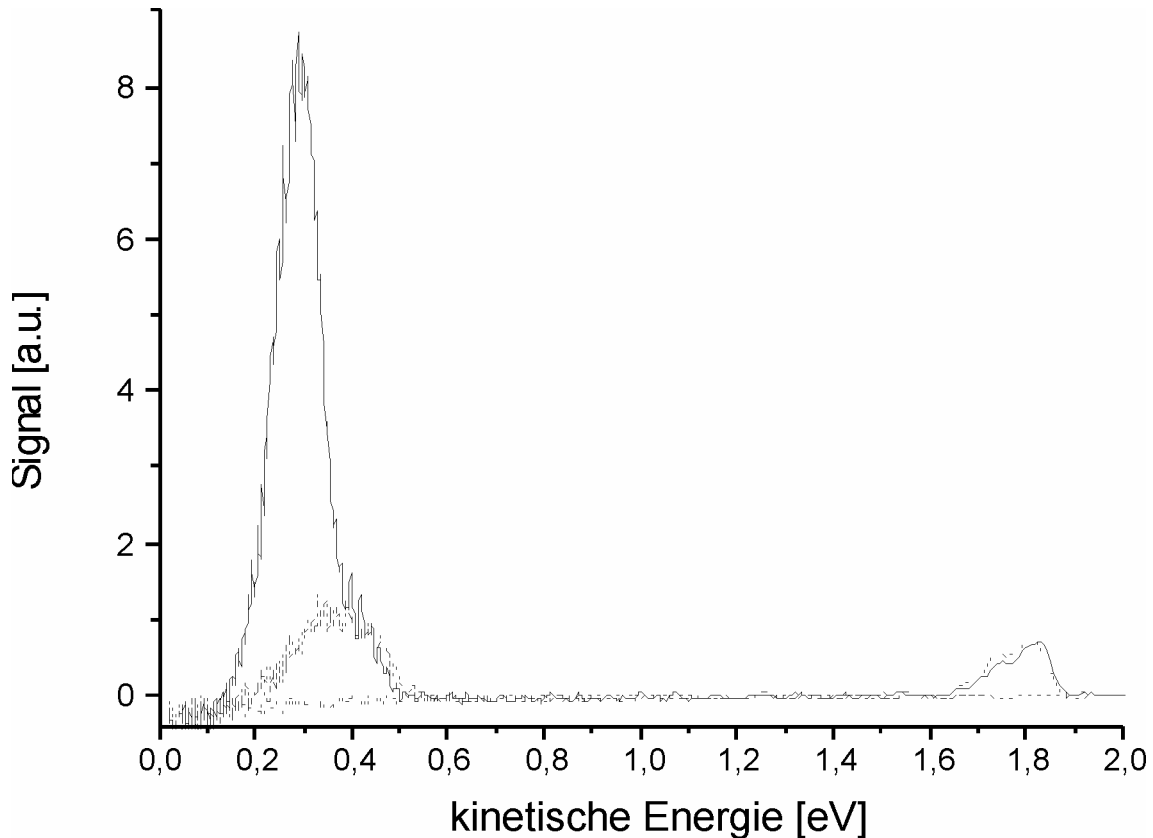


Abbildung 4.16: In dieser Abbildung sind drei verschiedene Spektren zu sehen. Das, welches gepunktet geplottet ist, wurde lediglich mit Hilfe eines 405 nm Femtosekundenlaserpuls (100 fs) aufgenommen: Mit Hilfe von 2 Photonen wird Kalium aus seinem 4s Grundzustand ionisiert, so dass ein Peak bei 1,78 eV zu sehen ist. Das gestrichelt geplottete Spektrum ist entstanden, in dem Kalium mit Hilfe eines 790 nm Femtosekundenlaserpulses (30 fs) aus dem 4s Grundzustand ionisiert wurde: Mit Hilfe von 2 Photonen erhalten die ins Kontinuum tretenden Elektronen eine kinetische Energie von 0,37 eV. Für das dritte durchgezogen geplottete Spektrum wurde zunächst mit Hilfe eines 405 nm Pulses der Kalium 5p Zustand angeregt, mit Hilfe eines 790 nm Pulses wurde dann ionisiert. Die hierdurch emittierten Threshold Elektronen sind bei 0,29 eV zu sehen. Des weiteren zeigt sich aber ein zusätzlicher Peak, welcher bei 1,78 eV zu sehen ist. Dieser scheint deckungsgleich mit dem zu sein, der lediglich mit Hilfe eines 405 nm Laserpulses entstanden ist, so dass angenommen werden kann, dass auch nur dieses „blaue Licht“ für die Generierung dieses Peakes verantwortlich ist. Ein intensitätsschwacher zweifarbigem ATI Peak, dessen Energie ungefähr 1,86 eV beträgt, wird von diesem überlappt. Dieser ist aber mit Hilfe der Fourieranalyse detektierbar.

$2 \omega_{\text{ph}} = 25333 \text{ cm}^{-1}$ , welches zusammengenommen deutlich die quantenmechanischen Interferenzen der Freien Elektronenwellenpakete bestätigt.

#### 4.6 Zusammenfassung

Anhand der beobachteten Interferenzen von freien Elektronenwellenpaketen konnte durch das oben erläuterte Experiment demonstriert werden, wie ein kohärenter Transfer von Lichtpulsen zu den Wellenpaketen stattfindet. Es wurde gezeigt, dass die Kohärenz zeitlich viel länger konserviert bleibt, als die eigentliche Laserinteraktion andauert. Die Tür zu einer Vielzahl anderer Experimente ist hierdurch geöffnet. Mit Hilfe von geformten Pulsen sind

Materiewellen manipulierbar. Räumlich auf ein Ziel fokussierte Elektronenwellenpakete könnten zeitaufgelöste Elektronenbeugungsexperimente, wie sie z.B. in [96] beschrieben sind, weiter führen. Ebensolches gilt für Elektronenrekollisionsxperimente wie sie in [97] beschrieben wurden. Weiterhin könnten die Erkenntnisse, welche durch oben beschriebenes Experiment erlangt wurden, dazu beitragen, dass zukünftig geformte Laserpulse im spektralen XUV Bereich besser charakterisiert werden könnten: Hierzu müsste das freie Elektronenwellenpaket mit Hilfe eines bandbreite limitierten Laserpulses und einem zeitlich verzögerten geformten Laserpuls generiert werden. Der geformte Laserpuls könnte dann mit Hilfe des im Elektronenspektrum ersichtlichen resultierenden Interferenzmusters analog zur spektralen Interferometrie analysiert werden.



## **Kapitel 5**

# **Interferenzkontrolle in einem Autler-Townes Doublet: Die Symmetrie der Kontrollparameter**

### **5.1 Einleitung**

Während wir uns bei dem im vorigen Kapitel beschriebenen Experiment im Regime des schwachen Feldes bewegt haben, wollen wir jetzt den Schritt hin zum starken Feld tun, also in einen Bereich gehen, wo die Störungsrechnung die Physik nicht länger in akkurater Weise beschreibt. Im Regime des starken Feldes sind eine Unzahl von Effekten sichtbar, welche man im Bereich des schwachen Feldes nicht beobachten kann: Stellvertretend seien hier RAP (Rapid Adiabatic Passage) [98, 99] oder STIRAP (Stimulated Raman Adiabatic Passage) [100] genannt. Vergessen wollen wir aber auch nicht die Modifikationen von Potentialflächen, wie sie mit Hilfe des AC-Stark Effektes durchgeführt werden können [101-103].

Das Doppelpulsexperiment, welches in diesem Kapitel beschrieben wird, gliedert sich in zwei Telexperimente: Im ersten Teil wird im Rahmen einer Photoelektronenmessserie der zeitliche Abstand zweier völlig gleicher intensiver Femtosekundenlaserpulse bei gleichbleibender Laserintensität verändert, im zweiten Teil wird bei gleichem Pulsabstand die Intensität der beiden Pulse variiert. Die beiden Telexperimente zeigen, dass sowohl durch das starke Laserfeld, als auch auf Grund der optischen Phase der beiden Laserpulse, die quantenmechanische Phase eines Atomzustandes in gleicher Weise manipuliert werden kann.

Beschrieben wird dieses Experiment ebenfalls in der Veröffentlichung „Control of interferences in an Autler-Townes doublet: Symmetry of control parameters“, welche in *Physical Review A* 68, 015401, 2003 [104] zu finden ist. Trotz einer unterschiedlichen Datenaufbereitung (Umgang mit Untergründen, Datenmittelung) werden die Ergebnisse in [104] durch die hier präsentierten Ergebnisse qualitativ bestätigt und untermauert.

## 5.2 Experiment

Wie bei dem in Kapitel 4 beschriebenen Experiment, bildet die Molekularstrahlapparatur MaBoS das Fundament des folgend erläuterten Experimentes. Ebenso wie in Kapitel 4 wird mit Hilfe des Ofens ein Kaliumüberschallatomstrahl generiert. Die dabei eingestellten Ofentemperaturen unterscheiden sich nur unwesentlich von denen, die für das vorangegangene Experiment niedergeschrieben sind. Die Temperatur der Kartusche beträgt 250 °C, die der Düse 390 °C. Der Druck in der Ofen- bzw. Hauptkammer der Apparatur beträgt hierbei ca.  $1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar. Auch in diesem Experiment wird senkrecht zum Atomstrahl ein Femtosekundenlaserstrahl in die Apparatur eingekoppelt, auch hier kommt es in der Spektromereinheit der Molekularstrahlapparatur MaBoS zur Wechselwirkung zwischen diesen, auch hier werden die Elektronen der einzelnen photoionisierten Atome mit Hilfe der magnetischen Flasche (die orthogonal zu Atom- und Laserstrahl steht) zeitaufgelöst detektiert (time-of-flight, TOF). Die an den Polschuhblenden angelegte Spannung beträgt  $U_{pp} = -1,54$  V. Die Beschleunigungsspannung, welche am Grid anliegt und mit der die Elektronen in Richtung der MCP Chevronanordnung nachbeschleunigt werden, beträgt  $U_g = 0,304$  V. Die Energieauflösung des Spektrometers für Elektronen mit einer kinetischen Energie von 1 eV beträgt 25 meV.

Der mittels eines 1 kHz Titan-Saphir-Laserssystems generierte 785 nm Laserstrahl, dessen Pulse eine Länge von 30 fs (FWHM) besitzen, wird mit Hilfe eines Mach-Zehnder-Interferometers in zwei Teilstrahlen getrennt. Die zeitliche Verzögerung  $\tau$ , welche zwischen zwei völlig identischen Laserpulsen besteht, wird mittels der Veränderung der Länge eines der beiden Interferometerarme herbeigeführt. Unter Ausnutzung der entstehenden spektralen Interferenzen wird mit Hilfe eines optischen Spektrometers die Pulsverzögerung  $\tau$  gemessen und simultan aufgezeichnet. Die Laserpulssequenz regt die Kaliumatome zunächst mittels Einphotonenanregung vom 4s Grundzustand in den 4p Zustand an. Mittels Zweiphotonenionisation werden die Kaliumatome dann simultan ionisiert (siehe Abbildung 5.1).

Es werden zwei Telexperimente durchgeführt: Im ersten dieser Experimente wird der Pulsabstand  $\tau$  bei konstanter Laserintensität  $I_0 = 0,54 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup> variiert. Hierbei wird der Bereich zwischen 80 fs und 100 fs in Schritten von 0,2 fs durchfahren. Im zweiten Telexperiment bleibt der Pulsabstand  $\tau$  konstant ( $\tau = 98,6$  fs). Variiert wird nun die Energie der feststehenden Laserpulssequenz und zwar im Bereich  $0,7 I_0$  bis  $3 I_0$ . Für die Einstellungen der unterschiedlichen Energien wird ein zirkular verstellbarer Abschwächer benutzt.

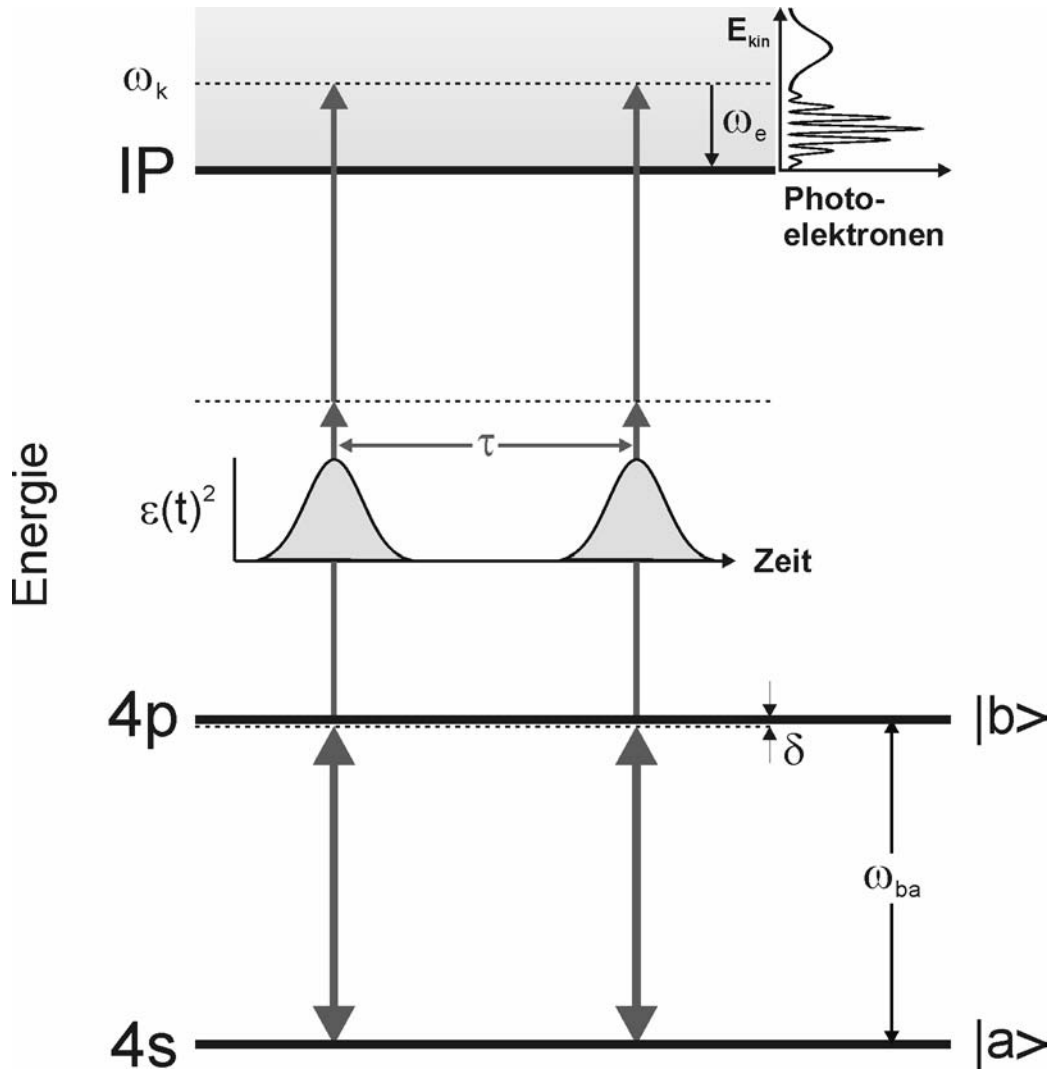


Abbildung 5.1: Anregungsschema: Mit Hilfe einer Femtosekundenlaserpulssequenz (2 mal FWHM 30 fs), welche eine Einhüllende  $\epsilon(t)^2$  sowie eine Trägerfrequenz  $\omega_0$  (die mit 785 nm, der Wellenlänge der Laserpulssequenz korrespondiert) besitzt, werden ausgehend vom Kalium 4s Grundzustand ( $|a\rangle$ ) Rabirotationen hin zum 4p Zustand ( $|b\rangle$ ) getrieben. Die Trägerfrequenz  $\omega_0$  ist hierbei bezüglich der Resonanzfrequenz  $\omega_{ba}$ , welche mit der Wellenlänge 768 nm korrespondiert, verstimmt. Mit Hilfe der selben Laserpulssequenz werden die Kaliumatome mittels Zweiphotonenionisation ionisiert. Die kinetische Energie  $E_{kin} = \hbar \omega_e$  der Photoelektronen wird mit Hilfe der magnetischen Flasche gemessen.

### 5.3 Theorie

Für die theoretische Beschreibung des Experimentes wird ein analytisches Model angewandt, welches ebenfalls bereits in [105] benutzt wurde. Vier Annahmen werden hierzu gemacht:

- Die Kaliumatome werden als Zweilevelsysteme angenommen.
- Die Femtosekundenlaserpulse sind in der Zeit separiert.
- Die treibende Laserfeldfrequenz  $\omega_0$  ist in Resonanz mit der Übergangsfrequenz  $\omega_{ba}$ .
- Die Drehwellennäherung (Rotating Wave Approximation) wird verwendet.

Da Effekte hinsichtlich der Bahn-Spin-Kopplung des aufgespaltenen Kalium 4p Zustandes (7 meV) auf einer 580 fs Zeitskala stattfinden, werden diese hier nicht berücksichtigt.

Für den ersten Puls ergibt sich aus der Schrödingergleichung als Lösung für die Amplitude des angeregten Zustandes die Gleichung

$$c_b(t) = i \sin\left(\frac{\theta(t)}{2}\right) \quad (5.1),$$

wobei

$$\theta(t) = \int_{-\infty}^t \Omega(t') dt' \quad (5.2)$$

die zeitabhängige Pulsfläche und

$$\Omega(t) = \frac{\mu \mathcal{E}(t)}{\hbar} \quad (5.3)$$

die augenblickliche Rabi-Frequenz beschreibt. Hierbei steht  $\mu$  für das Dipolmoment und  $\mathcal{E}(t)$  für die Einhüllente des elektrischen Feldes. Für den zweiten Puls lässt sich analog zu (5.1)

$$c_b(t) = i \sin\left(\frac{\Theta(t)}{2}\right) \quad (5.4)$$

schreiben, wobei hier  $\Theta = \theta(T)$  für die Fläche des ersten Pulses steht. Die zeitliche Entwicklung des angeregten Zustandes kann wie folgt beschrieben werden:

$$c_b(t) = i \left[ s \cos\left(\frac{\theta(t-\tau)}{2}\right) + \exp(i\omega_0\tau) \cdot c \sin\left(\frac{\theta(t-\tau)}{2}\right) \right] \quad (5.5).$$

In dieser Gleichung ist  $c = \cos(\Theta/2)$  und  $s = \sin(\Theta/2)$ . Da der angeregte Kalium 4p Zustand viel besser mit dem 4s Grundzustand als mit dem Ionisationskontinuum koppelt, kann für das Regime des schwachen Feldes [106]

$$c(\omega_e) \propto \int_{-\infty}^{\infty} \exp[i(\omega_k - \omega_{4p})t'] \cdot c_b(t') E^2(t') dt' \quad (5.6)$$

geschrieben werden. In dieser Gleichung steht  $E(t)$  für das elektrische Feld beider Pulse.  $c(\omega_e)$  steht für die Amplitude des Kontinuumszustandes mit der Energie  $\hbar \omega_k$  (Im Gegensatz hierzu steht  $\hbar \omega_e$  für die Energie der Photoelektronen,  $|c(\hbar \omega_e)|^2$  beschreibt das Photoelektronenspektrum.).

## 5.4 Experimentelle Ergebnisse

Wie bereits in 5.2 erwähnt, wurden zwei Telexperimente durchgeführt. Im ersten Telexperiment wurde bei konstanter Laserenergie der Pulsabstand der Doppelpulssequenz variiert, im zweiten Telexperiment wurde bei konstanten Pulsabstand die Laserenergie variiert.

### 5.4.1 Variation des Pulsabstandes bei konstanter Laserenergie

Zunächst sollen noch einmal die grundlegenden Betriebsparameter der Atomstrahlapparatur MaBoS aufgelistet werden, wie sie bei der Durchführung dieses Experimentes Verwendung

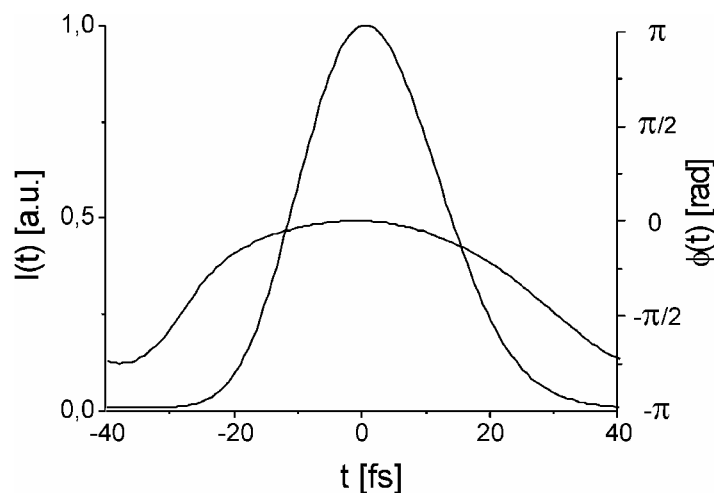


Abbildung 5.2: Retrieved Frogspur eines Laserpulses.

fanden: Bei einer Ofentemperatur von 250 °C (Düsentemperatur 390 °C) betrug der Druck in Ofen- wie Hauptkammer  $1,0 \cdot 10^{-7}$  mbar. Bezüglich der magnetischen Flasche wurden die folgenden Spannungen verwendet: Die Spannung an den Polschuhblenden betrug  $U_{pp} = -1,54$  V. Die Elektronen wurden mit Hilfe einer am Grid anliegenden Spannung von  $U_g = 0,304$  V in Richtung der Chevron-MCP-Anordnung beschleunigt.

Die Laserintensität des 785 nm Laserstrahls (Pulslänge 25 fs) betrug  $I_0 = 0,54 \cdot 10^{12}$  W/cm<sup>2</sup>. Die retrieved Frogspur eines Laserpulses ist in der Abbildung 5.2 zu sehen. Mit Hilfe eines Mach-Zehnder-Interferometers wurden zwei Teilstrahlen im Bereich von 80 fs bis 100 fs zeitlich gegeneinander verzögert. Es wurde eine Serie von Flugzeitelektronenspektren aufgenommen, wobei von Spektrum zu Spektrum der Pulsabstand  $\tau$  um 0,2 fs verändert wurde. Die Abbildung 5.3 zeigt die aufgenommene Flugzeitelektronenspektrenserie, wobei auf der y-Achse der Pulsabstand  $\tau$  in fs und auf der x-Achse die Elektronenflugzeit in ns aufgetragen ist. Die Höhe des Photoelektronensignals ist mit Hilfe einer Falschfarbenskala gesondert aufgetragen.

Mit Hilfe bekannter Elektronenenergien, wie im Anhang A.5.4 gezeigt, wurden die Elektronenflugzeiten in kinetische Energien umkalibriert. Die Abbildung 5.4 zeigt die so entstandene kinetische Energie Spektrenserie. Die Abbildungen 5.5 und 5.6 zeigen zwei aus der Abbildung 5.4 entnommene Spektren und zwar für die Pulsabstände  $\tau = 91$  fs und  $\tau = 87$  fs. Die Abbildung 5.7 zeigt hingegen zwei Schnitte längs der Pulsabstandachse, zum einen gemittelt über die langsamen Elektronen (im Bereich 0,3 eV bis 0,45 eV), zum anderen gemittelt über die schnellen (im Bereich 0,45 eV bis 0,7 eV).

Zu sehen ist wie das Photoelektronensignal mit einer Photonenfrequenz von 2,6 fs oszilliert. Die Oszillationen der langsamen Elektronen sind dabei gegenüber den schnellen phasenverschoben. Bei einem Pulsabstand  $\tau = 91$  fs ist ein Maximum für die langsamen Elektronen zu finden, während die schnellen Elektronen sich in einem Minimum befinden: Die Abbildung 5.5 zeigt die Autler-Townes Dublette zu diesem Zeitpunkt. Bei einem Pulsabstand von  $\tau = 87$  fs (Abbildung 5.6) liegt der umgekehrte Fall vor: Ein Minimum der langsamen Elektronen ist zu sehen, die schnellen Elektronen befinden sich im Maximum. Die phasenverschobenen Oszillationen der langsamen und schnellen Elektronen sind gut zu erkennen, wenn man die Intensität des Elektronensignals gegenüber des Pulsabstandes  $\tau$  aufträgt (Abbildung 5.7).

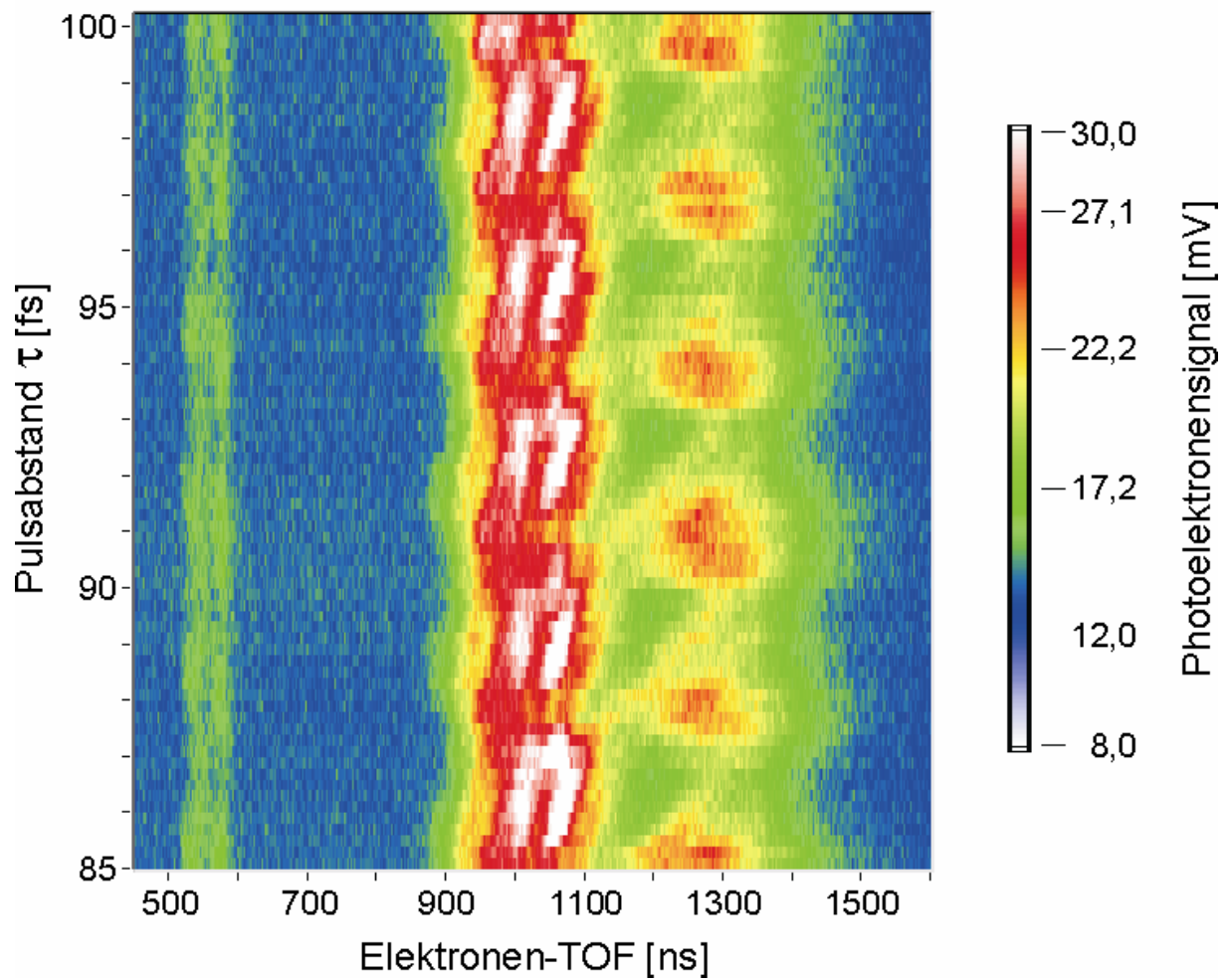


Abbildung 5.3: Aufgenommene Flugzeitelektronenspektren in Abhängigkeit des Pulsabstandes  $\tau$ . Die Laserintensität betrug  $I_0 = 0,54 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Zwischen 800 ns und 1500 ns liegt der Bereich der Threshold Elektronen. Zwischen 500 ns und 600 ns sind die Spektrenanteile der ATI Elektronen erkennbar.

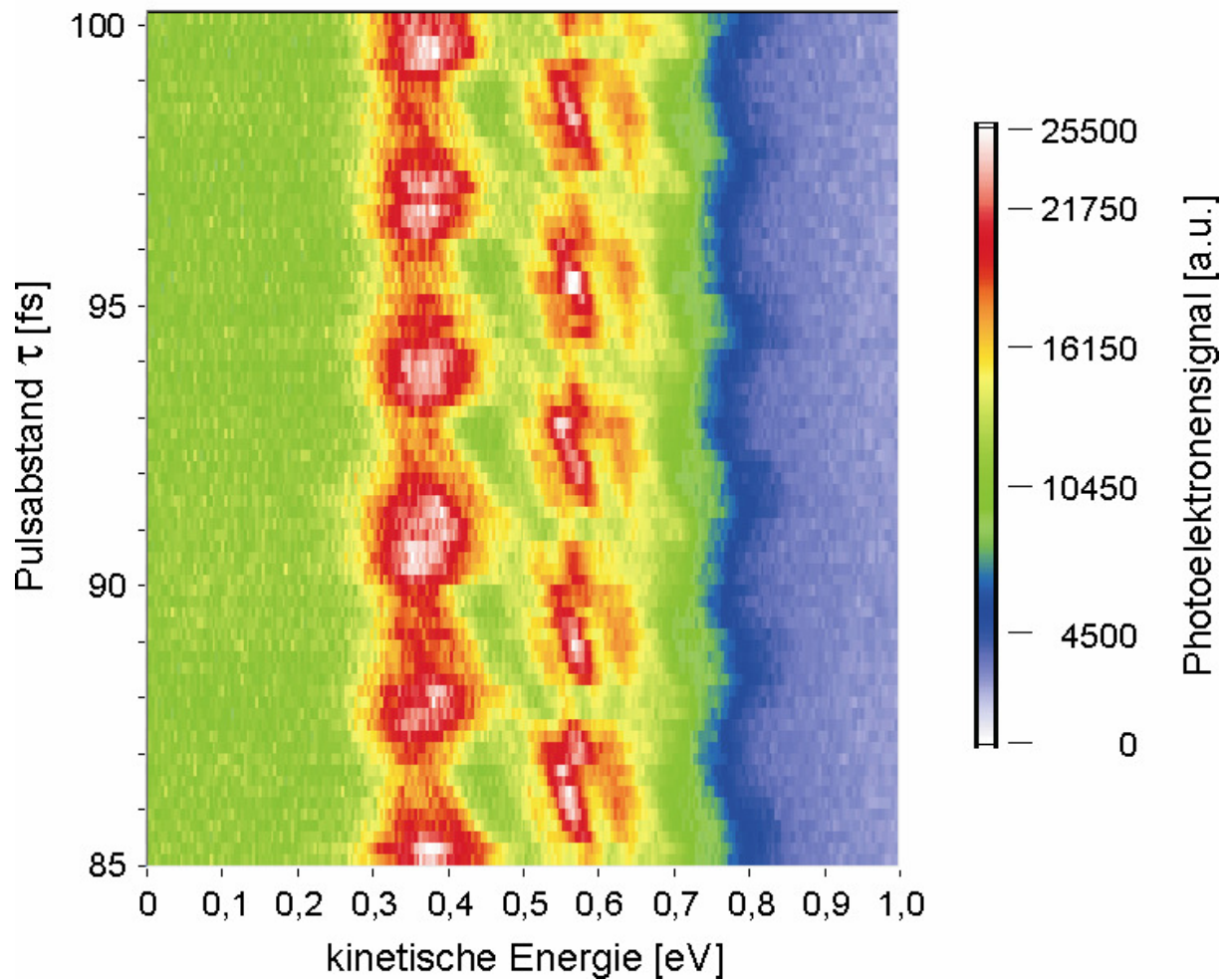


Abbildung 5.4: In kinetische Energien umkalibrierte Flugzeitelektronenspektren im Bereich 0 eV bis 1 eV (Threshold Elektronen). Zu sehen ist wie das Photoelektronensignal mit einer Photonenfrequenz von 2,6 fs oszilliert. Die Oszillationen der langsamen Elektronen sind dabei gegenüber den schnellen phasenverschoben.



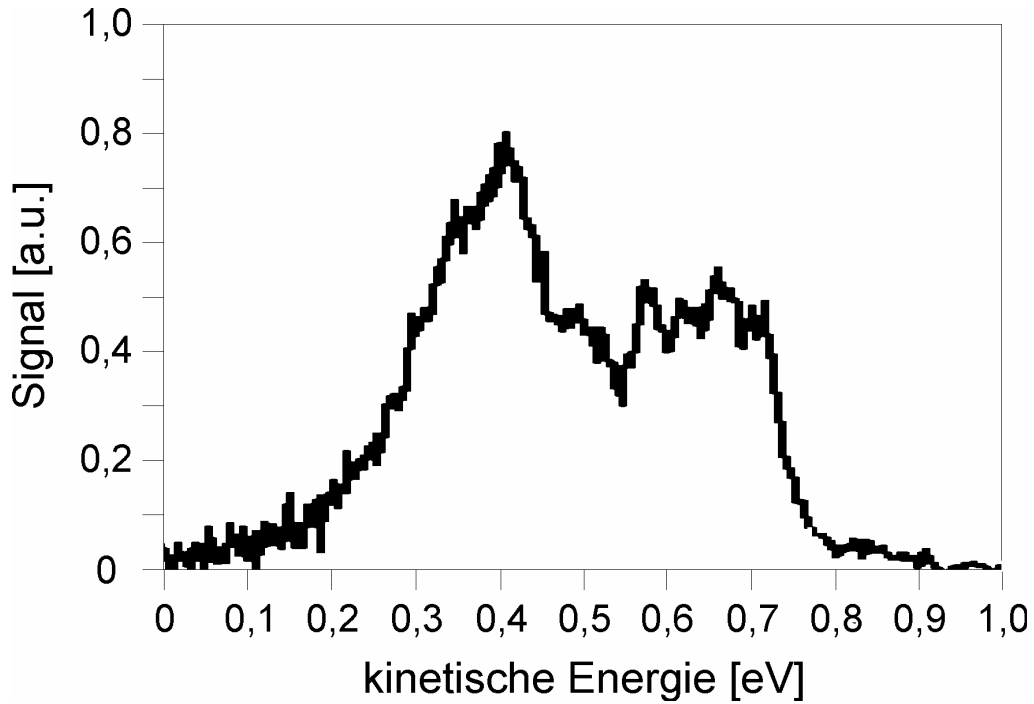


Abbildung 5.5: Elektronenspektrum bei einem Pulsabstand  $\tau=91$  fs: In der typischen Autler-Townes Dublette sind für diesen Pulsabstand die langsamen Elektronen im Maximum, die schnellen Elektronen befinden sich im Minimum.

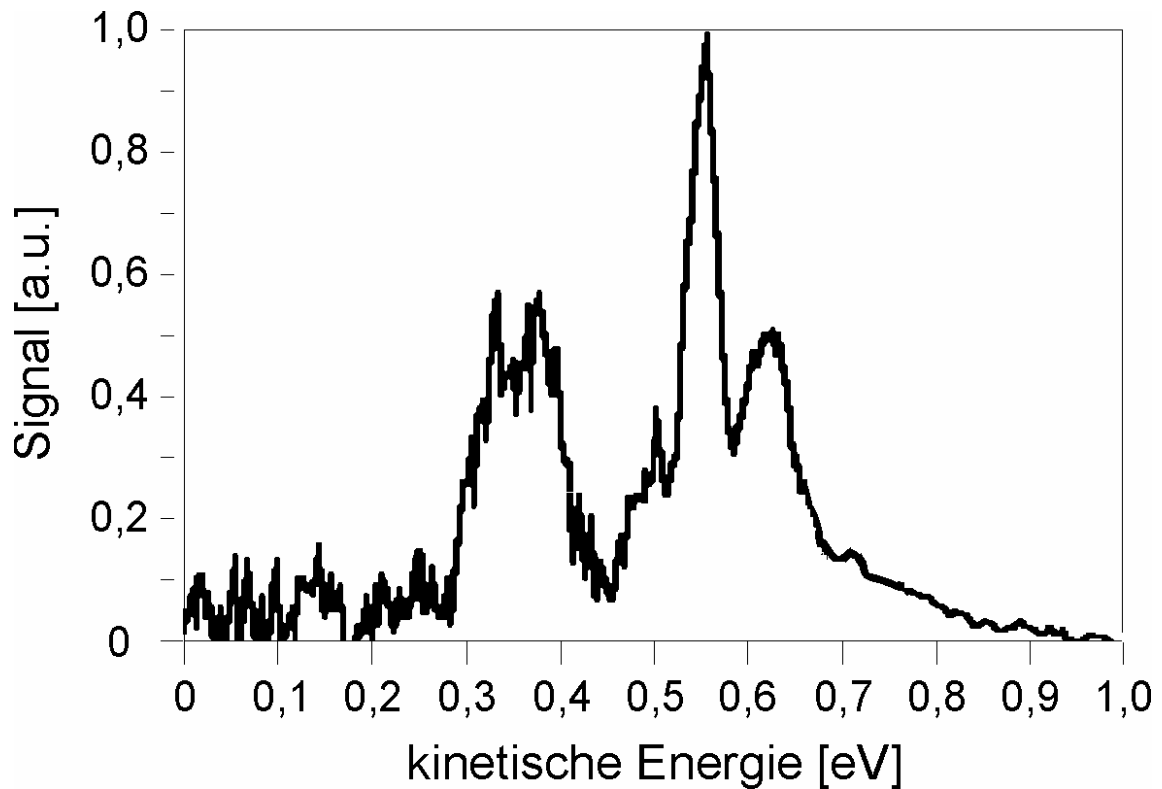


Abbildung 5.6: Im Gegensatz zur Abbildung oben sind bei einem Pulsabstand  $\tau=87$  fs die schnellen Elektronen im Maximum und die langsamen im Minimum. Im Bereich der schnellen Elektronen sind Fringes beobachtbar.

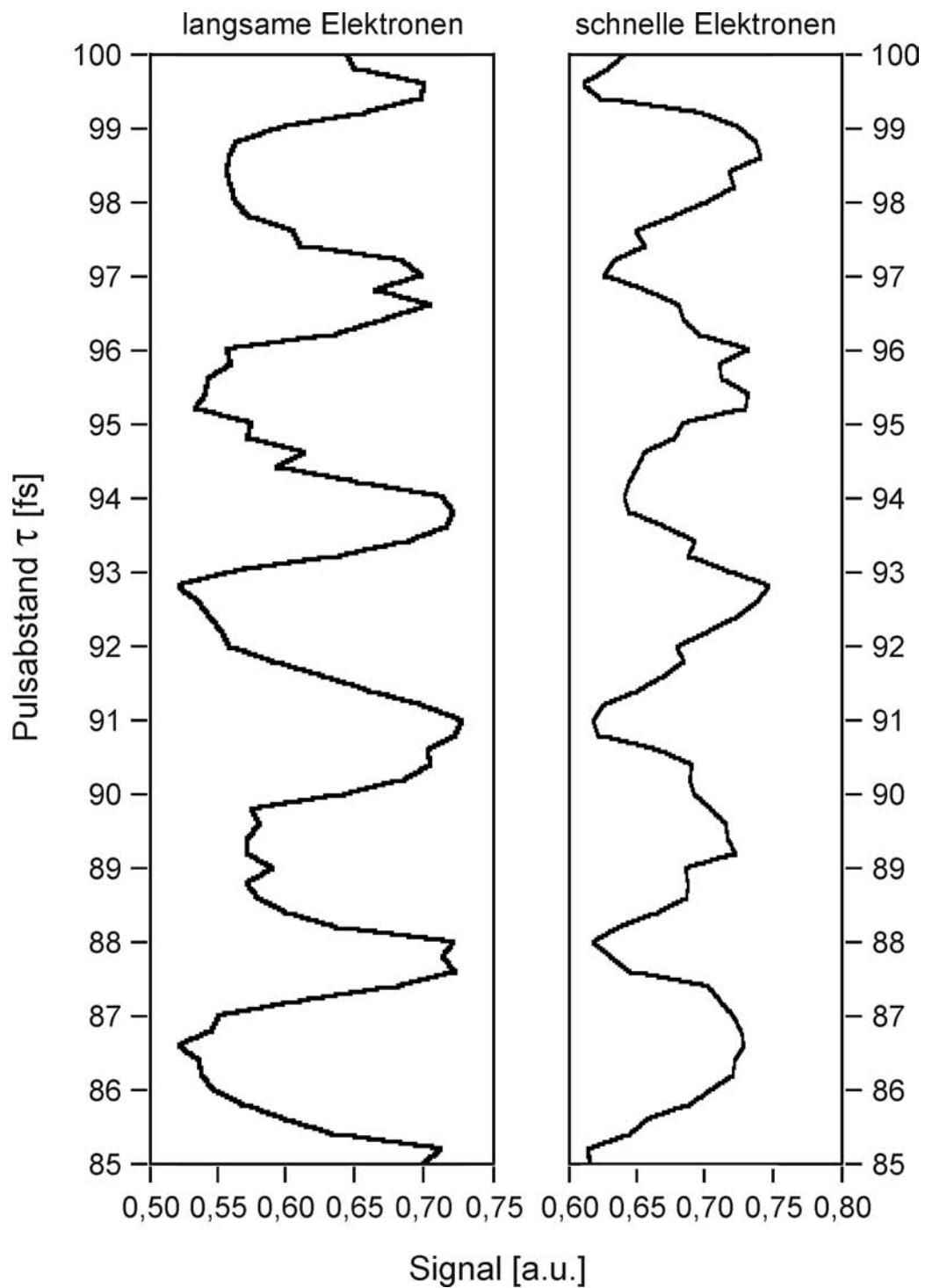


Abbildung 5.7: Die beiden Teilabbildungen zeigen Mittelungen, welche über den Bereich der langsamen bzw. der schnellen Elektronen durchgeführt wurden. Zu sehen ist wie das Photoelektronensignal jeweils mit einer Photonenfrequenz von 2,6 fs oszilliert. Im Vergleich ist deutlich erkennbar, wie die langsamen Elektronen gegenüber den schnellen Elektronen phasenverschoben sind.

### 5.4.2 Variation der Laserenergie bei konstantem Pulsabstand

Das zweite Telexperiment wurde am selben Tage wie das in 5.4.1 beschriebene Telexperiment durchgeführt. An der Atomstrahlapparatur MaBoS und der magnetischen Flasche wurden die gleichen Parameter verwendet. Auch für dieses Telexperiment ist die in Abbildung 5.2 zu sehende Frogspur gültig.

Der Pulsabstand der mit Hilfe eines Mach-Zehnder-Interferometers generierten Pulssequenz betrug 98,6 fs. Variiert wurde die Laserintensität der Pulssequenz in einem Bereich von ca.  $0,3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  bis ca.  $1,7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Für das Variieren der Laserintensität wurde ein zirkular verstellbarer Abschwächer benutzt: Auf Grund der kreisförmig sich veränderten optischen Dichte der Scheibe, lässt sich mit Hilfe eines die Scheibe drehenden ansteuerbaren Motors die einfallende Laserintensität kontinuierlich auf bis zu 10 % reduzieren. Da die Transmission  $T = I/I_0$  eines Abschwächers dem Gesetz

$$T = 10^{-\rho} \quad (5.7)$$

gehört, wobei die optische Dichte  $\rho$  des von uns benutzten Abschwächers zwischen den Werten 0,04 und 4 variiert werden kann, ist das Verhältnis zwischen eingestellter Abschwächerposition (in Grad) und ausfallender Laserintensität  $I$  nicht linear. Die Abbildung 5.8 zeigt eine aufgenommene Flugzeitelektronenspektrenserie. An der rechten y-Achse ist die Position des zirkular verstellbaren Abschwächers in Grad aufgetragen, an der linken y-Achse sind die daraus resultierenden Laserintensitäten in  $\text{W/cm}^2$  ablesbar. Wie in den in Abschnitt 5.4.1 zu sehenden Abbildungen wird die Höhe des Photoelektronensignals mit Hilfe von Falschfarben dargestellt.

Kalibriert man die in Bild 5.8 abgebildeten Daten, weicht die vormalig an der x-Achse aufgetragene Flugzeitelektronenskala (in ns) einer neuen Skala, an welcher jetzt die kinetischen Energien in eV aufgetragen sind. Die in der Abbildung 5.8 noch gut zu sehenden ATI Signale sind in der kalibrierten Abbildung 5.9 nur noch schwach erkennbar. Teilbereiche aus Abbildung 5.9 sind in den Abbildungen 5.10 (Threshold) und 5.11 (1. ATI) zu sehen. Damit man das Experiment qualitativ wie auch quantitativ auswerten kann, müssen die einzelnen in der Serie enthaltenen Spektren normiert werden: Die Abbildung 5.12 zeigt die normierte Messserie. Die Abbildungen 5.13 bis 5.16 zeigen aus der gesamten Messserie entnommene Einzelspektren, welche bei den Laserintensitäten  $I_0 = 0,54 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  (Abbildung 5.12),  $I_1 = 1,5 I_0 = 0,81 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  (Abbildung 5.14),  $I_2 = 2 I_0 = 1,08 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  (Abbildung 5.13) und  $I_3 = 3 I_0 = 1,62 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  (Abbildung 5.15) durchgeführt worden sind.

Aus den Abbildungen 5.13 bis 5.16 wird ersichtlich, dass auch die einzelnen Autler-Townes Komponenten in diesem Telexperiment phasenverschoben sind. Bei den Laserintensitäten  $I_0$  und  $I_2 = 2 I_0$  befinden sich die langsamen Elektronen in ihrem Maximum, die schnellen Elektronen im Minimum. Bei den Laserintensitäten  $I_1 = 1,5 I_0$  und  $I_3 = 3 I_0$  sind hingegen die schnellen Elektronen im Maximum, nun die langsamen im Minimum. Deutlich wird das oszillieren des Photoelektronensignals auch, wenn man entlang der Laserintensitätsachse einen Schnitt legt: Die Abbildung 5.17 zeigt einen solchen Schnitt bezüglich der langsamen Elektronen, über welche hierbei gemittelt wurde.

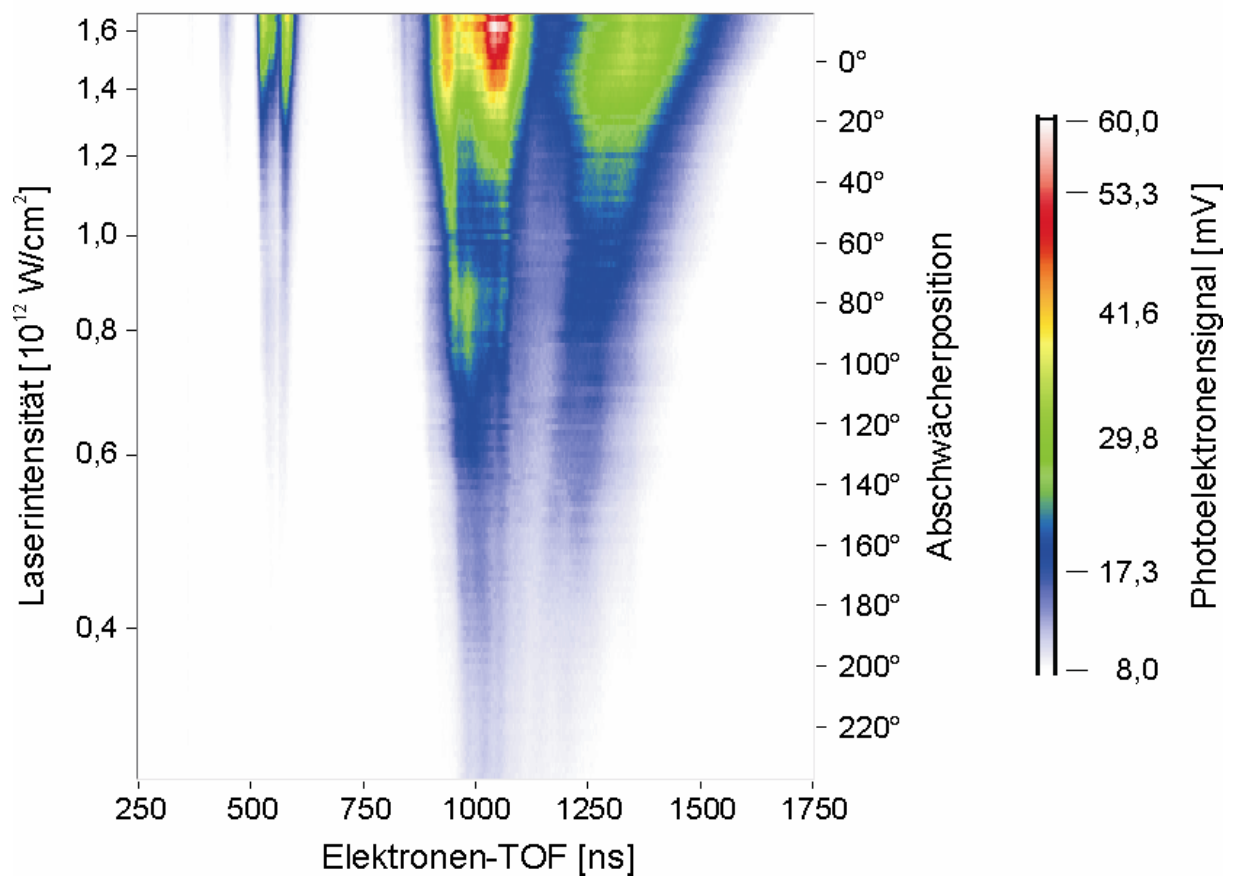


Abbildung 5.8: Flugzeitelektronenspektren, welche bei einem gleichbleibenden Pulsabstand  $t = 98,6$  fs aufgenommen wurden. Mit Hilfe eines zirkular verstellbaren Abschwächers wurde die Laserintensität variiert. Im Plot sind rechts die Signale der Threshold Elektronen zu sehen, während links ATI Signale erster wie auch zweiter Ordnung zu erkennen sind.

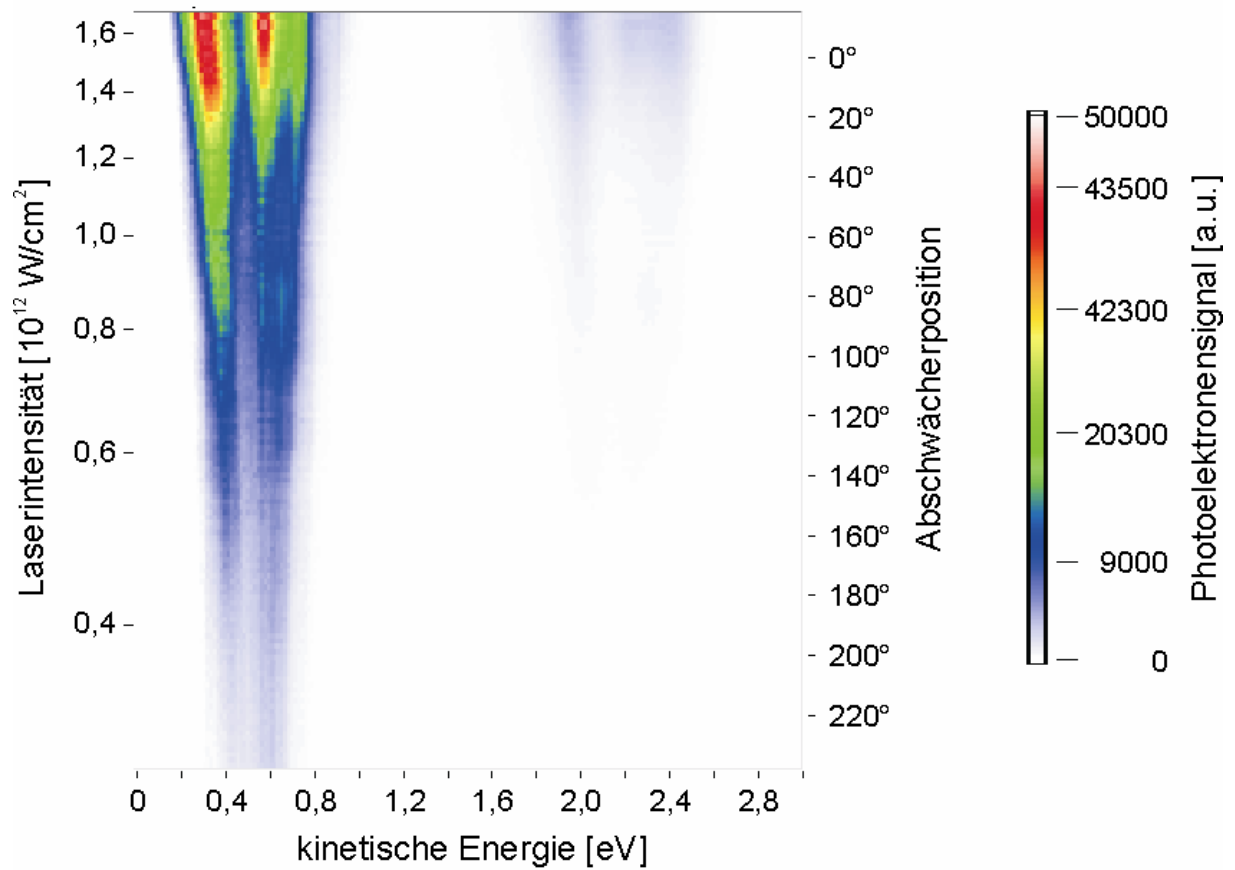


Abbildung 5.9: In kinetische Energien umkalibriertes Flugzeitelektronenspektren im Bereich 0 eV bis 3 eV Zu sehen ist der Threshold wie auch das Signal der ATI Elektronen 1. Ordnung.

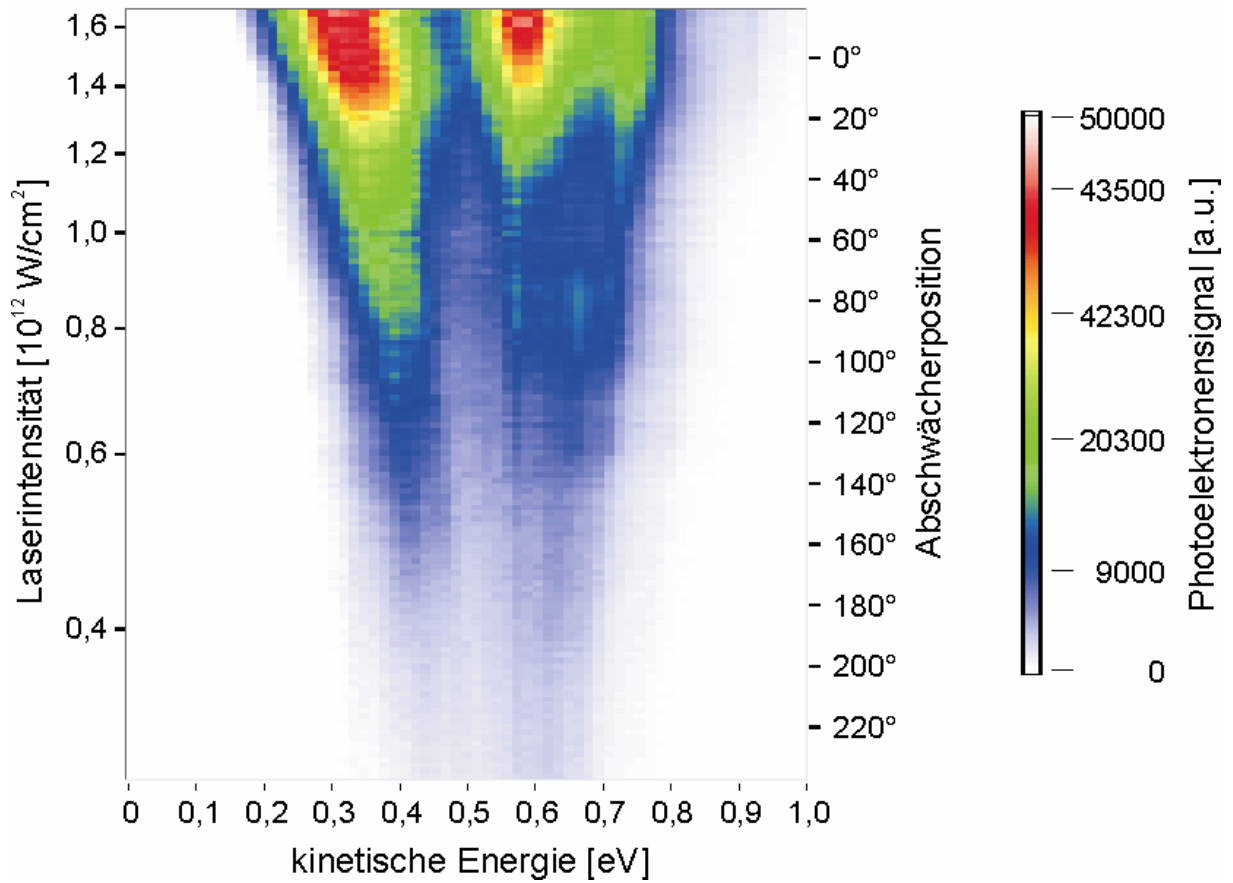


Abbildung 5.10: Teilausschnitt aus Abbildung 5.9 im Bereich 0 eV bis 1 eV (Threshold Elektronen).

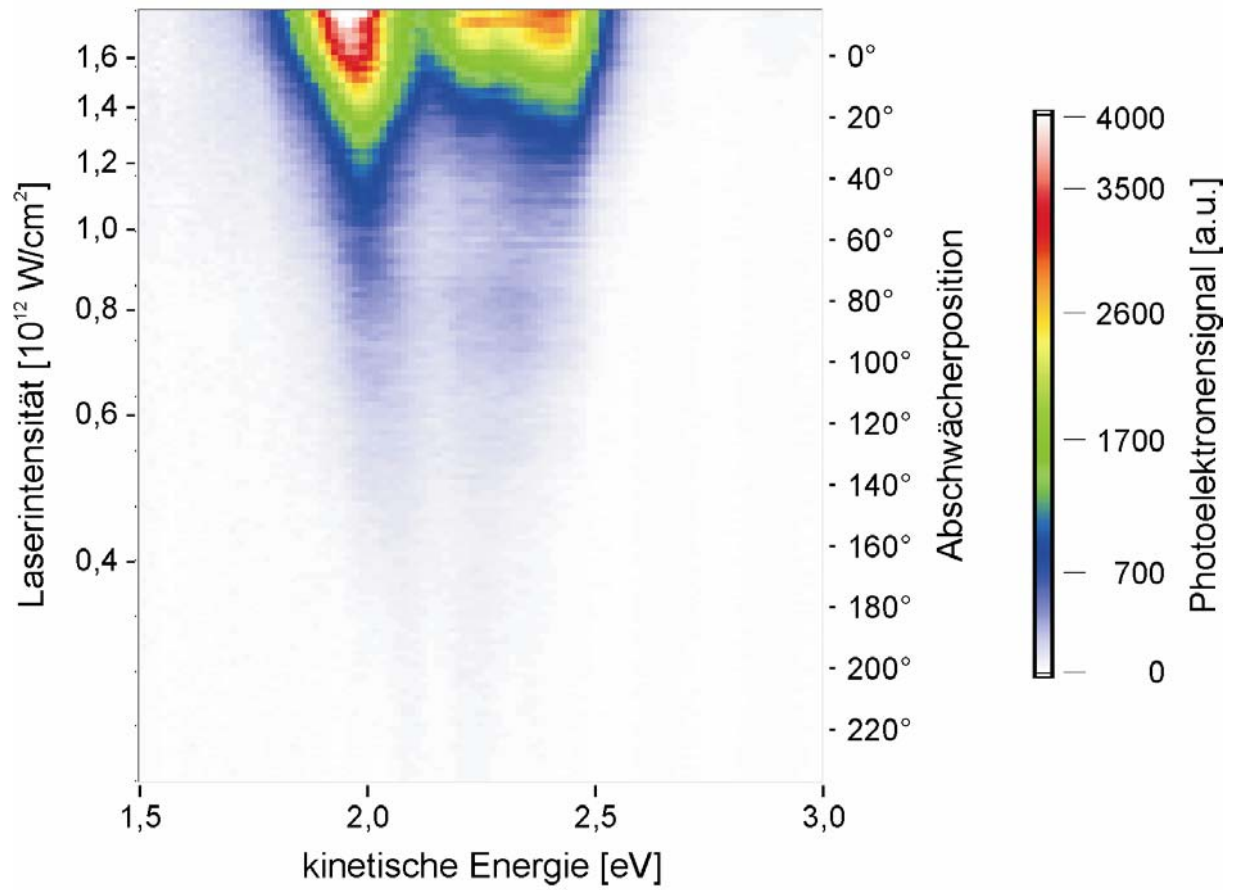


Abbildung 5.11: Teilausschnitt aus Abbildung 5.9 im Bereich 1,5 eV bis 3 eV (1. ATI).

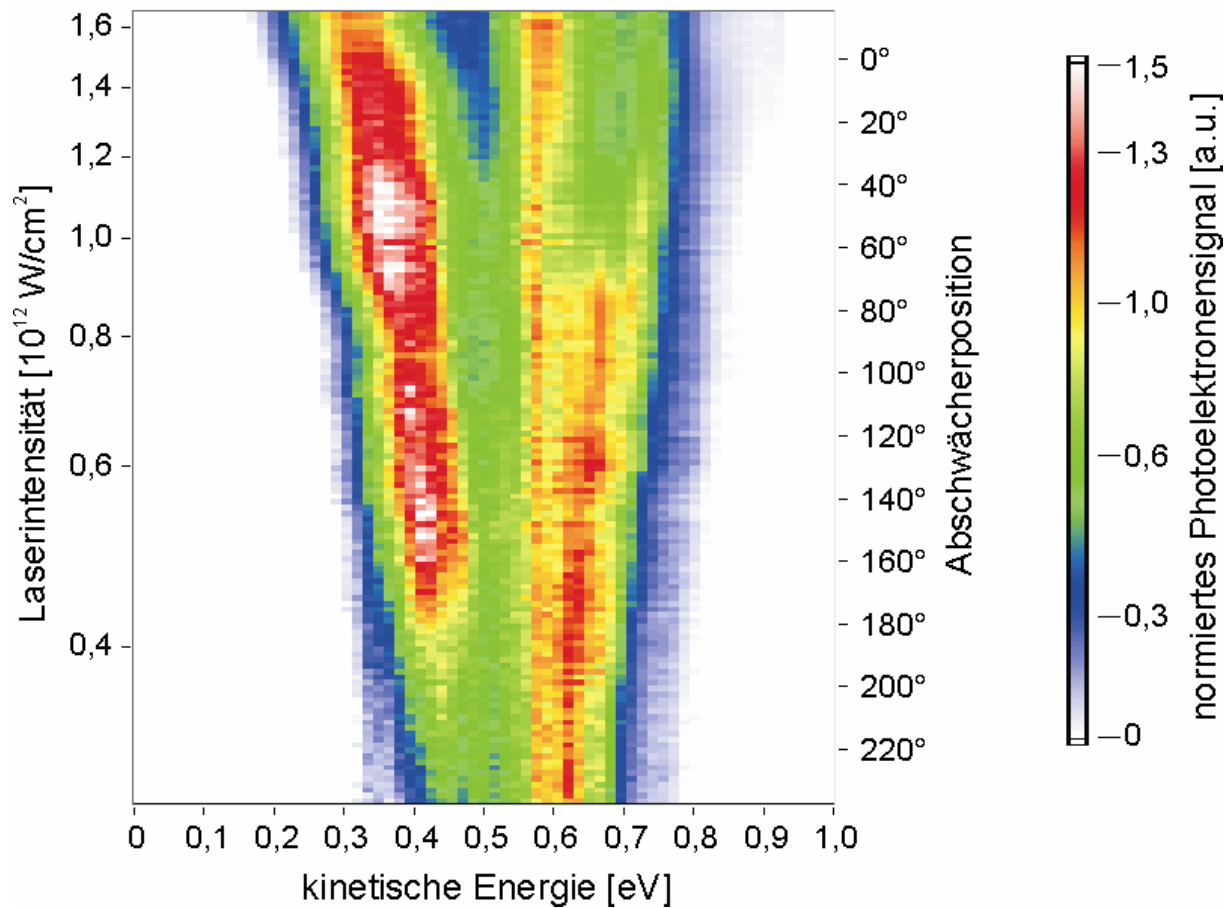


Abbildung 5.12: Für diese Auftragung wurden die einzelnen Photoelektronenspektren (bezüglich ihrer schnellen Photoelektronen: 0,6 eV) normalisiert. Sehr gut zu erkennen ist, wie das Signal der langsamen Autler-Townes Komponente mit sich verändernder Laserintensität oszilliert. Auch das Signal der schnellen Komponente verändert sich mit sich verändernder Laserintensität.



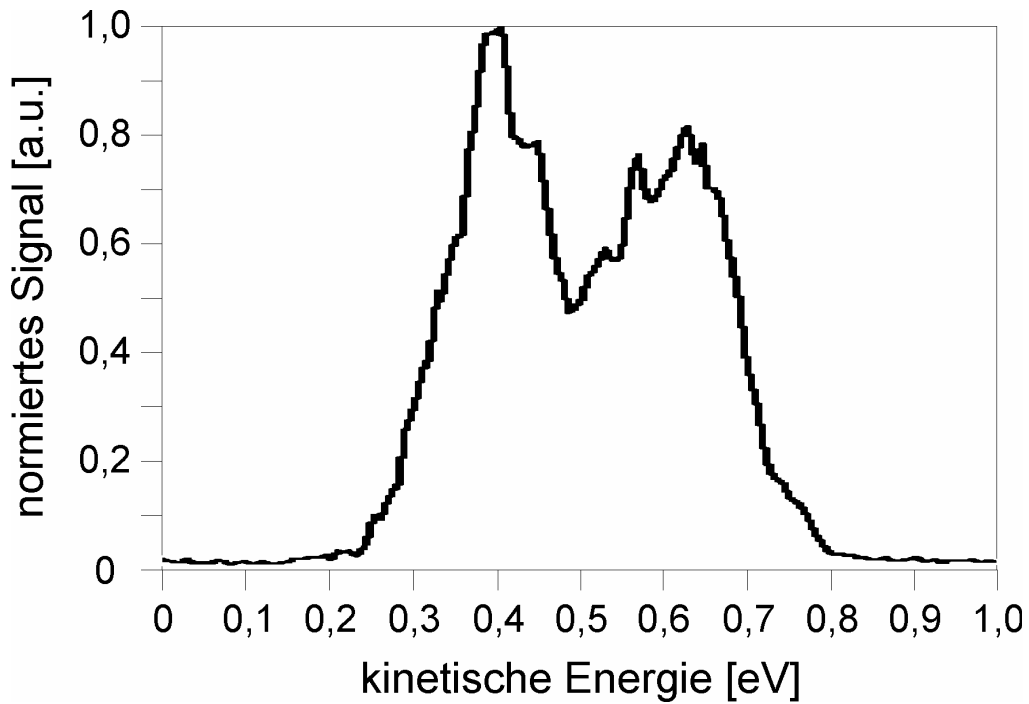


Abbildung 5.13: Der in Abbildung 5.12 geplotteden Messserie entnommenes Photoelektronenspektrum für die Laserintensität  $I_0 = 0,54 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Das Signal der langsamen Photoelektronen befindet sich in einem Maximum, das Signal der schnellen Elektronen in einem Minimum.

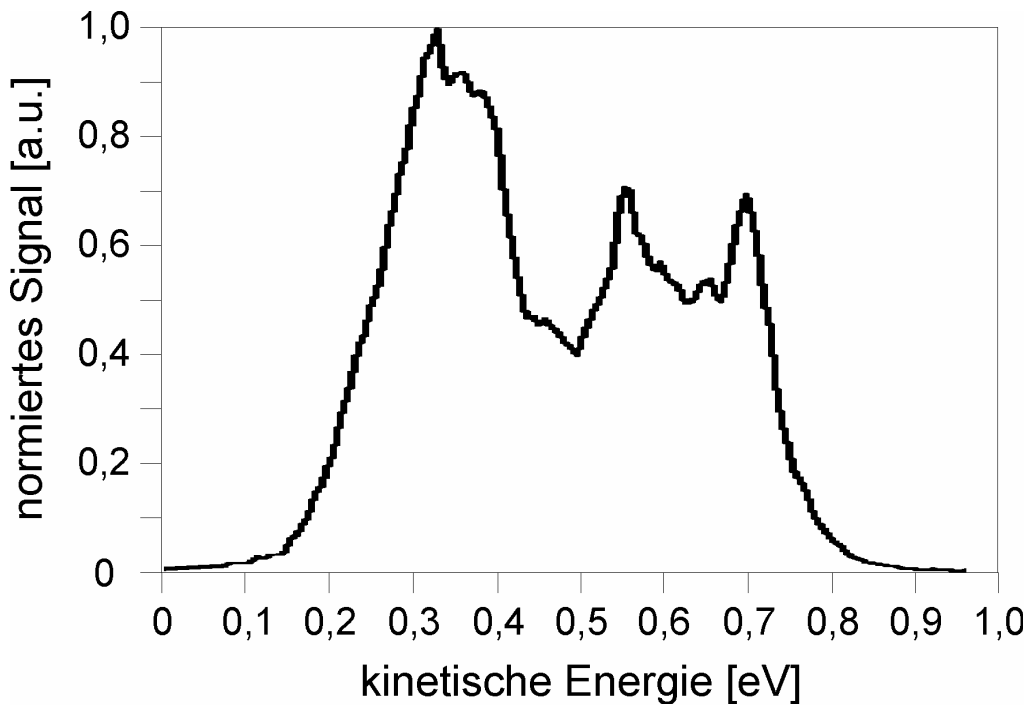


Abbildung 5.14: Photoelektronenspektrum für die Laserintensität  $I_2 = 2 I_0 = 1,08 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Das Signal der langsamen Photoelektronen befindet sich erneut in einem Maximum, das Signal der schnellen Elektronen erneut in einem Minimum.

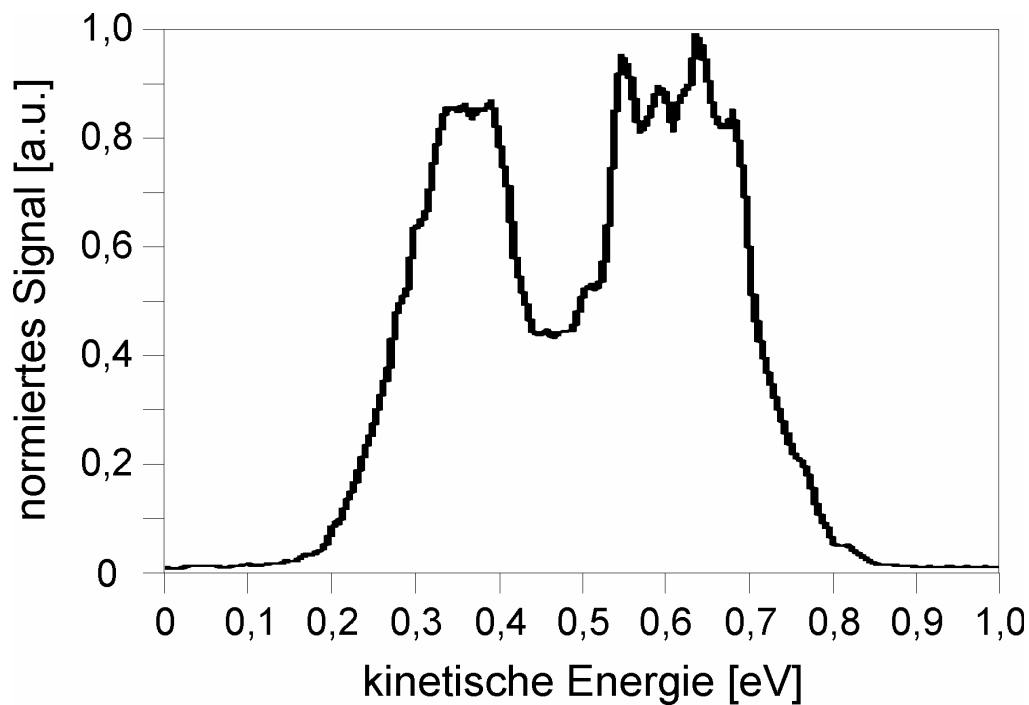


Abbildung 5.15: Photoelektronenspektrum für die Laserintensität  $I_1 = 1,5 I_0 = 0,81 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Das Signal der langsamen Photoelektronen befindet sich in einem Minimum, das Signal der schnellen Elektronen in einem Maximum.

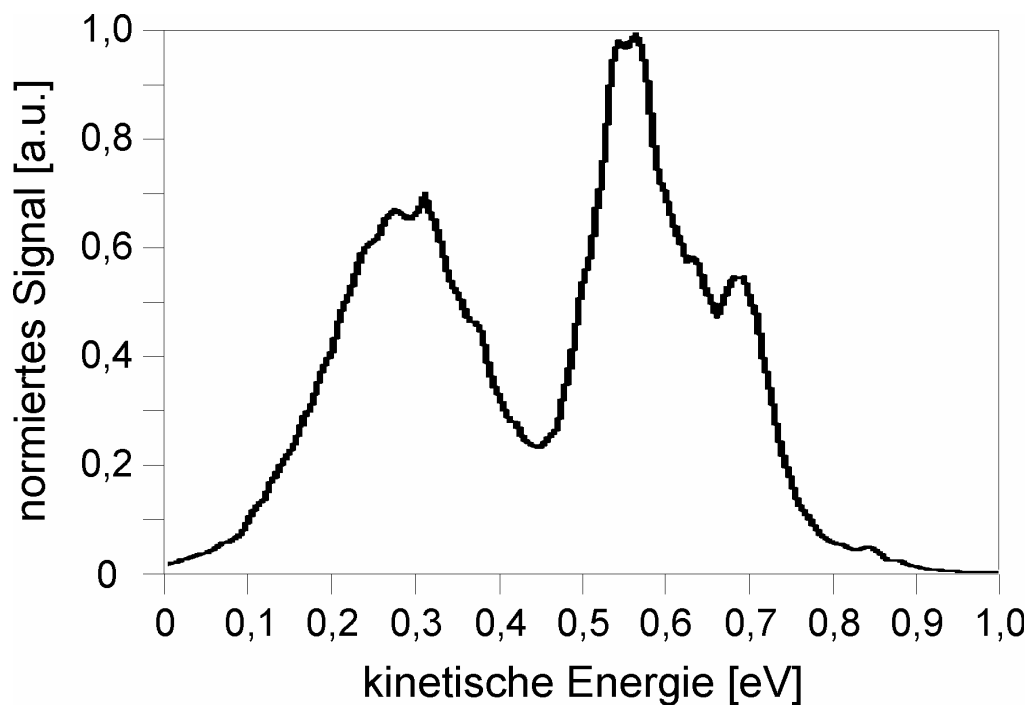


Abbildung 5.16: Photoelektronenspektrum für die Laserintensität  $I_3 = 3 I_0 = 1,62 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ . Das Signal der langsamen Photoelektronen befindet sich erneut in einem Minimum, das Signal der schnellen Elektronen erneut in einem Maximum.

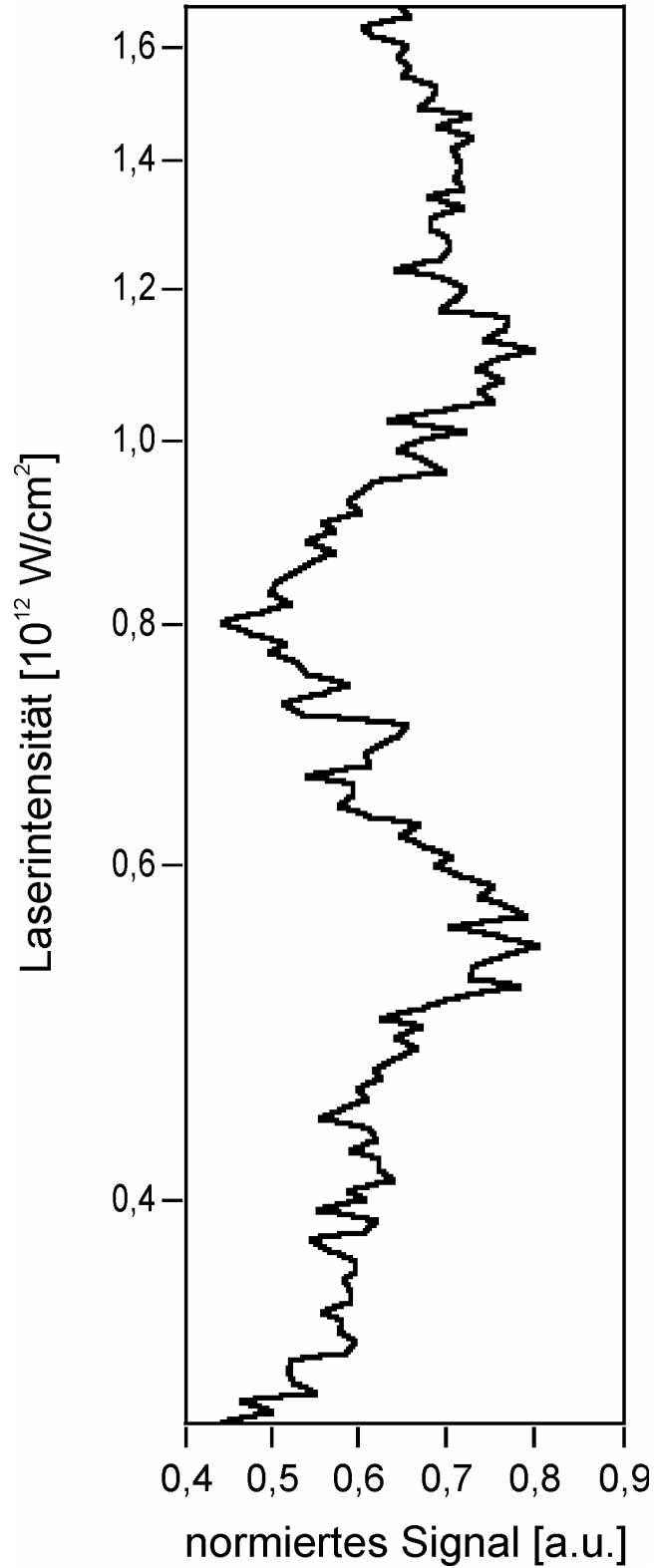


Abbildung 5.17: Schnitt durch den in Abbildung 5.12 zu sehenden Plot entlang der Laserintensitätsachse.

Gemittelt wurde dabei über den Bereich der langsamen Elektronen. Zu sehen ist, wie das Signal bei sich verändernder Laserintensität oszilliert: Bei  $I_0 = 0,54 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  und bei  $I_2 = 1,08 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  befindet sich das Signal der langsamen Elektronen im Maximum, bei  $I_1 = 0,81 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  und bei  $I_3 = 1,62 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$  befindet es sich in einem Minimum.

## 5.5 Diskussion der Messergebnisse

Um den Kontrollmechanismus, der den in Abschnitt 5.4 gezeigten Experimenten zugrunde liegt, erklären zu können, ist es sinnvoll sich die Bevölkerungsdynamik  $c_b(t)$  des Kalium 4p Zustandes anzusehen: Die Intensität des ersten Laserpulses der Doppelpulssequenz ist groß genug um Rabioszillationen bzw. die Autler-Townes-Aufspaltung zu verursachen, welche in den Photoelektronenspektren zu beobachten sind. Wie in Kapitel 4 gezeigt, erzeugen zwei gegeneinander zeitverzögerte und identische Laserpulse Fringes im Photoelektronenspektrum. Die beobachtete Kontrolle der Interferenzen in der Autler-Townes-Dublette erreicht man, wenn die Intensität des ersten Laserpulses groß genug ist um eine Population von  $|c_b(T)|^2 = 0,5$  zu erreichen, also wenn  $\theta = (n + 0,5) \pi$ . Bezüglich Gleichung 5.2 wird diese Bedingung realisiert, wenn  $c_b(T) = \pm i/\sqrt{2}$  (siehe Abbildung 5.18:  $c_b = +i/\sqrt{2}$  für  $\theta = 5,5 \pi$  und  $c_b = -i/\sqrt{2}$  für  $\theta = 6,5 \pi$ ). Die zeitliche Entwicklung ( $t > T$ ) von  $c_b$  hängt von der Phase  $\omega_0 \tau$  des zweiten Laserpulses ab. Unter Beachtung der Symmetrie von  $\theta$  sowie von  $\omega_0 \tau$ , wird für die Diskussion der Ergebnisse die Gleichung  $f = \exp [i(\theta + \omega_0 \tau)]$  verwendet.

Wenn  $\omega_0 \tau$  ein ganzzahliges vielfaches von  $\pi$  ist und folglich  $f = \pm i$ , entwickelt sich die Population während des zweiten Laserpulses in selber Weise, wie es während des ersten Pulses geschehen ist: Dies bedeutet, dass  $c_b$  imaginär bleibt und beide Autler-Townes-Komponenten Fringes aufweisen (siehe Abbildung 5.18 (b), (d), (f) und (h)). Die zeitliche Entwicklung der Bevölkerung kann symmetrisch sein, wenn  $T$  den Zustand  $|b\rangle$  unbevölkert lässt (siehe Abbildung 5.18 (b) und (f)), sie kann asymmetrisch sein, wenn ein hundertprozentiger Populationstransfer stattfindet (siehe Abbildung 5.18 (b) und (f)). Im beschriebenen Experiment sind diese beiden Fälle nicht aufgezeigt.

Wenn  $\omega_0 \tau$  ein halbzahliges vielfaches von  $\pi$  ist und folglich  $f = \pm 1$ , sind je nach Vorzeichen von  $f$  zwei unterschiedliche Fälle zu unterscheiden: Die Kalkulationen in der Abbildung 5.18 und die Messergebnis in den Abbildungen 5.5, 5.13 und 5.14 (für  $f = -1$ ), sowie 5.6, 5.15 und 5.16 (für  $f = +1$ ) zeigen dies. Beobachtet wird eine Population, wo  $|c_b(t)|^2$  vom zweiten Laserpuls unbeeinflusst bleibt und nur die mechanische Phase sich verändert. Dieses Ergebnis kann durch einen Kreis in der komplexen Ebene dargestellt werden (siehe mittlere Spalte in Abbildung 5.18). Durch den zweiten Laserpuls erhält der angeregte Zustand somit also zusätzliche quantenmechanische Phase. Auf Grund der Gleichung 5.6, welche die Photoionisation im schwachen Feld beschreibt, kann die zusätzliche Phase als Frequenzshift des ionisierenden Feldes betrachtet werden. Die Frequenz des zweiten Laserpulses trägt nur zu Interferenzen in einer der beiden Autler-Townes-Komponenten bei. Wenn  $c_b$  im Uhrzeigersinn sich bewegt, also  $f = +1$  ist, werden Fringes bei den schnellen Photoelektronen beobachtet (siehe Abbildung 5.18 (c) und (e)), bewegt sich hingegen  $c_b$  gegen den Uhrzeigersinn, wobei  $f = -1$  ist, sind Fringes bei den langsamen Elektronen erkennbar (siehe Abbildung 5.18 (a) und (g)).

## 5.6 Zusammenfassung

In den diesem Kapitel zu Grunde liegenden Experiment gelang es kohärente Kontrolle an einem System im starken Laserfeld auszuüben. Darüber hinaus konnte die Zustandsbesetzung kontrolliert werden, wobei diese während des zweiten Laserpulses gleich blieb. Die quantenmechanische Phase konnte kontrolliert werden, ohne dass das Spektrum der Pulssequenz verändert werden musste. Der Kontrollmechanismus beruht auf der Wechselwirkung zwischen der quantenmechanischen Phase, welche von der Intensität des ersten Laserpulses bestimmt wird, und der durch den Pulsabstand bestimmten Phase des

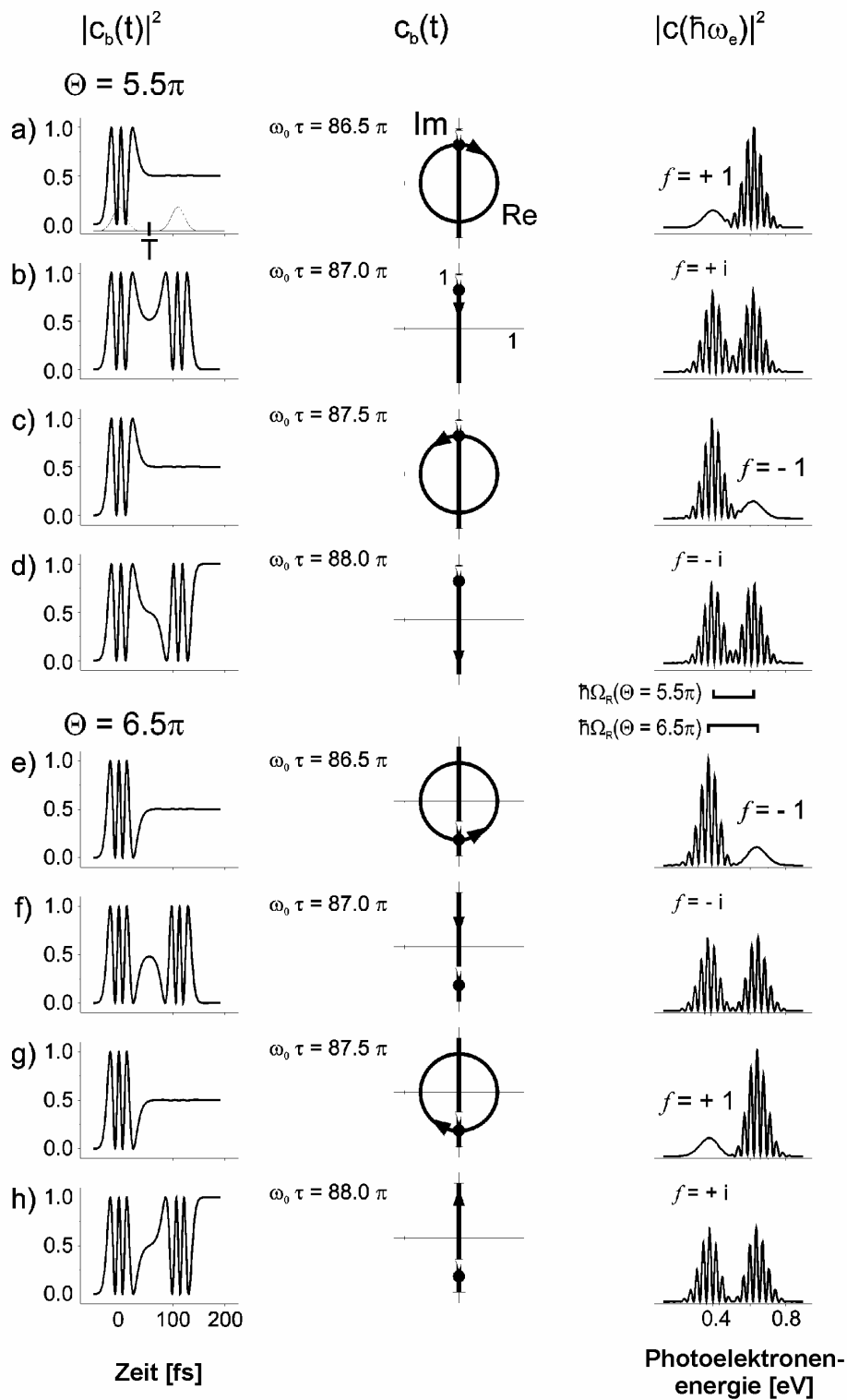


Abbildung 5.18: Ergebnisse von Kalkulationen [104] für die Photoionisation von Kaliumatomen mittels resonanter Zweipulsanregung: Die linke Spalte zeigt die Zeitabhängigkeit der Population  $|c_b(t)|^2$ , parametrische Plots von  $c_b(t)$  in der komplexen Ebene sind in der mittleren Spalte aufgetragen, korrespondierende Photoelektronenspektren sieht man in der rechten Spalte. Die kalkulierten Daten wurden für die beiden Pulsbereiche  $\theta = 5,5\pi$  und  $\theta = 6,5\pi$  aufgetragen. Dabei wurden jeweils vier verschiedene zeitliche Pulsabstände  $\tau$  verwendet. Mit der Wahl eines größeren Pulsbereiches  $\theta$  ist eine Verbreiterung der Autler-Townes-Aufspaltung  $\hbar\Omega_R$  zu erkennen. Zum Vergleich ist im Plot oben links die Intensitätsverteilung der Laserdoppelpulssequenz  $\varepsilon(t)^2$  eingefügt.

zweiten Pulses. Diese Wechselwirkung der Phasen konnte am Autler-Townes-Doublet durch Variation des Pulsabstandes, wie auch durch Variation der Laserintensität beobachtet werden. Mit Hilfe dieses Photoionisationsexperimentes konnte die zeitliche Entwicklung der quantenmechanischen Amplitude des angeregten Zustandes während des Pulses direkt verfolgt werden. Bei geeigneten Anregungsbedingungen führen sowohl Variation des Pulsabstandes, als auch der Laserintensität zum gleichen Verhalten der einzelnen Autler-Townes-Komponenten. Die Äquivalenz von Pulsabstand und Laserintensität wird durch die Gleichung  $f = \exp [i(\theta + \omega_0 \tau)]$  verdeutlicht.

Das hier besprochene Experiment lieferte den Ausgangspunkt für viele weitere Experimente, welche in verschiedenen Publikationen [22, 107–111] besprochen wurden.

## Kapitel 6

# Intensitätsabhängigkeit von Photoelektronenspektren: Vom schwachen zum starken Feld

### 6.1 Einleitung

Nachdem wir uns nun explizit Experimenten im schwachen (Kapitel 4) wie auch im starken Feld (Kapitel 5) zugewandt haben, soll an dieser Stelle ein Experiment beschrieben werden, welches uns von einem Regime ins andere führt und darüber hinaus.

Im Gegensatz zu den voran beschriebenen Experimenten haben wir es jetzt nicht mit einem Doppelpulsexperiment zu tun. Mit lediglich einem Puls wird aus dem  $4s$  Grundzustand der  $4p$  Zustand angeregt und unverzüglich ionisiert werden. Die Anregung erfolgt dabei resonant. Im Gegensatz zum nicht resonanten Fall [112-114] ist innerhalb der Physik starker Laserfelder die resonante Anregung bislang nur wenig untersucht worden.

In den gemessenen Photoelektronenspektren wird uns wieder die typische Autler-Townes-Doublet begegnen. In den aufgenommenen Referenzmessungen werden wir ein genaues Blick auf die Entwicklung von ihr bei zunehmender Laserenergie werfen. Dabei ist neben der Breite der Aufspaltung ebenso die Entwicklung der Signalintensität von Interesse. Mit Hilfe von vier Parametern wird diese charakterisiert werden. Gegenstand der Messungen ist sowohl das Photoelektronensignal des Thresholds als auch das der Above-Threshold-Ionisation (ATI).

### 6.2 Experiment

Gegenstand des Experiments ist die Multiphotonenionisation von Kalium mittels unmodulierter Femtosekundenlaserpulse, welche mit Hilfe eines 1 kHz Titan-Saphir-Lasersystems generiert wurden und bei einer Wellenlänge von 785 nm eine Länge von 27 fs (FWHM) besitzen. Mit Hilfe einer Linse mit der Wellenlänge  $f = 300$  mm wurde der Laser in das Wechselwirkungsgebiet eingekoppelt. Unter Variation der Laserintensität wurden Photoelektronenspektren aufgenommen.

Im Gegensatz zu den beiden voran beschriebenen Experimenten wurden in diesem

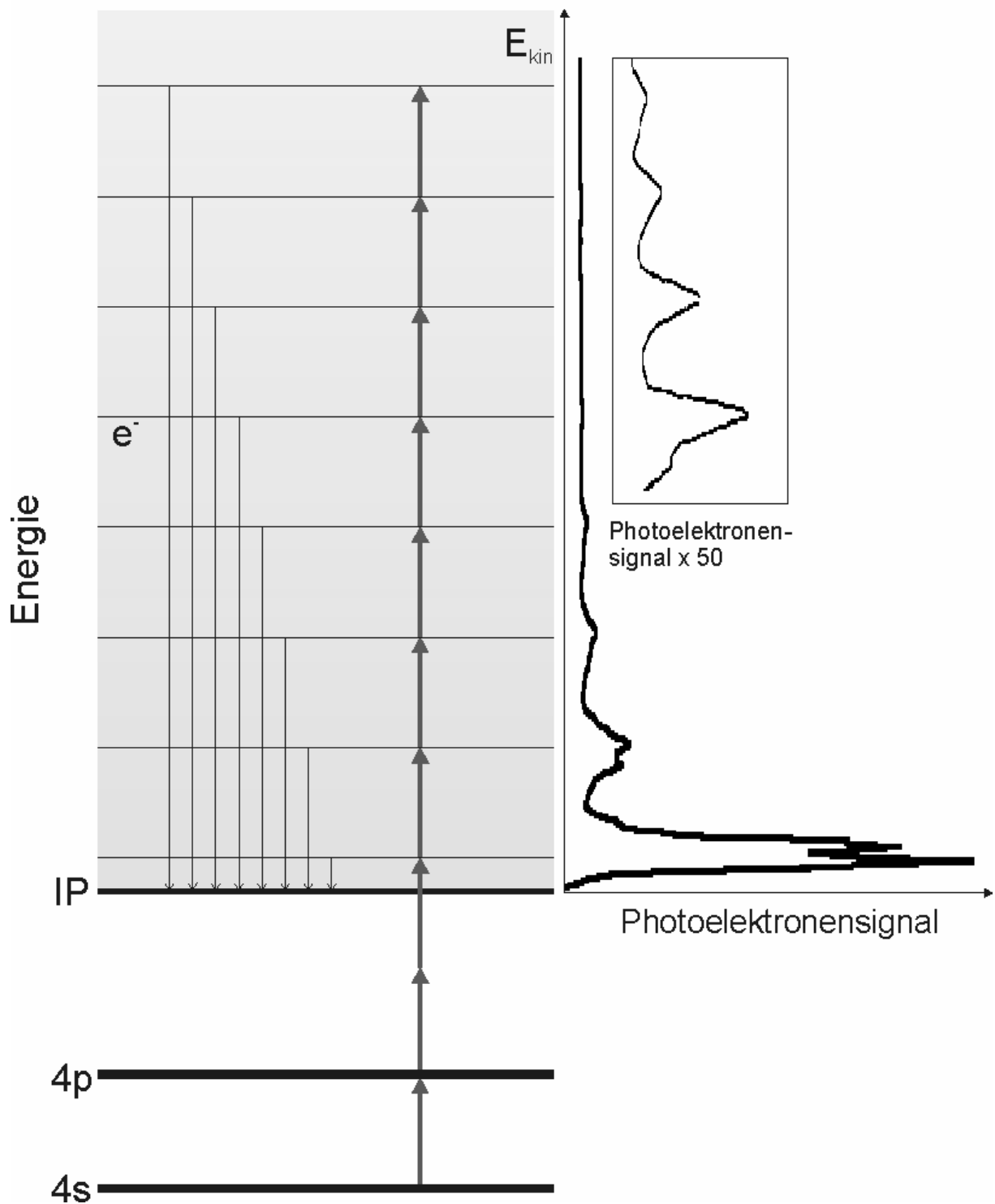


Abbildung 6.1: Maßstabgerechtes Anregungsschema: Mit Hilfe eines 785 nm Femtosekundenlaserpulses (FWHM 27 fs), wird vom 4s Grundzustand hin zum 4p Zustand angeregt. Mit Hilfe des gleichen Pulses wird simultan ionisiert. Das Threshold- wie auch die Above-Threshold-Ionisation (ATI) Signale werden mit Hilfe einer magnetischen Flasche (Time-Of-Flight) aufgenommen.



Experiment die Kaliumatome nicht mit Hilfe eines Überschallatomstrahles generiert sondern mit Hilfe von Dispensern. Im Anhang A.4 wird die Generierung von Atomen mittels Alkalimetalldispensern detailliert beschrieben. Ein großer Vorteil der Dispensertechnik ist ihre flexible Handhabung, bei welcher lange Vor- und Nachlaufzeiten, wie sie bei der Ofenheizung wie auch der Ofenabkühlung nötig sind, entfallen. In diesen Experiment wurden zwei in Reihe geschaltete Kaliumdispenser (SAES Getters K/NF/4,5/25/FT10+10) mit einem Strom von 4,5 A betrieben. Der Druck in der Hauptkammer betrug während des Experiments  $2,5 \cdot 10^{-7}$  mbar.

Senkrecht zum eingekoppelten Laserstrahl liegt die Achse der magnetischen Flasche. In dieser wurden die den photoionisierten Kaliumatomen entstammenden Elektronen mit Hilfe einer Gridspannung  $U_g = 2,0$  V nachbeschleunigt und zeitaufgelöst detektiert (time-of-flight TOF). Die Spannung an den Polschuhblenden betrug  $U_{pp} = -2,0$  V. Durch die Verwendung dieses  $U_g$ - $U_{pp}$ -Spannungspaares wird bei guter Auflösung eine ausreichende Photolektronenausbeute garantiert.

Mit Hilfe eines motorgesteuerten verstellbaren Abschwächers konnte im Experiment die Laserenergie  $E_{Laser}$  im Bereich von 0,1  $\mu$ J bis 11,5  $\mu$ J variiert werden. Mit Hilfe der Gleichung

$$I = \frac{E_{Laser}}{\pi \omega_0^2 \Delta t} \quad (6.1),$$

in welcher  $\omega_0 = 3 \cdot 10^{-5}$  m für den Strahltaillenradius (bestimmt durch eine Strahlprofilmessung mit Hilfe einer Klinge) und  $\Delta t$  für die Pulslänge steht, können die

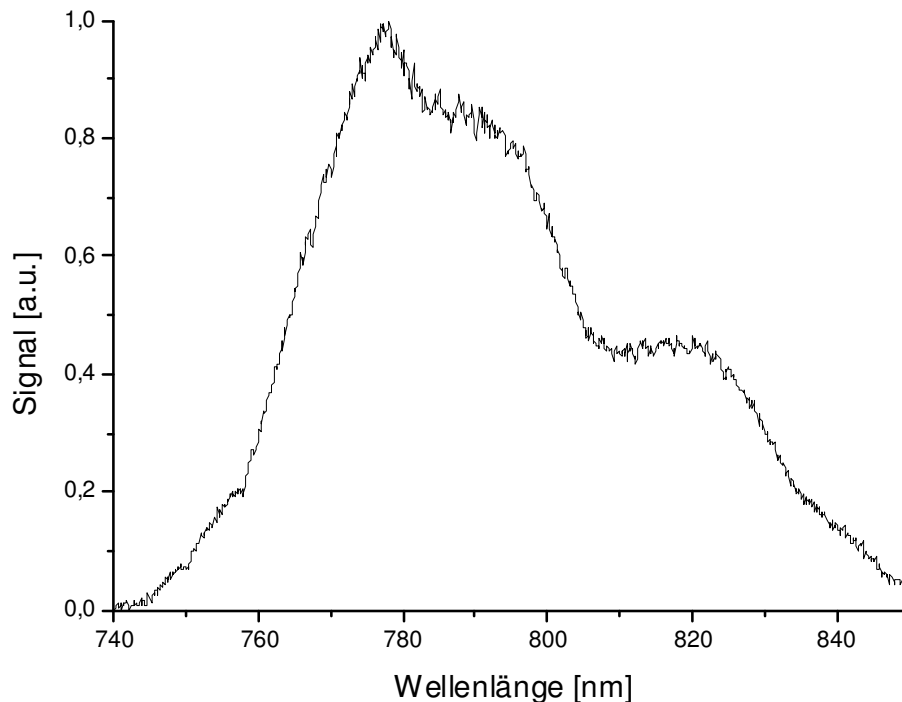


Abbildung 6.2: Laserspektrum: Die Zentralwellenlänge beträgt 785 nm.

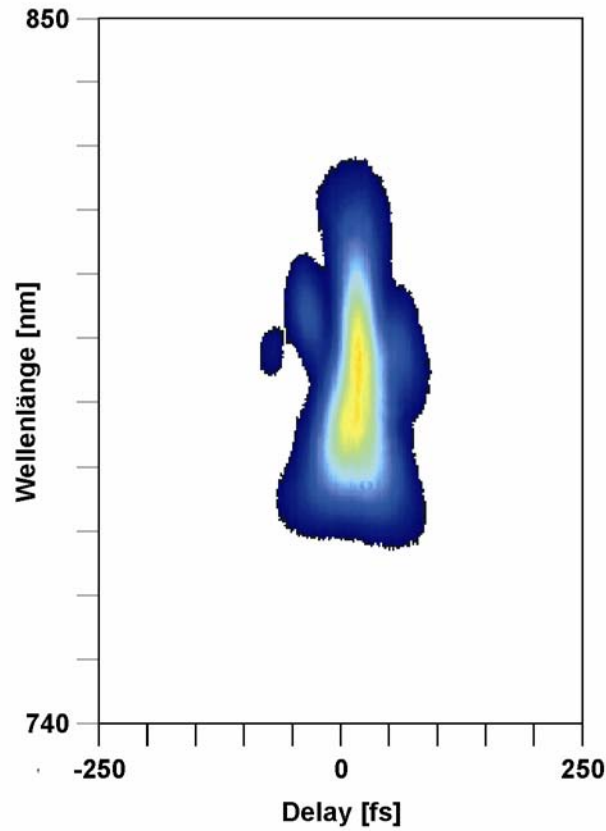


Abbildung 6.3: GRENOUILLE eines Laserpulses. Die Pulsbreite wird mit 28 fs angegeben.

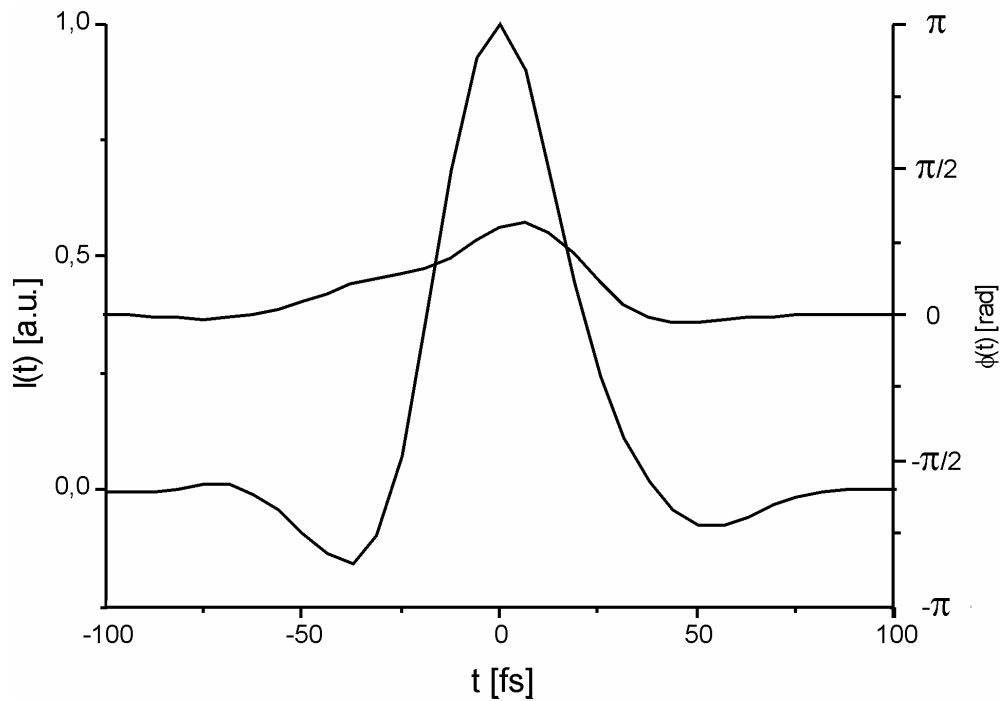


Abbildung 6.4: Rekonstruiertes Intensitätsprofil und zeitliche Phase des in Abbildung 6.3 gezeigten Laserpulses.

zugehörigen Laserintensitäten  $I$  ermittelt werden. Der erfasste Laserintensitätsbereich liegt folglich zwischen  $1 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  und  $1,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ . Zusätzlich wurde im Strahlengang eine  $\lambda/2$ -Platte verwendet, so dass die Kaliumatome mit linear polarisierten wie auch mit zirkular polarisierten Laserlicht angeregt und ionisiert werden konnten. In

Abbildung 6.2 ist das Spektrum eines Laserpulses zu sehen. Ein Spektrogramm, welches mit Hilfe eines GRENOUILLE (Grating-Eliminated Nononsense Observation Of Ultrafast Incident Laser-Light E-fields) aufgenommen wurde zeigt die Abbildung 6.3. Das rekonstruierte Intensitätsprofil hiervon ist in der Abbildung 6.4 zu sehen.

Wie in der Einleitung schon kurz erwähnt, wurde mittels einer Einphotonenanregung aus dem 4s Grundzustand in den 4p Zustand angeregt. Im gleichen Schritt wurde simultan ionisiert. Ein Anregungsschema befindet sich in Abbildung 6.1.

## 6.3 Experimentelle Ergebnisse

### 6.3.1 Datenaufnahme

#### 6.3.1.1 Time-Of-Flight-Spektren

Die Abbildungen 6.5 und 6.6 zeigen die mit linear polarisierten wie auch mit zirkular polarisierten Laserlicht aufgenommenen Scans in Falschfarben. Pro Scan wurden Spektren für 400 unterschiedliche Laserenergien aufgenommen. Pro verwendete Laserenergie wurde dabei über 1724 Aufnahmen gemittelt. Die Flugzeit der Elektronen (x-Achse) wurde gegen die mit Hilfe des Abschwächers variierte Laserenergie aufgetragen. Die Stärke des gemessenen Photoelektronensignals ist dabei mit Hilfe der Falschfarbe unterscheidbar. In den beiden geplotteten Messserien sind das jeweilige Threshold-Signal (bei ungefähr 1300 ns) wie auch viele Above-Threshold-Ionisation-Signale sichtbar. Die Abbildungen 6.7 bis 6.26 zeigen einzelne aus den Messserien entnommene Photoelektronenspektren. Abgebildet sind die Spektren für die Laserenergien 0,25  $\mu\text{J}$ , 0,4  $\mu\text{J}$ , 0,6  $\mu\text{J}$ , 1,0  $\mu\text{J}$ , 1,6  $\mu\text{J}$ , 2,5  $\mu\text{J}$ , 4,0  $\mu\text{J}$ , 6,9  $\mu\text{J}$  und 11,4  $\mu\text{J}$ . Die mit linear polarisiertem Laserlicht aufgenommenen Spektren (linke Spalte) sind dabei den mit zirkular polarisiertem Laserlicht gemessenen (rechte Spalte) gegenüber gestellt. Zusätzlich werden die beiden Spektren für die Laserenergie 11,4  $\mu\text{J}$  halblogarithmisch gezeigt (Abbildungen 6.25 und 6.26). Auf Grund der Messelektronik besaßen sämtliche Messungen einen Offset von  $-2 \text{ mV}$ , welcher für die Abbildungen 6.7 bis 6.26 abgezogen wurde. (Die Ursache dieses Offsets, wie auch die Ursache einer im Bereich von 1000 ns auftretenden Störung des Flugzeitelektronenspektrums konnte nicht geklärt werden.) Vergleicht man Spektren gleicher Laserenergie miteinander, so zählt man für hohe Laserenergien im Falle linearer Polarisation mehr ATI Signale als im Falle zirkularer Polarisation. Auf Grund der Autler-Townes-Aufspaltung des Thresholds bei linearer Polarisation zu Gunsten der schnelleren Komponente ist dort bei hohen Laserenergien (oberhalb 2,5  $\mu\text{J}$ ) das Signalmaximum oberhalb gleicher Messungen mit zirkularer Polarisation vorzufinden. Integriert man aber über das gesamte Signal besteht kein Unterschied bezüglich linearer und zirkularer Polarisation. Dies verändert sich drastisch unterhalb von 2,5  $\mu\text{J}$ . Für das Threshold-Signal wie auch für das Signal des 1. ATIs wird hier die Signalstärke mit Hilfe von zirkular polarisiertem Licht deutlich erhöht. Im Verlauf der Reduzierung der Laserenergie nimmt die Anzahl der ATI-Signale kontinuierlich ab, bis bei etwa 0,25  $\mu\text{J}$  lediglich noch das Threshold-Signal zusehen ist.

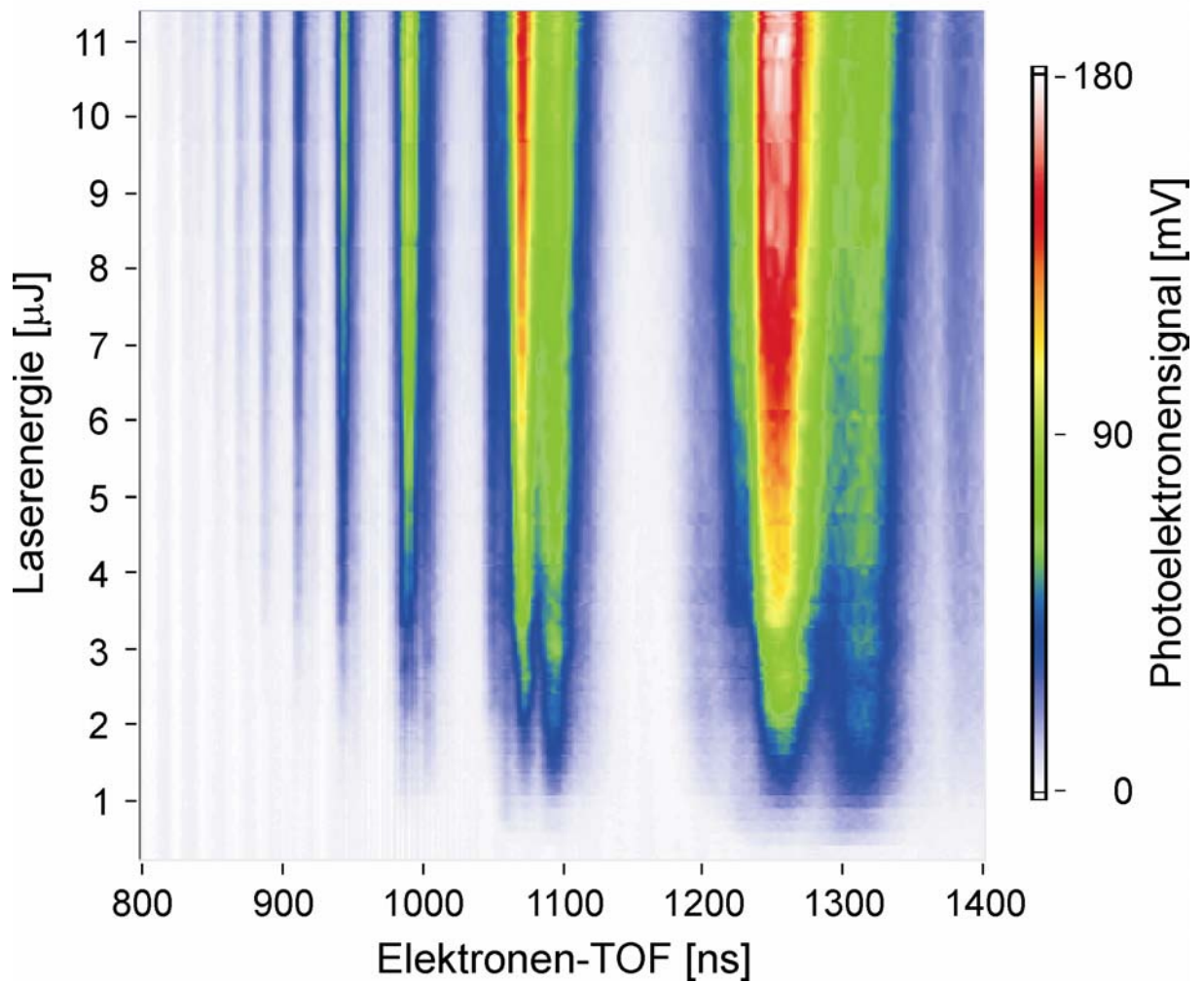


Abbildung 6.5: Time-Of-Flight-Scan mit linear polarisiertem Laserlicht in Falschfarbaufrtragung. Bei knapp 1300 ns ist das Threshold-Signal zu sehen. Links davon (mit kürzeren Flugzeiten) finden wir die Above-Threshold-Ionisation-Signale

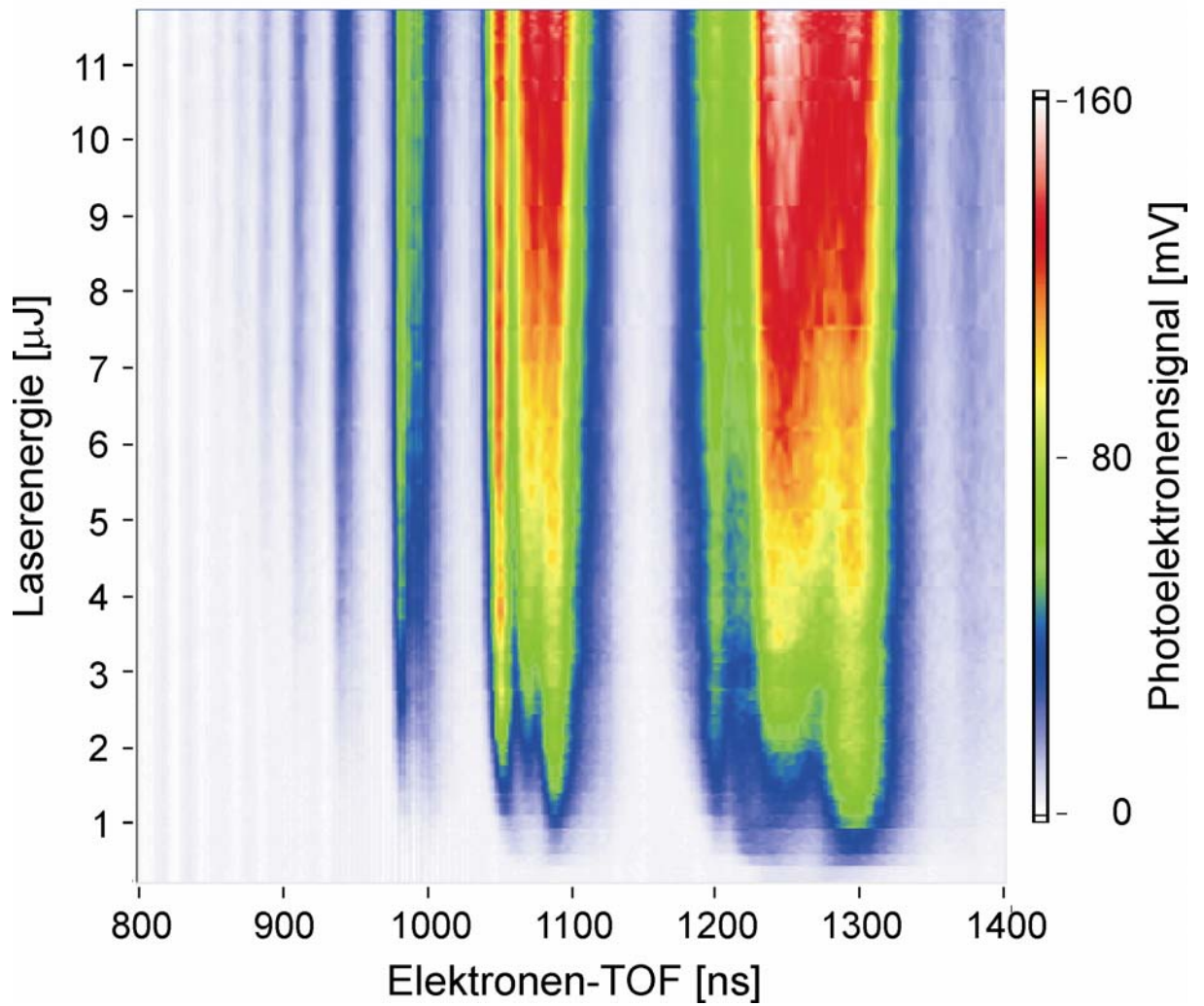


Abbildung 6.6: Time-Of-Flight-Scan mit zirkular polarisiertem Laserlicht. Das Photoelektronensignal ist wie in der voran gegangenen Abbildung farblich variiert. Wieder findet man links vom Threshold-Signal die Above-Threshold-Ionisation-Signale.

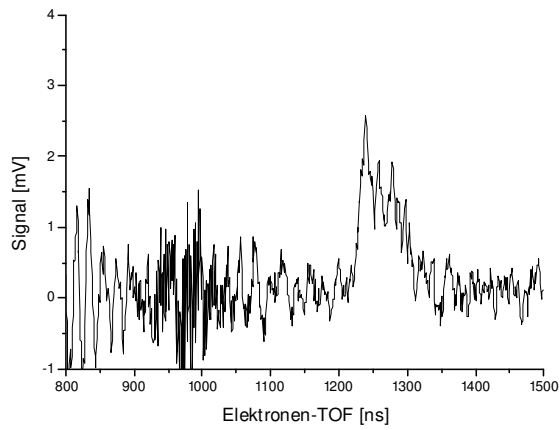


Abbildung 6.7: 0,25 μJ ( $3,0 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>), lineare Polarisation

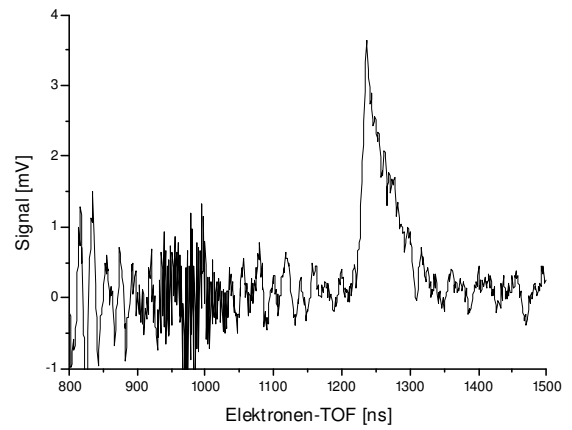


Abbildung 6.8: 0,25 μJ ( $3,0 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>), zirkulare Polarisation

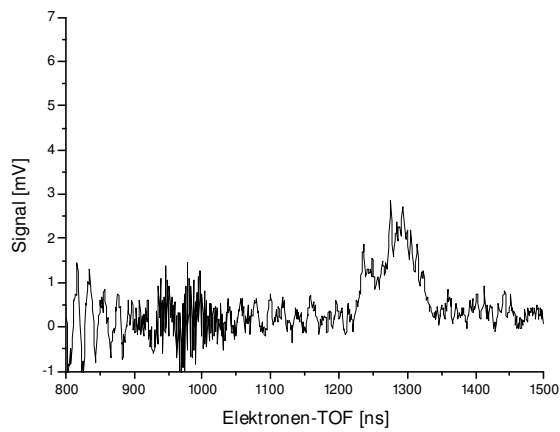


Abbildung 6.9: 0,4 μJ ( $4,8 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>), lineare Polarisation

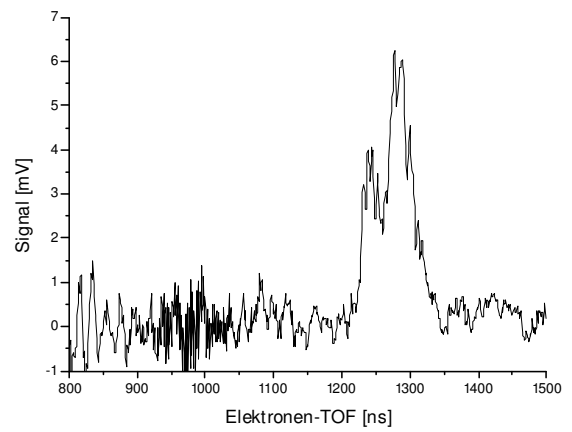


Abbildung 6.10: 0,4 μJ ( $4,8 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>), zirkulare Polarisation

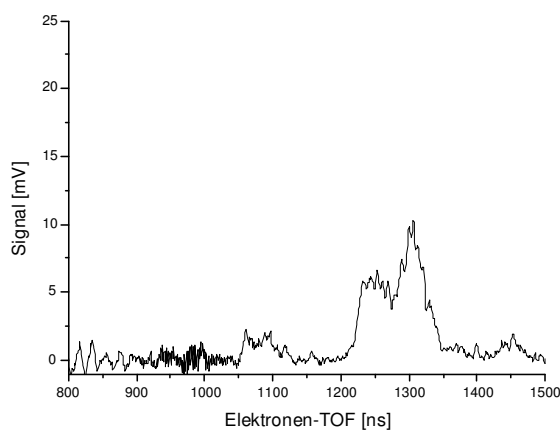


Abbildung 6.11: 0,6 μJ ( $7,2 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>), lineare Polarisation

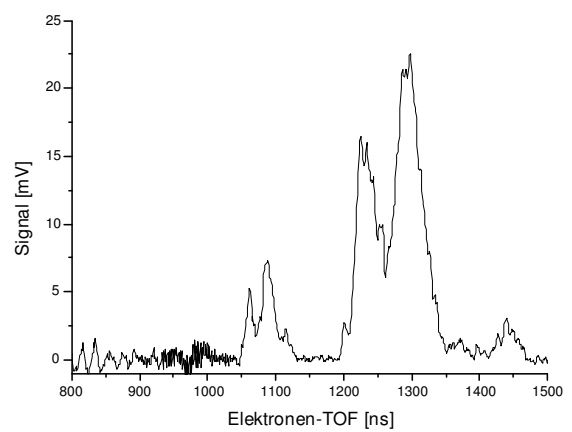


Abbildung 6.12: 0,6 μJ ( $7,2 \cdot 10^{11}$  W/cm<sup>2</sup>), zirkulare Polarisation

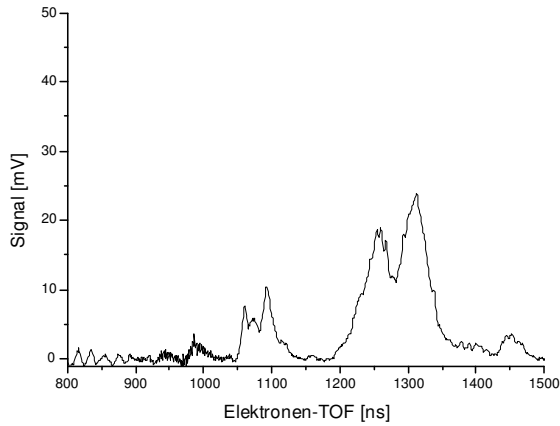


Abbildung 6.13:  $1,0 \mu\text{J}$  ( $1,2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

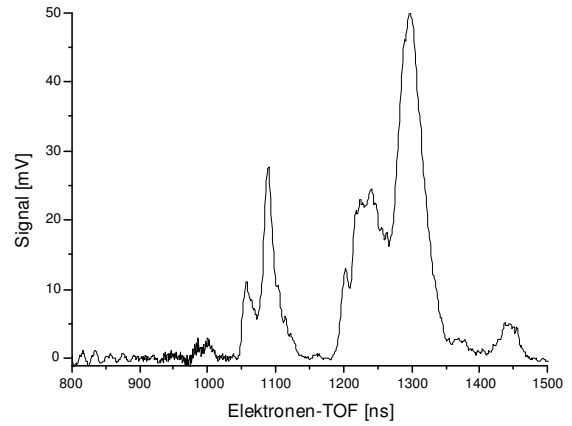


Abbildung 6.14:  $1,0 \mu\text{J}$  ( $1,2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

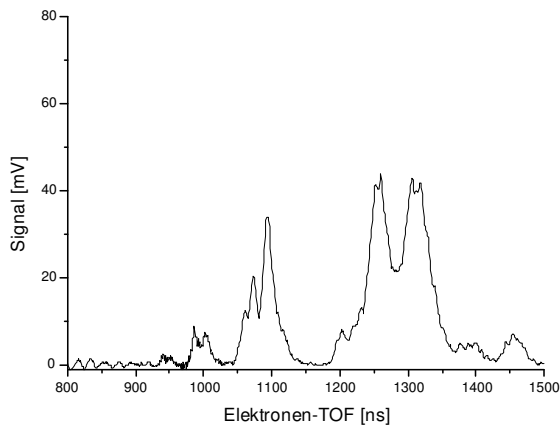


Abbildung 6.15:  $1,6 \mu\text{J}$  ( $1,9 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

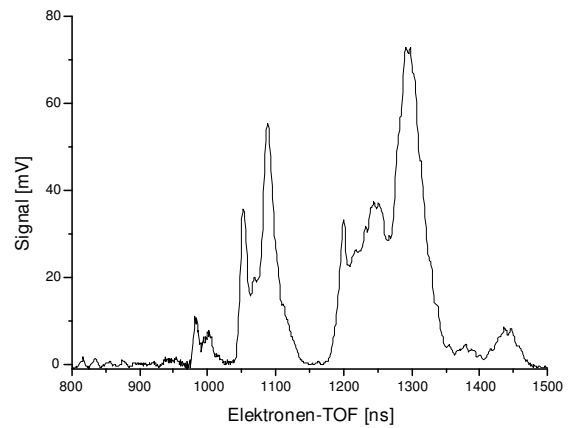


Abbildung 6.16:  $1,6 \mu\text{J}$  ( $1,9 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

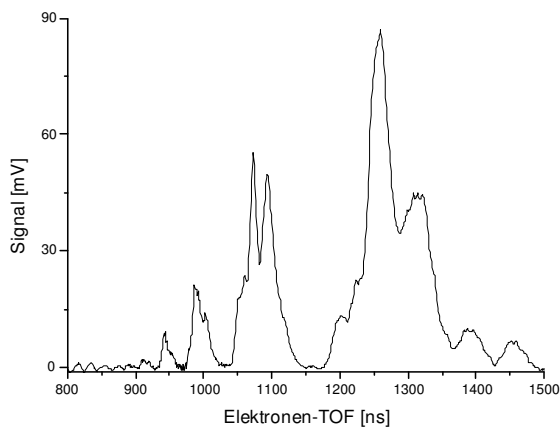


Abbildung 6.17:  $2,5 \mu\text{J}$  ( $3,0 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

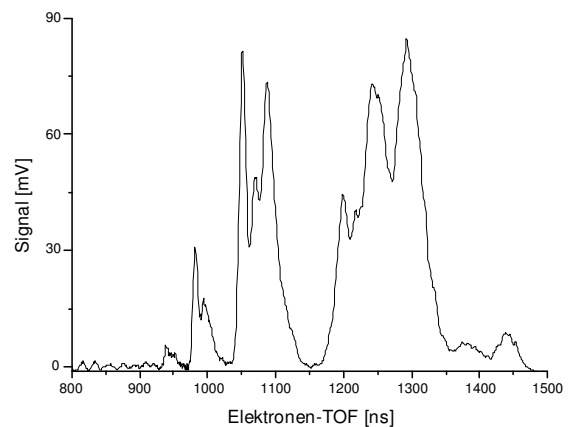


Abbildung 6.18:  $2,5 \mu\text{J}$  ( $3,0 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

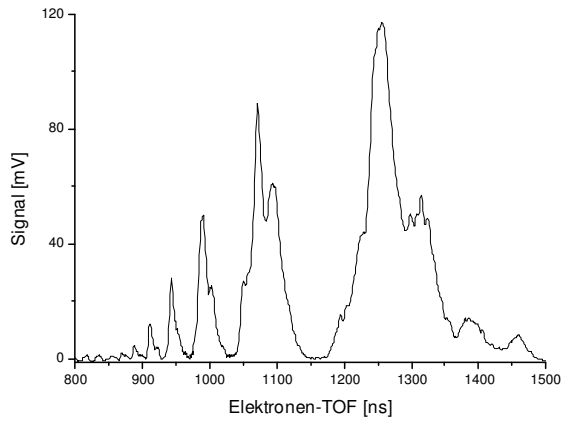


Abbildung 6.19:  $4,0 \mu\text{J}$  ( $4,8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

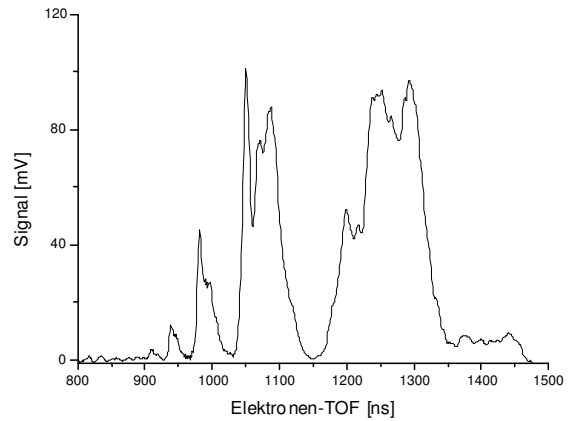


Abbildung 6.20:  $4,0 \mu\text{J}$  ( $4,8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

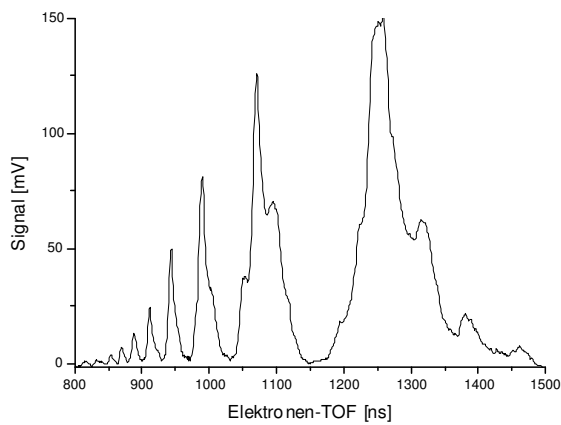


Abbildung 6.21:  $6,9 \mu\text{J}$  ( $8,3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

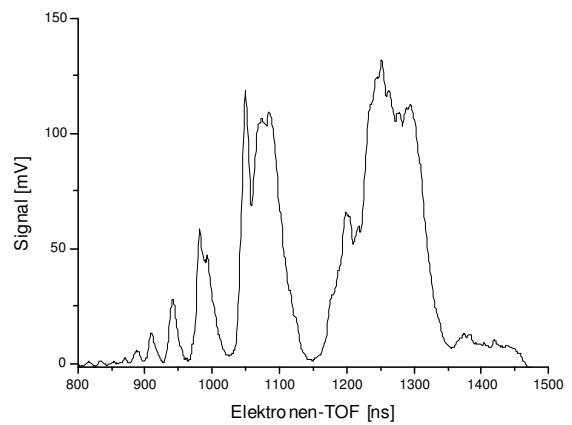


Abbildung 6.22:  $6,9 \mu\text{J}$  ( $8,3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

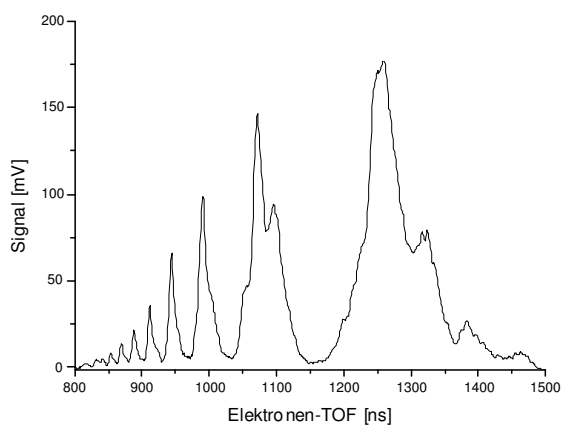


Abbildung 6.23:  $11,4 \mu\text{J}$  ( $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

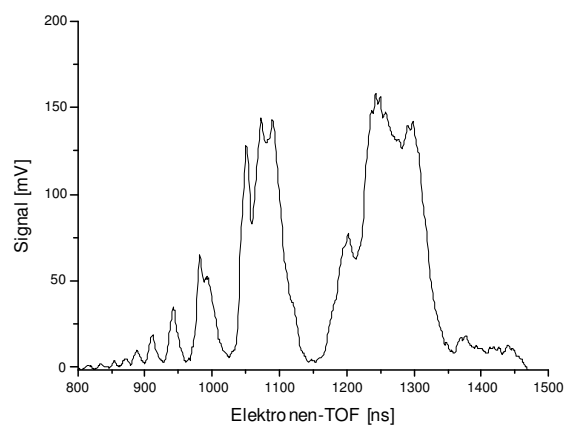


Abbildung 6.24:  $11,4 \mu\text{J}$  ( $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation



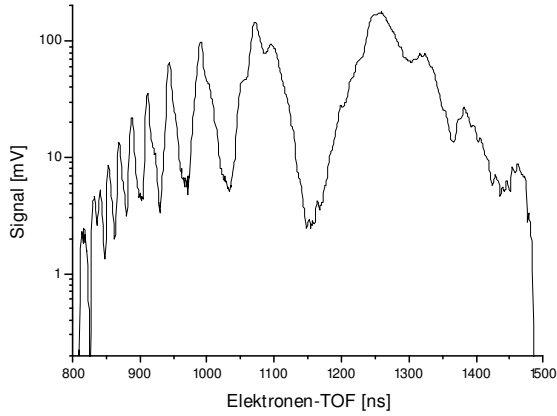


Abbildung 6.25: Gleiche Messung wie in Abbildung 6.7, das Signal ist allerdings logarithmisch aufgetragen.

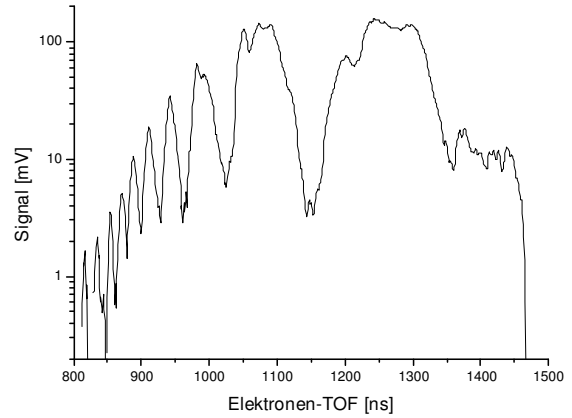


Abbildung 6.26: Gleiche Messung wie in Abbildung 6.8, das Signal ist allerdings logarithmisch aufgetragen.

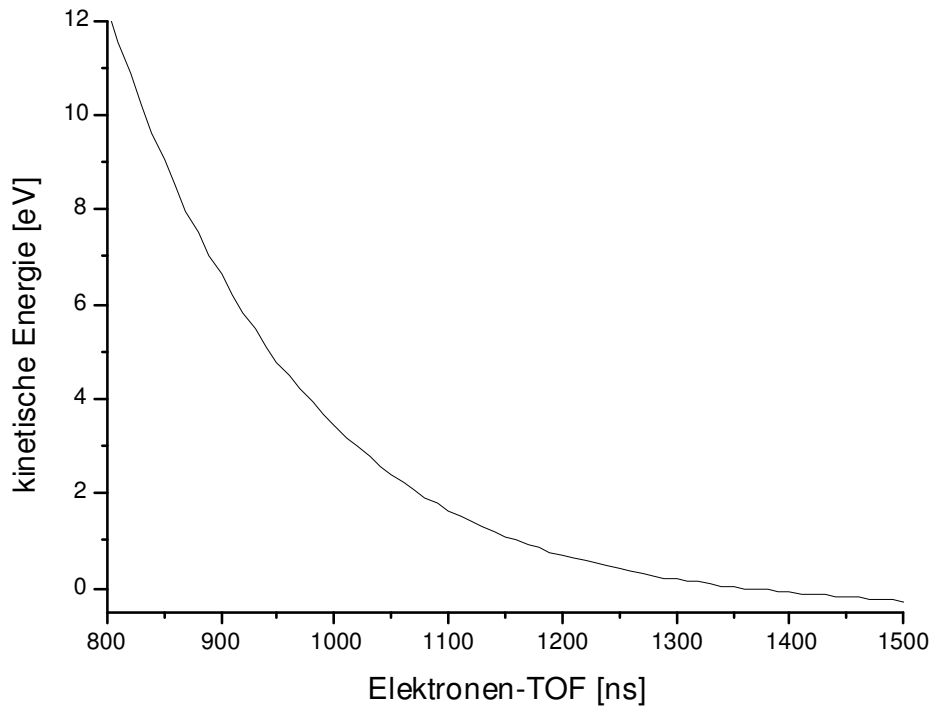


Abbildung 6.27: Mit Hilfe von Kalibrierungsmessungen werden die gemessenen Elektronenflugzeiten in kinetische Energien übertragen. Kalibriert wurde mit Hilfe der Ionisation von Kalium und Xenon bei Retardierungsspannungen zwischen 1,5 V und 2,5 V. Für die Ionisation wurde Nanosekundenlaserlicht mit den Wellenlängen 532 nm (Nd:YAG-Laser Spectra Physics Quanta-Ray INDI-30) sowie 548 nm und 570 nm (Farbstofflaser Sirah Cobra-Stretch mit Farbstoff Fluorescein 27) verwendet.

### 6.3.1.2 Kalibrierte Spektren

Wie im Anhang A.5.4.2 beschrieben, lassen sich mit Hilfe von Kalibrierungsmessungen, bei welchen in diesem Falle Kalium und Xenon bei Retardierungsspannungen zwischen 1,5 V und 2,5 V mit Nanosekundenlaserlicht mit den Wellenlängen 532 nm (Nd:YAG-Laser Spectra Physics Quanta-Ray INDI-30) sowie 548 nm und 570 nm (Farbstofflaser Sirah Cobra-Stretch mit Farbstoff Fluorescein 27) ionisiert wurde, die gemessenen Flugzeiten in kinetische Energien überführen. Die Kalibrierkurve, in welcher die kinetischen Energien gegen die Elektronenflugzeiten aufgetragen sind, zeigt die Abbildung 6.27. Aus den Abbildungen 6.5 (lineare Polarisierung) und 6.6 (zirkuläre Polarisierung) entstehen somit die Abbildungen 6.28 und 6.29, in welchen die kinetische Energie in eV gegen die Laserenergie in  $\mu\text{J}$  aufgetragen ist. Auch in diesen beiden Bildern ist die unterschiedliche Signalstärke der Photoelektronen über die Falschfarbe nachvollziehbar. Wie bereits im unkalibrierten Falle wurden auch aus den kalibrierten Messserien einzelne Spektren herausgenommen. In den Abbildungen 6.30 bis 6.55 sind diese zu sehen. Ebenfalls wie im vorherigen Unterkapitel sind Spektren für die Laserenergien 0,25  $\mu\text{J}$ , 0,4  $\mu\text{J}$ , 0,6  $\mu\text{J}$ , 1,0  $\mu\text{J}$ , 1,6  $\mu\text{J}$ , 2,5  $\mu\text{J}$ , 4,0  $\mu\text{J}$ , 6,9  $\mu\text{J}$  und 11,4  $\mu\text{J}$  abgebildet.

Die mit linear polarisiertem Laserlicht registrierten Spektren (linke Spalte) wurden erneut den mit zirkular polarisiertem Laserlicht entstandenen Spektren (rechte Spalte) gegenüber gestellt. Für den Laserenergiebereich zwischen 2,5  $\mu\text{J}$  und 11,4  $\mu\text{J}$ , in welchem sehr viele Above-Threshold-Ionisation-Signale unterschiedlicher Ordnung zu finden sind, sind für jede ausgewählte Laserenergie zwei Abbildungen vorzufinden: Zum einen für den Energiebereich zwischen 0 eV und 6 eV, wo wir das Threshold-Signal wie auch die Signale des 1. bis 3. ATIs sehen können, zum anderen für den Bereich zwischen 6 eV bis 12,5 eV, wo weitere ATI-Signale aufgezeigt sind. Unterhalb einer Laserenergie von 2,5  $\mu\text{J}$  wird auf die zweite Darstellung verzichtet: Wie man in den Abbildungen 6.42 und 6.43 (2,5  $\mu\text{J}$ ) erkennen kann, ist im wesentlichen im dort dargestellten Bereich, welcher bei genügender Laserenergie den 4. bis 7. ATI umfasst, nur noch der Untergrund erkennbar. In den zusätzlichen Darstellungen ist gut zu erkennen, dass für hohe Laserenergien die Signalstärke der höheren ATIs für zirkular polarisiertes Licht deutlich geringer ist als im Falle der Verwendung von linear polarisiertem Licht. Für den Threshold, bei  $E_{kin} = 0,40$  eV, wie auch die ersten ATIs besteht diese Diskrepanz nicht. Bei niedrigeren Laserenergien (unterhalb von 2,5  $\mu\text{J}$ ) ist hingegen das Threshold-Signal für zirkular polarisiertes Licht deutlich höher als für linear polarisiertes. Gleiches gilt ebenso für den ersten ATI, welcher bei  $E_{kin} = 1,98$  eV zu sehen ist. Wie bereits für die nicht kalibrierten Spektren festgestellt, nimmt die Anzahl der ATI-Signale mit geringer werdenden Laserenergie beständig ab. Ab einer Laserenergie von 0,4  $\mu\text{J}$  ist nur noch der Threshold-Signal vorhanden, welches hier aber noch seine Autler-Townes Aufspaltung besitzt. Bei noch geringeren Laserenergien (unterhalb 0,25  $\mu\text{J}$ ) verschwindet auch diese, so dass lediglich noch ein einzelnes Signal sichtbar bleibt.

Hinsichtlich der Entwicklung des Autler-Townes-Doublets in Abhängigkeit der Laserenergie konnte für linear polarisiertes Licht eine unterschiedliche Entwicklung im Vergleich zum zirkular polarisierten Licht beobachtet werden. Bei der Verwendung von linear polarisiertem Licht ist zunächst (bei niedriger Laserenergie) die „langsame“ Autler-Townes Komponente (also die mit der niedrigeren kinetischen Energie) intensiver, während sich dies bei dieser Polarisationsart für höhere Laserenergien umkehrt. Bei der Verwendung von zirkular polarisiertem Licht ist hingegen stets die „langsame“ Komponente intensiver (wobei sich allerdings das Verhältnis der beiden Autler-Townes-Komponenten bei höheren

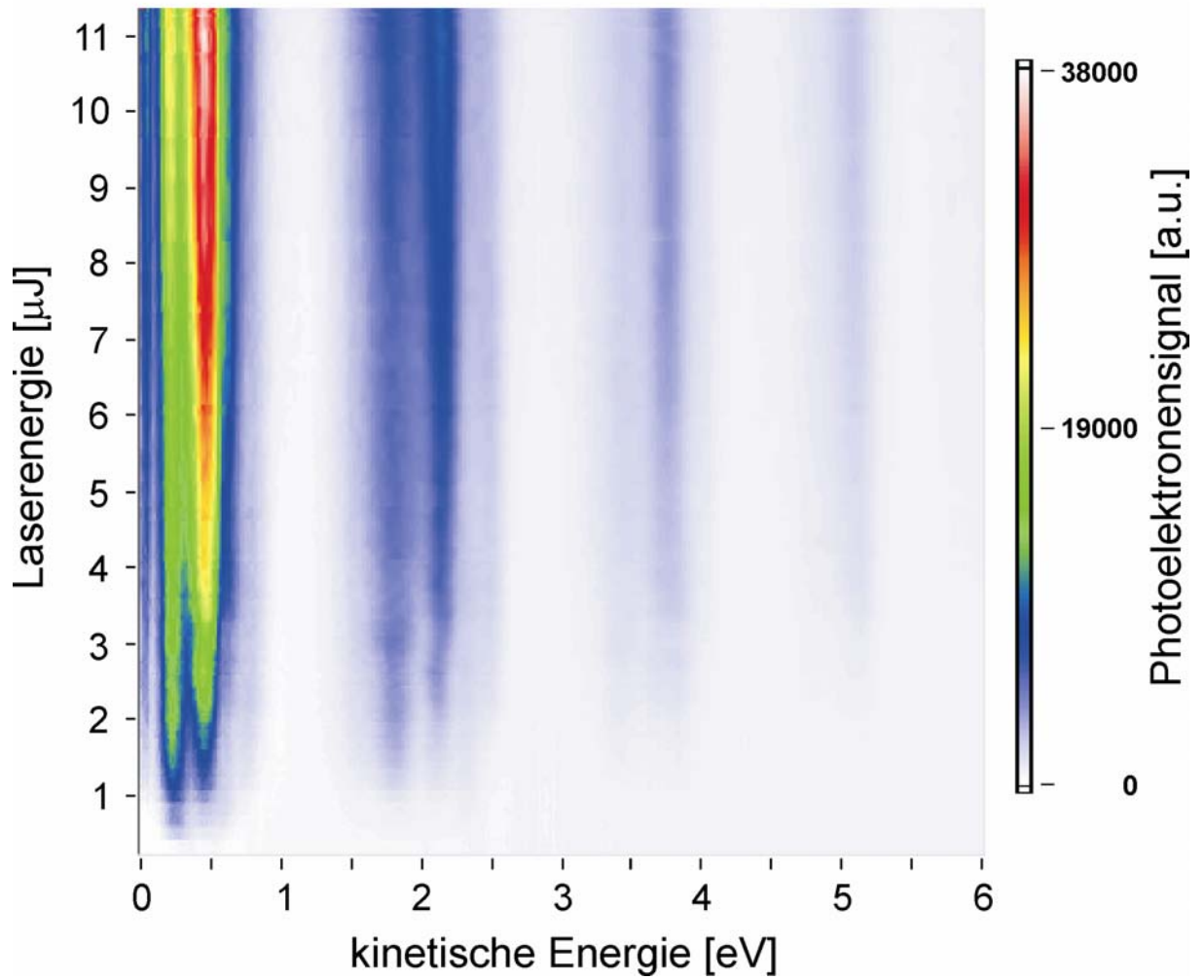


Abbildung 6.28: Kalibrierter Messscan aufgenommen mit linear polarisiertem Laserlicht. Neben dem Threshold-Signal (links) sind die ersten drei ATI Signale zu sehen. Die Höhe des Photoelektronensignals ist wieder farblich variiert.

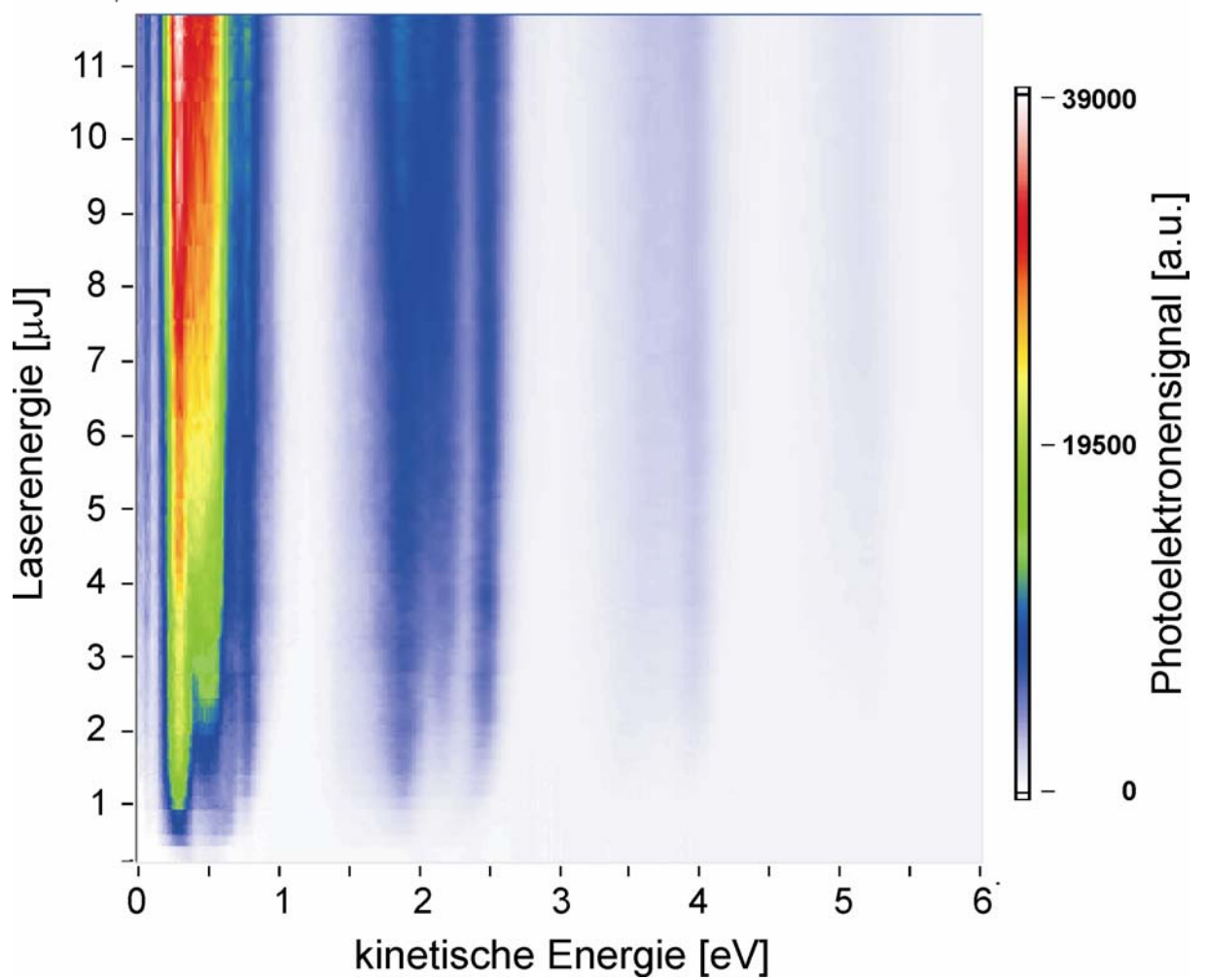


Abbildung 6.29: Kalibrierter Messscan aufgenommen mit zirkular polarisiertem Laserlicht. Neben dem Threshold-Signal (links) sind auch hier die ersten drei ATI-Signale zu sehen. Die Höhe des Photoelektronensignals ist ebenfalls farblich variiert.

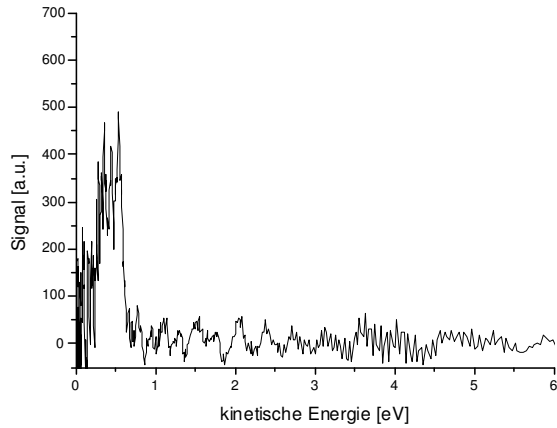


Abbildung 6.30:  $0,25 \mu\text{J}$  ( $3,0 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

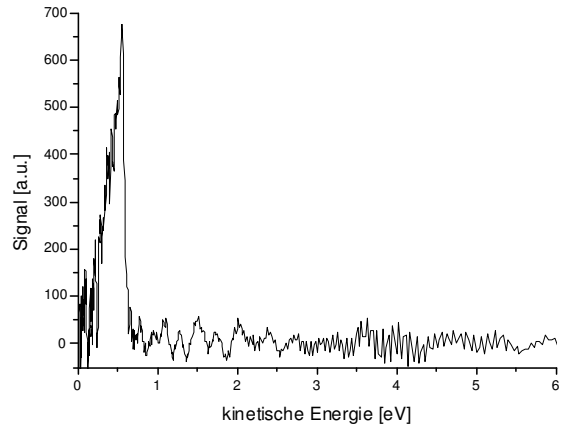


Abbildung 6.31:  $0,25 \mu\text{J}$  ( $3,0 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

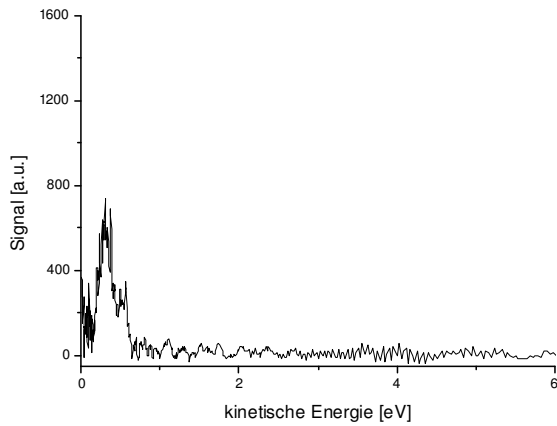


Abbildung 6.32:  $0,4 \mu\text{J}$  ( $4,8 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

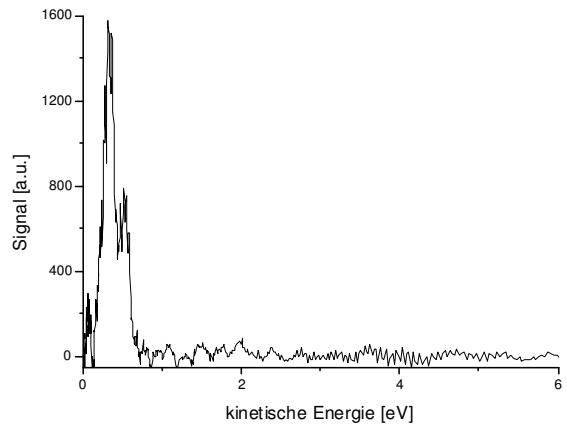


Abbildung 6.33:  $0,4 \mu\text{J}$  ( $4,8 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

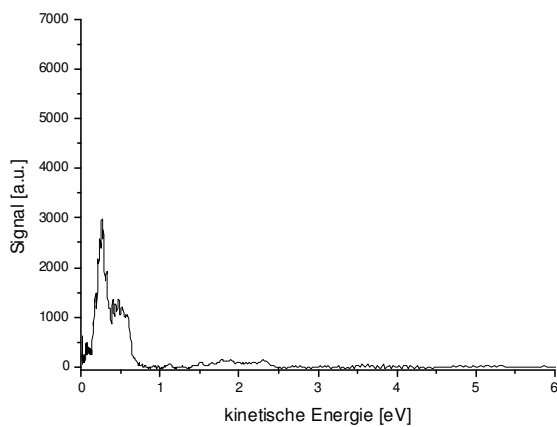


Abbildung 6.34:  $0,6 \mu\text{J}$  ( $7,2 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

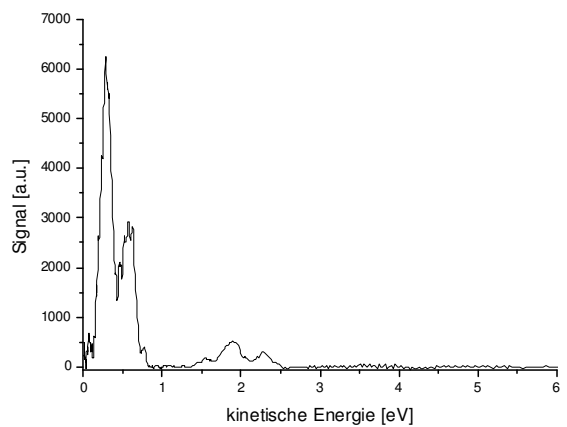


Abbildung 6.35:  $0,6 \mu\text{J}$  ( $7,2 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

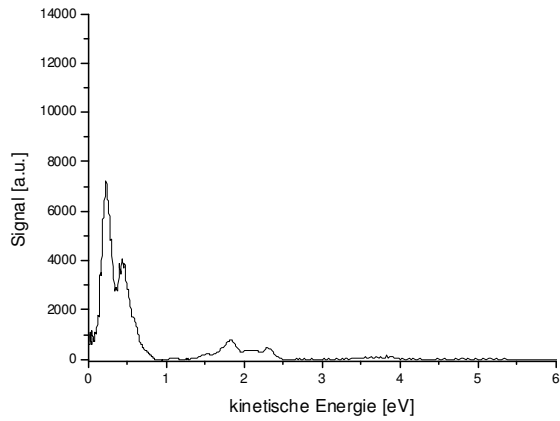


Abbildung 6.36: 1,0  $\mu\text{J}$  ( $1,2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

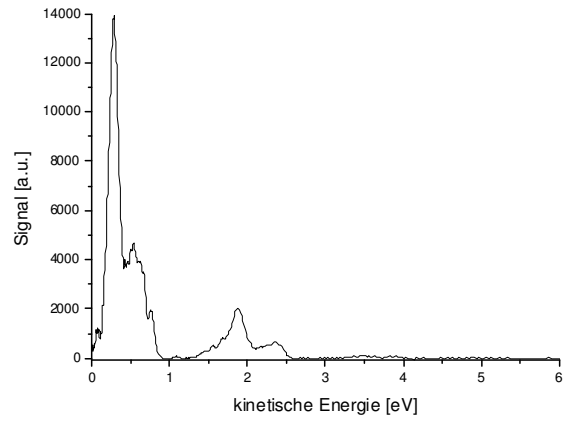


Abbildung 6.37: 1,0  $\mu\text{J}$  ( $1,2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

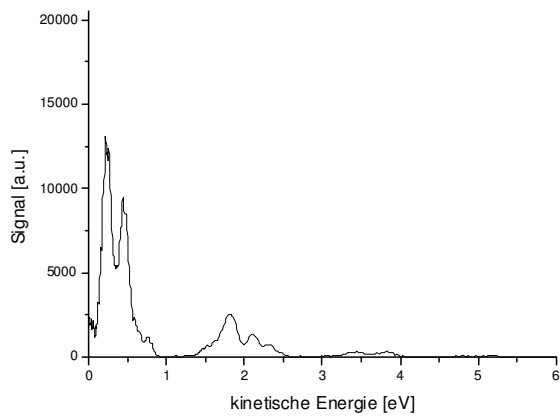


Abbildung 6.38: 1,6  $\mu\text{J}$  ( $1,9 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

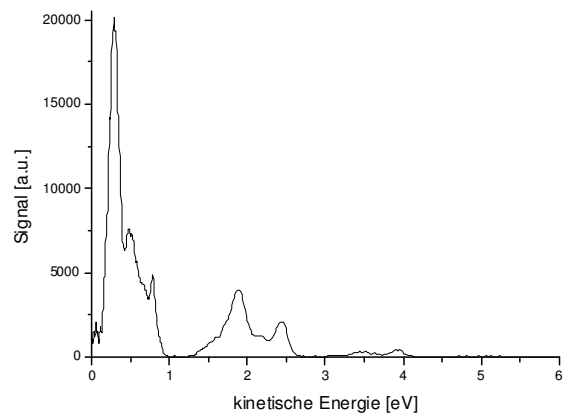


Abbildung 6.39: 1,6  $\mu\text{J}$  ( $1,9 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

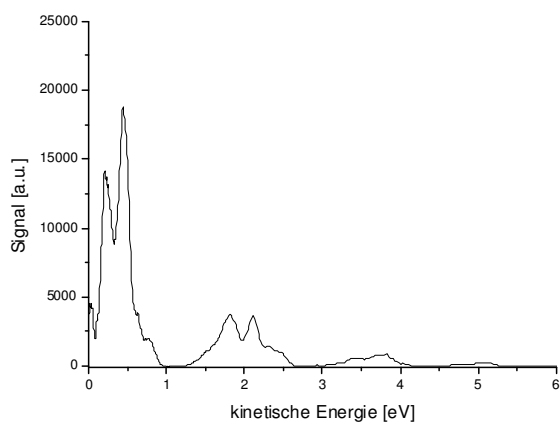


Abbildung 6.40: 2,5  $\mu\text{J}$  ( $3,0 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

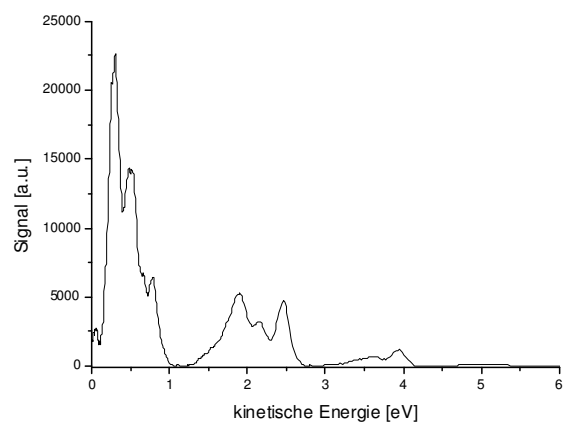


Abbildung 6.41: 2,5  $\mu\text{J}$  ( $3,0 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

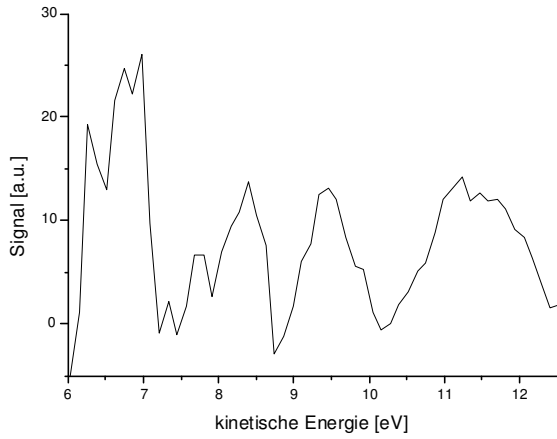


Abbildung 6.42: 2,5  $\mu\text{J}$  ( $3,0 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

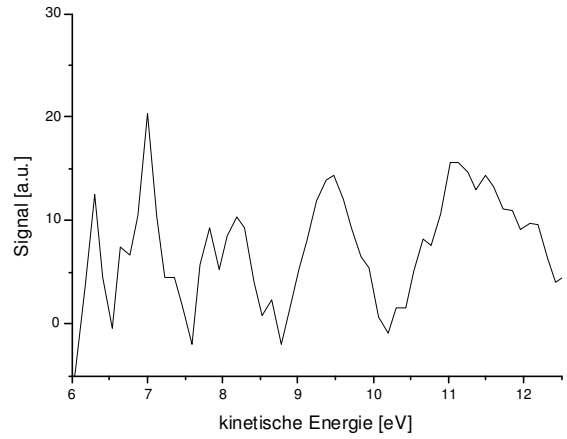


Abbildung 6.43: 2,5  $\mu\text{J}$  ( $3,0 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

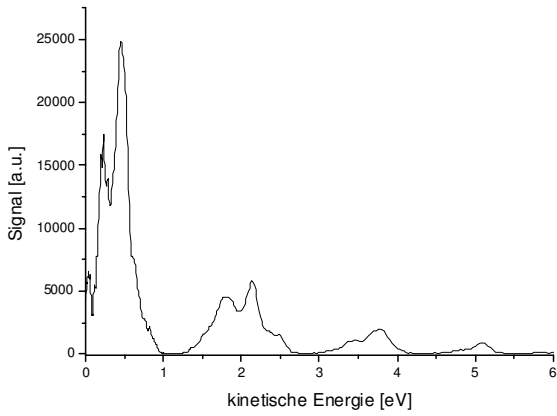


Abbildung 6.44: 4,0  $\mu\text{J}$  ( $4,8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

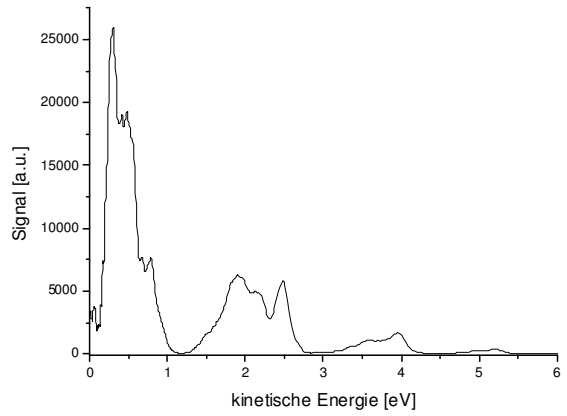


Abbildung 6.45: 4,0  $\mu\text{J}$  ( $4,8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

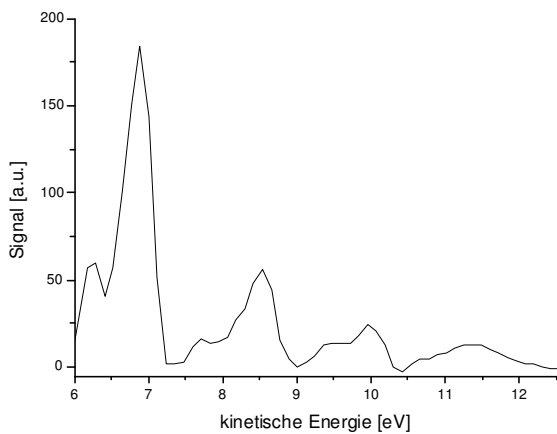


Abbildung 6.46: 4,0  $\mu\text{J}$  ( $4,8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

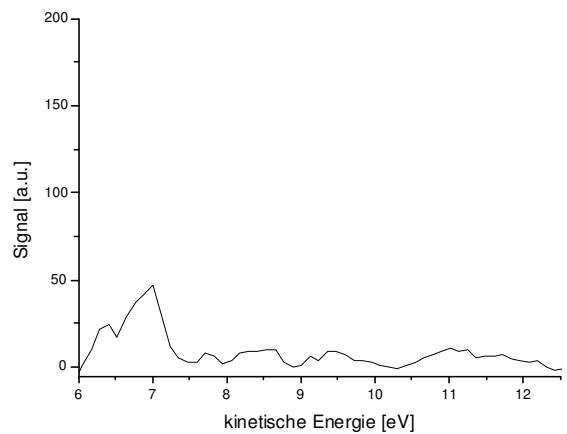


Abbildung 6.47: 4,0  $\mu\text{J}$  ( $4,8 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

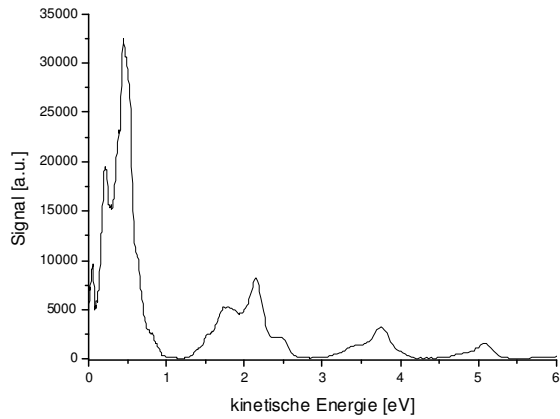


Abbildung 6.48: 6,9  $\mu\text{J}$  ( $8,3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

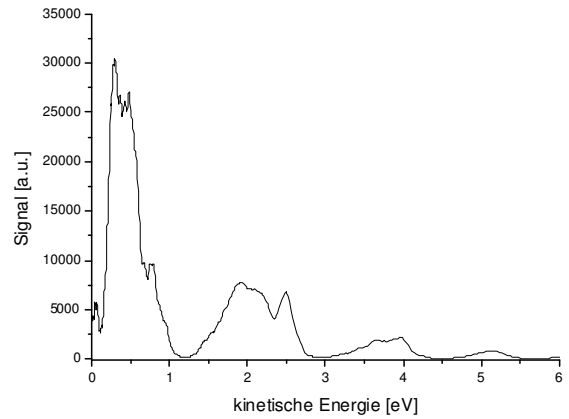


Abbildung 6.49: 6,9  $\mu\text{J}$  ( $8,3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

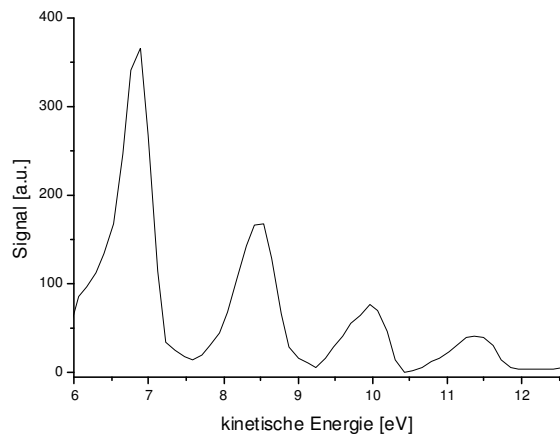


Abbildung 6.50: 6,9  $\mu\text{J}$  ( $8,3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

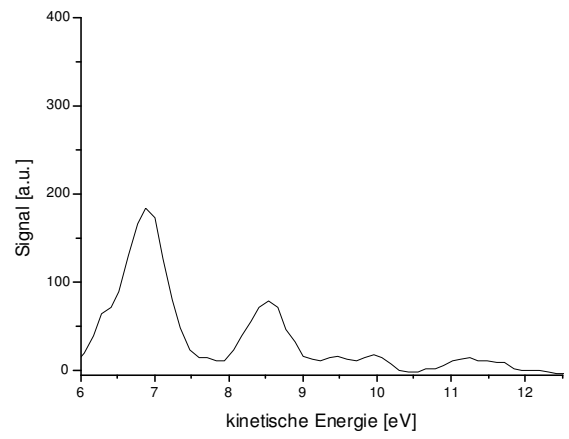


Abbildung 6.51: 6,9  $\mu\text{J}$  ( $8,3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation

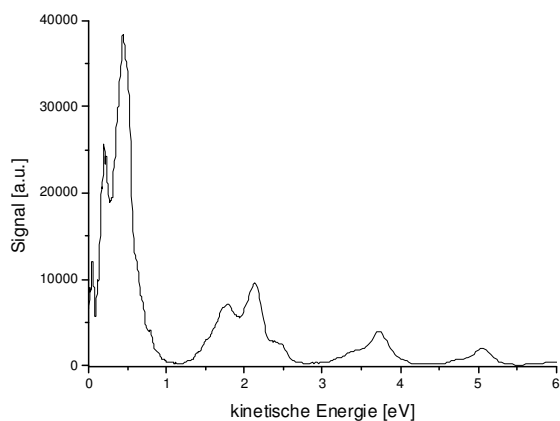


Abbildung 6.52: 11,4  $\mu\text{J}$  ( $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

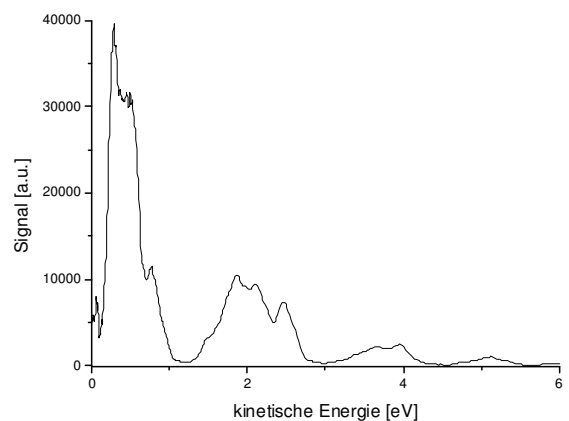


Abbildung 6.53: 11,4  $\mu\text{J}$  ( $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), zirkulare Polarisation



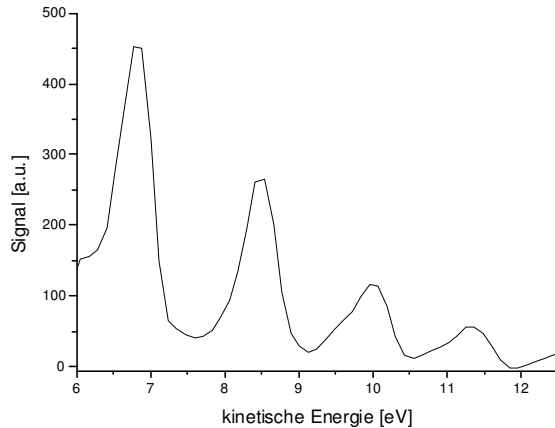


Abbildung 6.54: 11,4  $\mu\text{J}$  ( $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), lineare Polarisation

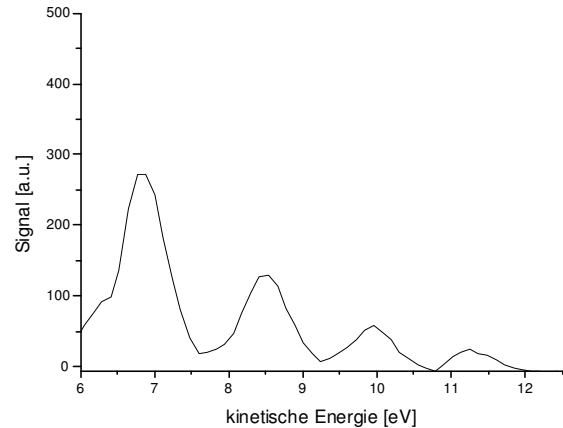


Abbildung 6.55: 11,4  $\mu\text{J}$  ( $1,4 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ), zirkuläre Polarisation

Laserenergien hin zur energetisch größeren Komponente verschiebt. Übertreffen tut die energetisch größere Komponente die energetisch niedrige aber selbst bei der größten verwendeten Laserenergie ( $E_{\text{Laser}} = 11,4 \mu\text{J}$ ) nicht.

### 6.3.2 Autler-Townes-Aufspaltung

Dieses Unterkapitel hat die Aufspaltung des Autler-Townes-Doublets zum Gegenstand. Die Breite der Aufspaltung  $\hbar\Omega$  ergibt sich aus der Rabi-Frequenz

$$\Omega(t) = \frac{\mu\mathcal{E}(t)}{\hbar} \quad (6.2),$$

wobei  $\mu$  für das Übergangsdipolmoment und  $\mathcal{E}(t)$  für die Einhüllende des elektrischen Feldes der Laserstrahlung stehen.

Einen Überblick über die Entwicklung der Autler-Townes-Aufspaltung  $\hbar\Omega$  in den Photoelektronenspektren des Thresholds bei zunehmender Laserenergie bieten die Abbildungen 6.56 bis 6.59. Während die Abbildungen 6.56 (linear polarisiertes Laserlicht) und 6.57 (zirkular polarisiertes Laserlicht) die Autler-Townes-Doublets für die Laserenergien 11,4  $\mu\text{J}$ , 6,9  $\mu\text{J}$ , 1,6  $\mu\text{J}$ , 0,6  $\mu\text{J}$  und 0,4  $\mu\text{J}$  in linearer Auftragung zeigt, ist die Signalhöhe in den Abbildungen 6.58 (linear) und 6.59 (zirkular) logarithmisch aufgetragen. In allen vier Abbildungen sind die fünf Spektren bezüglich der ansteigenden Laserenergie von unten nach oben eingezeichnet: Erwartungsgemäß liefert ein Laserpuls mit geringer Energie ein geringeres Signal als einer mit größerer. Im Bereich geringer Laserenergie (0,4  $\mu\text{J}$  bis 1,6  $\mu\text{J}$ ) ist in den Abbildungen zu sehen, wie die Autler-Townes-Aufspaltung  $\hbar\Omega$  deutlich anwächst. Im Bereich größerer Laserenergie ist dies nicht der Fall.

Folgend sollen die Aufspaltungen  $\hbar\Omega$  der Autler-Townes-Doublets quantitativ bestimmt werden. Hierfür wurden die einzelnen Spektren unter Verwendung einer LabView-Anwendung mit Hilfe einer Doppelgaussfunktion angepasst. Dass dies sehr gut durchführbar war, zeigen die Beispiele in den Abbildungen 6.60 bis 6.62. In diesen sind die aufgenommenen Messdaten gepunktet aufgezeigt, die zugehörigen angepassten Kurven sind

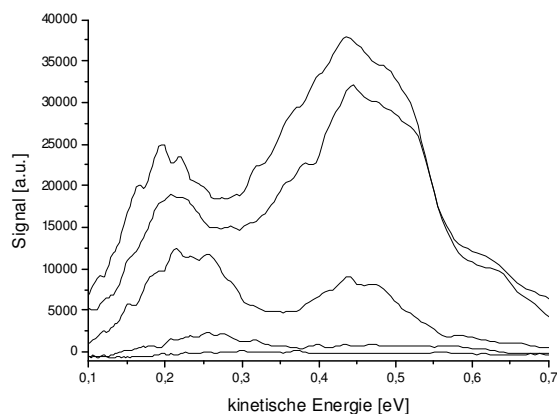


Abbildung 6.56: Entwicklung der Photoelektronenspektren des Thresholds bei zunehmender Laserenergie (lineare Polarisation). Aufgetragen sind die Spektren für die Energien 0,4 µJ, 0,6 µJ, 1,6 µJ, 6,9 µJ und 11,4 µJ (von unten nach oben).

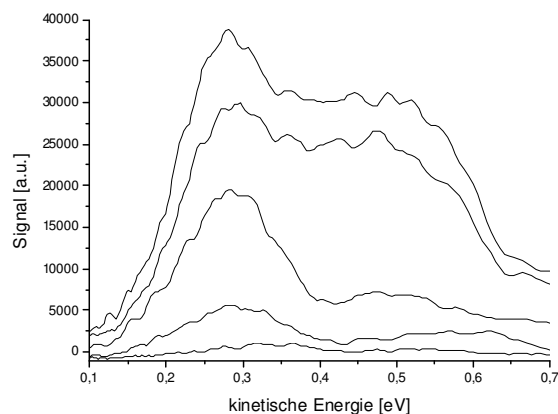


Abbildung 6.57: Entwicklung der Photoelektronenspektren des Thresholds bei zunehmender Laserenergie (zirkuläre Polarisation). Aufgetragen wurden Spektren für die gleichen Laserenergien wie in Abbildung 6.55.

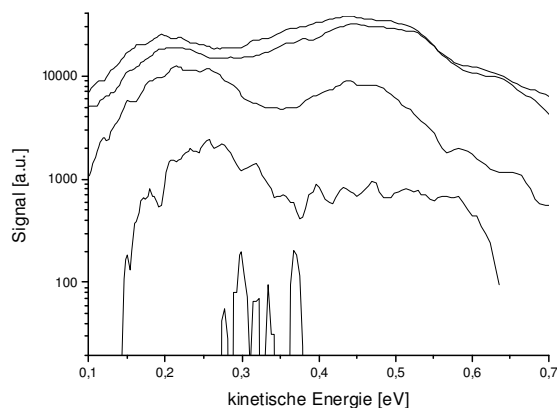


Abbildung 6.58: Die Abbildung zeigt die gleichen Spektren wie Abbildung 6.56 (lineare Polarisation). Die Signalstärke wurde aber logarithmisch aufgetragen. Im Bereich geringer Laserenergie steigt der Abstand der beiden Autler-Townes-Komponenten bei Erhöhung der Energie deutlich an. Für größere Laserenergien ist dies nicht der Fall.

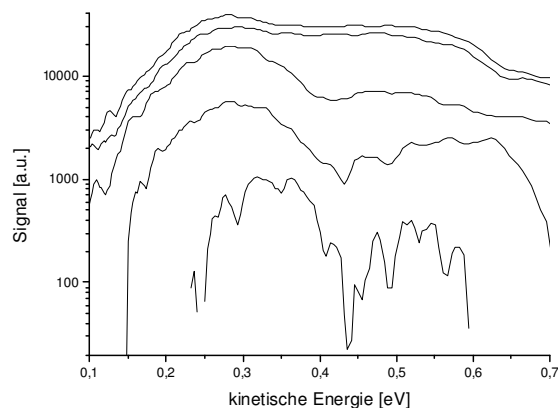


Abbildung 6.59: Auch bei der halblogarithmischen Auftragung für die Spektren, die mit Hilfe von zirkular polarisiertem Laserlicht aufgetragen sind, ist im Bereich niedriger Laserenergie bei der Zunahme von dieser eine Aufweitung der Autler-Townes-Aufspaltung erkennbar.

mit durchgezogenen Linien dargestellt. Stellvertretend wurde jeweils ein Doublet eines Threshold-Signals (Abbildung 6.60), eines Signals eines ersten ATIs (Abbildung 6.61) sowie eines Signals eines zweiten ATIs (Abbildung 6.62) ausgewählt. Angepasst wurden die unkalibrierten Flugzeitelektronenspektren. Die Flugzeiten wurden anschließend in die zugehörigen kinetischen Energien umgerechnet. Die so gesammelten Positionsdaten für die einzelnen Autler-Townes-Komponenten sind in den Abbildungen 6.63 bis 6.72 zu sehen. Der jeweilige Fehler der einzelnen Messdaten kann mit 0,02 eV angegeben werden. Den mit Hilfe von linear polarisiertem Licht (linke Spalte) gemessenen Spektren sind wieder die, welche mit zirkular polarisiertem Licht (rechte Spalte) aufgenommen wurden, gegenübergestellt. Zur Unterscheidung der Messdaten der beiden Autler-Townes-Komponenten sind die Daten für die energieärmere Komponente mit einem ausgefüllten, die Daten für die energiereichere

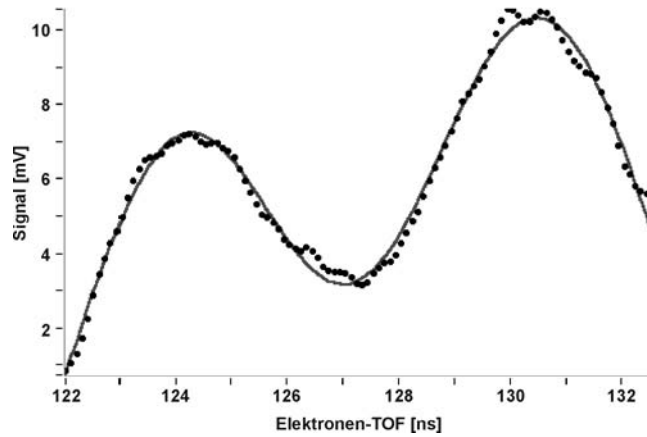


Abbildung 6.60: Die Abbildung zeigt das Threshold-Signal bei einer Laserenergie von  $0,6 \mu\text{J}$  (zirkular polarisiert). Gepunktet sind die Messdaten, mit durchgezogener Linie ist die zugehörige angepasste Kurve dargestellt.

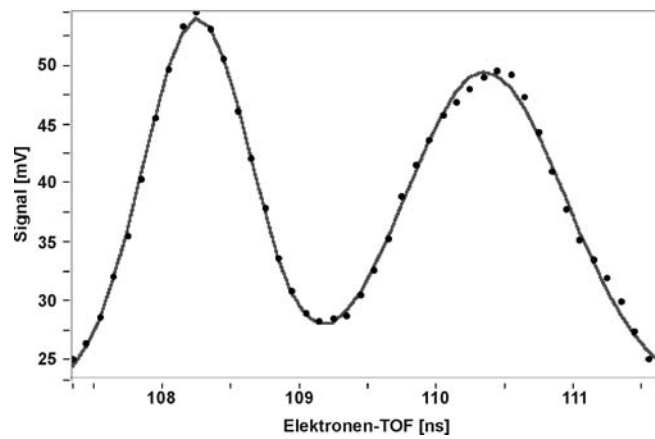


Abbildung 6.61: Die Abbildung zeigt das Signal des ersten ATIs bei einer Laserenergie von  $2,8 \mu\text{J}$  (linear polarisiert). Auch hier sind die Messdaten gepunktet und die angepasste Kurve mit durchgezogener Linie dargestellt.

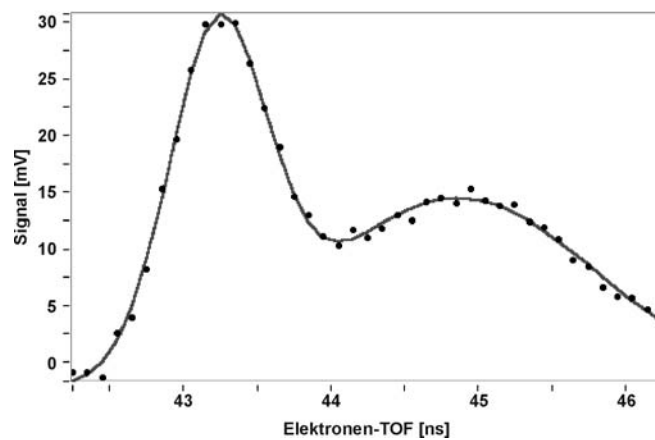


Abbildung 6.62: Die Abbildung zeigt das Signal des zweiten ATIs bei einer Laserenergie von  $1,9 \mu\text{J}$  (zirkular polarisiert). Wieder sind die Messdaten gepunktet und die zugehörige angepasste Kurve mit durchgezogener Linie dargestellt.

Komponente mit einem unausgefüllten Punkt dargestellt. Für die Datenaufnahme des Threshold-Signals, wie auch für die des ersten ATIs ist zusätzlich der Bereich niedriger Laserenergie in einem größeren Maßstab nochmals geplottet. Allen Messserien ist gemein, dass größer einer bestimmten Laserenergie die mittleren Positionen der kinetischen Energien beider Autler-Townes-Komponenten nahezu konstant bleiben. Im Falle des Threshold-Signals (ob bei linear polarisiertem Laserlicht oder bei zirkular polarisiertem Laserlicht) liegt dieser Grenzwert bei  $0,6 \mu\text{J}$ . Im Falle des Signals für die erste Above-Threshold-Ionisation finden wir diesen Grenzwert bei  $1,6 \mu\text{J}$  (linear polarisiertes Laserlicht). Auch für das Signal der zweiten Above-Threshold-Ionisation lassen sich Laserenergien finden, ab welcher die Lage

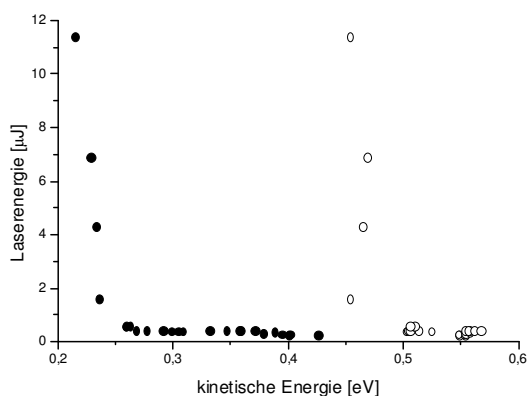


Abbildung 6.63: Positionen der Autler-Townes-Komponenten des Threshold-Signals. Angeregt und ionisiert wurde mit linear polarisiertem Licht. Die langsame Komponente ist mit ausgefüllten Punkten gekennzeichnet, die schnelle Komponente mit unausgefüllten. Ab einer Laserenergie von  $0,6 \mu\text{J}$  sind die Positionen der beiden Komponenten im Spektrum nahezu konstant. Der Fehler bezüglich der kinetischen Energie beträgt jeweils  $0,02 \text{ eV}$ .

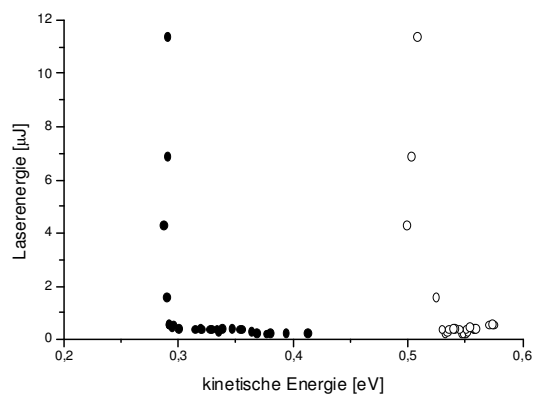


Abbildung 6.64: Die Positionen der Autler-Townes-Komponenten des Threshold Signals, hier aber bei der Verwendung von zirkular polarisiertem Licht. Auch hier sind ab einer Laserenergie von  $0,6 \mu\text{J}$  die Positionen der beiden Komponenten nahezu konstant.

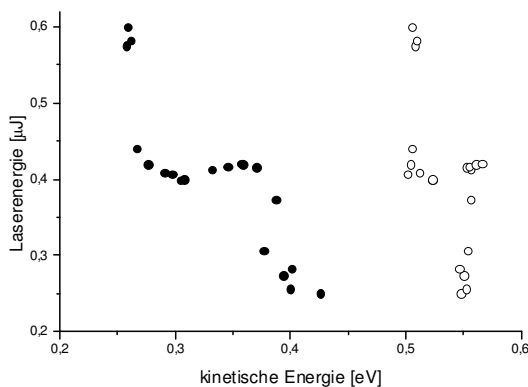


Abbildung 6.65: Detailauszug aus Abbildung 6.63 für niedrige Laserenergien. Zu sehen ist der Teilbereich, in welchem die Positionen der beiden Komponenten sich verändern.

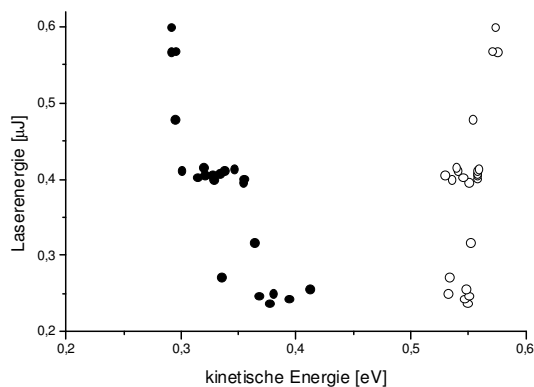


Abbildung 6.66: Detailauszug aus Abbildung 6.64 für niedrige Laserenergien: Bis zu einer Laserenergie von  $0,6 \mu\text{J}$  wandern die beiden Komponenten kontinuierlich auseinander.

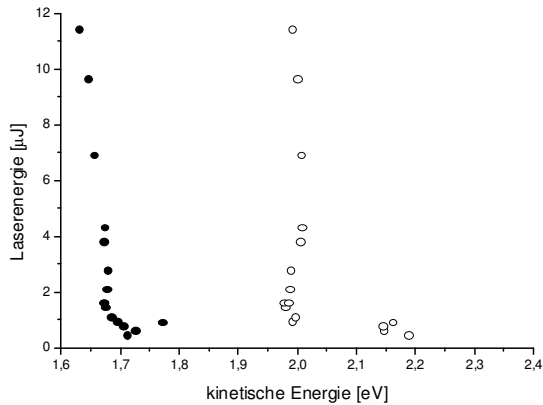


Abbildung 6.67: Positionen der Autler-Townes-Komponenten des ersten Above-Threshold-Ionisation Signals. Angeregt und ionisiert wurde mit linear polarisiertem Licht. Ab einer Laserenergie von 1,8  $\mu\text{J}$  sind die Positionen der beiden Komponenten im Spektrum nahezu konstant.

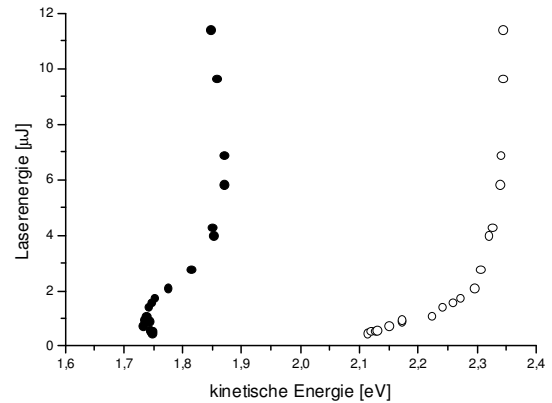


Abbildung 6.68: Die Positionen der Autler-Townes-Komponenten des ersten Above-Threshold-Ionisation Signals bei der Verwendung von zirkular polarisiertem Licht.

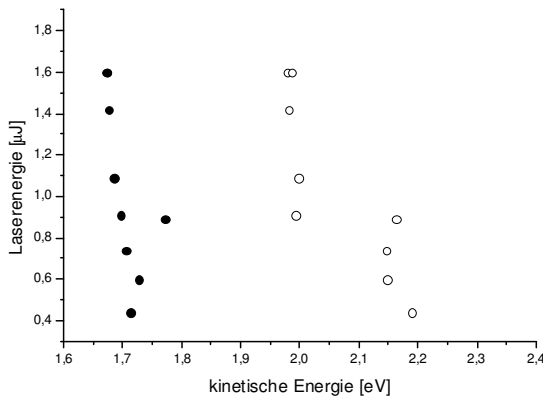


Abbildung 6.69: Detailauszug aus Abbildung 6.67 für niedrige Laserenergien.

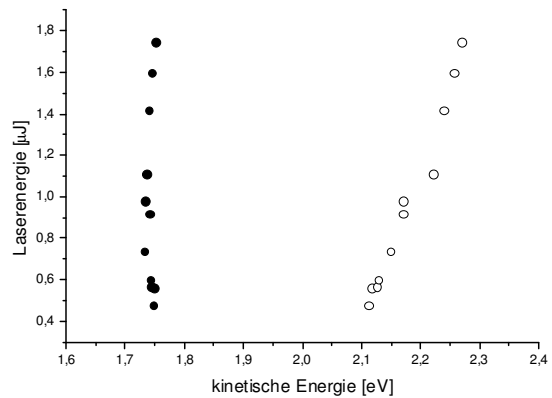


Abbildung 6.70: Detailauszug aus Abbildung 6.68 für niedrige Laserenergien. Interessanterweise entwickeln sich bei Zunahme der Laserenergie die Positionen der beiden einzelnen Autler-Townes-Komponenten in Richtung größerer kinetischer Energie.

der kinetischen Energie der einzelnen Komponenten in etwa konstant bleibt. Diese liegt für linear polarisiertes Licht im Bereich einer Laserenergie von 2,0  $\mu\text{J}$ . Besonders auffällig sind in manchen Abbildungen Laserenergiebereiche, in welchen die kinetische Energie der Elektronen plötzlich stark variiert (in den meisten Fällen abnimmt). Für die Threshold-Elektronen ist dies zum einen bei einer Laserenergie von etwa 0,4  $\mu\text{J}$  der Fall (siehe Abbildungen 6.65 und 6.66). Eine weitere starke Reduzierung der kinetischen Energie tritt hier außerdem kurz vor dem Bereich ein, ab welcher die kinetische Energie konstant bleibt, also bei etwa 0,6  $\mu\text{J}$ . Das gleiche Verhalten findet sich auch bei den Elektronen der ersten wie auch der zweiten Above-Threshold-Ionisation im Falle der Verwendung von linear polarisiertem Licht (Abbildungen 6.67, 6.69 und 6.71). Die für den „Knick“ relevanten Laserenergien sind aber im Vergleich zum Threshold verschieden: Während für den ersten ATI ein „Knick“ bei etwa 0,9  $\mu\text{J}$  zu finden ist, ist bei ATI Nr. 2 ein solches andeutungsweise

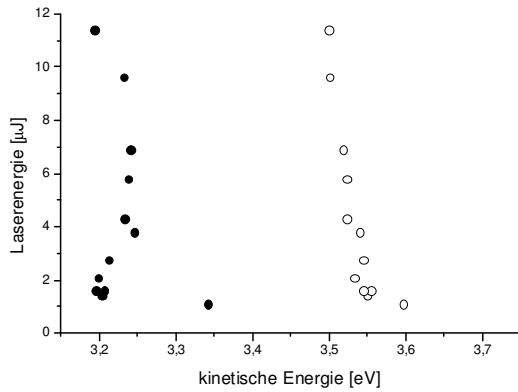


Abbildung 6.71: Positionen der Autler-Townes-Komponenten des zweiten Above-Threshold-Ionisation Signals. Angeregt und ionisiert wurde mit linear polarisiertem Licht. Ab einer Laserenergie von ca. 2,0  $\mu\text{J}$  sind die Positionen der beiden Komponenten im Spektrum nahezu konstant.

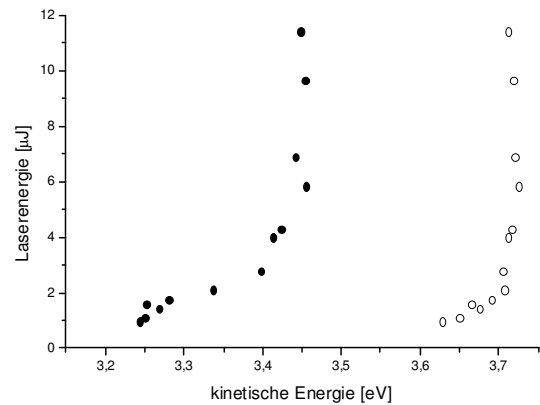


Abbildung 6.72: Die Positionen der Autler-Townes-Komponenten des zweiten Above-Threshold-Ionisation Signals bei der Verwendung von zirkular polarisiertem Licht.

bei 1,5  $\mu\text{J}$  wahrnehmbar, dies wohlgermerkt aber nur im Falle von linear polarisierten Laserpulsen. Bei der Verwendung von zirkular polarisiertem Laserlicht sind für den ersten wie auch den zweiten ATI Gebiete mit starker Reduzierung der kinetischen Energie nicht ersichtlich. Erstaunlich ist im Gegenteil hier, dass selbst die Elektronen der energieärmeren Autler-Townes-Komponente bei größeren Laserenergien zu- statt abnimmt (Abbildungen 6.78 und 6.72).

In den Abbildungen 6.73 bis 6.80 ist schlussendlich die Breite der Autler-Townes-Aufspaltung  $\hbar\Omega$  als Funktion der Laserenergie aufgetragen. Die Abbildungen 6.73 (linear) und 6.74 (zirkular) zeigen diese für die Threshold-Elektronen, die Abbildungen 6.77 (linear) und 6.78 ebendies für die Elektronen der ersten Above-Threshold-Ionisation, die Abbildungen 6.79 (linear) und 6.80 (zirkular) zeigen uns schließlich die Ergebnisse für ATI Nr. 2. Im Falle des Thresholds ist für lineare wie auch für zirkulare Polarisation erwartungsgemäß ein Ansteigen von  $\hbar\Omega$  bis zu einer Laserenergie von 0,6  $\mu\text{J}$  ( $7 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ) zu beobachten. Folgende maximalen Autler-Townes-Breiten  $\hbar\Omega$  sind dort gemessen worden:

lineare Polarisation:  $\hbar\Omega_{TH,lin} = 0,25 \pm 0,03 \text{ eV}$

zirkulare Polarisation:  $\hbar\Omega_{TH,zir} = 0,28 \pm 0,03 \text{ eV}$

Bei höherer Laserenergie fällt  $\hbar\Omega$  leicht ab, um dann aber konstant zu bleiben. Der Bereich des kontinuierlichen Anstiegs von  $\hbar\Omega$  zwischen den Laserenergien 0 eV und 0,6 eV ist zusätzlich in den Abbildungen 6.75 und 6.76 doppeltlogarithmisch aufgetragen worden. In die Messdaten wurde hier eine Steigungsgerade eingefügt. Berechnet wurden für diese die beiden folgenden Steigungen:

lineare Polarisation:  $0,72 \pm 0,10 \mu\text{J/eV}$

zirkulare Polarisation:  $0,64 \pm 0,08 \mu\text{J/eV}$

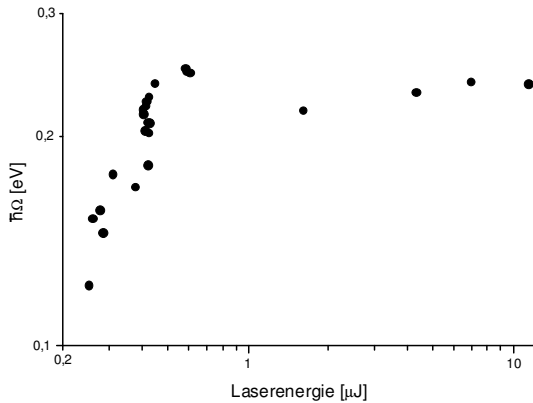


Abbildung 6.73: Aus der Differenz der kinetischen Energien, welche die Elektronen der schnellen und der langsamen Autler-Townes-Komponente besitzen, ergibt sich die Breite  $\hbar\Omega$  der Autler-Townes-Aufspaltung, welche hier im Falle des Threshold-Signals für linear polarisiertes Licht gegen die Laserenergie aufgetragen wurde. Bis zu einer Laserenergie von etwa  $0,6 \mu\text{J}$  vergrößert sich die Aufspaltungsbreite, danach bleibt sie annäherungsweise konstant.

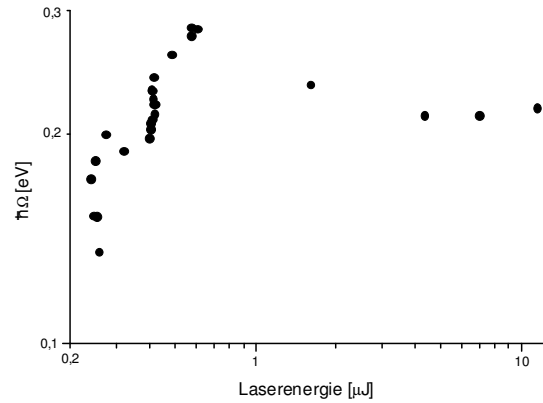


Abbildung 6.74: Auch beim Einsatz von zirkular polarisiertem Laserlicht verbreitert sich die Autler-Townes-Aufspaltung des Threshold-Signals nur bis zu einer Laserenergie von  $0,6 \mu\text{J}$ .

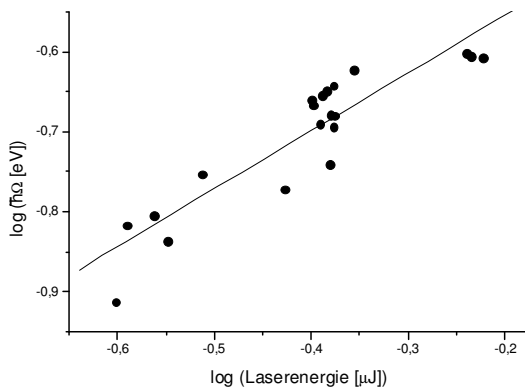


Abbildung 6.75: Die Abbildung zeigt in doppeltlogarithmischer Auftragung einen Teilbereich aus Abbildung 6.73 und zwar den Bereich, in welchem  $\hbar\Omega$  noch anwächst. Die Steigung der mittels linearer Regression ermittelten Geraden beträgt  $0,72$ .

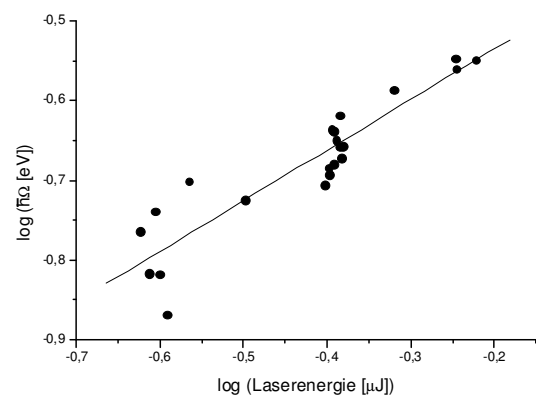


Abbildung 6.76: Doppeltlogarithmisch aufgetragener Teilbereich aus Abbildung 6.74: Im Falle der Anregung und Ionisation mittels zirkular polarisierten Laserpulsen wurde für die Steigungsgerade die Steigung  $0,64$  berechnet.

Im Falle der ersten Above-Threshold-Ionisation (Abbildungen 6.77 und 6.78) bietet sich beim Vergleich der beiden Polarisationsformen kein einheitliches Bild. Bei der Verwendung von zirkular polarisierten Laserpulsen (Abbildung 6.78) zeigt sich ein ähnliches Bild, wie es bereits für den Threshold ersichtlich war. Erneut muss allerdings erwähnt werden, dass hier bis zu einer Laserenergie von  $1,8 \mu\text{J}$  ( $2,2 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ) die Autler-Townes-Aufspaltung kontinuierlich anwächst. Bei der genannten Laserenergie beträgt  $\hbar\Omega$  dann  $0,52 \text{ eV}$ . Im Falle des Experimentes mit linear polarisiertem Laserlicht (Abbildung 6.77) zeigt sich ein völlig unterschiedliches Bild. Die Aufspaltung  $\hbar\Omega$  wird bis zur Laserenergie von  $1,6 \mu\text{J}$  stetig schmaler, bei höheren Laserenergien wächst sie dann leicht an. Ziehen wir die Abbildungen 6.67 und 6.69 zur Rate, sehen wir, dass in diesem Falle im niedrigen Laserenergiebereich die Autler-Townes-Komponente der schnellen Elektronen bei höherer Laserenergie stark an

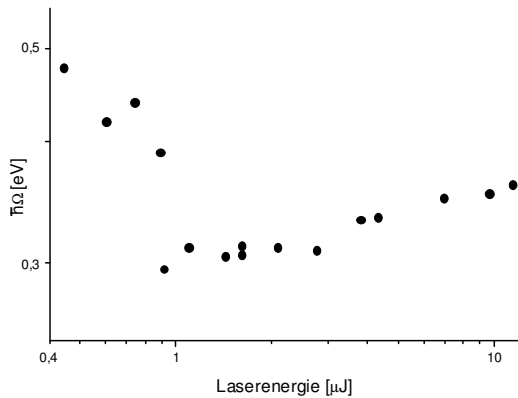


Abbildung 6.77: Im Gegensatz zu den Ergebnissen für das Threshold-Signal wächst unter Verwendung von linear polarisiertem Laserlicht für das erste ATI-Signal die Aufspaltung im schwachen Feld nicht an. Im Gegenteil: Die Aufspaltung  $\hbar\Omega$  wird bis zur Laserenergie von 1,6  $\mu\text{J}$  stetig schmaler, bei höheren Laserenergien wächst sie dann leicht an.

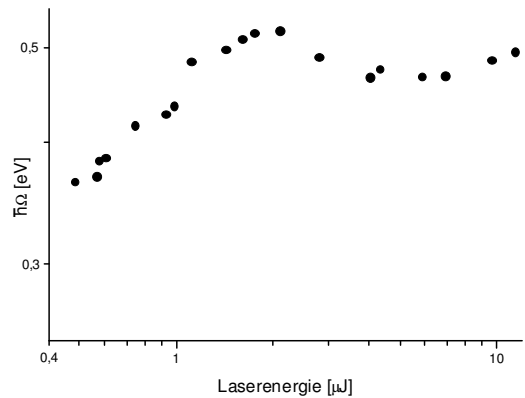


Abbildung 6.78: Im Gegensatz zum Falle mit linear polarisiertem Licht (Abb. 6.77) zeigt sich für zirkuläres Licht für das Signal des ersten ATIs das vom Threshold her bekannte Erscheinungsbild. Im Gegensatz zu den Threshold-Ergebnissen wächst allerdings die Aufspaltungsbreite bis zu einer Laserenergie von 1,8  $\mu\text{J}$  an.

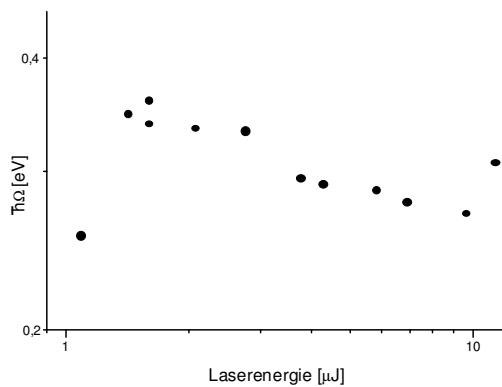


Abbildung 6.79: Breite der Autler-Townes-Aufspaltung für das Signal der zweiten Above-Threshold-Ionisation in Abhängigkeit der Laserenergie (lineare Polarisation).

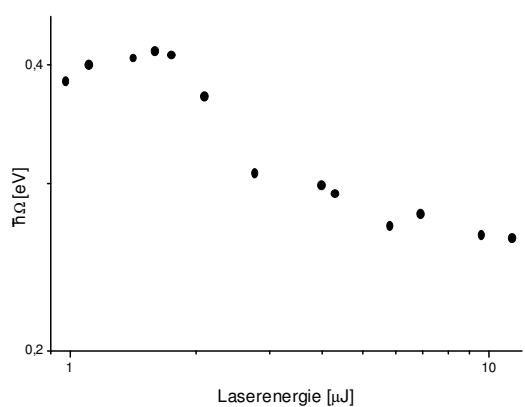


Abbildung 6.80: Breite der Autler-Townes-Aufspaltung für das Signal der zweiten Above-Threshold-Ionisation in Abhängigkeit der Laserenergie (zirkuläre Polarisation).

kinetischer Energie verliert. Bei Laserenergien, welche größer den genannten 1,6  $\mu\text{J}$  sind, bleiben die beiden Komponenten näherungsweise bei konstanter kinetischer Energie. Zuletzt wollen wir noch die Breite der Autler-Townes-Aufspaltung  $\hbar\Omega$  für das Signal der zweiten Above-Threshold-Ionisation betrachten (Abbildungen 6.79 und 6.80). Da für diesen Prozess 4 Photonen benötigt werden, ist ein ATI 2 Signal erst ab einer Laserenergie von zirka 1  $\mu\text{J}$  registrierbar. In dem energetisch folgenden Bereich ist keine Verbreiterung der Autler-Townes-Aufspaltung mehr erkennbar. Im Gegenteil, für beide Polarisationen (linear und zirkular) verringert sich bei Erhöhung der Laserenergie die Aufspaltungsbreite  $\hbar\Omega$  leicht.



### 6.3.3 Signalstärke, Steigungsgesetz und reduzierte Parameter

Wie wir den Abbildungen 6.30 bis 6.55 entnehmen können, fallen gegenüber den Threshold Signalen die der Above-Threshold-Ionisation stark ab. Da für das Freisetzen eines Elektrons aus dem 4p Zustand 2 Photonen notwendig sind (Threshold) und für das jeweilig nachfolgende ATI-Elektron jeweils ein Photon mehr benötigt wird, ist dies nicht verwunderlich. Zu erwarten ist für das jeweilige Above-Threshold-Ionisation-Signal bzw. für das Signal des Thresholds eine Photoelektronenausbeute, welche dem folgenden Gesetz gehorcht:

$$N \propto E_{\text{Laser}}^n \quad (6.3)$$

In dieser Gleichung steht  $N$  für die Anzahl der Photoelektronen,  $E_{\text{Laser}}$  für die Laserenergie und  $n$  für die Anzahl der Photonen, die benötigt werden um jeweils ein Photoelektron aus dem 4p Zustand ins Ionisationskontinuum loszulösen. Somit benötigt man für ein Threshold Elektron 2 Photonen, für ein Elektron der ersten Above-Threshold-Ionisation 3 Photonen, für ein Elektron der zweiten Above-Threshold-Ionisation 4 Photonen, usw.. Zur Verifizierung dieser Aussage wurden sämtliche aufgenommenen und kalibrierten Flugzeitelektronenspektren integriert, wie dies in Abbildung 6.81 für das Spektrum dargestellt ist, welches wir schon aus Abbildung 6.52 (Laserenergie  $E_{\text{Laser}} = 11,4 \mu\text{J}$  lineare Polarisation) kennen. Diese Abbildung umfasst nur das Threshold-Signal sowie die Signale der ersten, zweiten und dritten Above-Threshold-Ionisation. Die Signale der höheren ATIs wurden selbstverständlich ebenfalls integriert. In den Abbildungen 6.82 (lineare Polarisation) und 6.83 (zirkulare Polarisation) sind die integrierten Signale gegen die Laserenergie für den

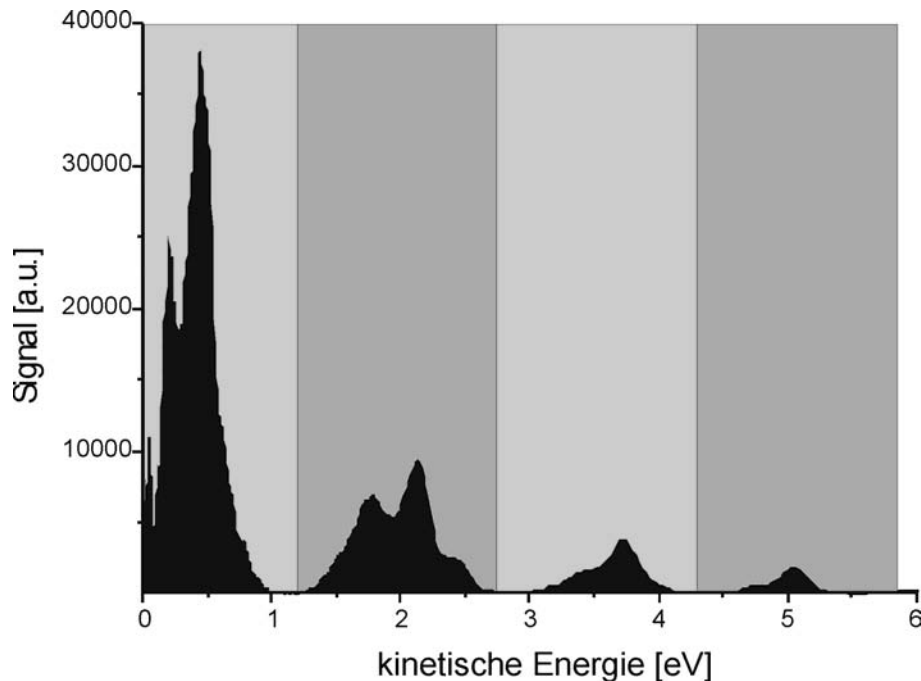


Abbildung 6.81: Wie im Falle dieser Messung, welche mit einer Laserenergie von 11,4 mJ (lineare Polarisation) aufgenommen wurde, ist auch mit sämtlichen anderen Spektren verfahren worden. Der Bereich unter der Messkurve (Schwarz dargestellt) wurde jeweils für das Threshold- und die Above-Threshold-Ionisation-Signale getrennt integriert.

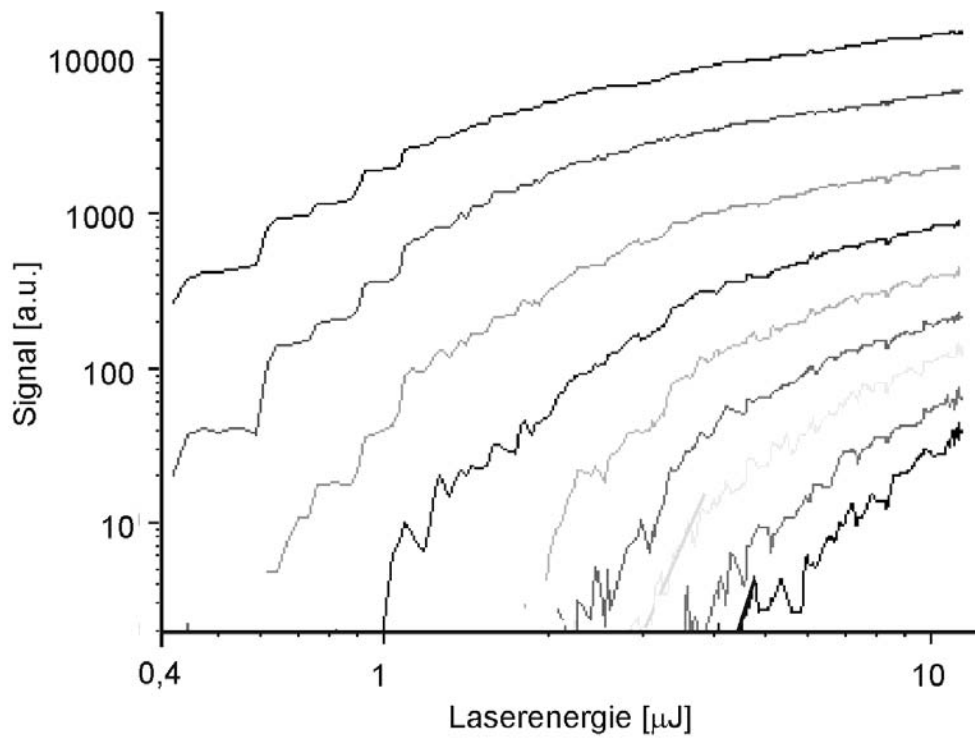


Abbildung 6.82: Integriertes Photoelektronensignal in Abhängigkeit der Laserenergie bei Verwendung von linear polarisiertem Laserlicht: Zu sehen sind (von oben bis rechts unten) die Kurve für das Threshold-Signal bis hin zur Kurve für die achte Above-Threshold-Ionisation.

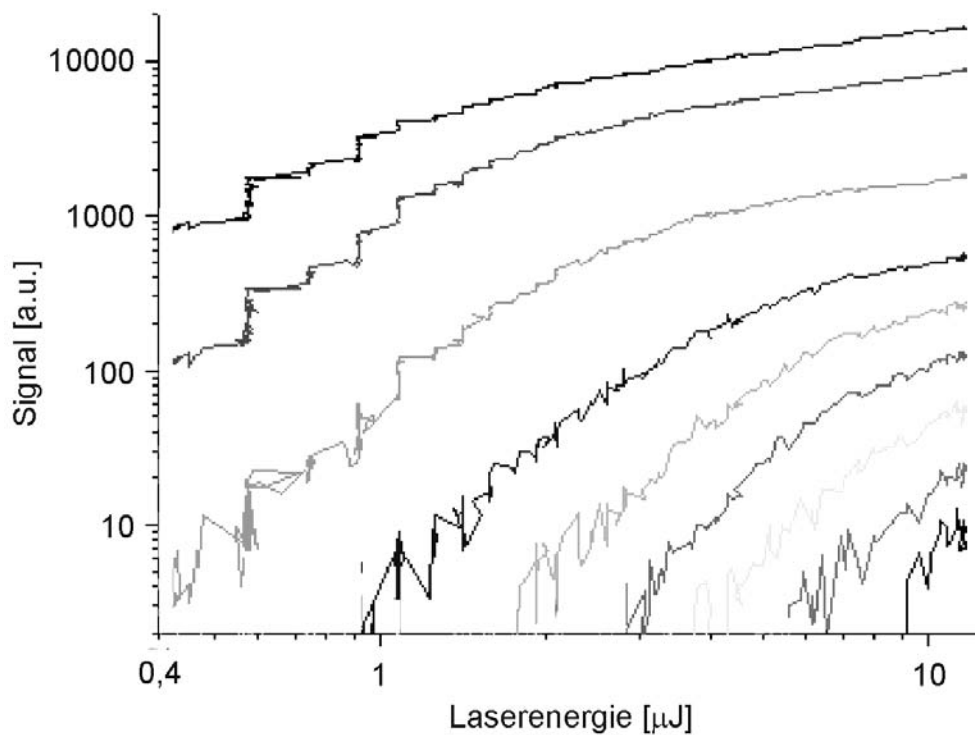


Abbildung 6.83: Integriertes Photoelektronensignal in Abhängigkeit der Laserenergie bei Verwendung von zirkular polarisiertem Laserlicht.

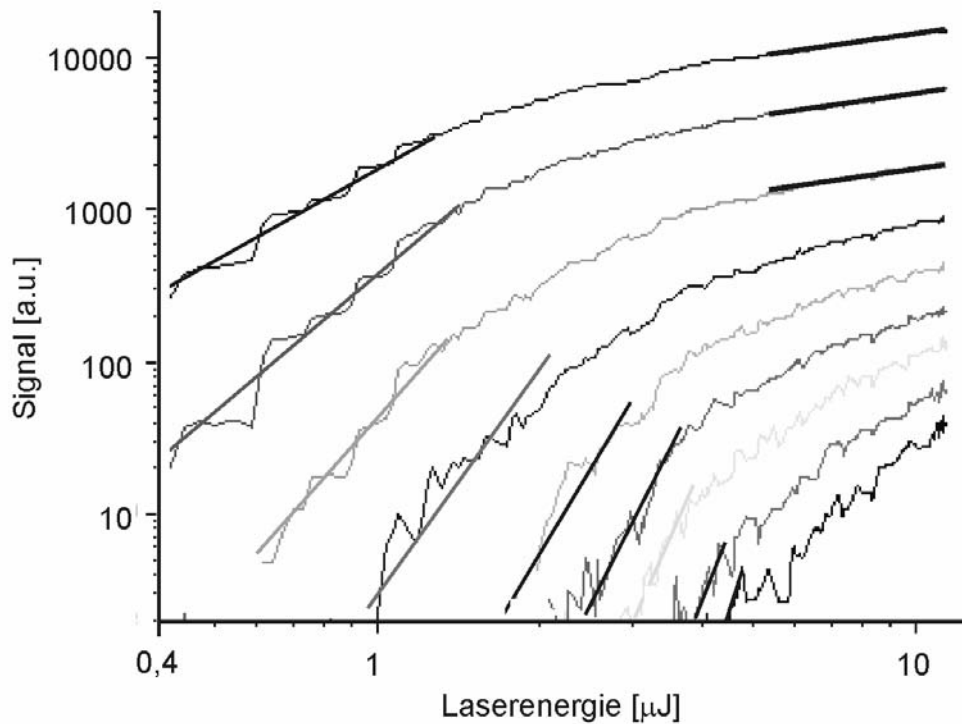


Abbildung 6.84: Wie in Abbildung 6.82 ist hier das integrierte Photoelektronensignal in Abhängigkeit der Laserenergie bei Verwendung von linear polarisiertem Laserlicht aufgetragen worden. In die Anfangsbereiche der einzelnen Kurven wurden jedoch noch die theoretisch vorgegebenen Steigungsgeraden gelegt ( $n = 2$  für den Threshold,  $n = 3$  für den ersten ATI, ... ,  $n = 10$  für den achten ATI). Außerdem ist im Bereich der hohen Laserenergien für manche Photoelektronensignalkurven eine Gerade mit der Steigung 0,5 hinzugefügt worden.

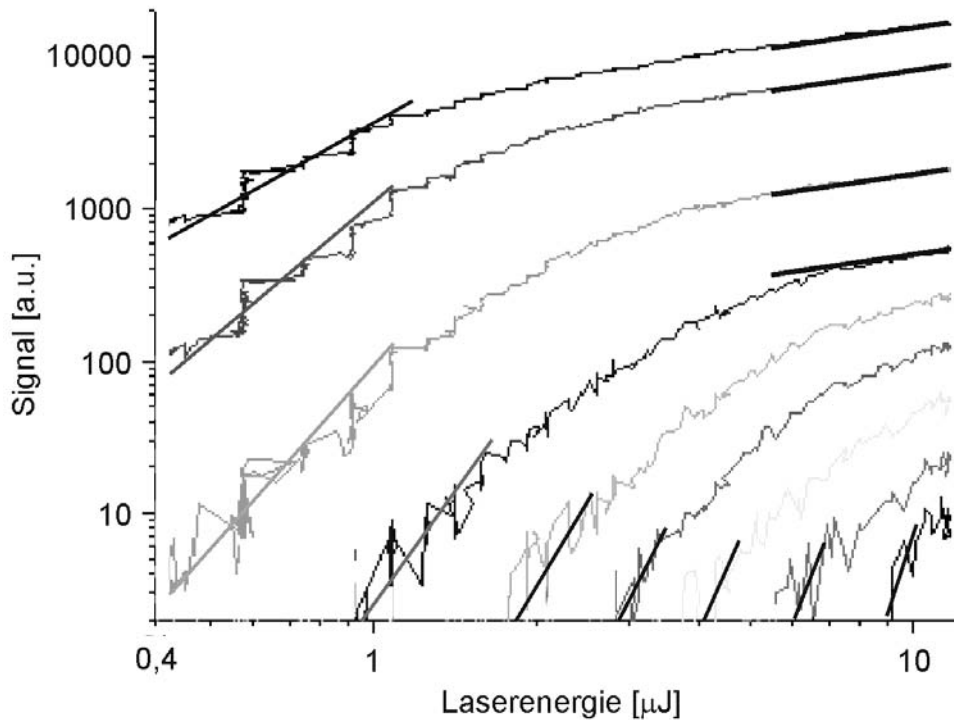


Abbildung 6.85: Auch für die Messdaten, welche bei der Verwendung von zirkular polarisiertem Laserlicht aufgenommen wurden, zeigt sich eine gute Übereinstimmung zwischen der theoretisch vorgegebenen Steigungsgeraden und der Anfangssteigung der Messkurve.

Threshold wie auch die Above-Threshold-Ionisationen erster bis achter Ordnung doppeltlogarithmisch aufgetragen. In die Anfangsbereiche (niedrige Laserenergien) der einzelnen Graphen (Abbildungen 6.84 und 6.85) wurden Geraden gelegt, deren Steigung der zur Ionisation benötigten Photonenanzahl entspricht. Die Übereinstimmung der theoretisch vorgegebenen Gerade mit den gemessenen Kurven ist deutlich erkennbar. Mit zunehmender Laserenergie nehmen die Steigungen der Graphen ab, wobei sie (sowohl bei der Verwendung von linear polarisiertem Licht als auch bei der Verwendung von zirkular polarisiertem Licht) für den Threshold wie auch für die ATI-Signale erster und zweiter Ordnung für hohe Laserenergien einen konstanten unteren Wert erreichen, welcher bei 0,5 liegt. Diese Steigung ist für einige Kurven auch mit einer zusätzlich eingezeichneten Geraden angezeigt. Die Graphen der ATI-Signale dritter (lineare Polarisation) bzw. vierter (zirkulare Polarisation) bis achter Ordnung erreichen diesen unteren Wert innerhalb des aufgezeigten Laserenergieintervalls nicht.

Ein quantitativer Weg für die Steigungsbestimmung von Funktionen, wie sie in den Abbildungen 6.82 und 6.83 dargestellt sind, kann unter Zuhilfenahme der Funktion

$$S(E) = A \cdot \exp \left[ \alpha \cdot \int \frac{\exp(-\beta \cdot E)}{E} dE + \gamma \cdot \ln E \right] \quad (6.4)$$

bestritten werden. In dieser steht  $E$  für die verwendete Laserenergie und  $S$  für das daraus resultierende gemessene integrierte Photoelektronensignal. Diese Fitfunktion (6.4) soll folgend motiviert werden: Gesucht wird eine Funktion, welche die Signalstärken in Abhängigkeit der Laserenergie wiedergibt. (Dies im besonderen bei den niedrigen Laserenergien, als auch bei hohen Laserenergien, wenn das Signal in Sättigung geht.) Von Interesse ist bei der nichtlinearen Anregung von Mehrphotonenprozessen das Potenzgesetz

$$S(E) \propto E^n \quad (6.5),$$

welches auch mit der Konstanten  $c$  in der Form

$$S(E) = c \cdot E^n \quad (6.6)$$

geschrieben werden kann. Gewöhnlich wird die Steigung  $n$  durch doppeltlogarithmische Auftragung aus gemessenen Daten extrahiert, es wird also  $\ln S$  als Funktion von  $\ln E$  dargestellt. Logarithmiert man Gleichung (6.6) erhält man

$$\ln S = \ln c + n \ln E \quad (6.7).$$

Für die Steigung  $n$  ergibt sich

$$n = \frac{d \ln S}{d \ln E} \quad (6.8).$$

Die Steigung der doppeltlogarithmischen Auftragung liefert somit die Steigung  $n$ . Da in dem hier beschriebenen Experiment jedoch die resonanten Zwischenzustände mit zunehmender Laserintensität gesättigt werden, ist der Exponent als *Funktion der Laserintensität* (beschrieben durch die gemessene Laserenergie  $E$ ) von Interesse:

$$n = n(E) \tag{6.9}$$

Gleichung (6.8) wird zu

$$n(E) = \frac{d \ln S}{d \ln E} \tag{6.10}.$$

Da

$$d \ln E = \frac{dE}{E} \tag{6.11},$$

erhält man

$$\frac{n(E)}{E} = \frac{d \ln S}{dE} \tag{6.12}.$$

Für den Exponent als Funktion der Laserenergie wird als empirischer Ansatz eine exponentiell abfallende Funktion

$$n(E) = \alpha \exp(-\beta E) + \gamma \tag{6.13}$$

gewählt, die folgend physikalisch motiviert wird: Zum einen liefert dieser Ansatz bei Extrapolation auf  $E = 0$ , d.h. für die perturbative Anregung im schwachen Feld, für den Exponenten den Wert

$$n(0) = \alpha + \gamma \tag{6.14}.$$

Als Limes für sehr starke Felder (formal  $E \rightarrow \infty$ ) ergibt sich zum anderen

$$n(\infty) = \gamma \tag{6.15}.$$

Der Verlauf des Signals wird also durch  $E^\gamma$  approximiert. Setzt man den *empirischen* Ansatz (6.13) in die Bestimmungsgleichung für eine intensitätsabhängige Steigung (6.12) ein, erhält man

$$\frac{d \ln S}{dE} = \frac{\alpha \exp(-\beta E) + \gamma}{E} \quad (6.16).$$

Durch Integration erhält man

$$\begin{aligned} \ln S(E) &= \int \frac{\alpha \exp(-\beta E) + \gamma}{E} dE + \ln A \\ &= \alpha \int \frac{\exp(-\beta E)}{E} dE + \gamma \ln E + \ln A \end{aligned} \quad (6.17),$$

wobei  $\ln A$  ein durch die Integration hinzugefügter konstanter Summand ist. Aus 6.17 folgt mittels Entlogarithmierung unmittelbar die Gleichung 6.4:

$$S(E) = A \cdot \exp \left[ \alpha \cdot \int \frac{\exp(-\beta \cdot E)}{E} dE + \gamma \cdot \ln E \right] \quad (6.4)$$

Mit Hilfe der Gleichung (6.4) können unter Verwendung einer LabView-Anwendung die gemessenen Signal-Laserenergie-Kurven angepasst werden, so dass man jeweils als Ergebnis die reduzierten Parameter  $A$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  erhält. Dass dieses mit Hilfe der Funktion 6.4 gut gelingt, zeigt die Abbildung 6.86: Dort sind als Beispiel die Messdaten (Kreise) für das Threshold Signal unter Verwendung von linear polarisiertem Licht, sowie die resultierende angepasste Kurve (durchgezogene Linie) dargestellt. Eine doppeltlogarithmische Auftragung der gleichen Daten ist in der Abbildung 6.87 zu sehen. Mit Hilfe der erwähnten LabView-Anwendung wird für jeden beliebigen Punkt der dort abgebildeten Funktion die Steigung berechnet und dargestellt: Im Falle unseres Beispiels finden wir die Ergebnisse in Abbildung 6.88. Eine Tangente mit der Steigung zwei wurde der Funktion in Abbildung 6.87 beigelegt. In dieser doppeltlogarithmisch aufgetragenen Abbildung ist gut zu erkennen, wie die angepasste Kurve die Messdaten für große Laserenergien gut wiedergibt, während für kleine Laserenergien die angepasste Kurve leicht über den Messpunkten liegt. Eine bessere Übereinstimmung ist möglich, in dem man die einzelnen Messwerte anders gewichtet. In Anhang B sind angepasste Kurven dargestellt, welche mit den Gewichtungen  $1/S$  bzw.  $\ln S$  durchgeführt wurden.

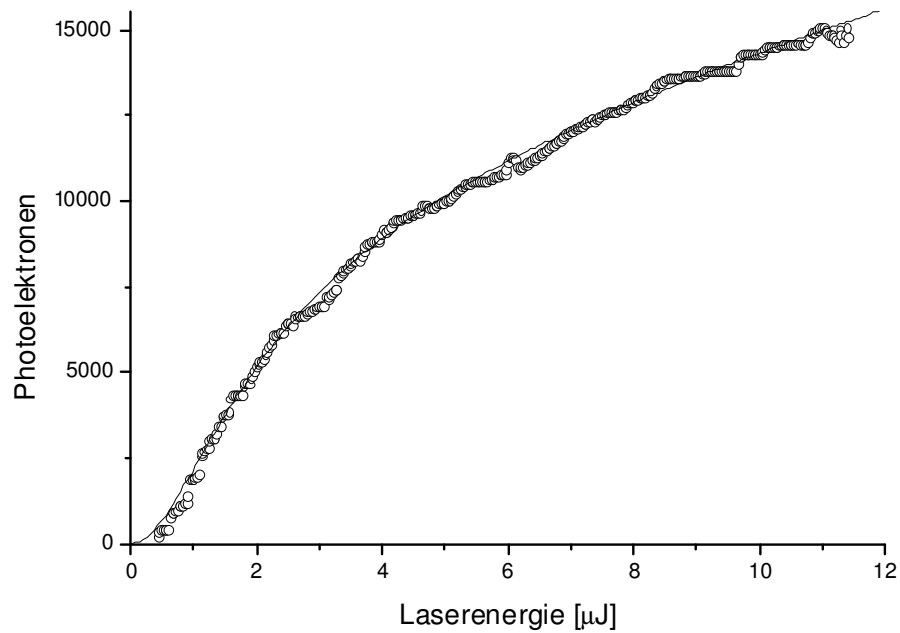


Abbildung 6.86: Mit Hilfe einer LabView-Anwendung konnten unter Verwendung der Gleichung 6.4 die gemessenen Signal-Laserenergie-Kurven angepasst werden. In dieser Abbildung wurde als Beispiel eine Auftragung für lineare Polarisation ausgewählt: Aufgetragen sind die gemessenen Photoelektronen als Funktion der Laserenergie im Falle des Threshold-Signals. Die gemessenen Daten sind in Form der kleinen Kreise dargestellt, die angepasste Kurve ist mit einer durchgezogenen Linie eingezeichnet.

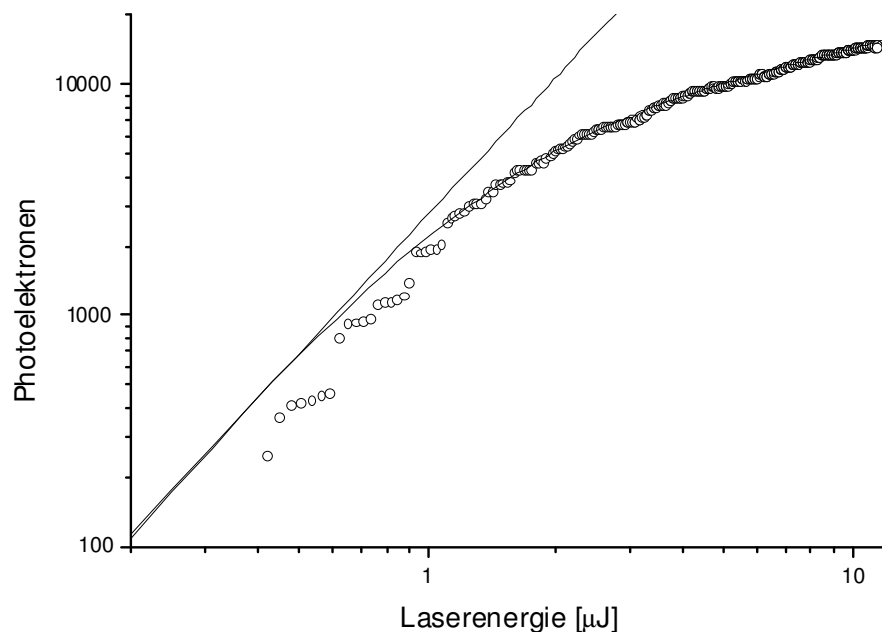


Abbildung 6.87: Diese Abbildung zeigt die selben Daten wie auch die selbe angepasste Kurve, die bereits in Abbildung 6.86 dargestellt wurden. Aufgetragen ist hier beides jedoch in doppeltlogarithmischer Form. Zusätzlich ist in die Abbildung eine Tangente mit der Steigung zwei eingefügt worden.

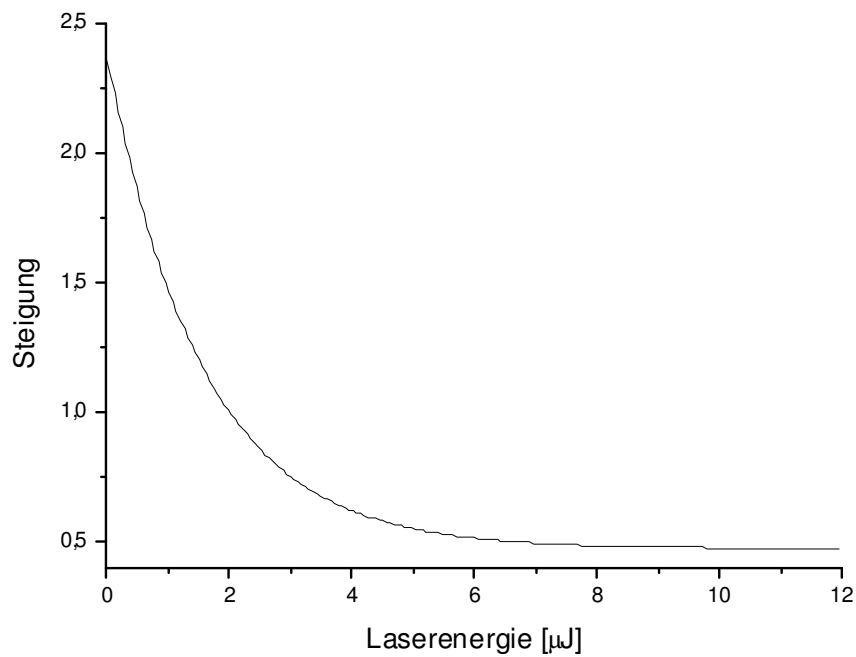


Abbildung 6.88: Grundlage dieser Abbildung sind erneut die selben Daten, welche bereits für die beiden vorherigen Abbildungen (6.86 und 6.87) von Bedeutung waren. Mit Hilfe des LabView-Programms wurden hierfür aber die einzelnen Steigungen in Abhängigkeit der Laserenergie berechnet und dargestellt.

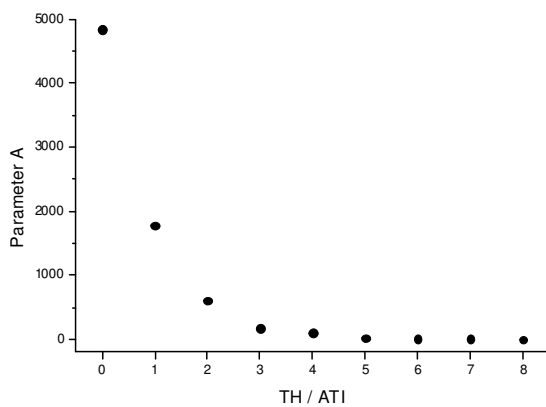


Abbildung 6.89: Der reduzierte Parameter A in Abhängigkeit des jeweiligen ATI- bzw. des Threshold-Signals, welcher hier und in den folgenden Abbildungen an der Abszisse mit einer 0 gekennzeichnet ist. Hier die Darstellung im Falle der Verwendung von linear polarisiertem Licht.

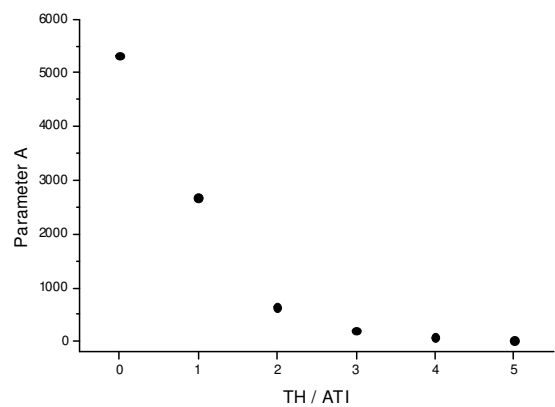


Abbildung 6.90: Ebenfalls der Parameter A in Abhängigkeit des jeweiligen ATI- bzw. des Threshold-Signals. Hier aber die Auftragung für zirkular polarisiertes Licht.



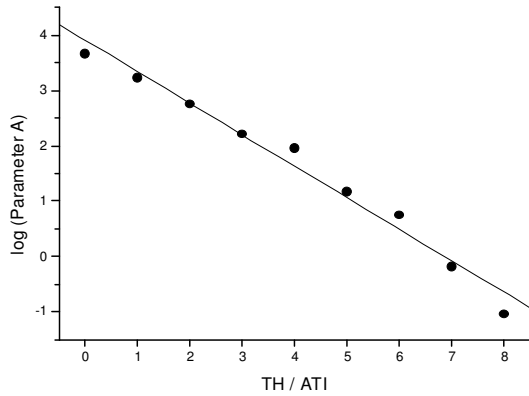


Abbildung 6.91: Doppeltlogarithmische Auftragung der bereits in Abbildung 6.89 zu sehenden Ergebnisse: Noch deutlicher als dort tritt hier die exponentielle Zunahme der Signalgröße von ATI-Signalen hoher Ordnung hin zum Threshold-Signal ins Auge.

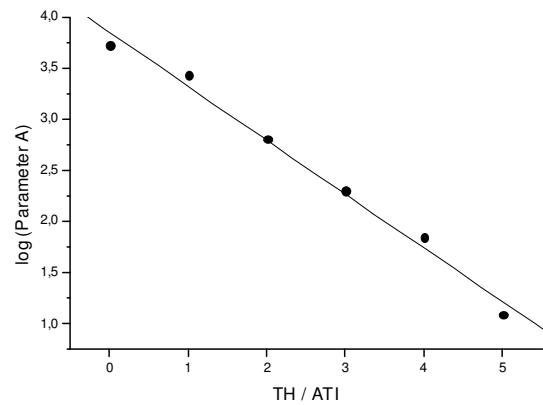


Abbildung 6.92: Auch für den „zirkular polarisierten Fall“ zeigt doppeltlogarithmische Auftragung die exponentielle Signalzunahme von rechts nach links.

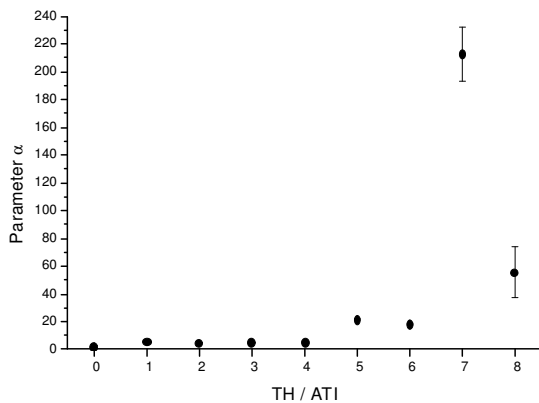


Abbildung 6.93: Der reduzierte Parameter  $\alpha$  in Abhängigkeit des jeweiligen ATI- bzw. des Threshold-Signals (lineare Polarisation des Laserlichts). Die ermittelten Werte, welche für ATI Nr. 7 und Nr. 8 ermittelt wurden, sollten auf Grund der geringen Datenmenge, welche in diesem Bereich zur Verfügung stand, mit einem Fragezeichen zur Kenntnis genommen werden

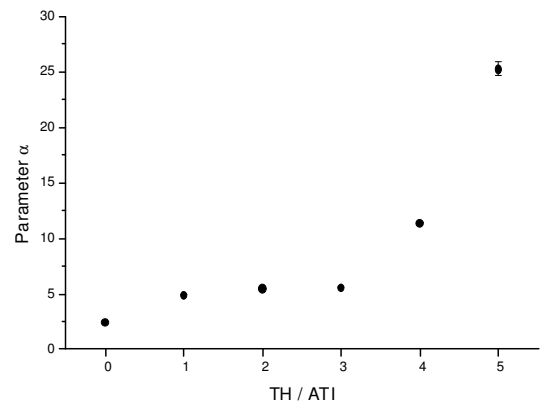


Abbildung 6.94: Der reduzierte Parameter  $\alpha$  in Abhängigkeit des jeweiligen ATI- bzw. des Threshold-Signals (zirkulare Polarisation des Laserlichts): Mit zunehmender ATI-Ordnung steigt der Wert für  $\alpha$  kontinuierlich an.

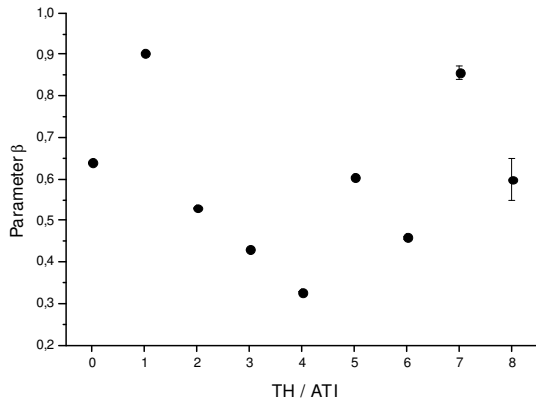


Abbildung 6.95: Der reduzierte Parameter  $\beta$  in Abhängigkeit des jeweiligen ATI- bzw. des Threshold-Signals (lineare Polarisation des Laserlichts).

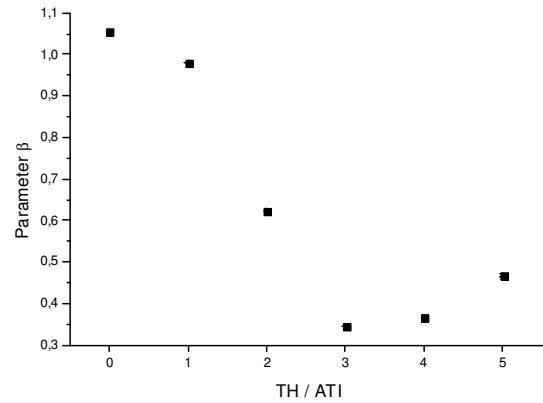


Abbildung 6.96: Der reduzierte Parameter  $\beta$  in Abhängigkeit des jeweiligen ATI- bzw. des Threshold-Signals (zirkulare Polarisation des Laserlichts).

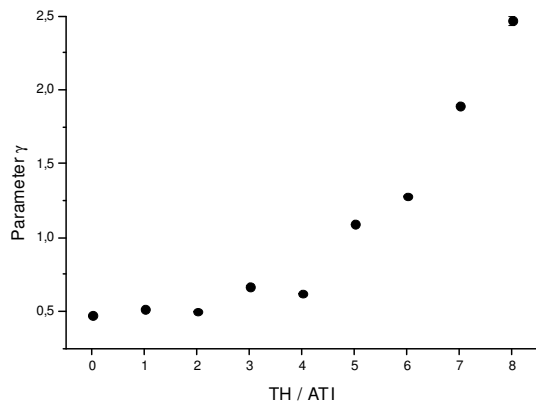


Abbildung 6.97: Der reduzierte Parameter  $\gamma$  in Abhängigkeit des jeweiligen ATI- bzw. des Threshold-Signals (lineare Polarisation des Laserlichts): Für den Threshold wie auch für die beiden ersten ATIs besitzt  $\gamma$  einen Wert um 0,5. Hin zu ATIs höherer Ordnung wächst  $\gamma$  an, da in diesem Bereich noch keine Sättigung des Signals vorliegt.

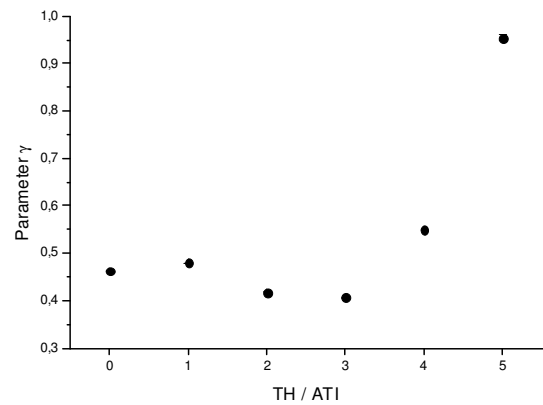


Abbildung 6.98: Der reduzierte Parameter  $\gamma$  in Abhängigkeit des jeweiligen ATI- bzw. des Threshold-Signals (zirkulare Polarisation des Laserlichts): Auch hier bleibt  $\gamma$  zunächst konstant, für höhere ATIs steigt der Parameter an.

In den Abbildungen 6.89 bis 6.98 werden die Größen der reduzierten Parameter  $A$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  in Abhängigkeit des betrachteten Signalbereichs (Threshold, 1. ATI, 2. ATI, ...) abgebildet. In der Motivation für die Gleichung 6.4 wurde bereits auf die einzelnen Bedeutungen der reduzierten Parameter  $A$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  eingegangen: Der Parameter  $A$  übt hauptsächlich einen Einfluss auf die Amplitude des Signals und somit auf den Endwert, den die Funktion (bei hohen Laserenergien) besitzt, aus. Addiert man die Parameter  $\alpha$  und  $\gamma$  erhält man die Steigung zu Beginn der Funktion (bei verschwindender Laserenergie,  $n(0)$ ), während der Parameter  $\gamma$  allein den Endwert der Steigung (bei maximaler Laserenergie,  $n(\infty)$ ) angibt. Der Parameter  $\beta$  hingegen vermittelt als Bestandteil der Exponentialfunktion im Integral zwischen Anfangs- und Endbereich der Funktion. Die Abbildungen 6.89 bis 6.92 veranschaulichen uns die Entwicklung des Parameter  $A$  als Funktion des betrachteten Above-Threshold-Ionisation-Signals. Wenn an der Abszisse  $TH / ATI$  in Werten von 1 bis 8 aufgetragen sind, dann ist mit 0 der Ort für den Wert des Threshold Signals gemeint, mit 1 der Ort für den Wert des 1. ATI-Signals, usw.. Erneut wurden die gesammelten Daten, welche mit Hilfe von linear polarisiertem Licht (linke Spalte) aufgenommen wurden, denen, die mit zirkular polarisiertem Licht (rechte Spalte) entstanden sind, gegenübergestellt. Bereits durch die lineare Auftragung in den Abbildungen 6.89 und 6.90 wird deutlich, dass die Signalgröße von höheren ATIs hin zu niedrigeren bzw. hin zum Threshold exponentiell anwächst, durch die logarithmischen Auftragungen in den Abbildungen 6.91 und 6.92 wird dies zusätzlich hinlänglich veranschaulicht. Da die Summe der Parameter  $\alpha$  und  $\gamma$  (wie oben erwähnt) für die Steigung der Funktion im Bereich niedriger Laserenergien charakteristisch sein soll, sollte man mit zunehmender ATI-Ordnung (also mit zusätzlicher Photonenzahl, welche für die Freisetzung eines Elektrons benötigt wird) ein Anwachsen des Parameters  $\alpha$  verzeichnen können, was durch die Abbildungen 6.93 und 6.94 auch angezeigt wird. Die Abbildungen 6.95 und 6.96 eröffnen uns einen Blick auf den Parameter  $\beta$ . Dieser ist in einem engen Wertebereich vorzufinden (0,2 bis 1,1). Der Parameter  $\gamma$  (Abbildungen 6.97 und 6.98) sollte im Fall der Sättigung für alle ATIs (bzw. den Threshold) einen gleich hohen Wert besitzen. Da allerdings bei den höheren ATIs noch keine Sättigung eingetreten ist, steigt der Wert für den Parameter weiter an. Sämtliche ermittelten Parameterwerte sind inkl. ihrer statistischen Fehler in den Tabellen 6.1 (lineare Polarisation) und 6.2 (zirkulare Polarisation) aufgelistet.

Da allerdings zur Ionisation der Kaliumatome ein realer Betrag der Laserenergie benötigt wird (und nicht eine verschwindend geringe Laserenergie, wie sie für den Fall  $n(0)$  Voraussetzung wäre, interessieren uns die Laserenergien, bei welchen die Steigung  $n$  die Werte annimmt, die wir zu Beginn dieses Kapitels unter Zuhilfenahme der Gleichung (6.3) angenommen haben. Durch Umstellung der Gleichung (6.13) in die Gleichung

$$E_{\text{Laser}} = - \left( \ln \frac{n - \gamma}{\alpha} \right) / \beta \quad (6.18)$$

lassen sich unter Verwendung der reduzierten Parameter  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$ , die Laserenergien für die Steigungen 2 (Threshold), 3 (1. ATI), 4 (2. ATI), usw. ermitteln. In der Tabelle 6.3 sind diese Energien aufgelistet. Diese quantitativen Ergebnisse entsprechen sehr gut den qualitativen, die in den Abbildungen 6.84 und 6.85 dargestellt sind.

	$A$	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$ $= n(\infty)$	$\alpha + \gamma$ $= n(0)$
Threshold	4837,23 $\pm 0,004$	1,912 $\pm 0,0001$	0,639 $\pm 0,0002$	0,471 $\pm 0,0003$	2,383 $\pm 0,0004$
1. ATI	1778,08 $\pm 0,002$	5,580 $\pm 0,0001$	0,903 $\pm 0,001$	0,514 $\pm 0,001$	6,094 $\pm 0,004$
2. ATI	601,65 $\pm 0,02$	4,849 $\pm 0,0005$	0,531 $\pm 0,0003$	0,499 $\pm 0,0001$	5,348 $\pm 0,0006$
3. ATI	173,61 $\pm 0,04$	5,029 $\pm 0,002$	0,430 $\pm 0,0001$	0,667 $\pm 0,001$	5,696 $\pm 0,003$
4. ATI	95,54 $\pm 0,15$	5,369 $\pm 0,008$	0,327 $\pm 0,0004$	0,619 $\pm 0,001$	5,988 $\pm 0,009$
5. ATI	15,52 $\pm 0,03$	21,73 $\pm 0,16$	0,604 $\pm 0,002$	1,090 $\pm 0,001$	22,82 $\pm 0,16$
6. ATI	5,88 $\pm 0,06$	18,17 $\pm 0,33$	0,460 $\pm 0,004$	1,280 $\pm 0,004$	19,45 $\pm 0,33$
7. ATI	0,673 $\pm 0,008$	212,9 $\pm 19,7$	0,857 $\pm 0,016$	1,893 $\pm 0,005$	214,8 $\pm 19,7$
8. ATI	0,096 $\pm 0,007$	55,8 $\pm 18,3$	0,598 $\pm 0,052$	2,470 $\pm 0,031$	58,3 $\pm 18,3$

Tabelle 6.1: Mit Hilfe eines LabView-Programms unter Einbeziehung der Gleichung 6.4 wurden die in dieser sowie in der Tabelle 6.2 zusammengefassten reduzierten Parameter ermittelt. Angegeben sind zusätzlich die statistischen Fehler, welche weit kleiner als die systematischen Fehler sind. In dieser Tabelle sind die reduzierten Parameter dargestellt, welche bei den Messungen mit linear polarisiertem Laserlicht ermittelt wurden.

	$A$	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$ $= n(\infty)$	$\alpha + \gamma$ $= n(0)$
Threshold	5322,11 $\pm 0,003$	2,507 $\pm 0,0001$	1,057 $\pm 0,0003$	0,463 $\pm 0,0002$	2,970 $\pm 0,0003$
1. ATI	2681,79 $\pm 0,004$	4,933 $\pm 0,001$	0,980 $\pm 0,001$	0,479 $\pm 0,001$	5,412 $\pm 0,002$
2. ATI	640,22 $\pm 0,02$	5,503 $\pm 0,001$	0,622 $\pm 0,0004$	0,417 $\pm 0,0002$	5,920 $\pm 0,001$
3. ATI	201,28 $\pm 0,22$	5,588 $\pm 0,005$	0,344 $\pm 0,0003$	0,406 $\pm 0,0004$	5,994 $\pm 0,005$
4. ATI	70,06 $\pm 0,38$	11,436 $\pm 0,054$	0,367 $\pm 0,001$	0,549 $\pm 0,002$	11,985 $\pm 0,056$
5. ATI	12,31 $\pm 0,20$	25,28 $\pm 0,65$	0,468 $\pm 0,005$	0,954 $\pm 0,006$	26,23 $\pm 0,65$

Tabelle 6.2: Die reduzierten Parameter, welche bei den Messungen mit zirkular polarisiertem Laserlicht ermittelt wurden.

	$n$	Energie [ $\mu J$ ]	
		linear	zirkular
Threshold	2	0,35	0,46
1.ATI	3	0,90	0,68
2.ATI	4	0,61	0,69
3.ATI	5	0,35	0,57
4.ATI	6	0,00	2,01
5.ATI	7	2,16	3,06
6.ATI	8	2,16	
7.ATI	9	3,97	
8.ATI	10	3,35	

Tabelle 6.3: Mit Hilfe der Gleichung 6.12 lassen sich unter Verwendung der reduzierten Parameter  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  für die Steigungen  $n = 2$  (Threshold),  $n = 3$  (1. ATI),  $n = 4$  (2. ATI) bis  $n = 10$  (8.ATI) die relevanten Laserenergien ermitteln.

## 6.4 Zusammenfassung

In diesem Kapitel wurde ein Experiment beschrieben, bei welchem mittels eines Pulses der 4p Zustand aus dem Grundzustand heraus angeregt wurde, das Kaliumatom sodann unverzüglich ionisiert wurde. Motiviert wurde dieses Experiment durch den Wunsch nach der Schaffung eines Referenzspektrenkataloges für den Fall der resonanten Anregung des 4p Zustandes. Der Fall der resonanten Anregung wurde bisher in Starkfeldexperimenten nur selten berücksichtigt, so dass durch das hier beschriebene Experiment neue Daten vorgelegt werden konnten. Die wesentlichen Erkenntnisse lassen sich wie folgt zusammenfassen:

Bei keiner der Messungen konnte ein ponderomotiver Shift beobachtet werden. Auf Grund der Erläuterung in Kapitel 2.3.2.3 ist dies bei der Ionisierung von Kalium nicht weiter verwunderlich. Dass hingegen bei der Ionisierung von Edelgasen wie Xenon ponderomotive Verschiebungen auftreten, konnte in [64] bereits hinreichend veranschaulicht werden.

Da für die Ionisierung des Kaliumatoms aus dem 4p Zustand 2 Photonen benötigt werden, erwartet man im starken Feld für geringe Laserenergien im Falle des Thresholds ein Ansteigen des Photoelektronensignals (in Abhängigkeit der Laserenergie) mit der Steigung  $n = 2$ . Für die folgenden Above-Threshold-Ionisationen wird sukzessive ein Photon mehr benötigt, so dass sukzessive die Steigung  $n$  um eins ansteigen sollte. Diese Anschauung wird durch die Abbildungen 6.84 und 6.85 qualitativ bestätigt.

Für hohe Laserenergien ( $E_{\text{Laser}} = 11,4 \mu\text{J}$ ) verringert sich für den Threshold wie auch für ATI 1 und 2 die Steigung auf einen Wert von ungefähr  $n = 0,5$ . Für die höheren ATIs ist hier  $n > 0,5$ . Die Laserenergie von  $E_{\text{Laser}} = 11,4 \mu\text{J}$  ist hier zu gering, um den Grenzwert  $n = 0,5$  zu erreichen.

Im Rahmen dieses Kapitels wurde das Steigungsverhalten der Photoelektronensignale (in Abhängigkeit der Laserenergie) auch quantitativ untersucht. Durch Fitten der Photoelektronensignalkurven mit Hilfe der Gleichung 6.4 wurden die so genannten reduzierten Parameter ermittelt, die folgend noch einmal aufgeführt werden:

	$A$	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$ $= n(\infty)$	$\alpha + \gamma$ $= n(0)$
Threshold	4837,23 $\pm 0,004$	1,912 $\pm 0,0001$	0,639 $\pm 0,0002$	0,471 $\pm 0,0003$	2,383 $\pm 0,0004$
1. ATI	1778,08 $\pm 0,002$	5,580 $\pm 0,0001$	0,903 $\pm 0,001$	0,514 $\pm 0,001$	6,094 $\pm 0,004$
2. ATI	601,65 $\pm 0,02$	4,849 $\pm 0,0005$	0,531 $\pm 0,0003$	0,499 $\pm 0,0001$	5,348 $\pm 0,0006$
3. ATI	173,61 $\pm 0,04$	5,029 $\pm 0,002$	0,430 $\pm 0,0001$	0,667 $\pm 0,001$	5,696 $\pm 0,003$

Tabelle 6.4: Auszug aus der Tabelle 6.1: Reduzierte Parameter im Falle der Verwendung von linear polarisiertem Laserlicht. Auf die Aufführung der Daten für die ATIs vierter bis achter Ordnung wurde hier verzichtet, da dort auf Grund der geringeren Signalstärke die statistische Sicherheit deutlich abnimmt. Es sei an dieser Stelle noch einmal darauf hingewiesen, dass hier nur die statistischen Fehler angegeben wurden. Diese sind weit kleiner als die systematischen Fehler.

	$A$	$\alpha$	$\beta$	$\gamma$ $= n(\infty)$	$\alpha + \gamma$ $= n(0)$
Threshold	5322,11 $\pm 0,003$	2,507 $\pm 0,0001$	1,057 $\pm 0,0003$	0,463 $\pm 0,0002$	2,970 $\pm 0,0003$
1. ATI	2681,79 $\pm 0,004$	4,933 $\pm 0,001$	0,980 $\pm 0,001$	0,479 $\pm 0,001$	5,412 $\pm 0,002$
2. ATI	640,22 $\pm 0,02$	5,503 $\pm 0,001$	0,622 $\pm 0,0004$	0,417 $\pm 0,0002$	5,920 $\pm 0,001$
3. ATI	201,28 $\pm 0,22$	5,588 $\pm 0,005$	0,344 $\pm 0,0003$	0,406 $\pm 0,0004$	5,994 $\pm 0,005$

Tabelle 6.5: Auszug aus der Tabelle 6.2: Reduzierte Parameter im Falle der Verwendung von zirkular polarisiertem Laserlicht. Auch hier wurde auf die Aufführung der Daten für die ATIs höherer Ordnung verzichtet. Die angegebenen Fehler sind auch hier lediglich die statistischen.

Die ermittelten Ergebnisse, zum einen für hohe Laserenergien ( $n(\infty) = \gamma \approx 0,5$ ), zum andern für niedrige Laserenergien (siehe Tabelle 6.3) entsprechen sehr gut den qualitativ ermittelten Ergebnissen (Abbildungen 6.84 und 6.85).

Neben dem Steigungsverhalten des Photoelektronensignals (in Abhängigkeit der Laserenergie) lag der zweite Schwerpunkt des Experimentes auf der Entwicklung des Autler-Townes-Doublets in Abhängigkeit der Laserenergie. Eine Verbreiterung der Aufspaltung des Autler-Townes-Doublets kann für den Threshold bis zu einer maximalen Laserenergie von  $E_{\text{Laser}} = 0,6 \mu\text{J}$  ( $7 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$ ) beobachtet werden. Der folgenden Tabelle ist die maximale Aufspaltung des Autler-Townes-Doublets zu entnehmen:

	$\hbar\Omega_{TH}$
linear polarisiertes Laserlicht	$0,25 \pm 0,03 \text{ eV}$
zirkular polarisiertes Laserlicht	$0,28 \pm 0,03 \text{ eV}$

Tabelle 6.6: Bei einer Laserenergie  $E_{\text{Laser}} = 0,6 \mu\text{J}$  wird die maximale Aufspaltung des Autler-Townes-Doublets erreicht. In dieser Tabelle ist diese für den Fall der Verwendung von linear und zirkular polarisiertem Laserlicht angegeben.

## Kapitel 7

### Zusammenfassung

Gegenstand dieser Dissertation sind Ultrakurzzeitexperimente im Bereich der kohärenten Kontrolle im schwachen wie auch im starken Feld. Untersucht wurde am Modellsystem Kaliumatom die resonanzunterstützte Anregungs- und Ionisationsdynamik mit Hilfe der Photoelektronenspektroskopie. Die Kaliumatome wurden mittels eines Atomstrahles (Kapitel 4 und 5) bzw. mit Hilfe von Dispensern (Kapitel 6) ins Vakuum entlassen. Angeregt und ionisiert wurden sie mit Hilfe von Femtosekundenlaserpulsen (mit einer Pulslänge  $\leq 30$  fs). Die Flugzeiten der durch Ionisation freigesetzten Photoelektronen wurden mit Hilfe einer magnetischen Flasche detektiert und in ihre kinetischen Energien umkalibriert. Drei Experimente werden in dieser Arbeit beschrieben. Während eingangs (Kapitel 4) ein Experiment thematisiert wird, welches im schwachen Feld verwirklicht wurde, fällt der Blick in Kapitel 5 und 6 auf das starke Laserfeld, welches jenseits des störungstheoretischen Regimes liegt und wo ein dediziertes physikalisches Verständnis bislang nur eingeschränkt zur Verfügung stand.

Im schwachen Feld (Experiment 1, Kapitel 4) waren Interferenzen von freien Elektronenwellenpaketen das Thema: Mit Hilfe eines Analogons zu Thomas Youngs Doppelspaltexperiment [6, 82, 83] wurde demonstriert, dass Kohärenzeigenschaften von Femtosekundenlaserpulsen auf Elektronenwellenpakete, welche sich im Kontinuum befinden, übertragbar sind. Eine Beschreibung der Experiments wurde unter dem Titel „Interferences of ultrashort free electron wave packets“ in *Physical Review Letters* 89, 173001 (2002) veröffentlicht.

Als Referenzsystem für das Verständnis der Starkfeldkontrolle interessierte das Autler-Townes-Doublet im Photoelektronenspektrum des Kaliumatoms. Zunächst (Experiment 2, Kapitel 5) wurde gezeigt, dass sowohl durch das starke Laserfeld, als auch auf Grund der optische Phase zweier Laserpulse, die quantenmechanische Phase eines Atomzustandes gleichermaßen manipuliert werden kann. In *Physical Review A* 68 015401, 2003 wurde das Experiment unter dem Titel „Control of interferences in an Autler-Townes doublet: Symmetry of control parameters“ der Öffentlichkeit zugänglich gemacht. Das aufgezeigte Experiment liefert die Basis für ein in unseren Laboratorien entwickeltes völlig neuartiges Starkfeldkontrollscenario, welches „Selective Population Of Dressed States“ (SPODS) getauft wurde [94]. SPODS ist ein transientes Kontrollscenario. Die Kontrolle der



Quantendynamik erfolgt somit unmittelbar während der Wechselwirkung mit dem Lichtfeld. Eine Trennung von Quantensystem und Anregungsfeld ist daher nicht mehr sinnvoll. Für eine adäquate Beschreibung wird in das System der (Feld-)bekleideten Zustände übergewechselt [22]. Die Kontrolle der Besetzungen von diesen ist die wesentliche Voraussetzung für die Kontrolle von transienten Prozessen, wie sie in starken Laserfeldern so typisch sind. Durch die Verwendung von starken Feldern in Form geformter Femtosekundenlaserpulse ist SPODS ein ultraschneller, abstimmbarer sowie selektiver Starkfeldkontrollmechanismus. Bezüglich SPODS sind bislang die folgenden Veröffentlichungen publiziert worden:

M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert: Quantum control and quantum control landscapes using intense shaped femtosecond pulses, *Journal of Modern Optics*, Vol. 52, No. 16 2187-2195, 2005.

M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert: Strong field quantum control by selective population of dressed states, *Journal of Optics B - Topical Issue on Quantum Control*, Vol. 7, 270 – 276, 2005.

M. Wollenhaupt, D. Liese, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert: Quantum control by ultrafast dressed states tailoring, *Chemical Physics Letters* 419, 184-190, 2006.

M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert: Quantum control by selective population of dressed states using intense chirped femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. B* 82, 183 – 188, 2006.

M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Bayer, T. Baumert: Femtosecond strong-field quantum control with sinusoidally phase-modulated pulses, *Phys. Rev. A* 73, 063409-1-15, 2006.

Zurzeit werden die Untersuchungen mittels SPODS in unseren Laboratorien auf komplexere molekulare Systeme ausgedehnt.

Im dritten Experiment (Kapitel 6) wurde der Starkfeldbereich auf eine Laserintensität über  $3 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  ausgedehnt! Beginnend mit  $I = 1 \cdot 10^{11} \text{ W/cm}^2$  bis zur eben angegebenen größten Intensität wurde mittels linear wie auch zirkular polarisiertem Laserlicht das Kaliumatom bei einer Vielzahl von Messungen ionisiert. Mit Hilfe der gemessenen Photoelektronenspektren wurde in Abhängigkeit der Laserintensität die Aufspaltung des Autler-Townes-Doublets vermessen. Zudem wurden unter Einbeziehung des schwachen und des starken Feldes Steigungsanalysen der Schwell- sowie der Above-Threshold-Ionisation-Photoelektronenausbeute erstellt. Im Gegensatz zu Starkfeldexperimenten an nicht resonanten Systemen (z. B. Xenon), war der Fall der resonanten Anregung bislang weitgehend ununtersucht. Für die resonante Anregung zeigt diese Arbeit somit erstmals einen Referenzdatensatz.

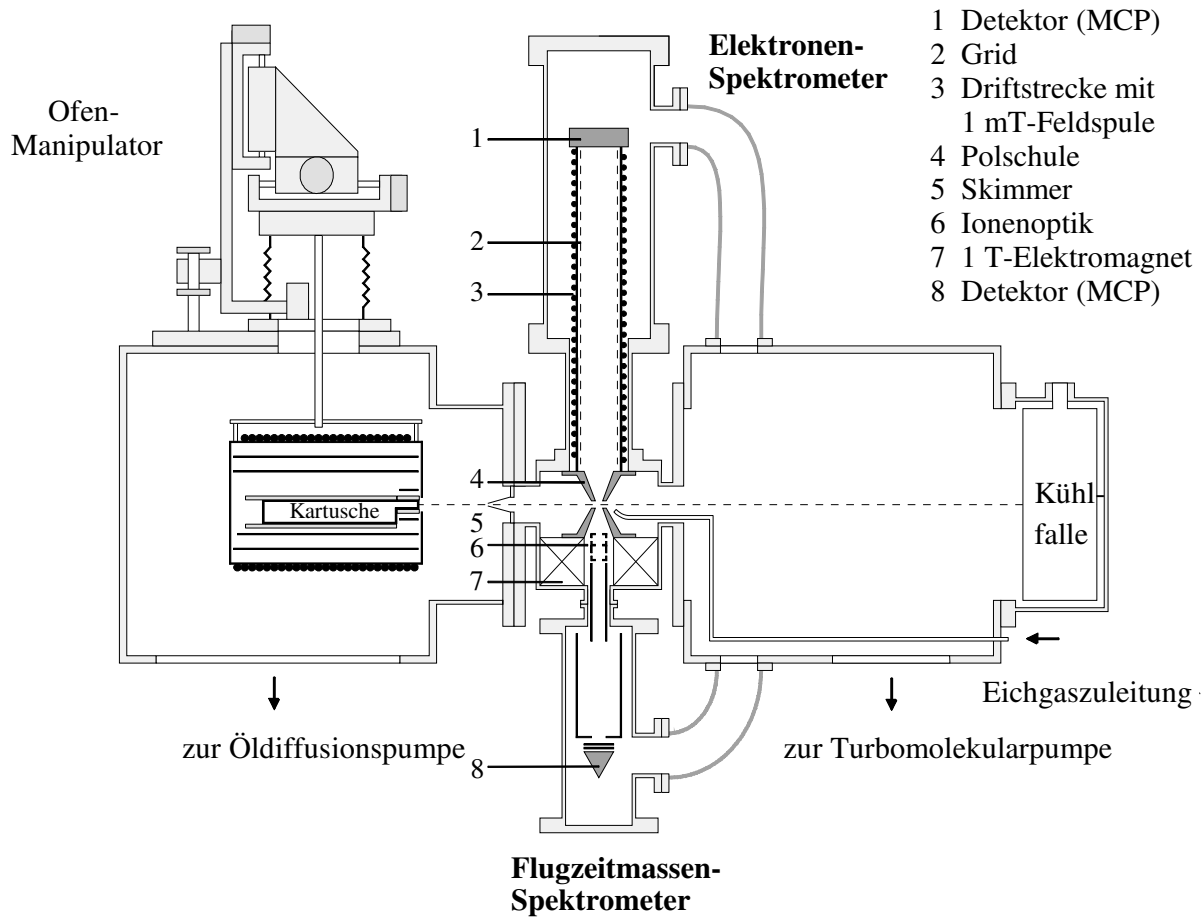
## Anhang A

# Die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS

## Detaillierte Beschreibung, Betriebsparameter

### A.1 Gesamtüberblick

Die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS besteht aus zwei differentiell evakuierbaren Kammern. Der Strahlpräparationskammer (oder Ofenkammer) und der Hauptkammer. Im wesentlichen handelt es sich dabei um zwei Würfel mit Kantenlängen (innen) von jeweils 400 mm. Die Edelstahlwandungen sind 15 mm stark. Zwischen den beiden Kammern befindet sich die Spektrometereinheit. Sie wird über einen 250-ISO-K-Flansch sowie über zwei 63-ISO-K-Wellschläuche (jeweils verbunden mit einem der zwei Spektrometer) von der Hauptkammerseite aus bepumpt. Das Wechselwirkungsgebiet ist mit einer Durchföhrung zur magnetischen Flasche (Elektronen-Spektrometer (TOF)) und einer zum Flugzeitmassenspektrometer verbunden. Mit Hilfe eines Manipulators der Firma VA-TEK kann der sich in der Strahlpräparationskammer befindende Ofen samt Alkalimetallkartusche und somit der durch diese generierte Atom- bzw. Molekularstrahl justiert werden. Zwischen der Strahlpräparationskammer und der Spektrometereinheit befindet sich ein beheizbarer Skimmer (ca. 200°C, um Verschlüsse zu verhindern) mit einer Länge von 30 mm und einem Öffnungsdurchmesser von einem mm. Der Öffnungswinkel beträgt 33°. Durch diesen Skimmer können die äußeren turbulenten Randgebiete des Überschallatom- bzw. Molekularstrahles von den inneren abgeschält werden. Bei Bedarf kann dieser Skimmer durch einen mit gleicher Länge und gleichem Öffnungswinkel aber anderem Öffnungsdurchmesser ersetzt werden. Wahlweise kann an dieser Stelle auch eine Blende eingesetzt werden. In einem Abstand von etwa 50 mm passiert der Überschallstrahl einen weiteren kleineren Skimmer, der die dann folgenden Polplatten vor zu starken Verunreinigungen schützen soll. Am Ende der Hauptkammer besitzt die Anlage eine Kühlfalle, welche mit flüssigen Stickstoff befüllbar ist. Sie dient zur Verbesserung des Druckes, wie auch zum „Ausfrieren“ des Atom- bzw. Molekularstrahles. Abbildung A.1 zeigt eine Grundskizze der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS, Abbildung A.2 zeigt eine schematische Darstellung, aus welcher verschiedene Diameter innerhalb der beiden Kammern hervorgehen.



**Strahlpräparationskammer    Spektrometereinheit    Hauptkammer**

Abbildung A.1: Grundskizze der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS

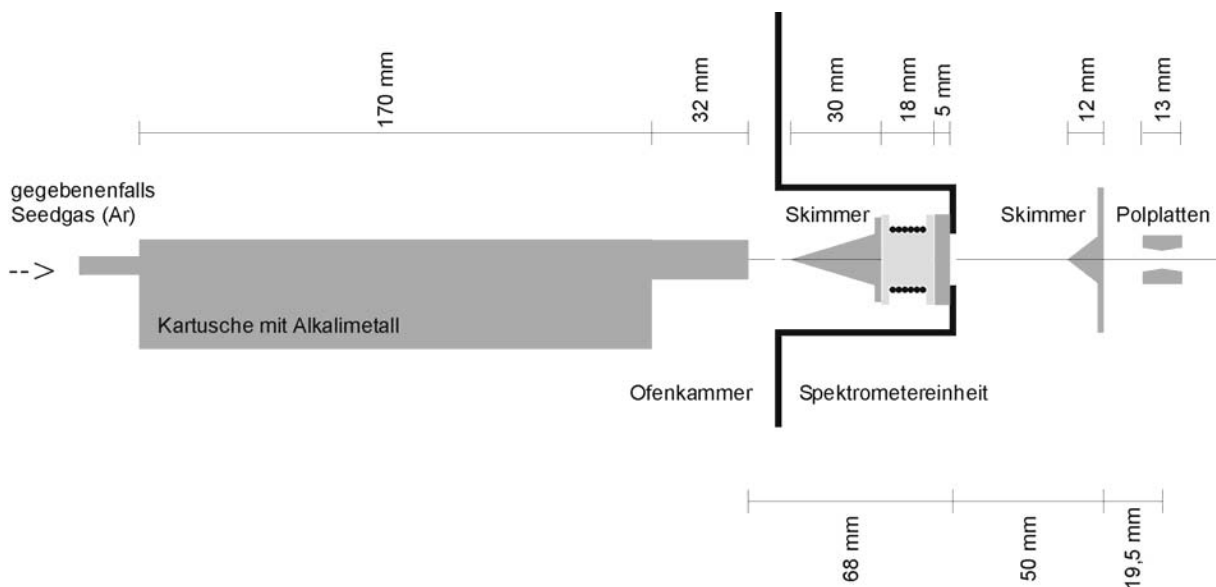


Abbildung A.2: Verschiedene Durchmesser innerhalb der Apparatur

## A.2 Pumpen, Ventile und Druckmessung

Für die Erzeugung des Hochvakuums, ein Druck bis minimal  $10^{-7}$  mbar kann erzeugt werden, sorgt eine Öldiffusionspumpe vom Typ Varian VHS-10 (zur Evakuierung der Strahlpräparationskammer) und eine Turbomolekularpumpe vom Typ Varian V 550 (zur Evakuierung der Hauptkammer und der Spektrometereinheit). Die Öldiffusionspumpe hat eine Saugleistung von 5300 l/s. In ihr wird das Pumpenöl Diffilen (von Leybold) verwendet. Dieses Öl neigt beim Pumpen von Alkalimetallen nicht zur Bildung von Polymeren. Auf Grund der katalytischen Wirkung der Alkalimetalle, kann dies bei anderen Pumpenölen (z.B. Varian DC-704) möglich sein. Die klebrige Polymere sind nur sehr schwer aus der Pumpe entfernbar. Vorgepumpt wird die Diffusionspumpe von einer zweistufigen Drehschieberpumpe (Varian CD-1400 [baugleich mit Alcatel 2063C], 65 m<sup>3</sup>/h Saugleistung) und einer Rootspumpe (Alcatel RSV 301, 300 m<sup>3</sup>/h Saugleistung). Die Turbomolekularpumpe besitzt eine Saugleistung von 550 l/s, vorgepumpt wird diese von einer Drehschieberpumpe, Typ Varian CD-700 (baugleich mit Alcatel 2033C), welche eine Saugleistung von 35 m<sup>3</sup>/h besitzt. In den beiden Drehschieberpumpen sowie in der Rootspumpe kommt das halbsynthetische Öl Anderol 555 (deutscher Vertreiber: Solvatis) zum Einsatz, mit welchem man ohne Probleme Alkalimetalle wie Natrium und Kalium sowie organische Verbindungen wie Jodmethan pumpen kann, welches aber im Vergleich zu synthetischen Ölen wie Fomblin um ein vielfaches billiger ist. In den Drehschieberpumpen finden Ölfiler vom Typ Mann Filter W712 (Gewinde:  $\frac{3}{4}$  16UNF) Verwendung.

Die Messung des Hochvakuumdruckes erfolgt mit zwei Kaltkathoden-Ionisationsmeßröhren des Typs Varian 525 (jeweils eine in der Strahlpräparationskammer und eine in der Hauptkammer) und einer Kaltkathoden-Ionisationsmeßröhre vom Typ Balzers IKR 010 (in der Hauptkammer). Die Varian-Kaltkathoden-Ionisationsmeßröhren müssen des öfteren gereinigt werden, da diese leicht verschmutzen und dann einen zu niedrigen Druck anzeigen. Die Messung des Vordruckes erfolgt mit Hilfe zweier Pirani-Manometer (vom Typ Varian 531).

An der MaBoS-Maschine kommen fünf verschiedene Ventiltypen zum Einsatz: Varian-Ventile zum Absperren von Wellschläuchen, die zu ISO-KF-Flanschen führen, ein Cetec-Ventil, welches am Ausgang der Diffusionspumpe in Richtung Rootspumpe sitzt, sowie drei Ventilarten, welche die Firma Hoke herstellt und mit welchen man den Gasfluß durch 6 mm-Gyrolok-Rohre regeln kann. Diese sind das Hoke Nadelventil 3712G6Y/MM, das Hoke Dosierventil Milli-Mite 1315G6Y/MM und das Hoke Dosierventil Micromite 1656G6YA/MM. Auf den beiden Abbildungen A.3 und A.4 sieht man, für welchen Zweck welches Ventil verwendet wird. Abbildung A.3 zeigt in MaBoS-Seitenansicht wo die Varian-Ventile bzw. das Cetec-Ventil sitzen. Abbildung A. 4 zeigt in MaBoS-Draufsicht wo die Hoke-Ventile sitzen. Im Normalbetrieb sind das Cetec-Ventil (12) und die Varian-Ventile 22 und 2 offen. Die Varian-Ventile 14 und 23 sind im Normalbetrieb geschlossen.

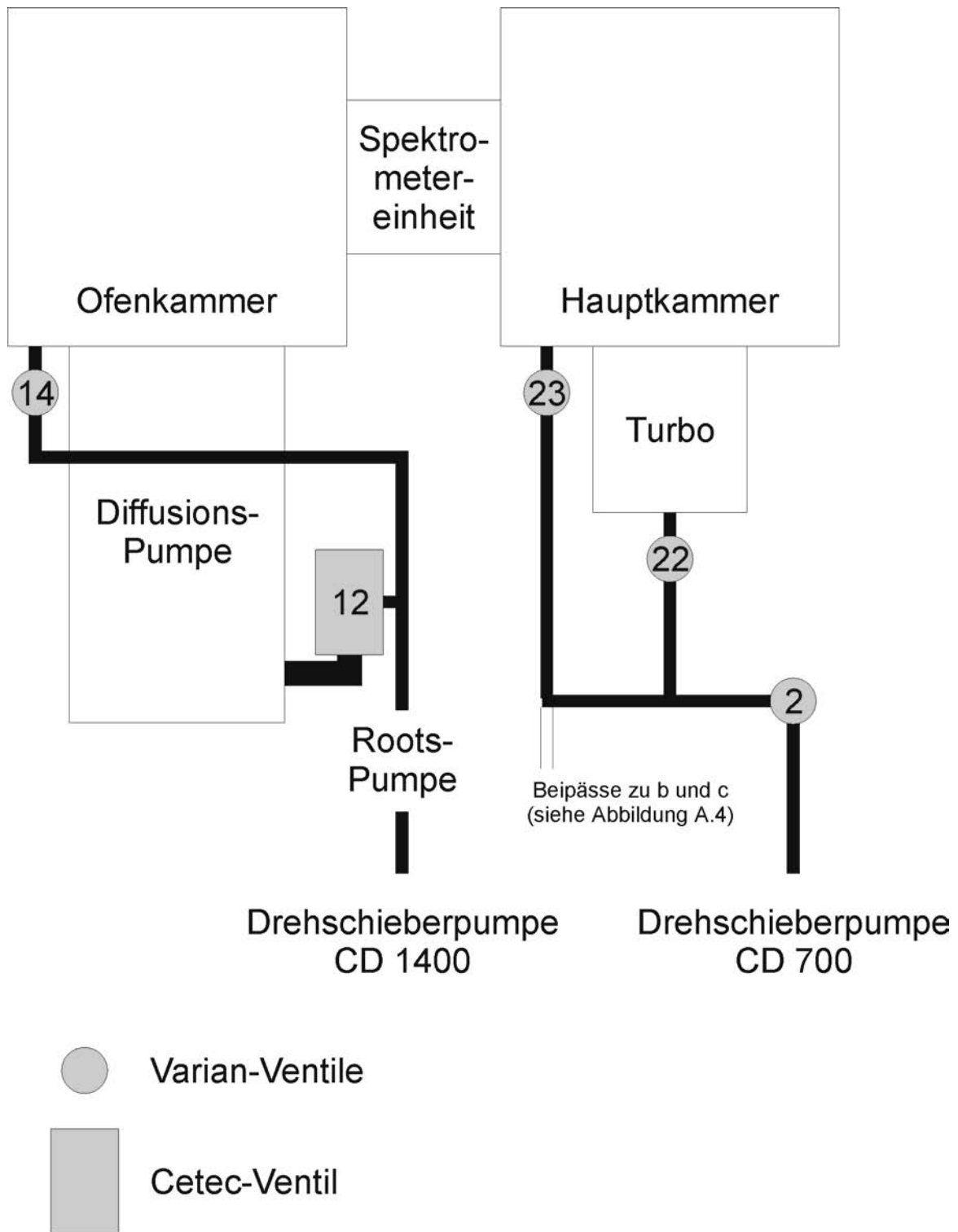
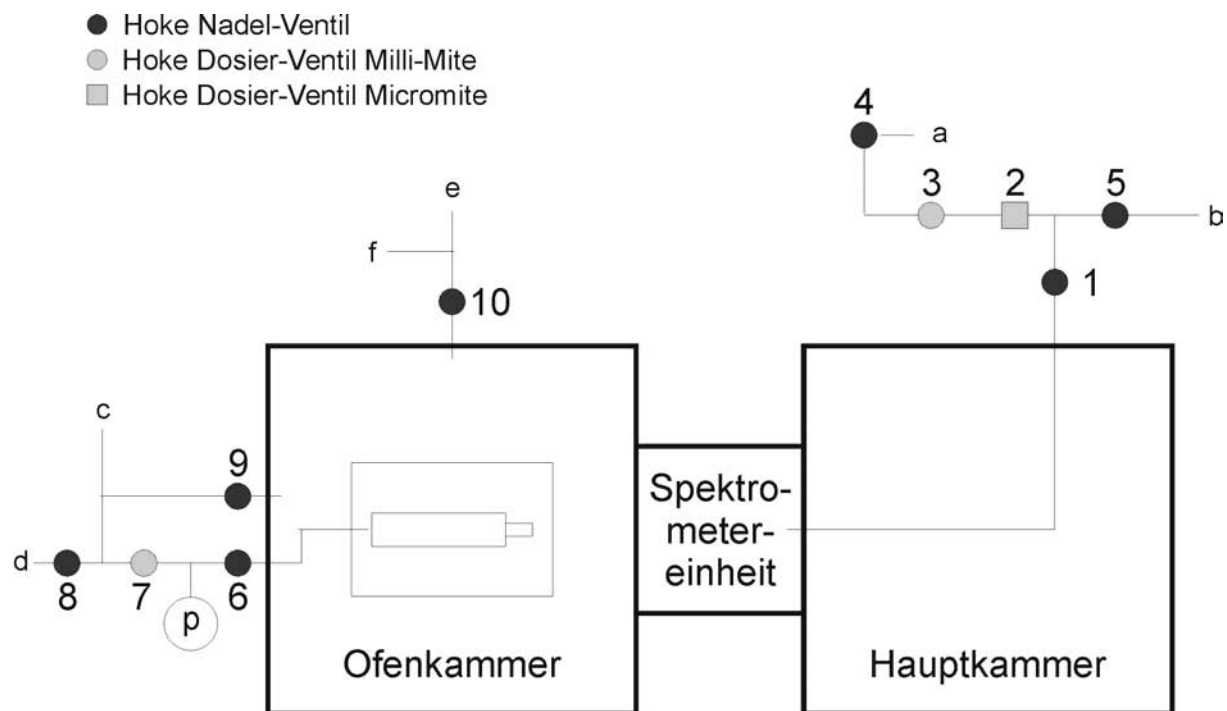


Abbildung A.3: Die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS in Seitenansicht. Abgebildet sind die Verwendung findenden Ventile der Firma Varian und der Firma Cetec. Im Normalbetrieb sind das Cetec-Ventil (12) und die Varian-Ventile (22) und (2) geöffnet. Die Varian-Ventile (14) und (23) öffnen Bypässe zwischen den Hauptkammern sowie den Vorpumpen.



Xenoneinlaß:

- 1 Hauptventil
- 2 Dosierventil (Micromite)
- 3 Dosierventil (Milli-Mite)
- 4 Flaschenabspernung
- 5 Bypassventil (Vordruck)

- a zur Xenonflasche
- b Bypass zur CD-700

Argoneinlaß:

- 6 Hauptventil
- 7 Dosierventil
- 8 Bypassventil (Vordruck)
- 9 Bypassventil (Hauptdruck)

- c zur Argonflasche
- d Bypass zur CD-700

Stickstoffeinlaß:

- 10 Stickstoffeinlaßventil

- e zur Stickstoffflasche
- f zu beiden Vorpumpen (Belüftung)

Abbildung A.4: Die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS in Draufsicht. Eingezeichnet sind die einzelnen Ventile der Firma Hoke, welche in der Apparatur Verwendung finden. Verbunden (dünne Linien) sind die einzelnen Ventile mit Edelstahlrohren mit einem Außendurchmesser von 6 mm.

### A.3 Atom- und Molekularstrahlofen

Der Molekularstrahlofen ist baugleich mit dem, der von R. Möller [69] an der Universität Freiburg entwickelt worden ist. Im Inneren besteht er aus zwei separaten zylindrischen Keramikkörpern (Alsint 99.7), welche von der Firma Haldenwanger, Berlin hergestellt wurden. (Weitere mögliche Hersteller solcher Keramiken sind Friatec AG in Mannheim, Sembach in Lauf oder M.E. Schupp in Aachen.) Der größere der beiden Keramikkörper, der im Betrieb die Edelstahlkartusche mit dem Alkalimetall in sich aufnimmt, ist 190 mm lang, hat einen Innendurchmesser von 37,5 mm, sowie einen Außendurchmesser von 47,5 mm. Der kleinere Keramikkörper, in welchem im Betrieb der Düsenzylinder sitzt, hat eine Länge von 30,5 mm, einen Innendurchmesser von 13,5 mm sowie einen Außendurchmesser von 25,5 mm (bzw. 23,5 mm). In den Mänteln der Keramikkörper sind in Längsrichtung Bohrungen eingefügt, in welchen die beiden Heizwicklungen durchgeführt sind. Im großen Keramikkörper gibt es 18 Bohrungen, im kleinen 20 Bohrungen. Die Heizwicklungen bestehen aus Tantal-Draht (Goodfellow oder Advent, Ta-Draht gegläht, Durchmesser 0,5 mm). Die Abbildungen A.5 und A.6 zeigen Skizzen der beiden Keramikkörper. Die zylinderförmige Edelstahlkartusche sowie der auf dieser aufgesetzte Zylinder mit Düsenplättchen (siehe unter Anhang A.3.1) können durch die beiden Heizkeramiken getrennt beheizt werden. Dies ist sinnvoll, da es hierdurch möglich ist die Düse im Gegensatz zur Kartusche stärker zu beheizen, was ein Verstopfen der Düse verhindern kann. Eine Temperaturdifferenz von 50 bis 100°C hat sich als sinnvoll erwiesen. Die maximal erreichbare Ofentemperatur liegt bei 700°C. Zur Wärmeabschirmung sind die Keramikkörper von drei konzentrischen Edelstahlabschirmungen umgeben. Sie werden von einem wasserdurchflossenen Messingmantel gekühlt. Ein Manipulator (Firma VA-TEC) ermöglicht es, den Ofen bei evakuierter Vakuumapparatur bis zu einem Zentimeter in jede Raumrichtung zu verschieben. Ebenfalls ermöglicht er es, den Ofen um bis zu 5° in horizontaler und vertikaler Ebene zu kippen. Eine Nachjustierung des Ofens ist somit möglich.

#### A.3.1 Alkalimetallkartuschen

Die in der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS verwendeten Edelstahlkartuschen werden mit Ausnahme der Düsenplättchen in der universitätseigenen mechanischen Werkstatt hergestellt. Die genauen Maße der Kartuschen können der Abbildung A.7 entnommen werden. Die Düsenplättchen werden von der Firma Wetzell Gröbzig Micro Products in Gröbzig bezogen. Je nach Experiment werden zwei unterschiedliche Typen verwendet. Beide verwendeten Typen haben einen Plättchendurchmesser von 11 mm bei einer Plättchenstärke von 1,5 mm, in beide Typen ist in die Mitte der kreisförmigen Oberfläche eine Vertiefung in Form eines Kegels hereingearbeitet. Der Öffnungswinkel dieses Kegels beträgt 90°. An der Spitze dieser kegelförmigen Vertiefung beginnt ein Kanal der bis zum Mittelpunkt der gegenüberliegenden Düsenplättchenoberfläche verläuft. Die Länge dieses Kanals beträgt 250 µm. Unterscheiden tun sich die beiden Düsenplättchentypen nur im Durchmesser dieses Kanals: Typ 1, der besonders in Experimenten am Kaliumatom sowie am Natriumdimer seinen Einsatz findet, hat einen Durchmesser von 200 µm, Typ 2, welcher bei Experimenten am Kaliumdimer eingesetzt wird, besitzt einen Durchmesser von 100 µm. Eine Darstellung des Düsenplättchens findet sich in Abbildung A.8. Die Düsenplättchen werden von Wetzell Gröbzig aus der Edelstahllegierung 1.4571 (V4A) hergestellt. Um Düsenverschlüssen vorzubeugen (besonders beim kritischen Kaliumdimerexperiment) empfiehlt es sich die Kartuschen ebenfalls aus diesem Material herstellen zu lassen. In Verwendung sind aber auch Kartuschen aus 1.4301 (V2A). Zum internen Gebrauch wurde in jeder Kartusche eine sechsstelliger Schlüssel eingestanzt, welche diese spezifiziert: Die erste Ziffer gibt die Größe der Düsenöffnung an. Hierbei steht 1 für einen Düsendurchmesser von 0,1 mm und 2 für

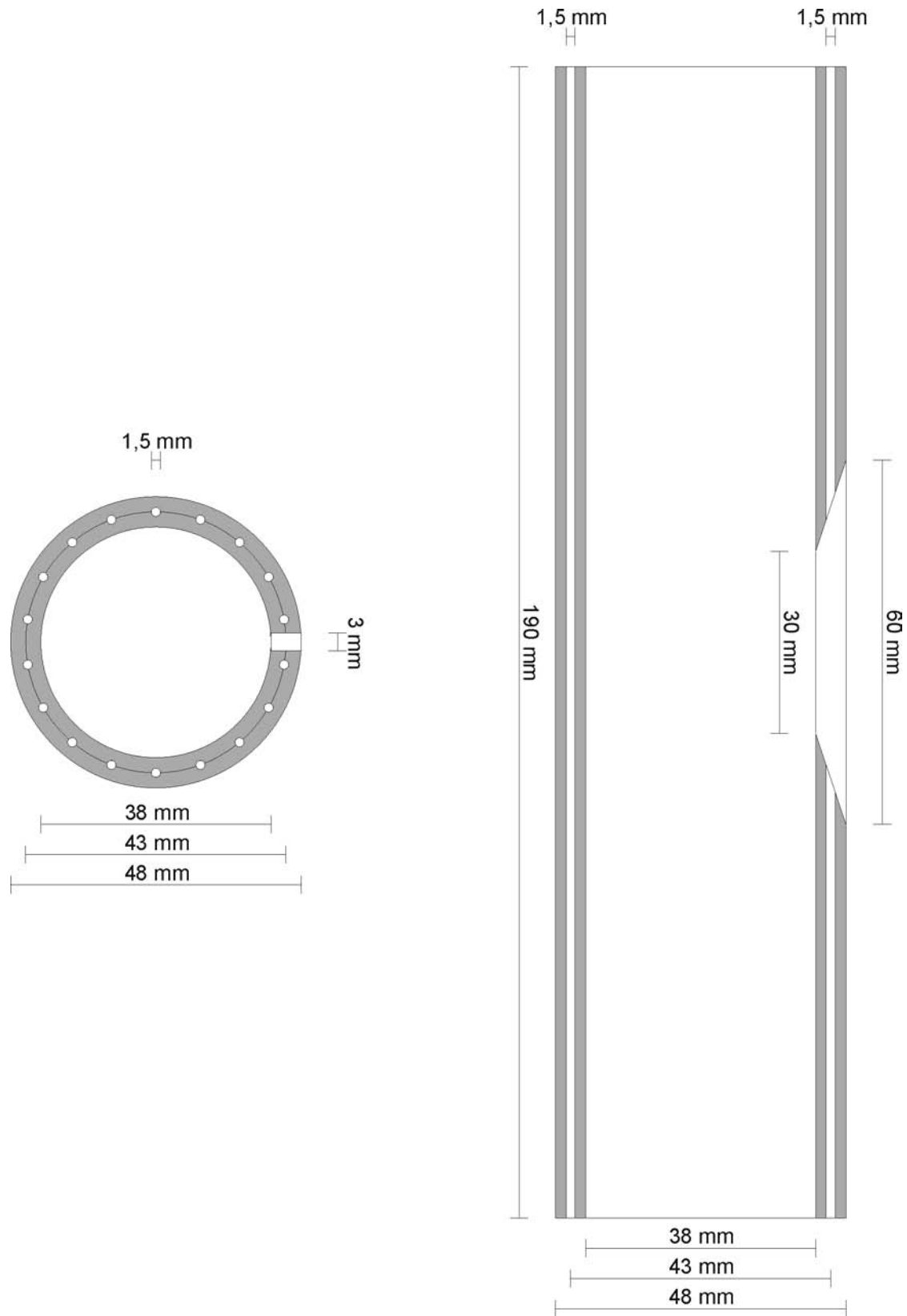


Abbildung A.5: Skizze des großen Ofenkeramikkörpers (Material: Alsint 99.7)



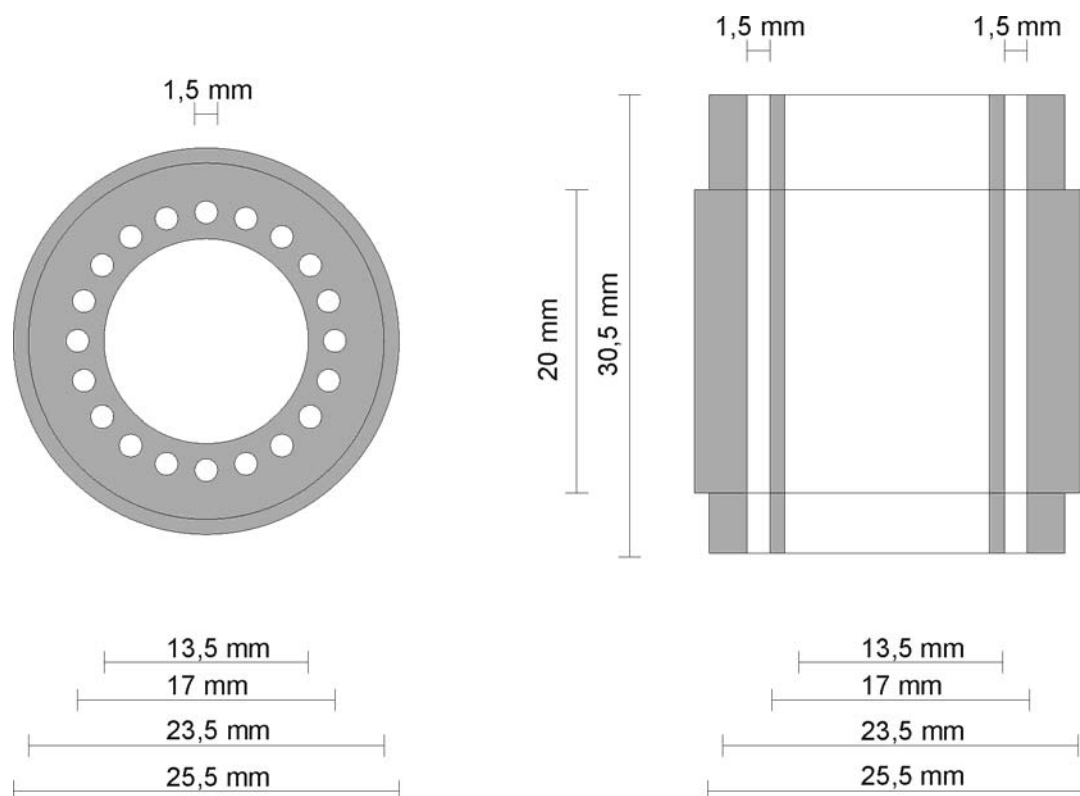


Abbildung A.6: Skizze des kleinen Ofenkeramikkörpers (Material: Alsint 99.7)

einen Düsendurchmesser von 0,2 mm. Über die zweite Ziffer erhält man Auskunft über das Düsenplättchenmaterial: 1 steht für Edelstahl 1.4571 (V4A), 2 steht für Edelstahl 1.4301 (V2A), 3 steht für die Legierung Nimonic 90, 0 bezeichnet Düsen aus unbekanntem Material (in der Regel dürften diese auch aus dem Material 1.4571 sein, die Angabe ist aber nicht gesichert). Die dritte Ziffer gibt Auskunft über das Kartuschenmaterial. Auch hier steht die 1 für den Edelstahl 1.4571 (V4A) und die 2 für den Edelstahl 1.4301 (V2A). Die 9 steht für Kartuschen die in Würzburg gedreht wurden und höchstwahrscheinlich aus dem Edelstahl 1.4571 (V4A) bestehen. Kartuschen die an dieser Stelle eine 0 tragen, bestehen entweder aus V4A oder V2A Stahl. Eine genaue Angabe ist hier leider nicht gesichert. Die vierte bis sechste Stelle des Zahlencodes gibt eine laufende Nummer an.

### A.3.1.1 Kartuschenpräparation

Bei der Kartuschenpräparation sind Handschuhe und Augenschutz unbedingt erforderlich. Kalium und Natrium sind aggressive Substanzen, welche exotherm mit Wasser und anderen Flüssigkeiten reagieren. Daher besteht Feuergefahr. Zudem reagieren Kalium und Natrium mit Wasser unter Bildung von Wasserstoff zu ätzenden Laugen. Arbeiten sollten aus diesen Gründen unter einem Abzug erfolgen.

Bevor man mit der Kartuschenbefüllung beginnt, sollte die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS so präpariert sein, dass diese nach der Befüllung der Kartusche unverzüglich geschlossen und die Pumpen der Apparatur gestartet werden können.

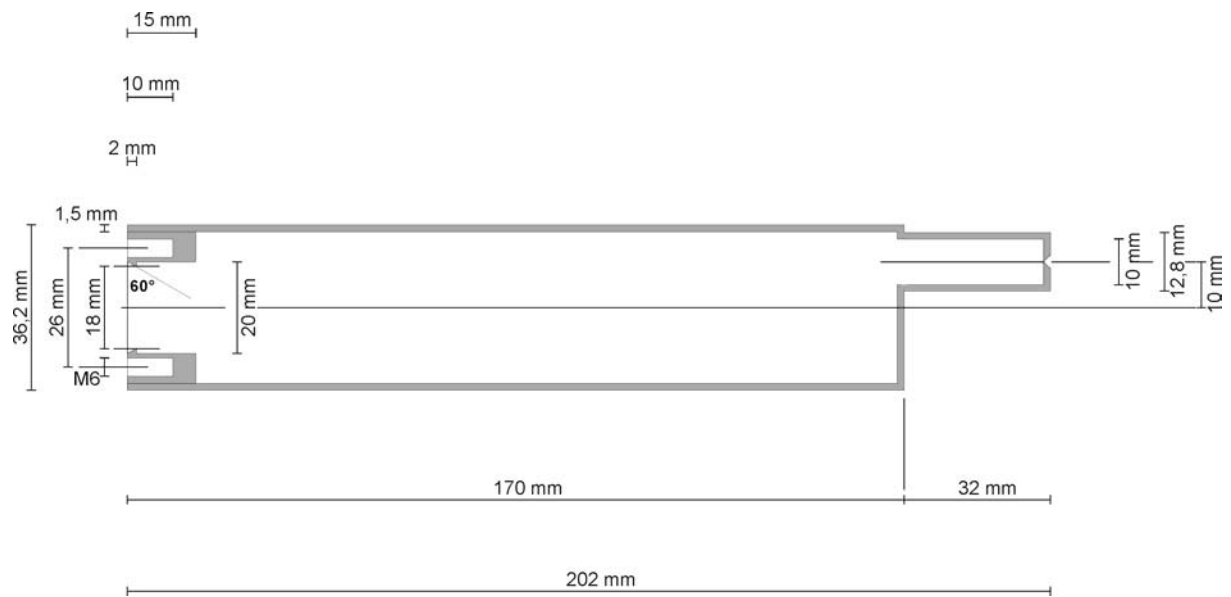


Abbildung A.7: Skizze der Verwendung findenden Edelstahlkartusche

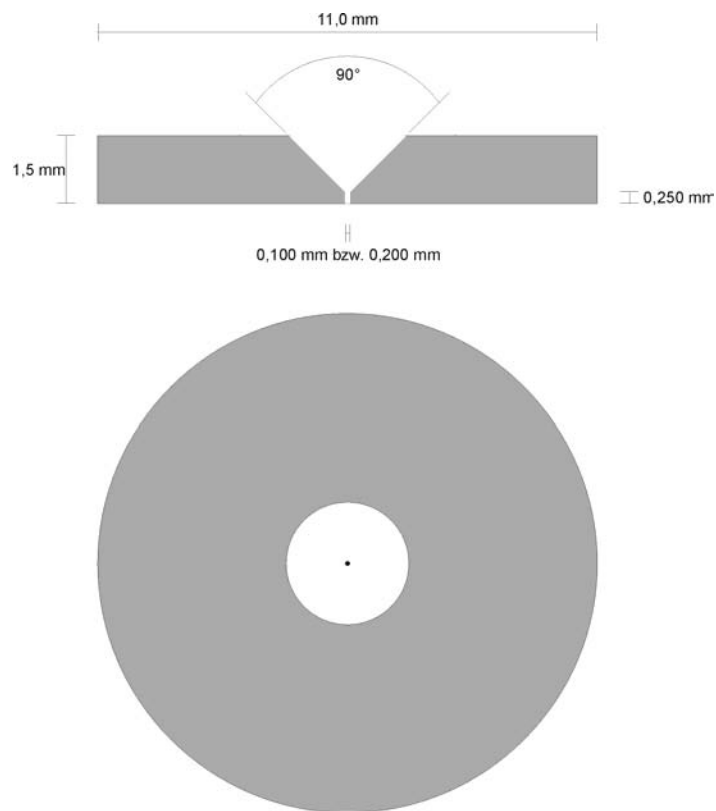


Abbildung A.8: Skizze der Düsenplättchen, wie sie von der Firma Wetzel Gröbzig Micro Products aus dem Edelstahl 1.4571 hergestellt werden. Es sind Düsen mit Kapillardurchmessern von 100  $\mu\text{m}$  und 200  $\mu\text{m}$  in Verwendung.

Dies ist wichtig um die schnell voranschreitende Oxidation der sich später in den Kartuschen befindenden Alkalimetalle zu verhindern.

Wie bereits oben erwähnt tragen sämtliche Kartuschen einen sechsstelligen Zahlenschlüssel, aus welchem man alle benötigten Informationen zur Spezifikation der jeweiligen Kartusche erhält. Während für Experimente am Natriummolekül- und am Kaliumatomstrahl Kartuschen mit einer Düsenöffnung von 0,2 mm genommen werden, werden die Experimente mit Kaliumdimeren mit 0,1 mm Düsen durchgeführt. Da bei der Kaliumdimerstrahlpräparation es leicht zu Düsenverschlüssen kommt, sollte unbedingt darauf geachtet werden, dass in diesem Fall als Düsen- sowie als Kartuschenmaterial 1.4571 (V4A) verwendet wird. Dass 1.4571 (V4A) dazu beiträgt, dass Düsen weniger verschließen, ist zwar nicht völlig gesichert, eine Verwendung dieses Materials kann aber nicht schaden. Um Düsenverschlüsse zu minimieren wurden auch Experimente mit der nickelhaltigen Legierung Nimonic 90 durchgeführt, die gerne für Hochtemperaturanwendungen im Flugzeugbau verwendet wird. Da unsere Nimonic 90 Düsenplättchen aber in unserer universitätseigenen Werkstatt hergestellt wurden und somit nicht die hohe Präzision der bei der Firma Wetzel Gröbzig gekauften Düsenplättchen besitzen (welche dort auf 0,001 mm genau gefertigt werden), wurden die Versuche eingestellt. Zu erwähnen ist in diesem Zusammenhang, dass bei der Verarbeitung des Materials Nimonic 90 besondere Sicherheitsvorkehrungen einzuhalten sind, da die Einnahme von Nimonic 90 zu Krebs führen kann. Bei der schlichten Verwendung der mit einer Nimonic 90 Düse ausgestatten Kartuschen, sollte keine Gesundheitsgefahr bestehen.

Je nach Anwendung wird die Kartusche mit einer unterschiedlichen Menge Alkalimetall gefüllt. Damit das exakte Gewicht festgestellt werden kann, sollte die Kartusche vor der Befüllung leer gewogen werden. Bei den Experimenten mit Natriumdimeren wurden in der Regel um die 15 g von der Oxidschicht befreites Natrium verwendet. Diese Menge ist hinreichend für einige Tage Messzeit. Möchte man ein Experiment mit einem Kaliumatomstrahl durchführen ist viel weniger Alkalimetall erforderlich. 1 g Kalium reicht ungefähr für 4 bis 5 Messtage. Befüllt man also eine Kartusche mit 5 g Kalium ist dies hinreichend für einige Wochen Messzeit am Atomstrahl. Bei einem Experiment mit einem Kaliummolekülstrahl wird natürlich bei weitem mehr Kalium benötigt. Unter Verwendung der Seedtechnik (mit Argon 5.0) entstehen hier bei der Herstellung der Dimere auch ein sehr hohes Atomsignal. 5 g Kalium sind ausreichend für ein bis zwei Messtage (10-12 Messstunden).

Da Kalium noch reaktiver als Natrium ist, muss das Abschälen des Kaliumoxids vom Kalium in einem Glovebag oder einer Glovebox unter Stickstoff- oder Argonatmosphäre durchgeführt werden. Im Falle von Natrium ist dies nicht notwendig. Mit einer großen Pinzette oder einer Tiegelzange wird ein Stück Alkalimetall aus dem mit Paraffinöl gefüllten Vorratsglas genommen. Natrium liefert die Firma VWT (Merck) in Stangen die etwa eine Länge von 5 oder 6 cm besitzen und einen Durchmesser von ca 2,5 cm haben. Die Hälfte einer solchen Stange wiegt geschält etwa 15 g. Kalium wird von der Firma VWT (Merck) in Blöcken geliefert die ca. 3 cm x 1cm x 1cm groß sind. Das Stück Alkalimetall wird während des Schneidens weiterhin mit der Pinzette oder der Tiegelzange gehalten. Geschnitten und geschält wird es auf einer geeigneten Unterlage (z.B. auf einer Glasplatte oder in einer Petrischale). Die benötigte Menge wird von dem Alkalimetallstück abgeschnitten, der nicht benötigte Teil wird in das mit Paraffin gefüllte Vorratsglas zurück gelegt. Nun wird das benötigte Stück von dem sich auf seiner Oberfläche befindende Paraffinöl befreit. Dies geschieht mit Hilfe von saugfähigem Papier. Anschließend wird die Oxidschicht (im Falle von Natrium ist diese grau, im Falle von Kalium dunkelblau) vom benötigten Stück abgeschnitten (schneidet man etwa 1 bis 1,5 mm an jeder Seite eines Stückes ab, ist dies hinreichend). Nun wird der verbliebene Rest in Stücke geeigneter Größe geschnitten, so dass diese in die Kartusche passen.

Bei der Herstellung eines Kaliummolekülstrahles hat es sich bewährt die Seedtechnik anzuwenden. Damit man beim Seeden die Gefahr eines Düsenverschlusses reduziert, ist es notwendig besonders reines Kalium (99,95 %) zu verwenden, welches von Firmen wie ABCR, Alfa Aesar oder Aldrich in Glasampullen zu 5 g geliefert werden kann. Ohne Erhitzen der Ampullen ist es aber nicht möglich das Kalium von der Glasoberfläche zu trennen. Wir haben uns daher dafür entschieden die Ampullen mit einer mit Isopropanol ausgiebig gesäuberten Zange zu zerdrücken und das Kalium samt Glasscherben in die Kartusche einzuführen. Da Glas einen weitaus höheren Schmelzpunkt wie die in unseren Experiment verwendete Ofentemperatur besitzt, ist dies unproblematisch. Das Zerschneiden der Ampulle sowie die Befüllung der Kartusche ist in einem Glovebag unter Stickstoff- oder Argonatmosphäre durchzuführen.

Nach dem Befüllen der Kartusche kann diese geschlossen werden. Hierbei muß der „innere Rand (stumpfer Kegel)“ des Kartuschendeckels hinreichend groß sein, da bei der Verwendung eines zu kleinen Deckels geschmolzenes Alkalimetall austreten könnte. Angezogen wird der Deckel mit Hilfe von vier M4 Schrauben, welche vorher mit Graphitspray eingesprüht werden, was ein Festfressen der Schrauben verhindern soll. Nach dem Schließen der Kartusche wird diese noch einmal gewogen. Danach kann sie in den Ofen eingeführt werden.

Wichtig ist es natürlich den Inhalt bereits benutzter Kartuschen sorgfältig zu entsorgen. Dies muß mit größter Sorgfalt geschehen, da die Kartuschen noch beträchtliche Mengen Alkalimetall enthalten können, welche mit der feuchten Umgebungsluft reagieren können. Die Kartuschen sollten daher möglichst schnell gereinigt werden.

#### *Reinigung von mit Natrium gefüllten Kartuschen*

Nachdem die Kartusche geöffnet wurde, wird sie (mit Düse nach unten) in ein geeignetes Gefäß gestellt (z. B. eine Flasche mit ausreichend breitem Flaschenhals) und langsam mit Methanol befüllt. Hierbei ist folgendes zu beachten:

1. Methanol ist gesundheitsschädlich. Die orale Einnahme geringster Mengen führt zur Blindheit bzw. sogar zum Tod. Methanol sollte aber auch nicht mit der Haut in Kontakt treten oder über die Atemwege eingenommen werden. Daher ist es unbedingt notwendig bei dieser Arbeit Schutzhandschuhe (aus Butylkautschuk) zu tragen und sämtliche Arbeiten unter einem Abzug zu tätigen.
2. Das Lösen von Natrium in Methanol ist eine exotherme Reaktion. Gerade wenn noch viel Natrium in der Kartusche ist, sollte die Kartusche nur sehr langsam (mit Pausen) befüllt werden. Ansonsten besteht die Gefahr der Selbstentzündung.
3. Beim Lösen von Alkalimetallen in Methanol wird Wasserstoff frei. Es ist somit Sorge zu tragen, dass sich dieser nicht entzünden kann. In der Nähe oder im Abzug sollten daher nicht gleichzeitig andere Tätigkeiten (insbesondere solche, bei welchem man offene Flammen oder glühende Gegenstände verwendet) ausgeführt werden.

Bei der Befüllung der Kartusche mit Methanol wird Bläschenbildung beobachtet und ein Zischen wahrgenommen: Natrium wird somit unter Bildung von Wasserstoff in Methanol gelöst. Es entsteht hierbei Natriummethylat. Wird keine Bläschenbildung mehr beobachtet, wird die Kartusche nun dem Gefäß entnommen und samt Inhalt in ein Ultraschallbad gelegt. Das Ultraschallbad wird nun mit Methanol aufgefüllt, bis die Kartusche vollständig bedeckt ist. Die Ultraschallfunktion wird aber nicht sofort eingeschaltet. Erst wenn nichts darauf hindeutet (keine Bläschen, kein Zischen), dass noch Natrium gelöst wird, wird eine gründlichere Reinigung mit Hilfe des Ultraschalls gestartet (zweimal fünfzehn Minuten sollten hinreichend sein). Anschließend wird aus dem Bad das Methanol abgelassen. Mit

Isopropanol wird das Bad neu befüllt. Im Isopropanol wird die Kartusche noch einmal 15 Minuten endgereinigt.

#### *Reinigung von mit Kalium gefüllten Kartuschen*

Da Kalium äußerst stark mit Methanol reagiert und dabei eine sehr große Hitze entsteht, welche über dem Selbstentflammungspunkt des Methanols liegt, ist es notwendig die Kaliumreste zuerst mit Tert-Butanol aus der Kartusche herauszulösen. Hierzu wird im Abzug das Ultraschallbad im ausgeschalteten Zustand hinreichend mit Tert-Butanol gefüllt und die zureinigende Kartusche hineingelegt. Da der Reaktionsprozess sehr langsam voranschreitet (was durchaus erwünscht ist, da man es tunlichst vermeiden will, dass sich das Lösungsmittel selbst entzündet), bleibt die Kartusche über Nacht bei angeschaltetem Abzug im Bad. Am nächsten Morgen sollte das Lösen des Kaliums abgeschlossen sein. Falls das Tert-Butanol über Nacht fest geworden sein mag, was besonders zur kälteren Jahreszeit möglich ist, der Schmelzpunkt liegt bei 23°C bis 25°C, erwärmt man das Ultraschallbad leicht mit der hierfür zur Verfügung stehenden Funktion. Anschließend wird die Kartusche hinausgenommen und das Bad gereinigt. Das entstandene Kaliumbuthylat wird in einem extra hierfür zur Verfügung stehenden Abfallbehälter gefüllt. Die Kartusche wird nun in ein geeignetes Gefäß gestellt (z. B. eine Flasche mit ausreichend breiten Flaschenhals) und langsam mit Methanol befüllt. Dies sollte sehr vorsichtig geschehen, da sich immer noch Kaliumreste in der Kartusche befinden könnten und die Gefahr der Selbstentzündung gegeben ist. Der weitere Reinigungsvorgang läuft analog zu dem der Natriumkartuschen.

### **A.3.2 Generierung von Atom- und Molekularstrahlen**

#### **A.3.2.1 Theorie**

Überschallatom- bzw Molekülstrahlen bilden sich aus, wenn ein Gas, welches sich in einem Reservoir (Kartusche) befindet, sich durch eine kleine Öffnung in ein Vakuum ausdehnt. Damit dies geschehen kann, müssen zunächst die jeweiligen Feststoffe oder Flüssigkeiten, aus welchen der jeweilige Überschallstrahl gebildet werden soll, im Reservoir erhitzt werden, so dass der Dampfdruck hinreichend groß wird, um eine Ausbreitung ins Vakuum zu ermöglichen. Somit ist es vor allem der Dampfdruck, der neben Durchmesser und Form der Reservoiröffnung (Düse) [115], für die Eigenschaften eines Überschallmateriestrahles verantwortlich gemacht wird. Alkalimetallstrahlen lassen sich relativ leicht produzieren, da bei den Alkalimetallen Schmelz- (Kalium: 63,5°C / Natrium: 97,8°C [38]) und Siedepunkt (Kalium: 760°C / Natrium: 883°C [38]) relativ niedrig liegen, ihre Dampfdrücke bei geringen Temperaturen somit bereits relativ hoch sind. Die Abbildungen A.9 und A.10 zeigen die Dampfdruckkurven (aufgetragen gegen die Temperatur) von Kalium- und Natriummonomeren bzw. -dimeren [116]. Der Einfluss des Dampfdrucks sowie des Durchmessers der Düse kommt durch die sogenannte Knudsenzahl zum Ausdruck [117]:

$$K_n = \frac{\lambda}{d} \tag{A.1}$$

In dieser Gleichung stehen  $d$  für den Durchmesser der Düse und

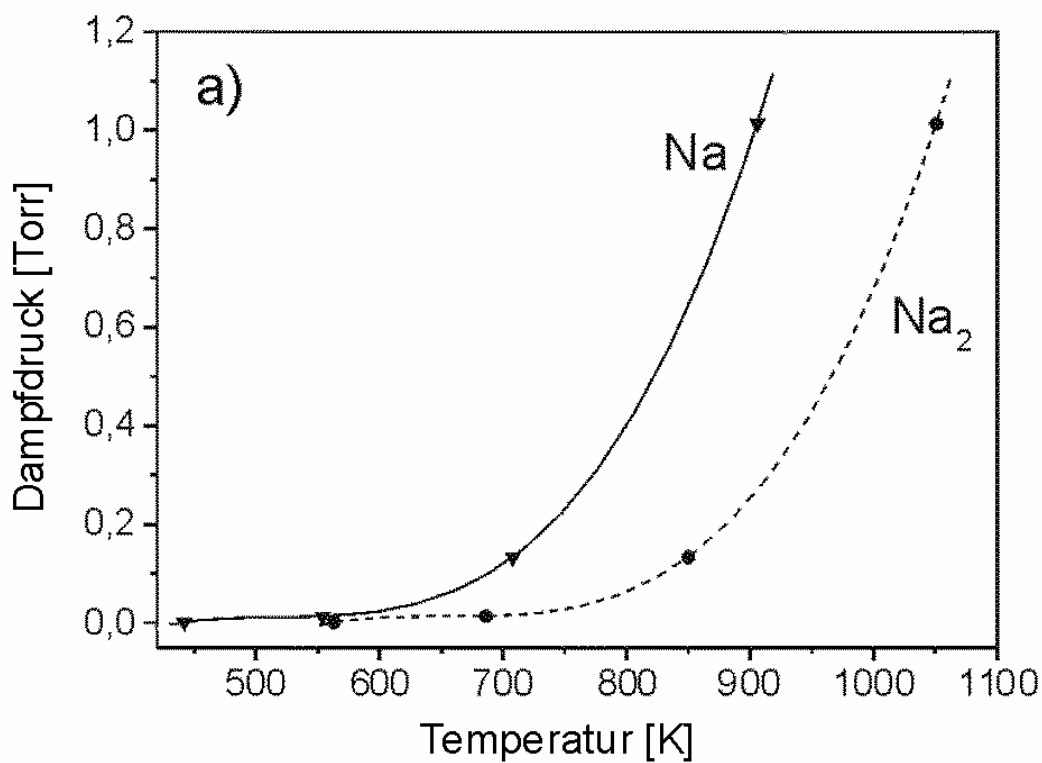


Abbildung A.9: pT-Diagramm von Natrium nach [116]

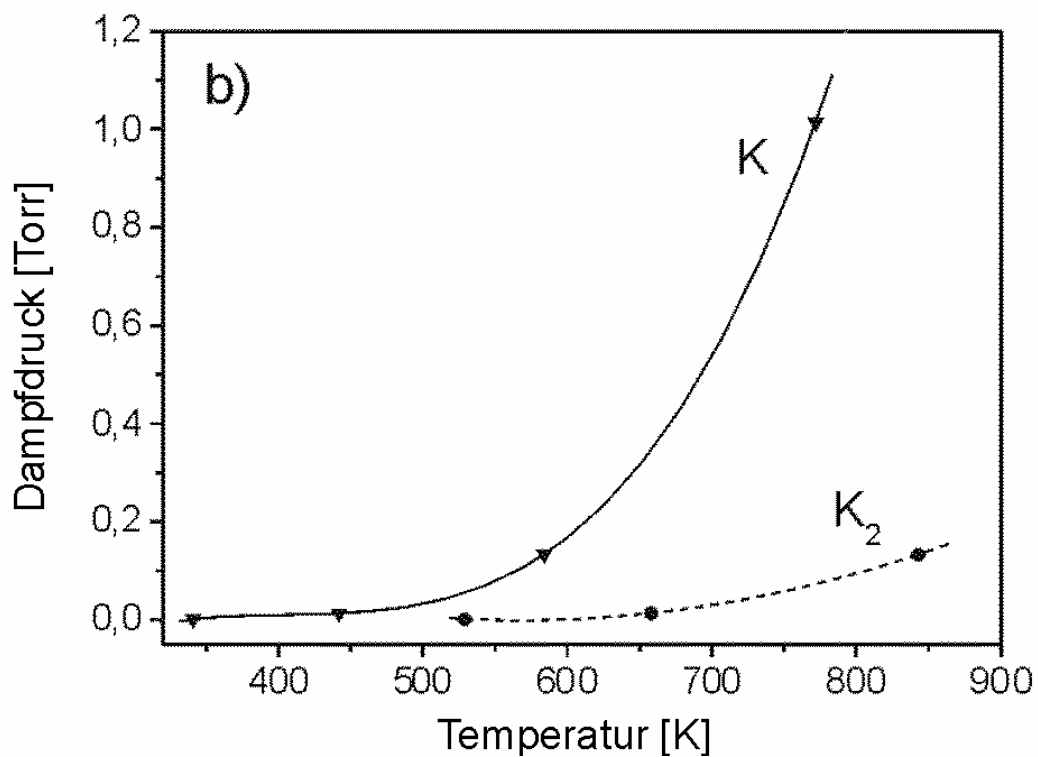


Abbildung A.10: pT-Diagramm von Kalium nach [116]

$$\lambda \approx \frac{1}{\sigma n} \quad (\text{A.2})$$

für die mittlere freie Weglänge der Teilchen im Reservoir, wobei

$$\sigma \approx \sqrt{2\pi} r^2 \quad (\text{A.3})$$

den Wirkungsquerschnitt darstellt und

$$n \approx \frac{p}{k T} \quad (\text{A.4})$$

für die Teilchendichte des Gases steht. Ist  $K_n \ll 1$  passieren die Teilchen ohne zu stoßen, unabhängig voneinander die Düse. Die mittlere freie Weglänge der Teilchen ist hier viel größer als der Durchmesser der Düse: Es liegt ein effusiver Molekularstrahl vor. Erhöht man die Temperatur des Reservoirs steigt der Dampfdruck und die mittlere freie Weglänge der Teilchen nimmt umgekehrt proportional zur Teilchendichte ab. Ist  $K_n \gg 1$  ist es nicht mehr möglich, dass die Teilchen unabhängig voneinander die Düse passieren können. Sie interagieren sehr stark miteinander sowie mit der Düsenwand. Es liegt nun ein Überschallmateriestrahl vor. Bei solch einem Strahl kann der Wärmeübertrag von der Düsenwand auf den Strahl vernachlässigt werden: Die Ausdehnung eines Überschallstrahles ins Vakuum findet also adiabatisch statt. Für die Energiebilanz ergibt sich die folgende Beziehung [118]:

$$U_0 + p_0 V_0 = U_a + p_a V_a + \frac{1}{2} m v_a^2 \quad (\text{A.5})$$

$U_0$  und  $p_0 V_0$  stehen hier für die innere Energie sowie für die Kompressionsenergie des Gases im Reservoir, während sich  $U_a$  und  $p_a V_a$  auf den Bereich außerhalb des Reservoirs beziehen,  $\frac{1}{2} m v_a^2$  beschreibt die Strömungsenergie des Gases außerhalb des Reservoirs. In der Düse hängen  $p_a$  sowie die Strömungsgeschwindigkeit des Gases stark von der Düsenform ab. Bei einer Laval-Düse, welche sich erst verengt und sich dann wieder erweitert, wird ein minimaler wert für  $p_a$  und eine maximale Strömungsgeschwindigkeit bereits in der Düse selbst erreicht. Im Kanal einer einfachen zylindrischen Düse wird die lokale Schallgeschwindigkeit nicht überschritten. Da in der Vakuumkammer  $p_a$  ungefähr gleich Null ist, tritt eine Reduzierung der inneren Energie  $U_a$  und somit eine starke Abkühlung des Molekularstrahles genau dann auf, wenn die Strömungsenergie groß wird. Die auf die Strahlachse projizierte Maxwell'sche Geschwindigkeitsverteilung ist somit außerhalb des Reservoirs um die Strömungsgeschwindigkeit  $v_a$  zentriert, sie ist aufgrund der Abkühlung eingeeengt. Die Breite der Verteilung ist durch die Temperatur  $T_a$  gegeben:

$$N = N_0 \exp\left(-\frac{m(v - v_a)^2}{2k_B T_a}\right) \quad (\text{A.6})$$

Die Strahltemperatur  $T_a$  lässt sich mit Hilfe der Machzahl  $M$ , welche das Verhältnis zwischen der Strömungsgechwindigkeit und der lokalen Schallgeschwindigkeit ist, beschreiben. Folgende Beziehung gilt:

$$T_a = T_0 \left[1 + \frac{1}{2}(\kappa - 1)M^2\right]^{-1} \quad (\text{A.7})$$

Während im Reservoir die Machzahl  $M = 0$  ist, beträgt sie innerhalb von gewöhnlichen (z.B. zylinderförmigen) Düsen eins ( $M = 1$ ). Außerhalb der Düse wird  $M > 1$ .

Die oben ausgeführten Betrachtungen beziehen sich nur auf das einatomige Gas. Die Temperatur  $T_a$  ist, wie erwähnt, ein Maß für die Breite der Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung nach der Expansion. Sie beschreibt somit die Verteilung der Translationsenergie der Teilchen. Beim Passieren der Düse sowie in einem engen Bereich dahinter, können aber neben den elastischen Stößen auch inelastische stattfinden, welche zu einem Austausch von Vibrations-, Rotations- und Translationsenergie führen können. Die Effizienz der Energietransfers hängt von den Wirkungsquerschnitten  $\sigma$  ab. Es gilt:

$$\sigma(E_{trans} - E_{trans}) > \sigma(E_{rot} - E_{trans}) > \sigma(E_{vib} - E_{trans}) \quad (\text{A.8})$$

Der Wirkungsquerschnitt für den Transfer von Rotationsenergie ist deshalb größer als der für den Transfer von Vibrationsenergie, weil die Energieabstände der aufeinanderfolgenden Rotationszustände deutlich kleiner als die der aufeinanderfolgenden Vibrationszustände sind. Durch stoßinduzierte Energietransfers kommt es somit zu einer Abkühlung der inneren Freiheitsgrade von Molekülen und Clustern: Es sind folglich nur die tiefsten Rotations- und Vibrationszustände besetzt. Beschrieben werden kann die Besetzungsverteilung durch die Rotations- bzw. Vibrationstemperatur wobei

$$T_{trans} < T_{rot} < T_{vib} \quad (\text{A.9})$$

gilt. Nach Rainer Thalwieser [118] gelten für Natriumdimere bei der Verwendung einer Kartusche mit einem Düsendurchmesser von 100  $\mu\text{m}$  die folgenden Werte:  $T_{trans} = 1 - 5$  K,  $T_{rot} = 5 - 10$  K,  $T_{vib} = 30 - 50$  K. Bei einer Ofentemperatur von etwa 600°C sind 83 % der Natriumdimere im Vibrationsgrundzustand, 12 % sind im ersten Vibrationszustand, 3 % sind im zweiten.

Nach R. J. Gordon et al. [119] und K. Bergmann et al. [120] existieren im Natriumdampf bereits zwischen 1 und 10 % Natriumdimere. Die meisten Dimere eines Molekularstrahles entstehen aber bei der Düsenstrahlexpansion außerhalb der Düse und zwar kurz hinter ihr durch Dreikörperstöße. Durch solche Stöße können auch größere Cluster entstehen. Sie sind aber sehr heiß und fragmentieren daher wieder schnell. Eine effektive Kühlung kann mittels eines sogenannten Carriergases erreicht werden. Als solches werden in



der Regel Edelgase wie Argon verwendet. Die entstehenden Dimere bzw. Cluster kühlen nun durch die Stöße mit den Edelgasatomen. Das Verfahren wird Seeded-Beam-Technik genannt, wobei das Element, welches die Dimere bzw. Cluster bilden soll, als Seed bezeichnet wird. Als Seedverhältnis wird das Verhältnis zwischen den Partialdrücken des Seeds und des inerten Trägergases (Carriergas) bezeichnet. Damit die gebildeten Cluster effektiv gekühlt, d.h. stabilisiert werden können, muss dafür Sorge getragen werden, dass die Stoßrate zwischen den Seedteilchen und den Trägergasatomen sehr hoch ist. Bei der Natriumexpansion werden typische Seedverhältnisse mit 1 % bis 10 % angegeben [118]. Abhängig ist die Ausbildung der verschiedenen Clustergrößen auch von der Wahl des Trägergases: Schwere Trägergase (Ar, Kr) unterstützen die Produktion größerer Cluster, leichte Trägergase (He, Ne) besitzen eine wesentlich geringere Masse als ihre Stoßpartner, so dass kein effektiver Energietransfer stattfinden kann.

### A.3.2.2 Allgemeines

Vor Inbetriebnahme des Ofens zur Generierung eines Atom- oder Molekularstrahles müssen die Widerstände von diesem überprüft werden. Die Widerstände des Ofens sollten kleiner bzw. größer als die folgenden sein:

$$R_{\text{Düsenheizung}} < 2 \text{ Ohm}$$

$$R_{\text{Kartuschenheizung}} < 3 \text{ Ohm}$$

$$R_{\text{zwischen Düse und Masse}} > 10 \text{ kOhm}$$

$$R_{\text{zwischen Kartusche und Masse}} > 1 \text{ kOhm}$$

$$R_{\text{zwischen Kartusche und Düse}} > 10 \text{ kOhm}$$

Außerdem muss man sich natürlich vor der Inbetriebnahme des Ofens vergewissern, dass die Ofenkühlung, welche den äußeren Teil des Ofens abkühlt, damit der Ofenmanipulator bzw. die gesamte Ofenkammer nicht aufgeheizt wird, angeschaltet ist.

Zum Einstellen der beiden Temperaturen (für Kartuschen- und Düsenheizung) stehen zwei Netzgeräte zur Verfügung, welche integrierte Thermostate besitzen. Das obere der beiden ist für die Einstellung der Kartuschentemperatur, das untere ist für die Einstellung der Düsentemperatur. Die beiden Netzgeräte unterscheiden sich bezüglich des eingebauten Thermostates: Das Thermostat des Netzgerätes für die Kartuschenheizung ist regulierbar, das für die Düsenheizung nicht. Bei dem Hochheizen von Kartusche bzw. Düse ist darauf zu achten, dass der Strom 10 A nicht übersteigt, da sonst Schäden an den Netzgeräten entstehen könnten.

Um einem Düsenverschluss vorzubeugen, ist es notwendig sehr langsam hoch zu heizen. Je nach zu generierenden Überschallstrahl ist dies unterschiedlich (siehe unten). Wichtig ist in allen Fällen, die Düsentemperatur stets mindestens 50°C über der Kartuschentemperatur zu halten.

### A.3.2.3 Kaliumatome

Für die Generierung eines Kaliumatomstrahls sind nur sehr niedrige Temperaturen notwendig. Für die Kartusche, welche ein Düsenplättchen mit einem Düsendurchmesser von 200 µm trägt, empfehlen sich Temperaturen zwischen 250°C und 300°C, für die Düse Temperaturen zwischen 300°C und 350°C. Hinsichtlich einer Düsenverstopfung ist dieses Experiment unkritisch, so dass keine besonderen Hochheizzeiten eingehalten werden müssen.

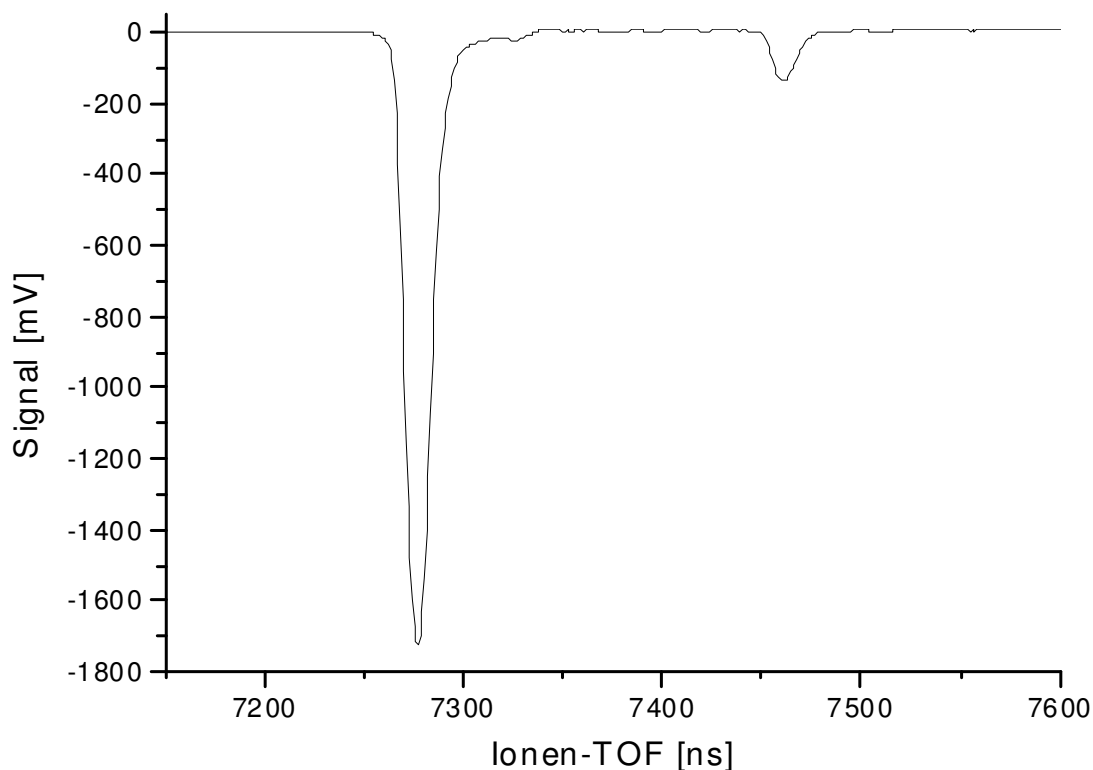


Abbildung A.11: Flugzeitmassenspektrum eines Kaliumatomstrahles. Ionisiert wurde mit einem Nd:YAG-Laser (zweite Harmonische (532 nm), 0,5 mJ). Man sieht die beiden Kaliumisomere mit den Atomgewichten 39 (bei 7280 ns) und 40 (bei 7460 ns) deutlich voneinander getrennt.

### A.3.2.4 Kaliumdimere

Wie bereits erwähnt ist die Ausbildung eines Kaliumdimerstrahles hinsichtlich eines Düsenverschlusses äußerst kritisch. In unserer Arbeitsgruppe wurden ausgiebig Tests unternommen, um die Anzahl der Düsenverschlüsse zu reduzieren. Die Verwendung von sehr reinem Kalium (99,95 %, aus Glasampullen) sowie von sehr reinem Argon 6.0 (als Carriergas) im Zusammenspiel mit Kartuschen aus V4A Edelstahl (1.4571) hat zu den besten Erfolgen geführt. Verwendet wird auf der Kartusche ein Düsenplättchen mit einem Düsendurchmesser von 100  $\mu\text{m}$ . Für die Generierung eines Kaliumdimerstrahles haben sich folgende Temperaturen als brauchbar erwiesen: 410°C für die Kartuschenheizung und 460°C für die Düsenheizung. Für das Erreichen der Endtemperaturen sollte man sich zwei Stunden Zeit lassen. Zur Ausbildung von Dimeren ist es unablässig zu Seeden. Innerhalb 1 ½ Stunden heizt man Kartusche und Carriergaszuleitung auf ca. 350°C. Bei dieser Temperatur ist bereits (siehe A.3.2.3 Kaliumatome) ein sehr großes Kaliumatomsignal vorhanden. Man beginnt nun mit dem Carriergaseinlaß. Es werden laut Druckminderer etwa 8 l Argon 6.0 pro Minute eingelassen, was etwa einem Kartuschendruck von 1,5 bar entspricht. Hierbei steigt der Druck in der Ofenkammer auf etwa  $10^{-4}$  mbar. Im Ionenspektrum ist nun ein deutlicher Zuwachs der Kaliumatome zu erkennen (Faktor 2), es erscheinen aber auch die ersten Kaliumdimere. Innerhalb von 30 bis 45 Minuten wird nun die Kartuschentemperatur noch einmal um ca. 60°C erhöht. Abbildung A.12 zeigt ein typisches Flugzeitmassenspektrum bei oben angegebenen empfohlenen Endtemperaturen. Bei einer Flugzeit von 7400 ns finden wir den ausgeprägten Kaliumatompeak, dessen Signalthöhe ca. 2400 mV beträgt. Bei etwa 10400 ns

folgen die Kaliumdimere mit einer Signalhöhe von ca. 600 mV. Dieses Signalverhältnis von 4:1 lässt sich deutlich zu Gunsten der Dimere verschieben, wenn man weiterhin Kartuschentemperatur und / oder Carriergasdruck erhöht. Das Risiko eines Düsenverschlusses nimmt hierbei aber stark zu.

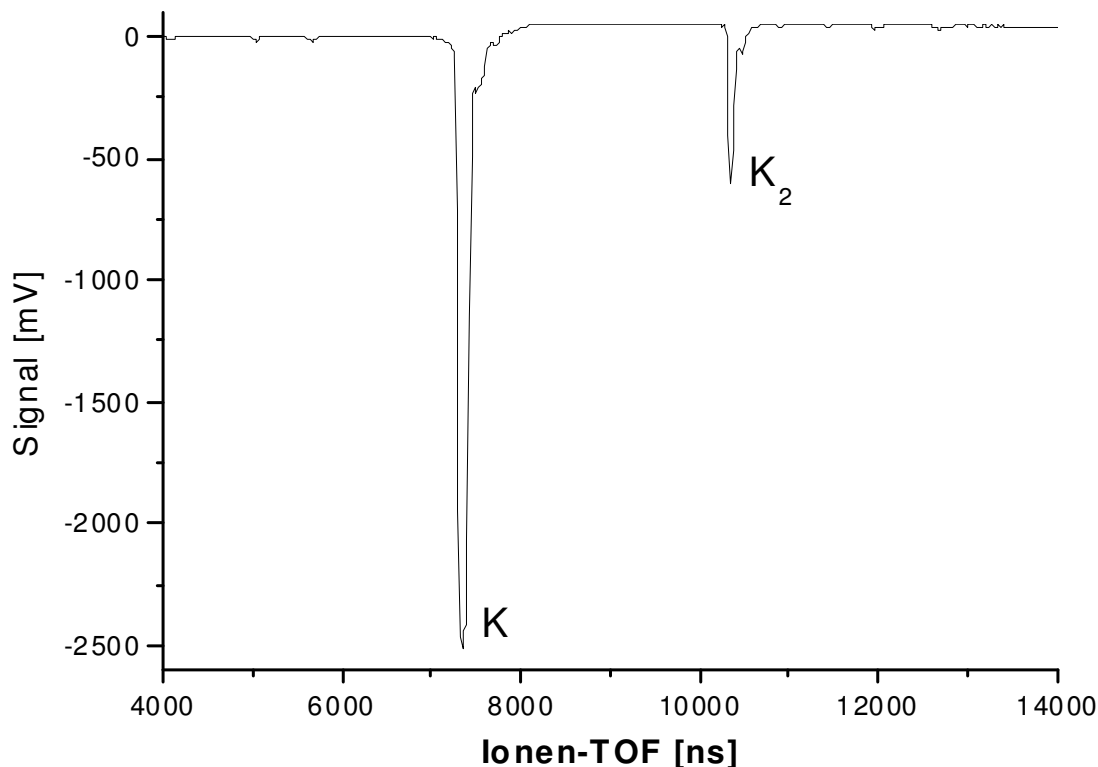


Abbildung A.12: Typisches Flugzeitmassenspektrum bei der Herausbildung von Kaliumdimeren: Bei einer Flugzeit von ca. 7400 ns sind die Kaliummonomere sichtbar, bei 10400 ns ist das Kaliumdimersignal zu sehen. Ionisiert wurde mit einem Nd:YAG Laser (dritte Harmonische (355 nm), 0,5 mJ)

### A.3.2.5 Natriumdimerere

Natriumdimerere generiert man sehr gut bei einer Kartuschentemperatur von 600°C und einer Düsentemperatur von 650°C. Das Hochheizen erstreckt sich über einen Zeitraum von 3 Stunden, wobei bei einer Kartuschentemperatur von 400°C eine halbstündige Pause eingelegt wird. Das Seeden ist für die Herstellung von Natriumdimeren nicht zwangsmäßig erforderlich. Bei der Zuhilfenahme dieser Technik kann man die Anzahl der Dimere aber deutlich steigern (siehe Abbildungen A.13 und A.14). In unseren Versuchen wurden Carriergasdrücke (Argon 6.0) zwischen 1 und 2 bar verwendet. Bei unseren Experimenten mit Natriumdimerüberschallstrahlen haben wir bei unseren Versuchen ohne Seedtechnik Düsenplättchen mit einem Düsendurchmesser von 200 µm verwendet. Bei der Anwendung der Seedtechnik wurde auf Düsenplättchen mit einem Düsendurchmesser von 100 µm zurück gegriffen.

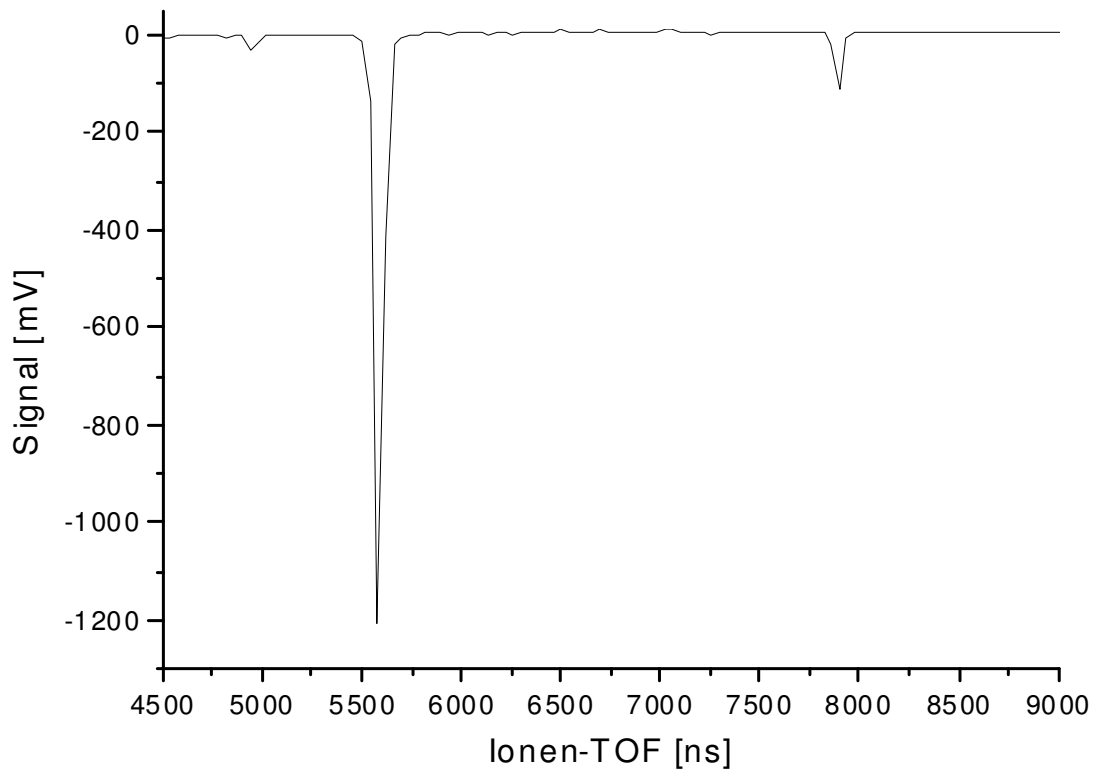


Abbildung A.13: Für die Herstellung von Natriumdimeren ist es nicht zwangsmäßig notwendig die Seedtechnik anzuwenden. Auch bei einfachem Heizen entstehen bereits Dimere, wie hier im Spektrum bei etwa 7900 ns zu sehen ist. Das Natriumatomsignal (bei etwa 532 ns) ist natürlich deutlich größer. Ionisiert wurde auch hier mit Hilfe eines Nd:YAG Lasers (dritte Harmonische (355 nm), 0,5 mJ).

### A.3.2.6 Ofenabkühlung

Ist sämtliches Alkalimetall innerhalb der Kartusche verbraucht, kann die Kartuschen- wie auch die Düsenheizung sofort ausgestellt werden. Die Ofenabkühlung muss natürlich bis zum Erkalten des Ofens anbleiben. Ist hingegen am Ende des Messtages in der Kartusche noch Alkalimetall enthalten, welches man für einen weiteren Messtag verwenden will, muss, um einen Düsenverschluss vorzubeugen, dafür Sorge getragen werden, dass während eines langsamen Erkalten des Ofens, die Düsentemperatur weiterhin  $50^{\circ}\text{C}$  wärmer als die der Kartusche ist. Dies ist sehr schwierig, da auf Grund der viel geringeren Größe der Düsenkeramik gegenüber der Kartuschenkeramik die Düse viel schneller auskühlt. Im Gegensatz zur Kartuschenheizung kann somit die Düsenheizung nicht sofort ausgestellt werden. Die Temperatur der Düse muss langsam reduziert werden. Der Kühlprozess ist hierbei sehr langwierig, da trotz ausgeschalteter Kartuschenheizung die Kartusche durch die fortwährende Beheizung der Düse mitgeheizt wird. Da aber stets ein Temperaturunterschied von  $50^{\circ}\text{C}$  zwischen Düse und Kartusche eingehalten werden muss, kann die Düsentemperatur nur in kleinen Schritten reduziert werden. Empfehlenswert ist es in einem solchen Falle die Düsenheizung herunterzudrehen, aber auf geringem Niveau (Schalterstellung 0,25) über Nacht anzulassen, so dass die Temperaturen am nächsten Morgen bei etwa  $T_{\text{Düse}} = 300^{\circ}\text{C}$  und  $T_{\text{Kartusche}} = 150^{\circ}\text{C}$  liegen. Da bei diesen Temperaturen kein Verschluss der Düse zu erwarten ist, kann nun ebenfalls die Düsenheizung ausgeschaltet werden.

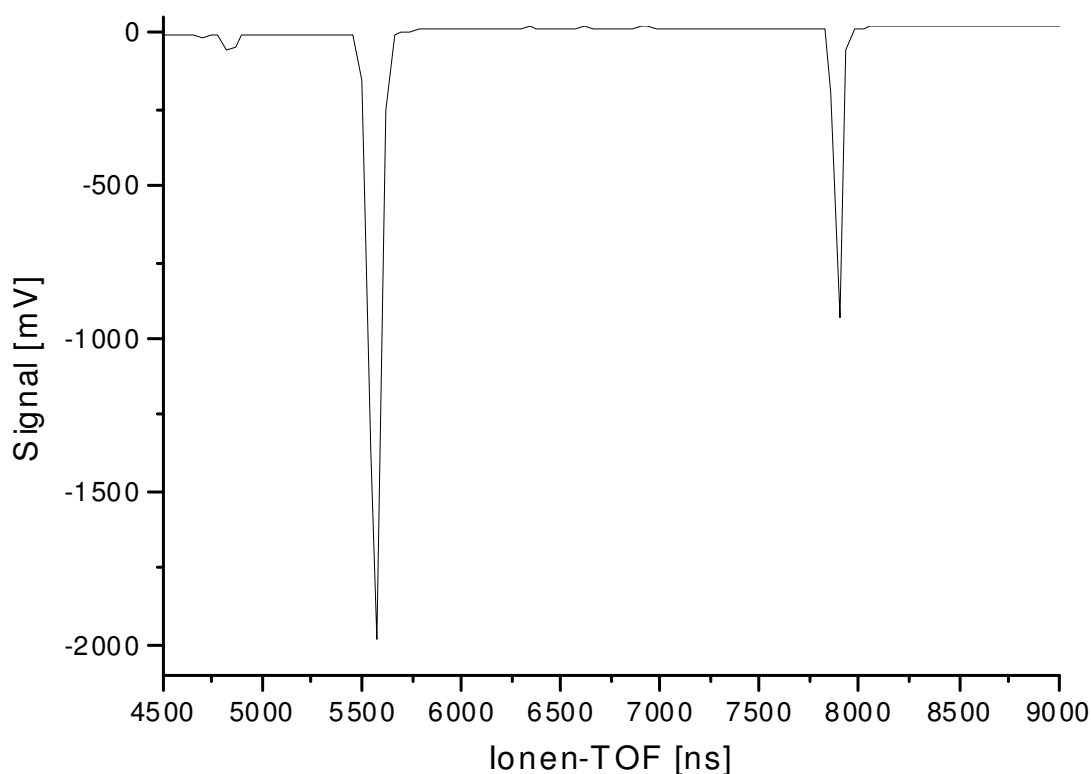


Abbildung A.14: Durch Anwendung der Seedtechnik lässt sich das Verhältnis zwischen den Natriumatomen und den Natriumdimeren deutlich in Richtung der Dimere verschieben. Bei der Aufnahme dieses Spektrums wurde der Ofen mit den selben Parametern beheizt wie bei der Aufnahme des Spektrums in Abbildung A.13. Auch der verwendete Laser, dessen Wellenlänge und dessen Energie waren gleich. Einziger Unterschied war die Verwendung von Seedgas.

### A.3.3 Atomstrahljustage

Ziel einer perfekten Ofenjustage muss es sein, den aus der Edelstahlkartusche austretenden Atom- bzw. Molekularstrahl über drei definierte, dazwischenliegende Punkte an das Ende der MaBoS-Hauptkammer in die Kühlfalle zu führen. Die drei angesprochenen Punkte sind die Öffnungen der beiden Skimmer sowie der zwischen den beiden Polplatten liegende mittlere Punkt. Um dies zu erfüllen, wird eine spezielle Justierkartusche verwendet, in welcher ein handelsüblicher Laserpointer integriert ist, welcher bis zu einer maximal anliegenden Spannung von 4,5 V betrieben werden kann. Der Ofen ist also dann perfekt justiert, wenn das Licht des Lasers beide Skimmer sowie die Mitte der Polplatten durchlaufen kann und anschließend die Mitte einer Blende trifft, welche vor dem Eintrittsloch der Kühlfalle montiert werden kann. Mit Hilfe eines Manipulators der Firma VA-TEC kann der Ofen in der Höhe (senkrecht) wie auch waagrecht, orthogonal zur Materiestrahldichtung verstellt werden (Translation). Außerdem ist es möglich den Ofen um zwei der drei Hauptachsen zu kippen, wobei die Hauptachse, die mit der Lage des Materiestrahles identisch ist, die ausgenommene ist (Rotation). Muss der Ofen vollkommen neu justiert werden, empfiehlt es sich zunächst die beiden Skimmer zu entfernen. Dies geschieht in dem man Ofenkammer und Spektrometereinheit voneinander trennt und die zwischen ihren Flanschen liegende, der Dichtung und Abtrennung dienende Scheibe, samt der dort anmontierten zwei Skimmer,

ausbaut. Nun sollte es mit Hilfe des Ofenmanipulators möglich sein, die Justierkartusche so auszurichten, dass ihr Laserstrahl mittig zwischen den zwei Polplatten verläuft und anschließend die vor dem Kühlfalleintritt montierte Blende trifft. Dabei sollte Sorge getragen werden, dass der Laserstrahl parallel zur Achse Ofenkammer – Hauptkammer, sprich „parallel zum Erdboden“ verläuft. Dies kann überprüft werden, in dem man bei eingeschalteten Laserlicht die Ofenkammer auf den am MaBoS-Tisch angebrachten Montierschienen von der Spektrometereinheit fort und wieder zurück bewegt. Der Laserstrahl sollte dann immer noch zwischen den Polplatten verlaufen und die am Ende seines Weges stehende Blende treffen. Ist dies nicht der Fall, muss der Ofenmanipulator sukzessive mit Hilfe der für seine Rotation wie für seine Translation bereitgestellten Verstellmöglichkeiten neu eingestellt werden. Dies geschieht in vielen kleinen Schritten, in dem man immer wieder die Ofenkammer samt Ofen verschiebt und diesen z.B. dann rotiert, wenn die Kammer am weitesten von der Spektrometereinheit entfernt ist und ihn transferiert, wenn sie wieder dicht vor der Einheit steht. Ist auf diese Art der Ofen hinreichend gut justiert worden, kann man nun die Trennscheibe samt der anmontierten beiden Skimmer wieder einbauen. Mit Hilfe von Schrauben kann man die Skimmer auf der Scheibe verschieben und in den Strahl stellen.

Um zu Überprüfen, ob der Justagelaserstrahl mittig zwischen den Polplatten verläuft, kann noch ein weiteres Tool, ein ca. 30 cm langer und 2 mm breiter Glasstab, verwendet werden. Dieser Stab, dessen Kanten matt geschliffen sind, kann bei abgenommenen Fenster durch einen der beiden Laserports eingeführt und zwischen die Polplatten gelegt werden. Mit Hilfe eines Spiegels, welcher zur Beobachtung in die Hauptkammer gestellt wird, kann man nun die Lage des Laserstrahles, durch den auf der milchigen Oberfläche des Stabes abgebildeten Spot erkennen.

#### A.4 Alkalimetalldispenser

Die in den Kapiteln 4 und 5 beschriebenen und an Kaliumatomen durchgeführten Experimente wurden mit Hilfe eines Kaliumatomstrahles durchgeführt. Für Experimente mit Alkalimetallatomen bietet sich aber eine Alternative: Es ist die Verwendung von Alkalimetalldispensern (AMD), wie sie für das Experiment, welches in Kapitel 6 beschrieben wurde, zum Einsatz kamen. Sie werden von der Firma SAES Getters S.p.A. in Lainate, Italien hergestellt und normalerweise für die Präparation von photosensitiven Photokathoden verwendet. Auch zur Bestückung von Magnetooptischen Fallen werden Dispenser gerne eingesetzt. Alkalimetalldispenser sind sehr kompakte Alkalimetallquellen (siehe Abbildung A.15) in Stäbchenform (z.B. 25 mm x 1,2 mm x 1,4 mm). Erhältlich sind Lithium-, Natrium-, Kalium-, Rubidium- und Cäsiumdispenser. In den Dispensern befindet sich ein Chromat des jeweiligen Alkalimetalls gemischt mit Zirkonimpulver, welches als Reduktionsmittel dient. Unter Zuführung von Energie, sprich durch Hindurchschicken eines elektrischen Stromes durch einen Leiter, welcher sich auf der Oberfläche des Dispensers befindet, kann somit das Alkalimetallchromat reduziert werden. Es bildet sich dabei Zirkoniumchromat, das elementare Alkalimetall kann aus den Dispenser austreten. Im Falle eines Kaliumdispensers sieht die zugehörige Reaktionsgleichung wie folgt aus:



Timothy M. Roach und Dwayne Henclewood haben in [121] einen Aufbau zur Herstellung eines Rubidiumatomstrahles beschrieben: In ihrer Vakuumkammer finden Dispenser mit einer effektiven Länge von 12 mm ihre Verwendung. Im Abstand von 2 cm ist hinter dem

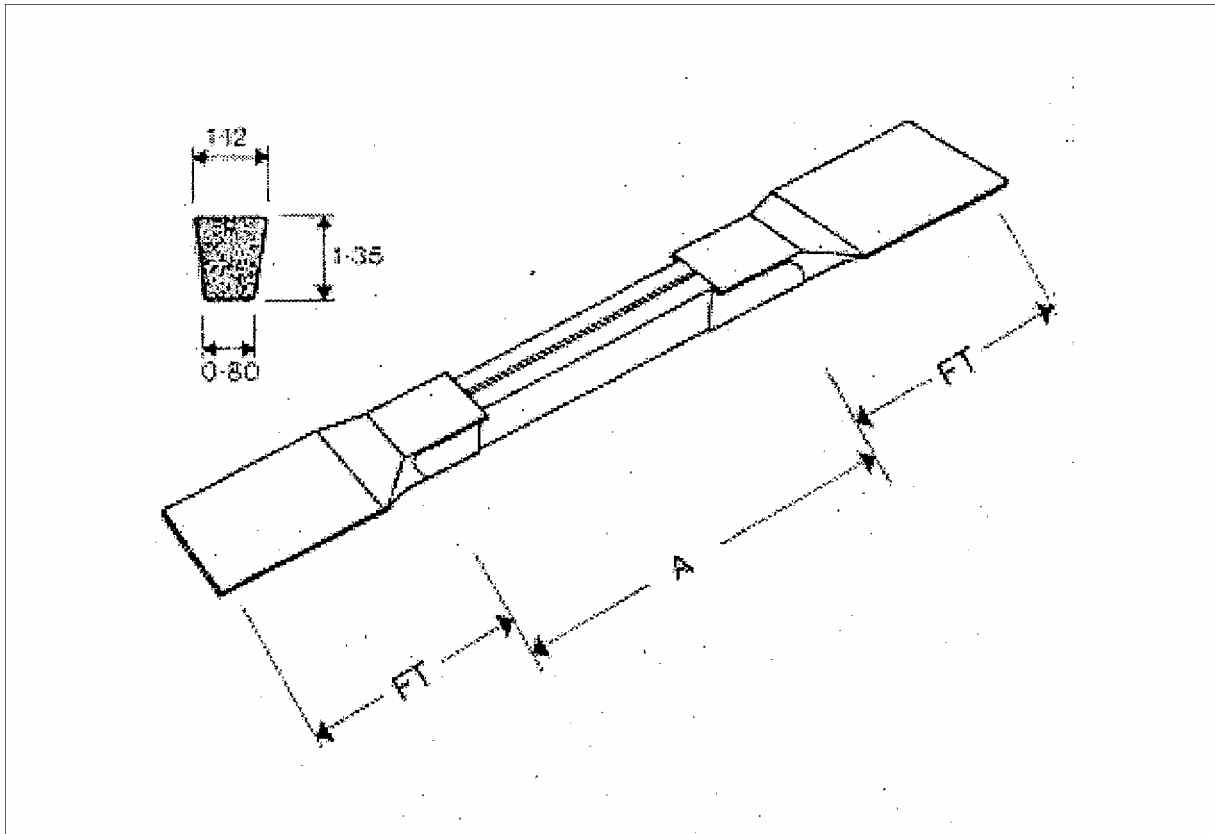


Abbildung A.15: Schematische Darstellung eines Dispensers [122]: Von der Firma SAES Getters S.p.A. in Lainate, Italien werden sie mit den effektiven Längen  $A = 12$  mm,  $17$  mm und  $25$  mm hergestellt. Die Länge der Kontakte FT beträgt  $10$  mm. Die Dispenser sind  $1,12$  mm breit und  $1,35$  mm hoch. Zwischen den Kontakten FT verläuft ein wenige  $100 \mu\text{m}$  dünner Draht, welcher zum einen im ausgeschalteten Zustand den Dispenser verschließt, zum anderen (bei Betrieb) durch Stromdurchfluss den Dispenser erhitzt und somit die angestrebte Redoxreaktion auslöst.

Dispenseröffnungsschlitz eine Blende montiert, welche einen Öffnungsdurchmesser von  $3,2$  mm ( $1/8''$ ) besitzt. Eine zweite Blende gleicher Bauart steht kurz vor der Region, in welcher das Experiment stattfindet. Sicherlich ist der hier entstehende Atomstrahl nicht mit denen unter A.3 beschriebenen vergleichbar: Hier entsteht kein Überschallatomstrahl. Die einzelnen Teilchen des Strahles gehorchen der Maxwell'schen Geschwindigkeitsverteilung und treffen nur rein statistisch auf die Öffnungen der Blende. Hinzu kommt, dass aus dem verwendeten Dispenser lediglich  $4,5$  mg Rubidium austreten können (Die größten verfügbaren Dispenser, welche eine effektive Länge von  $25$  mm besitzen, enthalten je nach Alkalimetall zwischen  $2$  und  $11$  mg: Li:  $1,7$  mg; Na:  $3,5$  mg; K:  $6,0$  mg; Rb:  $9,4$  mg; Cs:  $10,8$  mg). Dennoch reicht die von den Dispensern emittierte Alkalimetallmenge durchaus aus um interessante Experimente durchzuführen. Roach und Henclewood haben z.B. Laserfluoreszenzspektroskopie am Rubidium  $5S_{1/2} - 5P_{3/2}$  Übergang betrieben. Die Dichte des dabei verwendeten Rubidiumstrahles haben sie auf  $3 \cdot 10^{11}$  Atome /  $\text{m}^3$  berechnet, den Fluss durch eine  $3$  mm große Öffnung kalkulierten sie dabei auf  $5 \cdot 10^8$  Atome / s. Die Grundlage dieser Werte bildet ein durch die Dispenser fließender Strom von  $5,9$  A. Bei Erhöhung des Stromes lässt sich die Dichte des Rubidiumstrahles deutlich erhöhen (siehe Abbildung A.16). Dies geschieht aber zu Lasten der möglichen Betriebsdauer. Bei einem Strom von  $7$  A, so geben Roach und Henclewood an, hielt ihr Rubidiumdispenser etwa  $4$  Stunden. Auch M. Succi et al. [123] haben den Fluss von Alkalimetalldispensern gemessen. Bei ihnen fanden Natrium-, Kalium- sowie Cäsiumdispenser Verwendung. Ihre Ergebnisse sind in den Abbildungen A.17 bis A.19

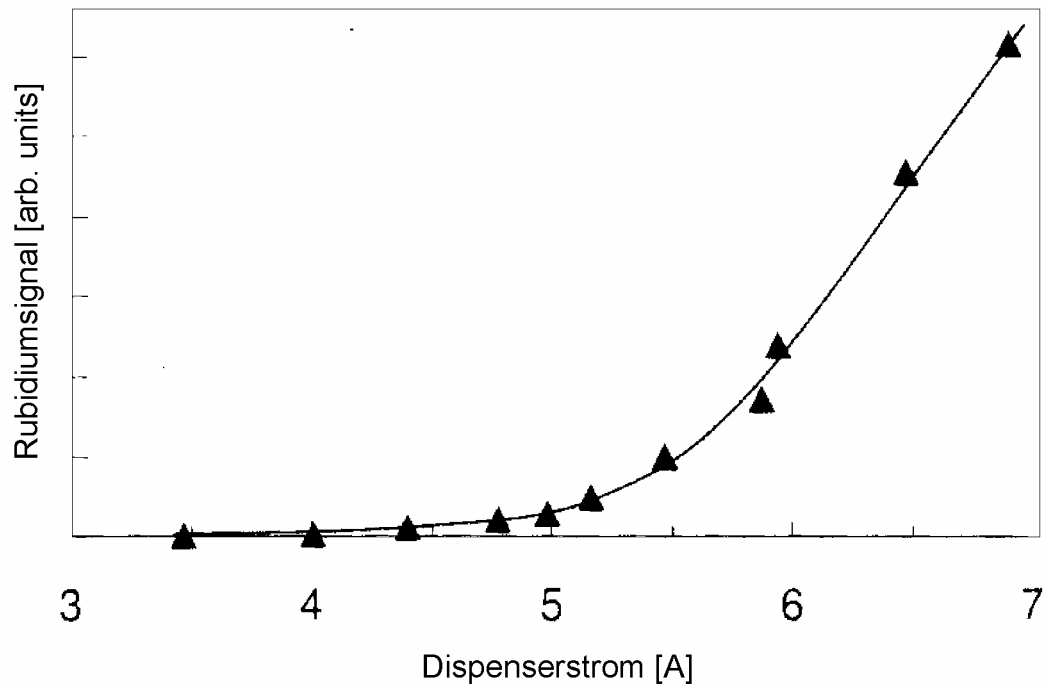


Abbildung A.16: Roach und Hencelwood [121] haben das Signal eines durch Dispenser hergestellten Rubidiumatomstrahles gegen den angelegten Dispenserstrom gemessen: Mit zunehmenden Strom bekommt man ein deutlich größeres Rubidiumsinal. Dabei wird natürlich die Dispenserlebensdauer stark verkürzt.

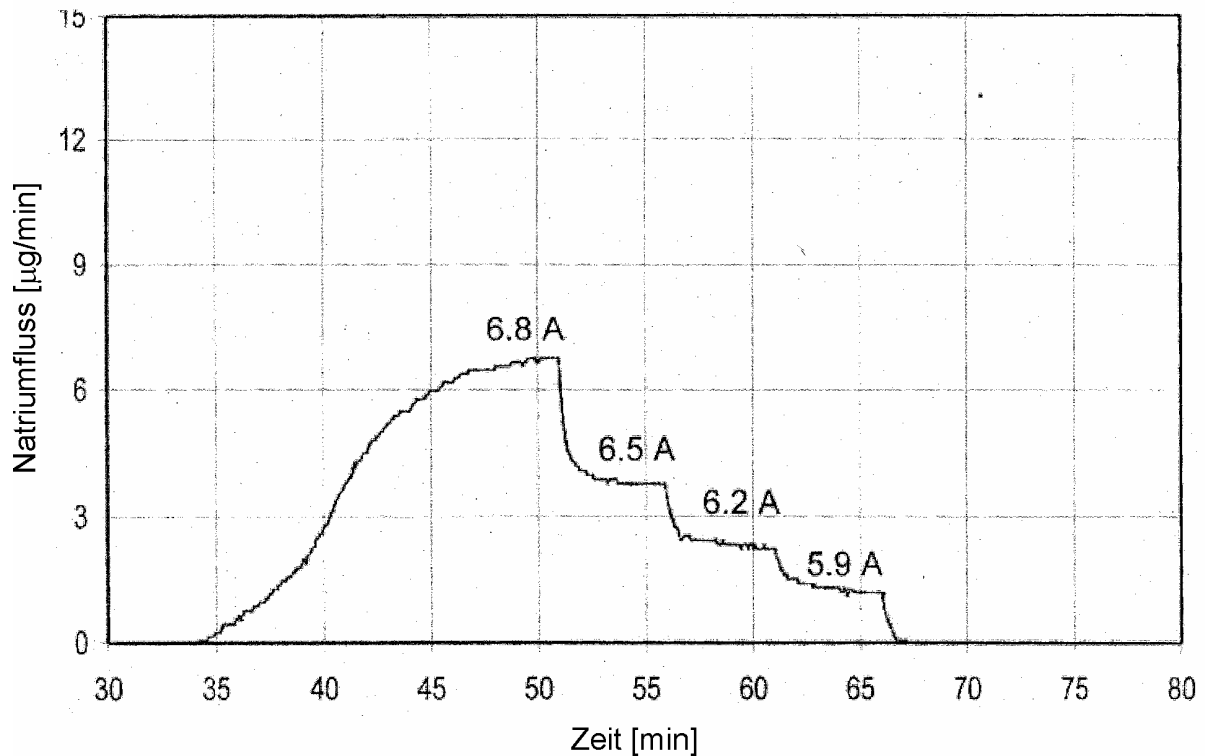


Abbildung A.17: Von M. Succi et al. [123] gemessener Natriumfluss unter Verwendung verschiedener Dispenserströme.



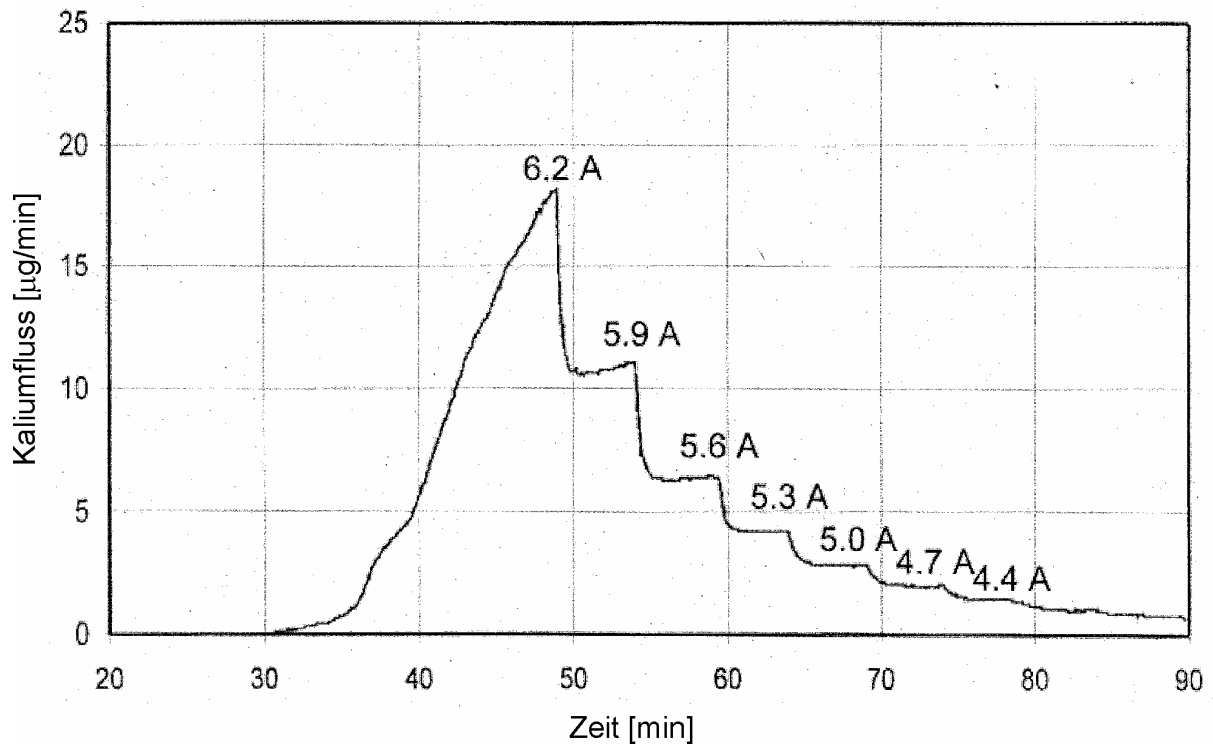


Abbildung A.18: Von M. Succi et al. [123] gemessener Kaliumdispenserfluss.

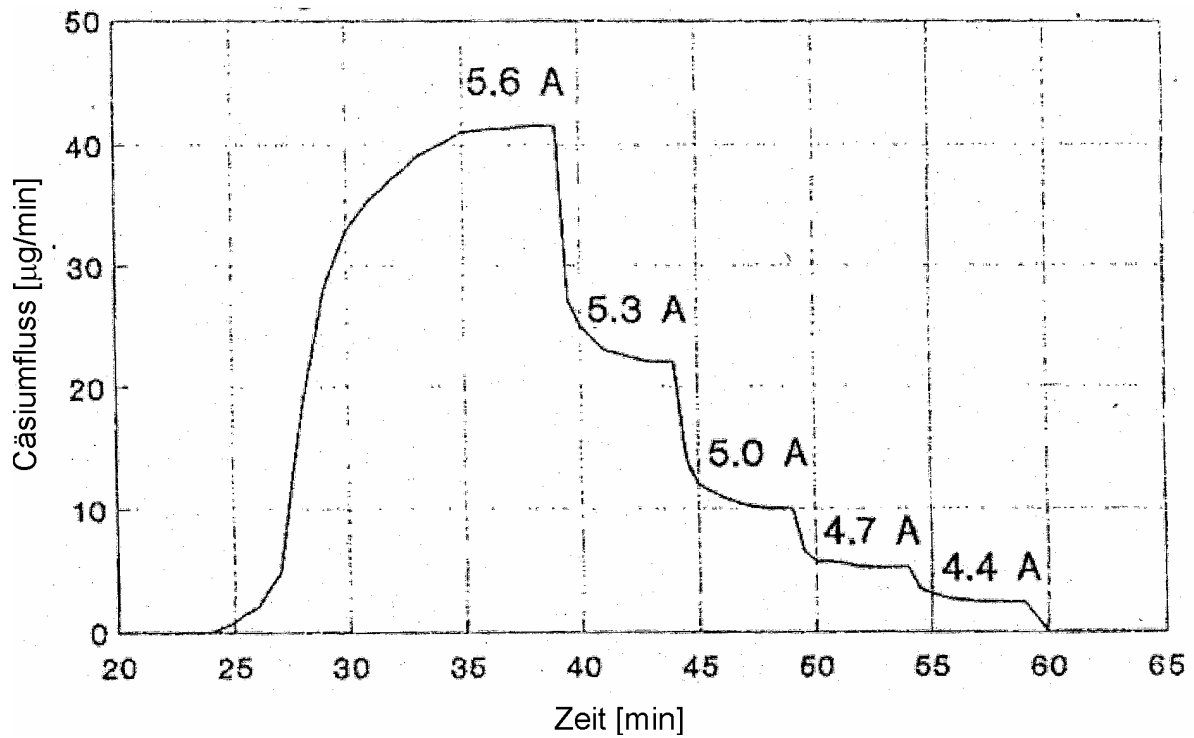


Abbildung A.19: Von M. Succi et al. [123] gemessener Cäsiumdispenserfluss.

vorzufinden. Am Ende dieses Absatzes möchte ich auf den Einsatz von Alkalimetalldispensern in unseren Laboren eingehen: Eingesetzt wurden bislang Rubidium- und Kaliumdispenser, beide jeweils mit einer effektiven Länge von 25 mm. Die Dispenser befanden sich etwa 4 cm vom Wechselwirkungsgebiet zwischen den Polplatten entfernt. Auf der Hälfte der Distanz befand sich eine Blende mit einer Öffnung von 1 cm. Ihren Durchmesser hätte man auch kleiner wählen können. Bei diesem Aufbau kann man natürlich nicht mehr von einem Atomstrahl sprechen. Die einzelnen Alkalimetallatome verlassen wahllos den Dispenserschlitze und passieren die Blendenöffnung mit unterschiedlichen Winkeln. Die Blende dient lediglich zum Schutz der Polplatten vor Verschmutzung. Beim Experiment mit den Rubidiumdispensern wurden gleichzeitig drei Dispenser verwendet, beim Kaliumexperiment lediglich zwei. Bei beiden Tests wurde jeder einzelne Dispenser von einem Strom von ungefähr 4 A durchflossen. Selbst bei diesen im Gegensatz zu den in [121] und [123] beschriebenen Experimenten sehr niedrigen anliegenden Strömen, konnten mit Hilfe unseres Flugzeitmassenspektrometers Signalstärken gemessen werden, die von ihrer Größe nicht weit von denen entfernt sind, welche wir mit Hilfe der bewährten Kartuschentechnik gemessen haben (siehe die Abbildungen A.20 und A.21 im Vergleich zu den Abbildungen A.11 bis A.14). Der Inhalt der Dispenser war bei dieser verwendeten Strommenge ausreichend für viele Messtage. Ionisiert wurde im Falle der Rubidiumdispenser unter Verwendung der dritten Harmonischen (355 nm) eines Nd:YAG-Lasersystems. Die Laserenergie betrug 0,5 mJ. Auch bei den Kaliumdispensern kam das Nd:YAG-Lasersystem zum Einsatz. Die verwendete Energie war gleich, verwendet wurde aber die zweite Harmonische (532 nm). Mit Hilfe der magnetischen Flasche wurden ebenfalls Elektronenspektren aufgenommen, welche in A.22 und A.23 abgebildet sind. Auch die hier gemessenen Signalstärken sind durchaus mit denen vergleichbar, welche unter Verwendung von Kartuschen aufgezeichnet wurden.

Der Vorteil der Dispensertechnik, gegenüber der herkömmlichen Generierung eines Atomstrahles mit Hilfe von Kartusche und Ofen, besteht in den kurzen An- und Ausschaltzeiten: Während Dispenser innerhalb einiger zehn Sekunden nach Einschalten der Stromversorgung einsatzbereit sind, bedarf es für die Generierung eines Überschallatomstrahles eine Ofenanlaufzeit von ca. einer Stunde. Überdies muss beim Ofen, um einen Düsenverschluss zu vermeiden, viel Zeit für den Abschaltprozess aufgewandt werden. Im Gegensatz hierzu können Dispenser einfach ausgeschaltet werden. Das Manko der Dispenser besteht darin, dass sie keinen gerichteten Atomstrahl liefern: Dispenser setzen Atome frei, welche der Maxwellschen Geschwindigkeitsverteilung gehorchen.

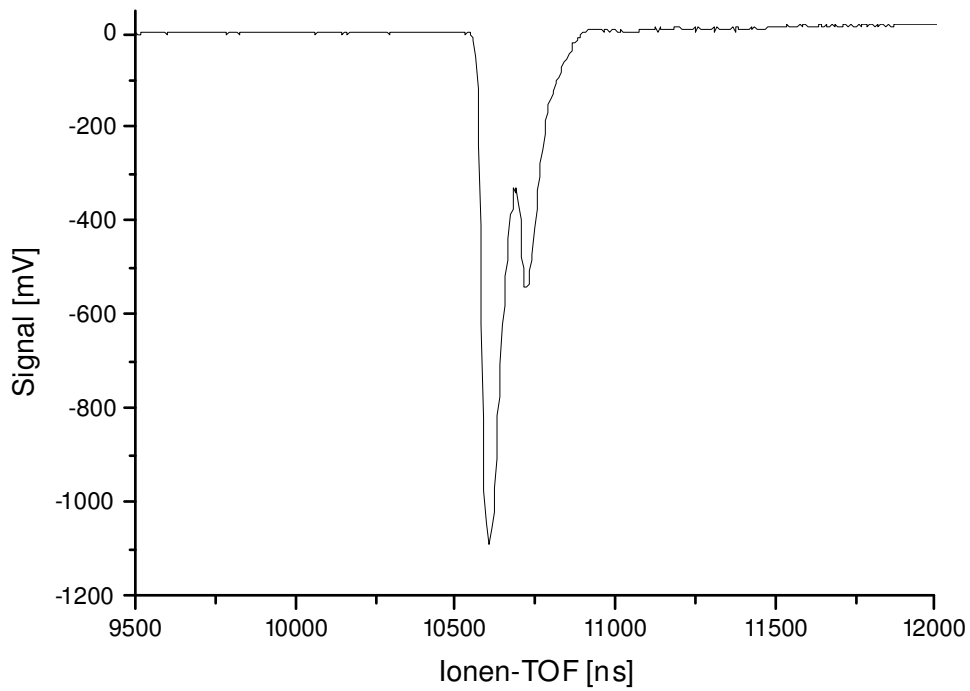


Abbildung A.20: Flugzeitmassenspektrum der beiden Rubidiumisotope. Verwendet wurden drei Rubidiumdispenser, durch welche jeweils ein Strom von 4 A ging. Ionisiert wurde mit Hilfe eines Nd:YAG-Lasers (dritte Harmonische (355 nm), 0,5 mJ). Die aus der Literatur [38] bekannte Isotopenverteilung ( $A = 85$  u : 72,17% ,  $A = 87$  u: 27,83%) wird gut wiedergegeben.

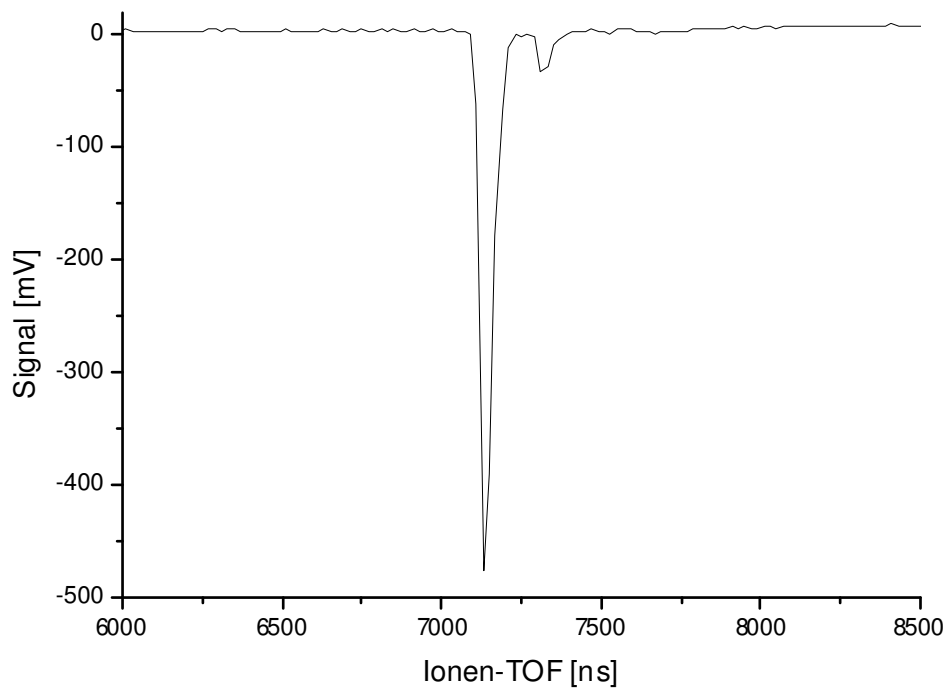


Abbildung A.21: Flugzeitmassenspektrum von Kalium. Verwendet wurden zwei Kaliumdispenser, durch welche jeweils ein Strom von 4 A ging. Ionisiert wurde mit Hilfe eines Nd:YAG-Lasers (zweite Harmonische (532 nm), 0,5 mJ). Auch hier wird die aus der Literatur [38] bekannte Isotopenverteilung ( $A = 39$  u: 93,26%,  $A = 41$  u: 6,73%) gut wiedergegeben.

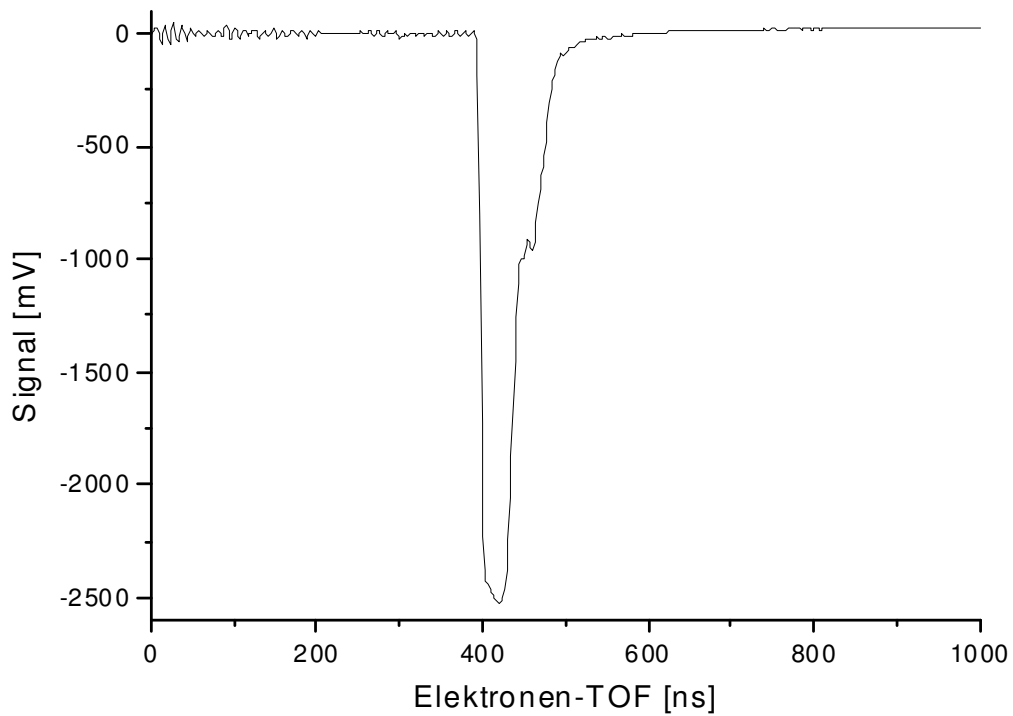


Abbildung A.22: Elektronenspektrum von Rubidium ( $U_{pp} = -2 \text{ V} / U_{ret} = 1 \text{ V}$ ). Verwendet wurden drei Rubidiumdispenser, durch welche jeweils ein Strom von 4 A ging. Ionisiert wurde mit Hilfe eines Nd:YAG-Lasers (dritte Harmonische (355 nm), 0,5 mJ).

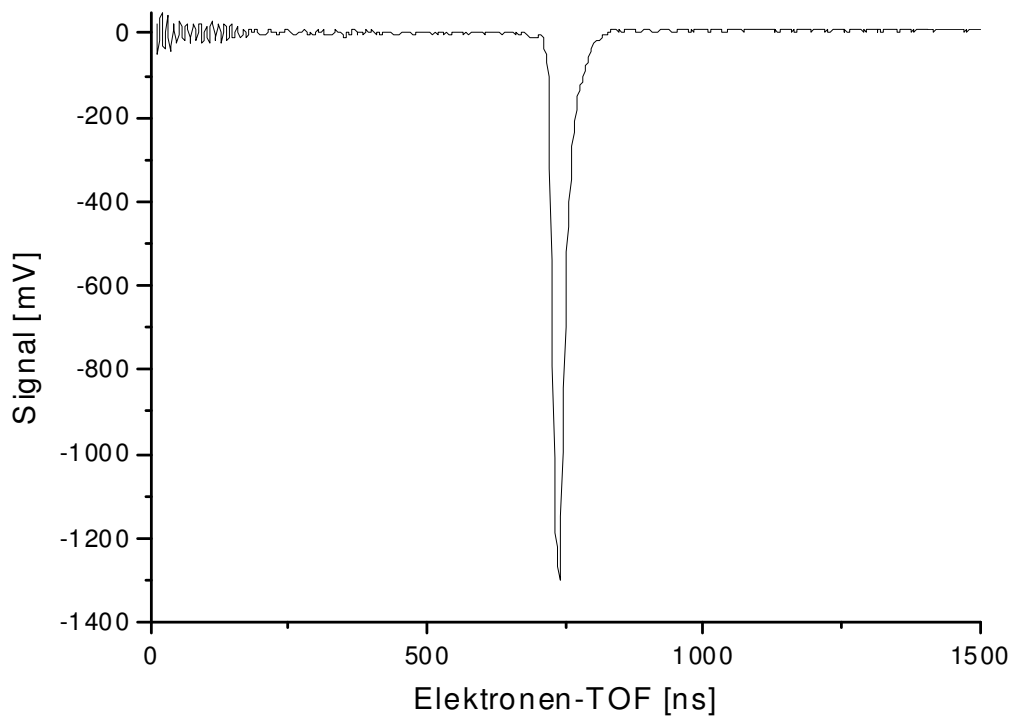


Abbildung A.23: Elektronenspektrum von Kalium ( $U_{pp} = -1,3 \text{ V} / U_{ret} = 2 \text{ V}$ ). Verwendet wurden zwei Kaliumdispenser, durch welche jeweils ein Strom von 3 A ging. Ionisiert wurde mit Hilfe eines Nd:YAG-Lasers (zweite Harmonische (532 nm), 0,5 mJ).

## A.5 Magnetische Flasche

### A.5.1 Grundlagen

Ein Elektronenspektrometer sollte einige wichtige Anforderungen erfüllen. Zunächst sollte es natürlich eine gute Energieauflösung bieten. Es sollte aber auch dazu fähig sein, die im Wechselwirkungsgebiet entstehenden Elektronen möglichst effektiv aufzusammeln. In einem herkömmlichen linearen Flugzeitspektrometer ist deren Anzahl, auf Grund der Tatsache, dass nur die Elektronen, welche in einem sehr begrenzten Raumwinkelbereich emittiert werden, den Weg zum Detektor finden, sehr gering. Geht man von einer isotropen punktförmigen Elektronenquelle aus, die sich im Abstand  $L = 50$  cm zu einem Detektor befindet, welcher einer runde aktive Fläche mit dem Durchmesser  $d = 3$  cm besitzt, erreichen nach der Gleichung

$$\frac{\text{detektierte Elektronen}}{\text{gebildete Elektronen}} = \frac{\pi \left(\frac{d}{2}\right)^2}{4\pi L^2} = \frac{1}{16} \left(\frac{d}{L}\right)^2 \quad (\text{A.11})$$

etwa 0,02 % der Elektronen den Detektor. Wie man durch (A.11) erkennen kann, ist es durch die Wahl einer kürzeren Driftstrecke möglich, das Verhältnis zwischen detektierten und gebildeten Elektronen zu erhöhen. Dies geschieht allerdings zu Lasten der Spektrometernaflösung. Eine wesentlich bessere Elektronenausbeute besitzt ein Spektrometer vom Typ Magnetische Flasche [67, 68]. Hier werden mit Hilfe eines inhomogenen magnetischen Feldes der Größe 1 Tesla die Flugbahnen, der im Wechselwirkungsgebiet emittierten und in unterschiedliche Richtungen sich bewegendenden Elektronen, auf einer Strecke von wenigen Millimetern parallelisiert. Mit Hilfe eines zweiten schwächeren magnetischen Feldes, welches 1 mT groß ist und als Führungsfeld dient, werden die Elektronen dann auf der 50 cm langen Driftstrecke zum Detektor geführt. Das Spektrometer kann somit emittierte Elektronen (in einem Bereich von mehreren 10 meV bis 10 eV) über einen  $2\pi$  großen Raumwinkel aufsammeln: Die von den Atomen durch den Laser emittierten Elektronen werden durch das starke Magnetfeld  $B_i$ , welches sich zwischen den beiden Polschuhen befindet, auf eine Helix um eine magnetische Feldlinie gezwungen: Sie gehorchen der Lorentzkraft

$$F_1 = ev \times B_i \quad (\text{A.12}).$$

Der Zyklotronradius der Helix ist

$$r_i = \frac{v \sin \Theta_i}{\omega_i} \quad (\text{A.13}),$$

wobei  $\Theta_i$  der Winkel zwischen der Elektronengeschwindigkeit und dem Magnetfeld (siehe Abbildung A.24) ist.

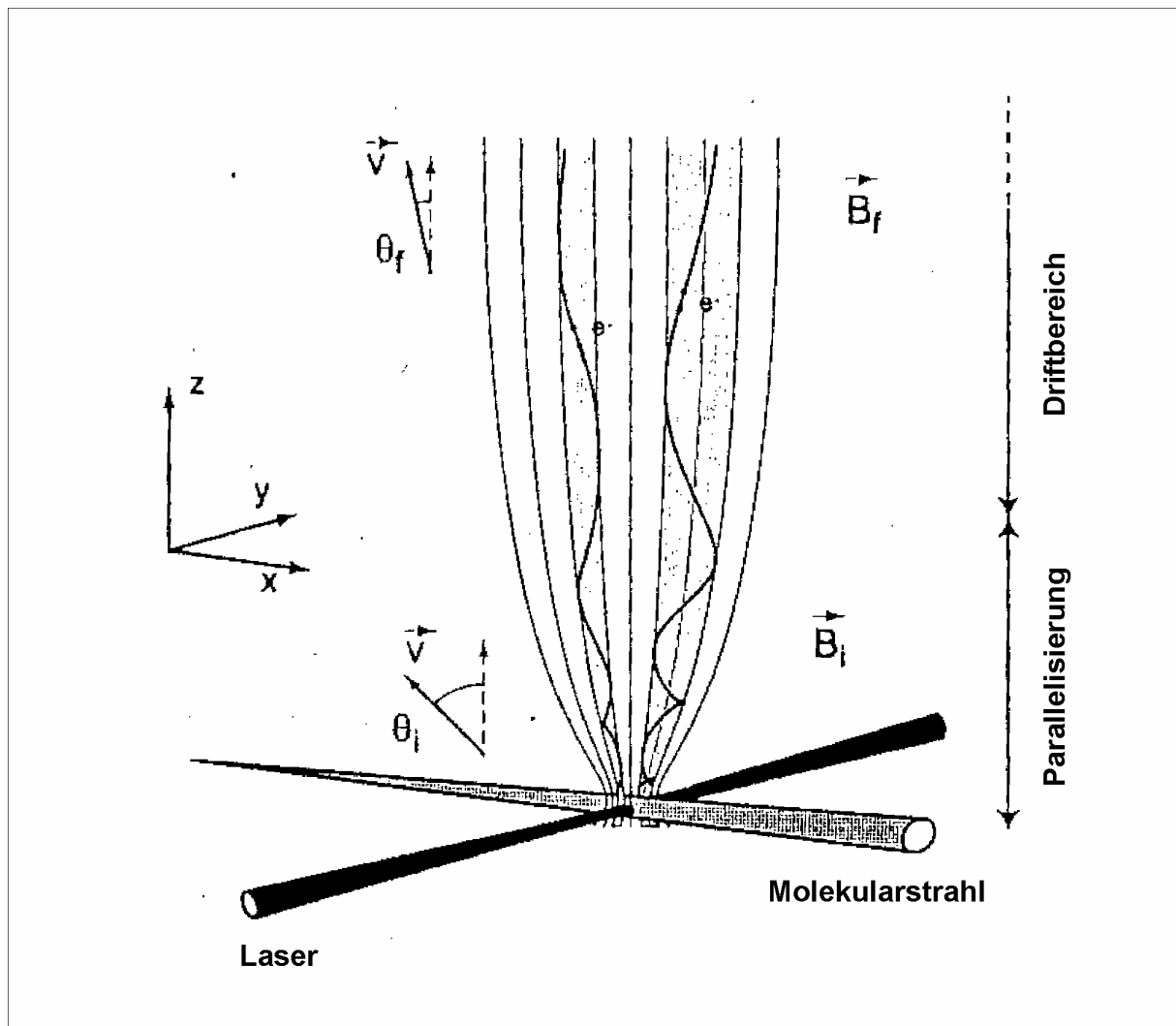


Abbildung A.24: Prinzip der magnetischen Flasche

$$\omega_i = \frac{eB_i}{m_e} \quad (\text{A.14})$$

ist die Zyklotronfrequenz. Auf ihrem Weg zum Detektor gelangen die Elektronen, die in dem Gebiet mit starkem Magnetfeld  $B_i$  gebildet wurden, in ein Gebiet mit deutlich geringeren Magnetfeld  $B_f$ . Bei einer solchen Bewegung ist der Drehimpuls

$$\vec{l} = m_e \vec{r} \times \vec{v} \quad (\text{A.15})$$

nur dann eine Erhaltungsgröße, wenn sich während eines Elektronenumlaufs das Magnetfeld nur vernachlässigbar ändert. Für eine solche adiabatische Änderung folgt aus der Drehimpulserhaltung

$$l_i = \frac{m_e (v \sin \Theta_i)^2}{eB_i} = \frac{m_e (v \sin \Theta_f)^2}{eB_f} = l_f \quad (\text{A.16})$$

eine Abnahme der transversalen Geschwindigkeitskomponente  $v_t = v \sin \Theta_i$ . Da aber wegen der Energieerhaltung der Betrag der Geschwindigkeit gleich bleibt, nimmt der Winkel der Helixbewegung ab auf

$$\frac{\sin \Theta_f}{\sin \Theta_i} = \left( \frac{B_f}{B_i} \right)^{1/2} \quad (\text{A.17}).$$

Bei Berücksichtigung der oben angegebenen Abmessungen der Apparatur sowie der beiden Magnetfelder  $B_i = 1 \text{ T}$  und  $B_f = 1 \text{ mT}$  treten Elektronen, welche im Wechselwirkungsgebiet mit einem Winkel zwischen  $0^\circ$  und  $90^\circ$  emittiert wurden, in das Driftgebiet mit einem maximalen Winkel von

$$\Theta_{f,max} = \sin^{-1} \left( \frac{B_f}{B_i} \right)^{1/2} \approx 1,8^\circ \quad (\text{A.18})$$

ein. Die Trajektorien, der mit unterschiedlichen Anfangsrichtungen  $\Theta_i$  emittierten Elektronen, werden somit durch das inhomogene Magnetfeld parallelisiert (siehe Abbildung A.24). Nach dieser Parallelisierung durchlaufen die Elektronen im gleichförmigen magnetischen Feld  $B_f$  das Driftrohr. Die Driftgeschwindigkeit ist

$$T_{drift} \approx \frac{l_{drift}}{v} \left( 1 + \frac{B_f \sin^2 \Theta_i}{2B_i} \right) \quad (\text{A.19}).$$

## A.5.2 Aufbau der magnetischen Flasche

Die in der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS verwendete Magnetische Flasche wurde von der Firma Applied Laser Technologies in Amsterdam hergestellt. Eine schematische Darstellung ist in Abbildung A.25 vorzufinden. Die Hauptbestandteile der magnetischen Flasche sind der Ionisationsraum mit den beiden Polplatten (Polschuhe), die darunter

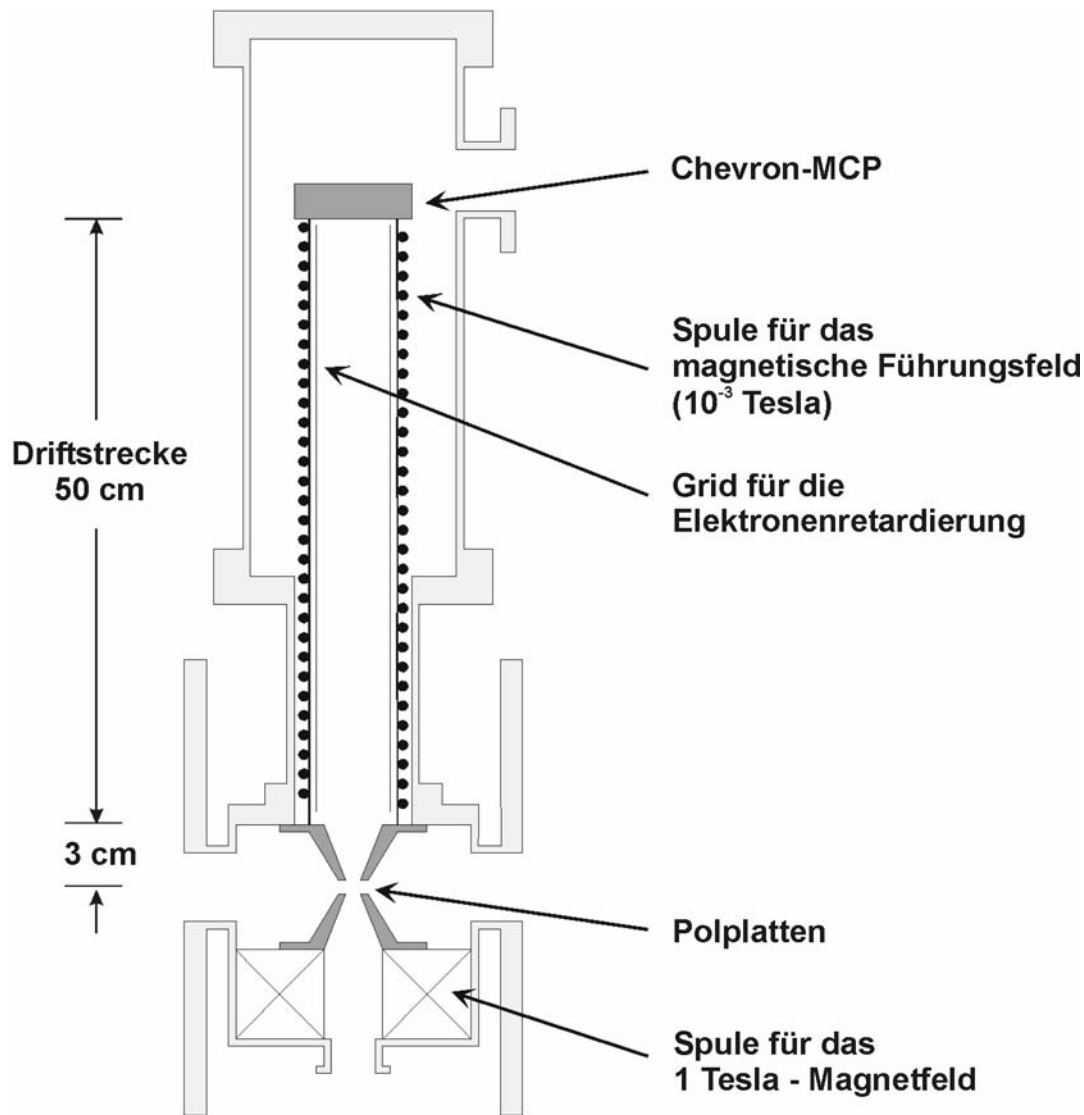


Abbildung A.25: Schnitt durch die magnetische Flasche. Die zwischen den Polplatten durch das Laserlicht von den Alkaliatomen bzw. -molekülen emittierten Elektronen werden auf den ersten Millimetern ihres Weges parallelisiert und durchlaufen dann das Driftrohr, an deren Ende sie auf einen Chevron-MCP treffen. Mit Hilfe des elektrischen Grids können die Elektronen überdies beschleunigt oder abgebremst werden.

liegende Spule für die Bereitstellung des 1-Tesla-Feldes sowie das Driftrohr mit eingebautem Grid, 1-mT-Spule und Chevron-MCP. Für die Herstellung des 1-Tesla-Feldes wird eine Spule verwendet, die normalerweise in einem Philips EM 300 Elektronenmikroskop genutzt wird. Der innere Zylinder der Spule sowie die ansitzenden geerdeten Polschuhe bestehen aus Eisen (Armco). Auch die auf den Polschuhen aufsitzenden Polschuhblenden (siehe Abbildung A.26) sind aus diesem Material. Betrieben wird die Spule mit einem Netzgerät, welches bei einer Spannung von 55 V einen Strom von 4 A liefert. Damit die Spule während des Betriebs nicht überhitzt, muss sie mit Wasser gekühlt werden. An den Polschuhblenden lässt sich bei Bedarf eine Spannung anlegen, damit Potentiale, welche von Verschmutzungen herrühren, die durch den Alkalimetallstrahl entstanden sind, ausgeglichen werden können: Durch Verschmutzung der Polplatten kann in wenigen Messtagen ein Potential aufgebaut werden, welches Elektronen geringerer Energie ( $< 0,3$  eV) effektiv abschwächt. Durch Anlegen eines geringen Potentials (z. B.  $U_{pp} = -0,65$  V) kann der Effekt kompensiert werden. B. G. Koenders empfiehlt in [125] die Polschuhblenden mit Kohlenstoff (Kolloid-Graphit) zu beschichten:



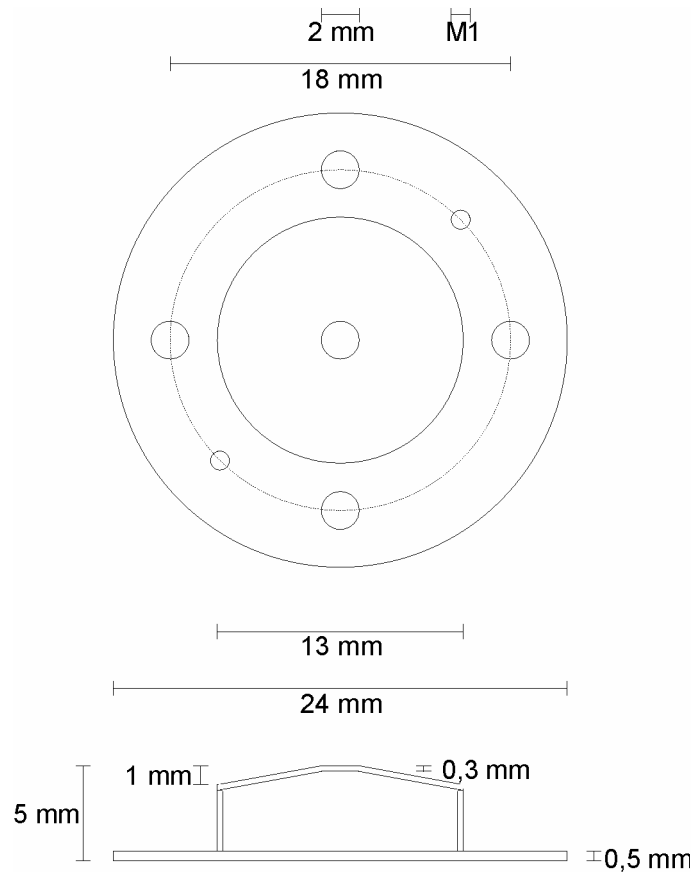


Abbildung A.26: Abmessungen der aus Armco (reines Eisen) hergestellten Polschuhblenden

Dem Aufladungseffekt könnte hierdurch ebenfalls entgegengewirkt werden. Über den Polplatten sitzt ein Zylinder mit einem Innendurchmesser von 5 cm (Außendurchmesser = 6 cm), welcher die 50 cm lange Driftstrecke beherbergt (siehe Abbildung A.27). Um die äußere Oberfläche des Zylinders ist die Spule gewickelt, welche das 1 mT Führungsfeld ausbildet. Die Spulenstrom beträgt 2 A (bei einer anliegenden Spannung von ca. 1 V). Im Inneren des Zylinders befindet sich das aus einem Drahtgeflecht bestehende Grid (Abbildung A.28). An diesem kann respektive zu den Polschuhblenden eine positive oder negative Spannung angelegt werden. Somit ist es möglich, die Elektronen innerhalb der Driftstrecke zu beschleunigen oder abzubremesen. Gängige Beschleunigungsspannungen sind kleiner 2 V. Am Ende der Driftstrecke befindet sich ein Chevron-MCP-Anordnung vom Typ Hamamatsu F 1094-23 S (Abbildung A.29). Diese besitzt einen effektiven Durchmesser von 20 mm. An der Anordnung liegt eine Spannung von 2200 V an. Die Beschaltung der Anordnung ist in Abbildung A.30 zu sehen. Zur Kompensation des Erdmagnetfeldes werden zwei senkrecht zueinander stehende Helmholtzspulen verwendet.



Abbildung A.27: Photo der über den Polplatten sitzenden Driftröhre. Die um die Röhre sich windende 1 mT – Spule ist deutlich erkennbar. Am oberen Ende der Spule ist eine Halterung befestigt, an deren Innenseite der Chevron-MCP montiert ist. Im unteren Bereich ist ein NW150CF Flansch zu sehen, in welchem sich die benötigten Stromdurchführungen befinden. Im Betrieb sitzt montiert auf diesem ein Topf, der sich über einen Bypass zur Hauptkammer evakuieren lässt.

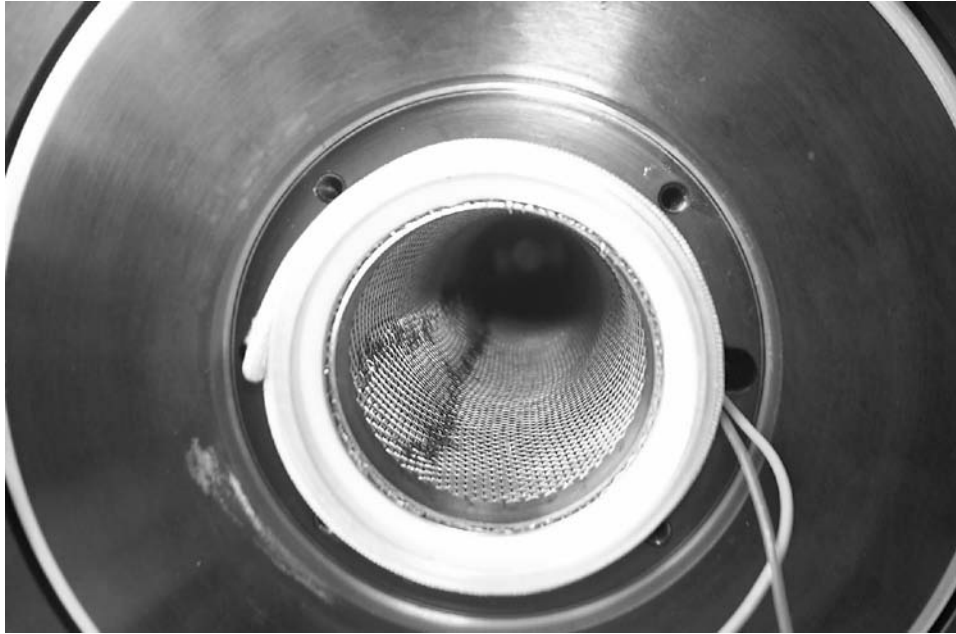


Abbildung A.28: Blick in die den Polplatten zugeneigte Öffnung der Driftröhre. Zu erkennen ist das aus einem zylindrischen Netz bestehende Grid, an welchem man eine Spannung (ca.  $-3\text{ V}$  bis ca.  $+3\text{ V}$ ) anlegen kann, mit deren Hilfe man die Elektronen verlangsamt bzw. beschleunigt. Am äußeren Rand des Zylinders ist die Wicklung des  $1\text{ mT}$  Feldes erkennbar.

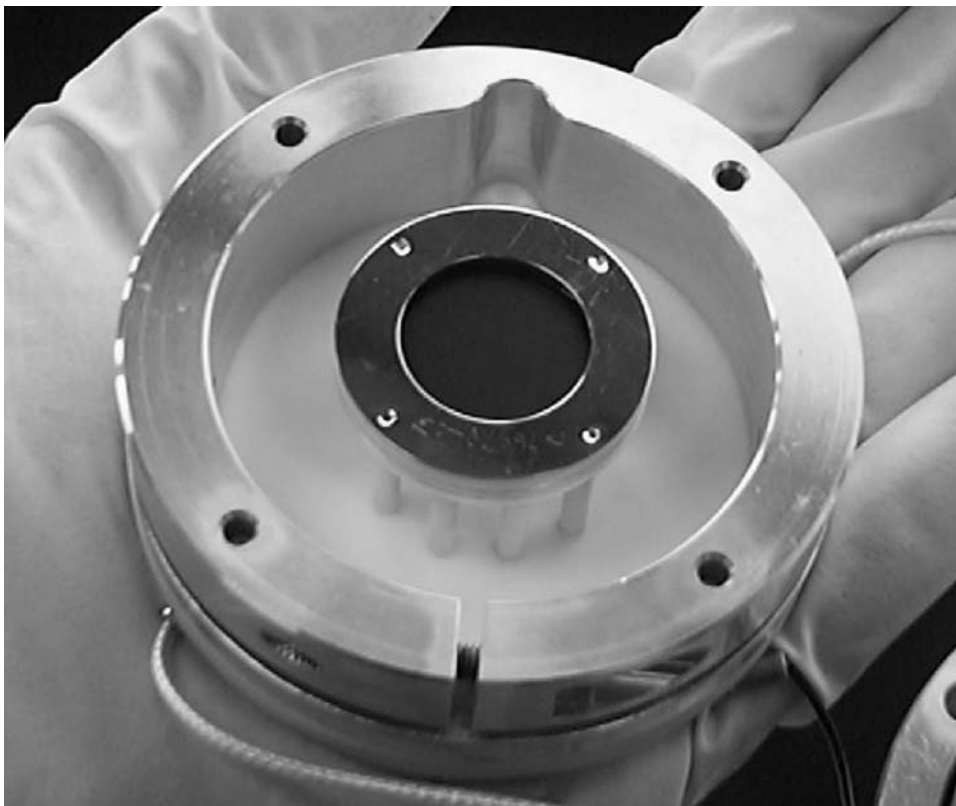


Abbildung A.29: Aufnahme der Chevron-MCP-Anordnung des Typs Hamamatsu F 1094-23 S. Der effektive Durchmesser beträgt  $20\text{ mm}$  ( $\text{Gain} = 10^6$ ). An der Anordnung liegt eine Spannung von  $2200\text{ V}$  an.

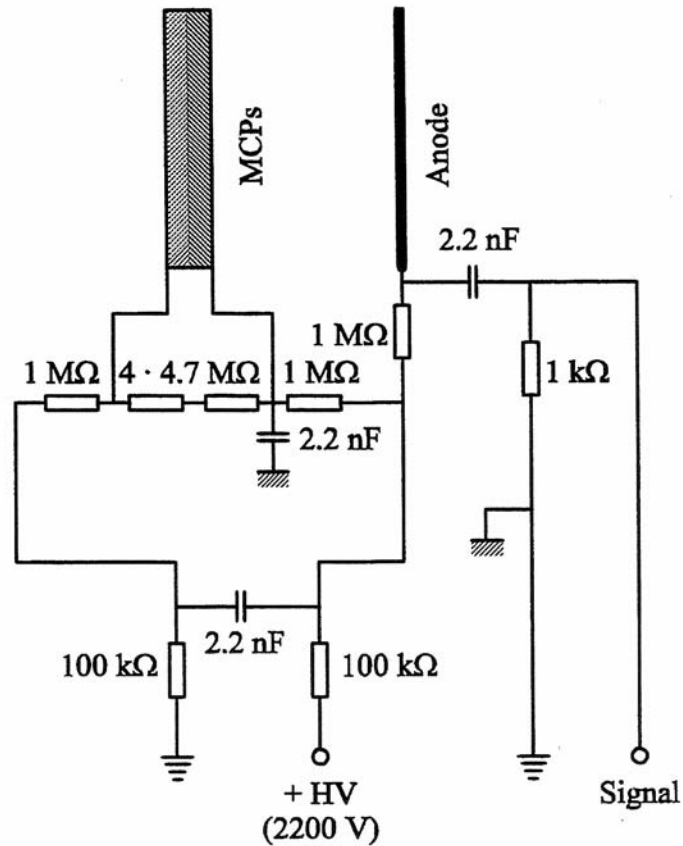


Abbildung A.30: Beschaltung der Chevron-MCP-Anordnung der magnetischen Flasche [64].

### A.5.3 Zeit- und Energieauflösung

Die mit unterschiedlichen Anfangswinkeln  $\Theta_i$  emittierten Elektronen laufen während ihrer Parallelisierung auf unterschiedlichen Wegen: Dies führt zu einer Flugzeitverbreiterung, welche um so geringer ausfällt, je kürzer man das Gebiet gestaltet, in welchem die Parallelisierung stattfindet. Einer zu kurzen Gestaltung dieses Gebietes steht aber die Forderung nach einem adiabatischen Magnetfeld entgegen, welches ja das typische Charakteristikum einer magnetischen Flasche ist. In unserem Spektrometer findet die Umlenkung innerhalb von 3 cm statt. Auf der folgenden 50 cm langen Driftstrecke ist die Flugzeit  $T_{\text{drift}}$  weitgehend unabhängig vom Winkel  $\Theta_i$ .  $T_{\text{drift}}$  bestimmt somit die Gesamtflugdauer ( $T_{\text{drift}} \gg T_{\text{umlenk}}$ ) [64, 66, 127]. In [68] befinden sich Simulationsrechnungen, welche für eine magnetische Flasche unseres Typs durchgeführt wurden. Dabei wurden die durch den Umlenkprozess verursachte Flugzeitverbreiterungen  $\Delta T_1$  für verschiedene Emissionsverteilungen der Elektronen (jeweils für eine kinetische Energie von 1 eV) bestimmt. Es ergab sich für  $\Delta T_1/T = c_1$ :

	$\Delta T_1/T = c_1$
isotrope Verteilung	0,56 %
$\cos^2 \alpha_z$ : Vorzugsrichtung parallel zur Spektrometerachse	0,17 %
$\cos^2 \alpha_x$ : Vorzugsrichtung senkrecht zur Spektrometerachse	0,89 %

Neben dieser umlenkungsbedingten und theoretischen Flugzeitverbreiterung, wird die Zeitauflösung im Experiment natürlich noch durch weitere Faktoren bestimmt:

- Während der Ionisation der Alkaliatome mit einem Nanosekundenlaser werden Elektronen innerhalb der gesamten Laserpulsdauer gebildet. Hierdurch ergibt sich eine Signalbreite von circa 5 ns. Während eines Femtosekundenexperimentes kann es hingegen auf Grund der hohen Laserfeldstärken zu Raumladungseffekten im Wechselwirkungsgebiet kommen. Hierdurch wird die Elektronenverteilung verbreitert.
- Das Detektorsignal der Chevron-MCP-Anordnung besitzt eine zeitliche Breite von einigen Nanosekunden.
- Das verwendete digitale Speicheroszilloskop (Le Croy LC 564 DL) besitzt eine Auflösung von 0,5 ns.
- Durch Verunreinigung entstehende Kontaktpotentiale an den Polplatten sowie am Grid können, neben den in A.5.2 beschriebenen Langzeiteffekten, auch für kurzzeitige von Laserschuss zu Laserschuss fluktuierende elektrische Störfelder verantwortlich sein. Auch die Restwelligkeit der angelegten Hochspannung führt zu solchen Störfeldern.

Während die ersten drei der eben genannten Effekte sich zu einem konstanten Beitrag zum Rauschen addieren und auf  $\Delta T_2 = \tilde{c}_2 = const < 10$  ns abgeschätzt werden können, hängt der Einfluss der elektrischen Störfelder von der Flugzeit der Elektronen in der Driftstrecke ab: Somit also von der kinetischen Energie der Elektronen. Wenn die Energieänderungen, welche durch die Störfelder induziert worden sind, klein gegenüber der Anfangsenergie der Elektronen sind, gilt für die zeitliche Verbreiterung

$$\Delta T_3 \approx const \cdot \frac{\partial T}{\partial E} = \tilde{c}_3 E^{-3/2} \quad (\text{A.20}).$$

$\Delta T_3$  wird somit also besonders groß für Elektronen mit einer eher geringen kinetischen Energie. Insgesamt ergibt sich die apparative Flugzeitverbreiterung aus

$$\frac{\Delta T}{T} = \sqrt{\frac{\Delta T_1^2 + \Delta T_2^2 + \Delta T_3^2}{T^2}} \quad (\text{A.21}).$$

Da  $T^2 \approx const / E$  ergibt sich bei einer isotropen Emission die folgende Abschätzung:

$$\frac{\Delta T}{T} = \sqrt{\tilde{c}_1^2 + \frac{\tilde{c}_2^2}{T^2} + \frac{\tilde{c}_3^2 E^{-3}}{T^2}} = \sqrt{c_1 + c_2 \cdot E + \frac{c_3}{E^2}} \quad (\text{A.22})$$

Wenn man für die mittlere Flugzeit einen mittleren Wert von 1000 ns veranschlagt und für  $c_3$  einen aus Retardierungsmessungen zurückgerechneten Wert in Höhe von  $10^{-4}$  einsetzt, erhält man

$$\frac{\Delta T}{T} \approx \sqrt{3,1 \cdot 10^{-5} + 1 \cdot 10^{-4} \cdot E + 1 \cdot 10^{-4} \cdot E^{-2}} \quad (\text{A.23}).$$

Die Verbreiterung in der Zeitauflösung, welche durch die Parallelisierung verursacht wird, ist somit nicht der stärkste Beitrag zur Gesamtverbreiterung. Ein größerer Beitrag entsteht durch den Laserpuls (fs-Puls: spektrale Breite / ns-Puls: Pulsdauer) und durch die Messwertaufnahme. Über die Kalibrierung (siehe Kapitel A.5.4) überträgt sich die zeitliche Verbreiterung auf die Energieauflösung:

$$\Delta E = \frac{2\Delta T}{T} E \approx 2\sqrt{c_1 E^2 + c_2 E^3 + c_3} \quad (\text{A.24})$$

Mit den Werten aus (A.23) erhält man für Elektronen, die eine kinetische Energie von 0,5 eV besitzen, eine Auflösung von 22 meV.

Verbessern lässt sich das Auflösungsvermögen durch Retardieren der Elektronen mit Hilfe des Grids. Durch Anlegen einer positiven Spannung an das Grid, werden die Elektronen nach ihrer Parallelisierung abgebremst. Die kinetische Energie, welche die Elektronen bei der Ionisation besitzen, sei  $E_i$ , die, welche sie auf der Driftstrecke haben, sei  $E_f$ . Für die Flugzeit gilt  $T \sim E_f^{-1/2}$ , die Verbreiterung auf Grund der Emissionsrichtung ist proportional zu  $E_i^{-1/2}$ , die auf Grund des Rauschens ist  $\Delta T_3 \sim E_f^{-3/2}$ . Mit Hilfe von Gleichung (A.23) erhält man unter Berücksichtigung, dass alle Energien in eV geschrieben sind,

$$\frac{\Delta T}{T} = \sqrt{3,1 \cdot 10^{-5} \cdot \frac{E_f}{E_i} + 1 \cdot 10^{-4} \cdot E + 1 \cdot 10^{-4} \cdot E_f^{-2}} \quad (\text{A.25}),$$

also

$$\Delta E = 2E_f \frac{\Delta T}{T} = 2\sqrt{3,1 \cdot 10^{-5} \cdot \frac{E_f}{E_i} + 1 \cdot 10^{-4} \cdot E_f^3 + c_3} \quad (\text{A.26}).$$

Beim Retardieren sind es also die elektrischen Störfelder, welche das Auflösungsvermögen der magnetischen Flasche begrenzen. Aus Messungen wurde für  $\Delta E$  ein Wert von 20 meV ermittelt: Die Konstante  $c_3$  ist somit  $10^{-4}$ .

## A.5.4 Kalibrierung

### A.5.4.1 Modellfunktion, phänomenologischer Ansatz

Die Daten, welche wir mit Hilfe der magnetischen Flasche erhalten, liegen uns in Time-Of-Flight (TOF) Spektren vor (siehe Abbildungen A.23 und A.24). Die emittierten Elektronen werden in der Chevron-MCP-Anordnung vervielfacht. Man erhält ein Spannungssignal, welches gegenüber jeder einzelnen Elektronenflugzeit aufgetragen wird. Von größeren Interesse ist es aber ein Spektrum zu erhalten, aus welchen man die unterschiedlichen kinetischen Energien  $E_k$  der Elektronen ablesen kann. Um solche Spektren zu erhalten, müssen die TOF-Spektren kalibriert werden. In einem idealen Falle könnte man natürlich die kinetische Energien  $E_k$  der Elektronen direkt aus der „gängigen“ Formel

$$E_k = \frac{1}{2} m_e \frac{L^2}{T^2} \quad (\text{A.27})$$

berechnen, in welcher  $m_e$  für die Masse eines Elektrons,  $T$  für die Flugzeit und  $L$  für die Länge der durchwanderten Driftstrecke steht. Bei der Letztgenannten, der Driftstrecke ist aber der Hauptgrund zu suchen, weshalb eine Kalibrierung nicht ganz so leicht erfolgen kann: Die Länge der Driftstrecke lässt sich nicht völlig exakt bestimmen. Je nach Lage des Laserfokus kann ihre Länge um über 1 mm variieren. Überdies ist die genaue Länge der Strecke oberer Polschuh – Detektor nur schwer messbar: Sie kann nur mit ungefähr 50 cm angegeben werden. Ein weiteres Problem besteht darin, dass zwischen dem Eintreffen des Lasers im Wechselwirkungsgebiet und dem zusätzlichen Auftreffen eines Laserreflexes auf einer schnelle Photodiode, die zum Triggern verwendet wird, ein Zeitunterschied besteht. Bei einem zusätzlichen Weg des Reflexes zur Diode von 1 m entsteht eine Zeitdifferenz von etwa 3 ns. Da im Regelfall die Elektronen nach ihrer Parallelisierung mit Hilfe des Grids retardiert oder beschleunigt werden, muss ohnehin die am Grid anliegende Spannung  $U_g$  bei einer Kalibrierung mit berücksichtigt werden. Die am Grid eingestellte Spannung kann im übrigen auf Grund von Kontaktpotentialen von ihrem tatsächlichen Wert abweichen.

Die eben dargestellten Probleme werden in

$$E_k = \left( \frac{m_e}{2e} \right) \left( \frac{L}{T + T_d} \right)^2 + U_g + U_c \quad (\text{A.28})$$

näherungsweise berücksichtigt. Die in der Gleichung enthaltenen freien Parameter Driftstrecke  $L$ , Triggerverzögerung  $T_d$ , sowie Kontaktpotentiale  $U_c$  müssen durch Flugzeitmessungen von Elektronen mit bekannter kinetischer Energie  $E_k$  ermittelt werden. Durch Feldinhomogenitäten kann es aber mit Hilfe von (A.28) in der Praxis zu

Abweichungen von bis zu 0,1 eV kommen.

Die von uns durchgeführten Kalibrierungen besitzen als Grundlage einen eher phänomenologischen Ansatz, wie er bereits in [125] beschrieben wurde:

$$E_k = \sum_{i=0}^p \frac{a_i}{T^i} + U_g \sum_{i=0}^q b_i T^i \quad (\text{A.29})$$

oder auch kurz

$$E_k = \gamma(T) + U_g \delta(T) \quad (\text{A.30}).$$

Ein Polynom in  $1/T$  mit den Koeffizienten  $a_i$  ersetzt hier den ersten Term der Gleichung (A.28). Der Einfluss der Spannung am Grid  $U_g$  kommt als Faktor für das zweite Polynom, in welchem der Koeffizient  $b_i$  steht, zum tragen. Wenn man nun für zwei bereits bekannte Elektronenenergien  $E_1$  und  $E_2$ , deren zugehörige Retardierungsspannungen  $U_1$  und  $U_2$  so wählt, dass die emittierten Elektronen die gleiche Zeit bis zum Detektor benötigen, kann man  $\gamma(T)$  und  $\delta(T)$  berechnen. Es gilt dann

$$\gamma(T) = \frac{U_1 E_2 - U_2 E_1}{U_1 - U_2} \quad (\text{A.31})$$

und

$$\delta(T) = \frac{E_1 - E_2}{U_1 - U_2} \quad (\text{A.32}).$$

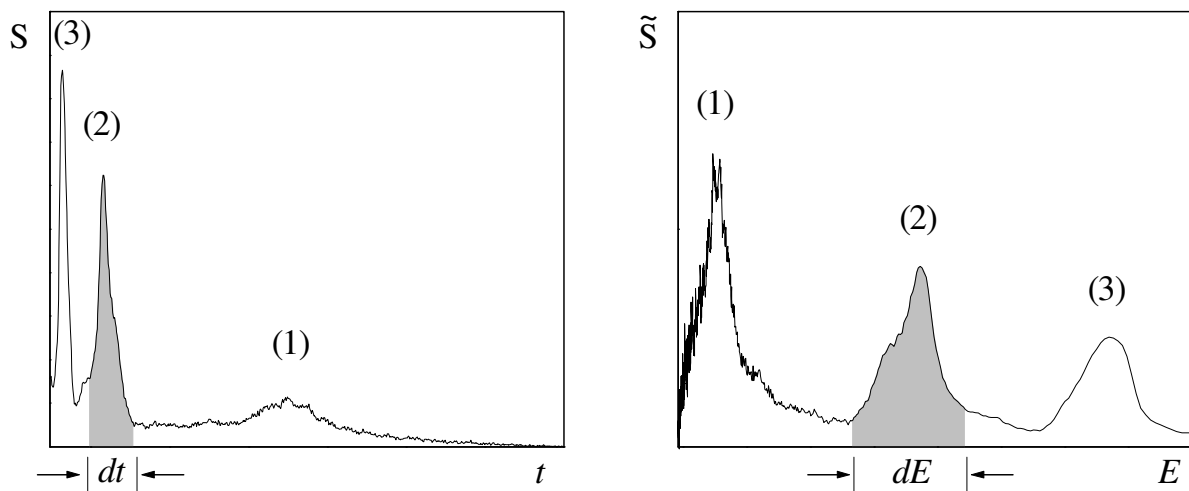


Abbildung A.31: Die Energiekalibrierung ist keine lineare Funktion der Zeit. Da die Höhe des Gesamtsignals konstant bleiben muss, müssen mit Hilfe von (A.34) die einzelnen Signalthöhen umgerechnet werden. Hierbei müssen die Flächen des jeweiligen Signalwertes gleich groß bleiben.



Dies durchgeführt für eine Reihe von verschiedenen Flugzeiten, ermöglicht die Bestimmung der Koeffizienten  $a_i$  und  $b_i$  in  $\chi(T)$  bzw.  $\delta(T)$  mit Hilfe eines Least-Squares-Fit. Dabei werden die Polynome so angepasst, dass die Abweichungen, welche man aus den Kalibrationsgleichungen erhält, minimal gegenüber den Literaturwerten sind. Bereits bei einem Polynom 3. Grades erreichen wir eine Abweichung kleiner 2 meV, was als ausreichend betrachtet werden kann.

Da die eben beschriebene Energiekalibrierung keine lineare Funktion der Zeit ist, müssen die Signalhöhen angepasst werden. Dies muss natürlich so geschehen, dass das Gesamtsignal konstant bleibt. Damit dies der Fall ist muss

$$S(T)dT = S'(E)dE \quad (\text{A.33})$$

gelten. Umrechnen kann man die Signalhöhe somit mit

$$S'(E) = S(T) \left( \frac{dE}{dT} \right)^{-1} \quad (\text{A.34}).$$

Abbildung A.31 veranschaulicht diese Umrechnung.

#### A.5.4.2 Kalibrierung mit bekannten Elektronenenergien

Bei den in den Kapiteln 4 bis 6 beschriebenen Experimenten am Kaliumatom wurden Elektronenflugzeitspektren aufgenommen, deren kalibrierte Signale sich über einen weiten Energiebereich erstrecken. Besonderes Augenmerk liegt dabei auf den jeweiligen Thresholdelektronen der Messungen, welche Energien zwischen 0,2 eV und 0,8 eV besitzen. Aber auch die einzelnen Above-Threshold-Ionization (ATI) Peaks, deren verursachende Elektronen, Energien von mehreren eV besitzen können, sind natürlich von Interesse. Gerne wird für die Kalibrierung von Flugzeitspektren das Edelgas Xenon verwendet, welches mit Hilfe eines 6 mm starken Rohres direkt in das Wechselwirkungsgebiet geleitet wird. Hierbei steigt der Druck in der Hauptkammer typischerweise auf 1 bis  $3 \cdot 10^{-5}$  mbar. Für die Ionisation des  $^2P_{3/2}$  bzw. des  $^2P_{1/2}$  Grundzustandes des Xenons werden Energien von 12,130 eV bzw. 13,426 eV benötigt [126]. Ionisiert man mit einem Nd:YAG-Laser (Spectra Physics Quanta-Ray INDI-30, 20 Hz, Pulslänge: 7 ns) und verwendet man dabei die zweite (6 Photonen zu 532 nm) oder dritte Harmonische (4 Photonen zu 355 nm), erhält man dabei jeweils Signale mit einer Energie von 1,853 eV ( $^2P_{3/2}$ ) bzw. 0,557 eV ( $^2P_{1/2}$ ). Mit Hilfe dieser beiden Energien lässt sich aber leider nur der dazwischen liegende Bereich - eben 0,557 eV bis 1,853 eV - kalibrieren. Der von uns abzudeckende Raum ist wesentlich größer. Dennoch greifen wir bei unseren Kalibrierungen auch auf die beiden Xenonenergien zurück. Ergänzend hierzu wird der 4s Kaliumgrundzustand, dessen Ionisationsenergie 4,341 eV beträgt [126], mit Hilfe eines Farbstofflasers (Sirah Cobra-Stretch) ionisiert. Verwendet wird dabei der Farbstoff Fluorescein 27 der im Bereich von 541 nm bis 571 nm aktiv ist (maximale Effizienz: 550 nm). Gepumpt wird der Farbstofflaser dabei mit Hilfe der zweiten Harmonischen (532 nm) des oben erwähnten Nd:YAG-Lasers. Es kann somit mit Hilfe des Kalium 4s Zustands, ein Energiebereich zwischen 0,003 eV (2 Photonen zu 571 nm) und 0,243 eV (2 Photonen zu 541 nm) abgedeckt werden. Ebenfalls ist es natürlich möglich, den Kalium 4s Zustand direkt mit

der zweiten Harmonischen des Nd:YAG-Lasers zu ionisieren (2 Photonen zu 532 nm). Die Energie der emittierten Elektronen beträgt hier 0,320 eV. Mit Xenon und Kalium ist es also somit möglich einen Energiebereich zwischen nahezu 0 eV und 1,85 eV abzudecken.

In der Praxis können jeweils drei Messserien mit jeweils ungefähr 10 verschiedenen Gridspannungen  $U_g$  durchgeführt werden: Die erste davon mit Hilfe des Nd:YAG-Lasers (532 nm) bei relativ hoher Pulsenergie (ca. 4 mJ: da für die Ionisation des Xenons 6 Photonen benötigt werden). In dieser Messserie werden gleichzeitig von den Xenon  $^2P_{3/2}$  und  $^2P_{1/2}$  Zuständen sowie vom Kalium 4s Zustand aus ionisiert. Die zweite und dritte Messserie findet unter Verwendung des Farbstofflasers statt, wobei zum einen in einer Serie mit Hilfe der Wellenlänge 548 nm, zum anderen in einer Serie mit der Wellenlänge 570 nm vom Kalium Grundzustand (4s) aus ionisiert wird. Zusammenfassend ergibt sich eine Tabelle mit den folgenden kinetischen Energien:

Zustand	Ionisationsenergie [126]	Laser (Wellenlänge)	kinetische Energie der emittierten Elektronen
Xenon $5^2P_{3/2}$	12,130 eV	Nd:YAG (532 nm)	1,853 eV
Xenon $5^2P_{1/2}$	13,426 eV	Nd:YAG (532 nm)	0,557 eV
Kalium 4s	4,341 eV	Nd:YAG (532 nm)	0,320 eV
Kalium 4s	4,341 eV	Farbstofflaser (548 nm)	0,184 eV
Kalium 4s	4,341 eV	Farbstofflaser (570 nm)	0,010 eV

Folgend wird stellvertretend das Beispiel einer Kalibrierung eines Flugzeitelektronenspektrums gezeigt, dass mit Hilfe eines Femtosekundenlasers (790 nm, 0,38  $\mu$ J) entstanden ist. In Abbildung A.32 sieht man dieses Spektrum, welches mit einer Gridspannung von  $U_g = 2V$  und einer Polplattenspannung von  $U_{pp} = -3V$  aufgenommen wurde. Ionisiert wurde das Kalium unter Zuhilfenahme des Femtosekundenlasers direkt mittels eines Pulses (3 Photonen). Deutlich ist das Autler-Townes Doublet zu erkennen. Die drei benötigten Kalibrierungsmessserien (mit  $\lambda = 532$  nm,  $\lambda = 548$  nm und  $\lambda = 570$  nm) bestanden jeweils aus 11 Messungen die im Bereich  $U_g = 1,5$  V bis  $U_g = 2,5$  V, im Abstand von je 0,1 V durchgeführt wurden. Die Abbildung A.33 zeigt eine dieser Serien (Farbstofflaser: 548 nm). Sämtliche Messungen in diesem Abschnitt wurden mit Hilfe eines LeCroy LC 564 DL Oszilloskops aufgenommen und mittels eines LabView Programms (Read\_osci.vi) in einen Computer ausgelesen. Mittels LabView Anwendungen wurde auch der Least-Square-Fit (FitPhotoelectronsSave\_all.vi und Measured Data Save\_all.vi) und die Transformation (Flugzeit – Kinetische Energie) der Spektren (Time2Energy Load Data Save E.vi) durchgeführt. Eine genaue Beschreibung der Fitprozedur findet sich in [127]. Abbildung A.34 zeigt die Kalibrierungskurve. Für die Gleichung

$$E_k = \sum_{i=0}^2 \frac{a_i}{T^i} + U_g \sum_{i=0}^2 b_i T^i \quad (\text{A.35})$$

wurden die folgenden Parameter gefunden:

$$a_0 = 1,89 \text{ J}$$

$$a_1 = -7,36 \cdot 10^2 \text{ Js}$$

$$a_2 = 8,73 \cdot 10^5 \text{ Js}^2$$

$$b_0 = -8,28 \cdot 10^{-1} \text{ J/V}$$

$$b_1 = -1,80 \cdot 10^{-4} \text{ J/Vs}$$

$$b_2 = 2,67 \cdot 10^{-8} \text{ J/Vs}^2$$

Mit Hilfe dieser Parameter ist es möglich die in Abbildung A.32 aufgetragenen Elektronenflugzeiten in kinetische Energien zu transformieren. Das Ergebnis zeigt Abbildung A.35. Das Minima in mitten des Autler-Townes Doublets liegt bei den 0,368 eV, welche man auf Grund der Vorgaben (3 Photonen a 1,569 eV, IP Kalium: 4,341 eV) erwartet. Für die Abbildung A.36 wurden die innerhalb der Kalibrierungsmesserie mit der Beschleunigungsspannung  $U_g = 2,0 \text{ V}$  aufgenommenen Flugzeitelektronenspektren auf kinetische Energien zurückkalibriert. Dabei wurden, für die in die Kalibrierung eingehenden Energien, die folgenden Abweichungen ermittelt:

Zustand (Wellenlänge)	kinetische Energie der emittierten Elektronen	zurückkalibrierte Energie	Differenz
Xenon $5^2P_{3/2}$ (532 nm)	1,853 eV	1,844 eV	- 0,009 eV
Xenon $5^2P_{1/2}$ (532 nm)	0,557 eV	0,568 eV	+ 0,011 eV
Kalium 4s (532 nm)	0,320 eV	0,291 eV	- 0,029 eV
Kalium 4s (548 nm)	0,184 eV	0,193 eV	+ 0,009 eV
Kalium 4s (570 nm)	0,010 eV	0,025 eV	+ 0,015 eV

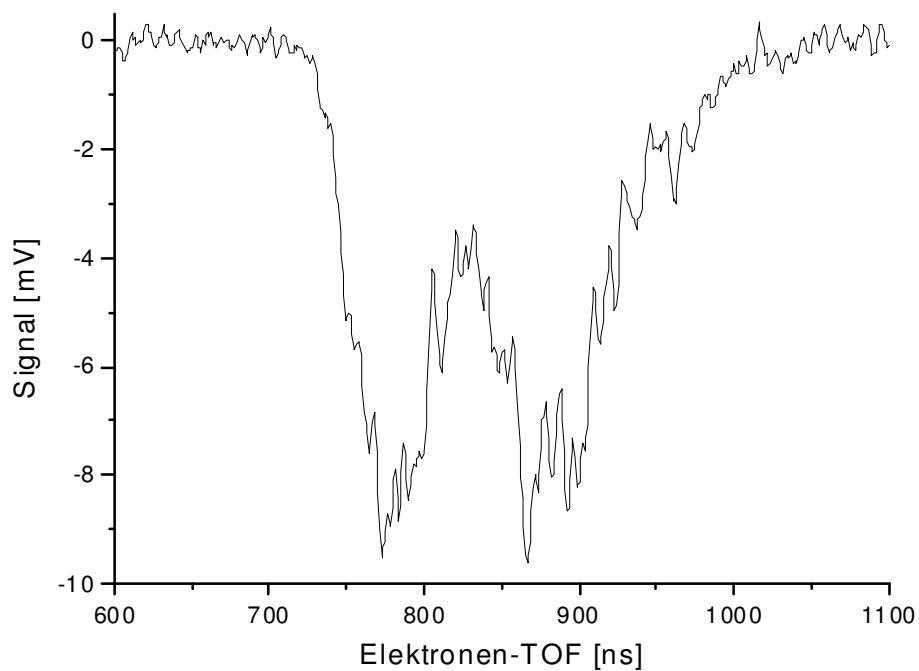


Abbildung A.32: Mit Hilfe eines einzigen Femtosekundenlaserpulses (790 nm, 0,38  $\mu$ J) wurden Kaliumatome (IP: 4,341 eV) ionisiert. Hierzu werden jeweils drei Photonen benötigt. Zu sehen ist die typische Autler-Townes Aufspaltung. Die Polplattenspannung  $U_{pp}$  betrug  $-3$  V, Die Beschleunigungsspannung betrug  $U_g = +2$  V.

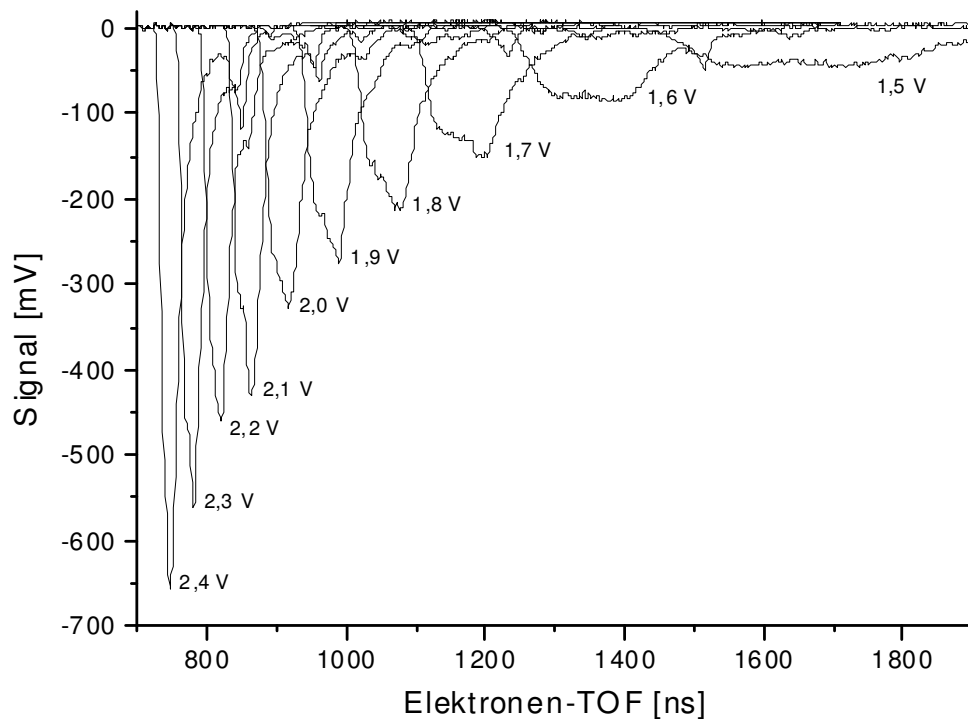


Abbildung A.33: Zu sehen ist eine typische Kalibrierungsmessserie. In Abständen von 0,1 V wurde zwischen 1,5 V und 2,5 V (hier 2,4 V) die Gridspannungen  $U_g$  variiert. Es wurden drei Messerien (532 nm, 548 nm, 570 nm) aufgenommen. Hier ist die Messerie abgebildet, welche für 548 nm durchgeführt wurde. Ionisiert wurde mit einem Farbstofflaser Kalium (IP: 4,341 eV).

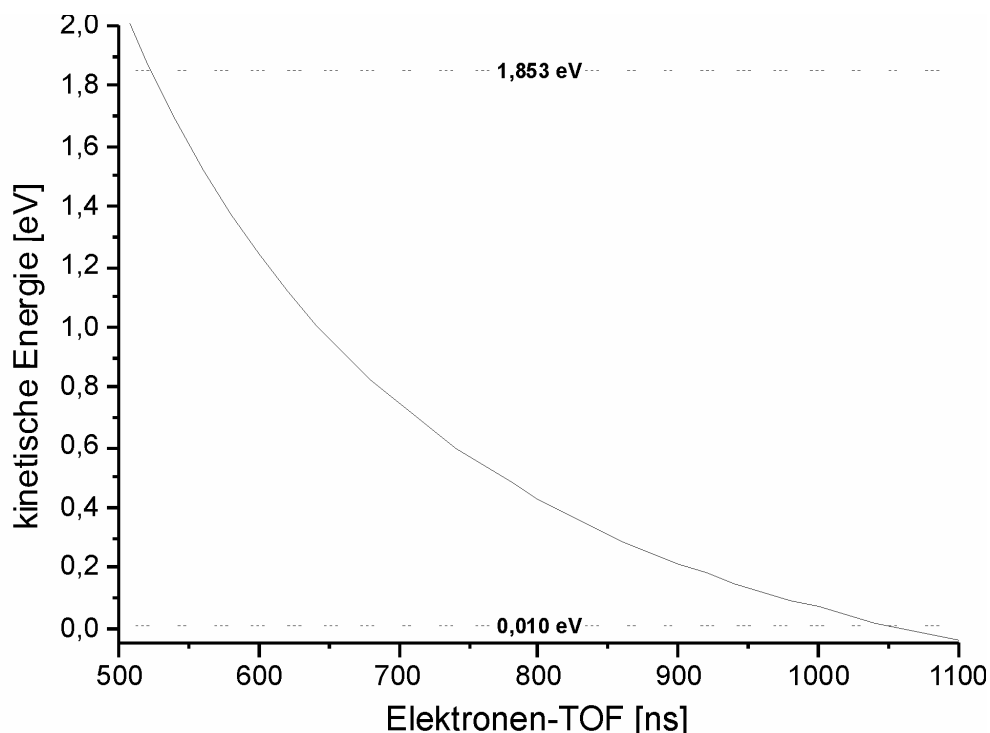


Abbildung A.34: Kalibrierungskurve für die Gleichung  $E_k = a_0 + a_1/T + a_2/T^2 + U_g (b_0 + b_1T + b_2T^2)$ . Folgende Parameter wurden ermittelt:  $a_0 = 1,89 \text{ J}$ ,  $a_1 = -7,36 \cdot 10^2 \text{ Js}$ ,  $a_2 = 8,73 \cdot 10^5 \text{ Js}^2$ ,  $b_0 = -8,28 \cdot 10^{-1} \text{ J/V}$ ,  $b_1 = -1,80 \cdot 10^{-4} \text{ J/Vs}$ ,  $b_2 = 2,67 \cdot 10^{-8} \text{ J/Vs}^2$ . Da für die Bestimmung der Kalibrierungskurve die kinetischen Elektronenenergien 0,010 eV (K 4s, 570 nm), 0,184 eV (K 4s, 548 nm), 0,320 eV (K 4s, 532 nm), 0,557 eV (Xe  $5^2p_{1/2}$ , 532 nm) 1,853 eV (Xe  $5^2p_{3/2}$ , 532 nm) gebraucht wurden, ist die Kalibrierung nur innerhalb dieser Grenzen (0,010 eV bis 1,853 eV) verwendbar.

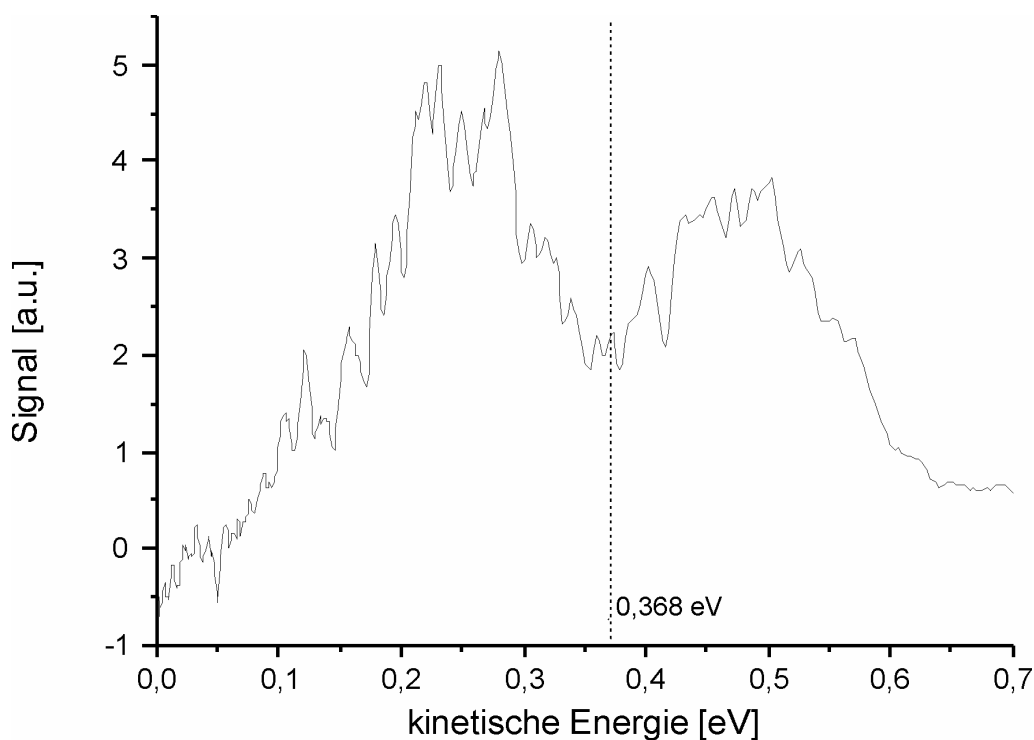


Abbildung A.35: Mit Hilfe der Kalibrierungskurve in Abbildung A.34 wurden die in Abbildung A.32 gezeigten Elektronenflugzeiten in kinetische Energien übertragen. Das Minima in mitten des Autler-Townes Doublets liegt bei 0,368 eV. Dies wurde auch auf Grund der Vorgaben (3 Photonen a 1,569 eV, IP Kalium: 4,341 eV) erwartet.

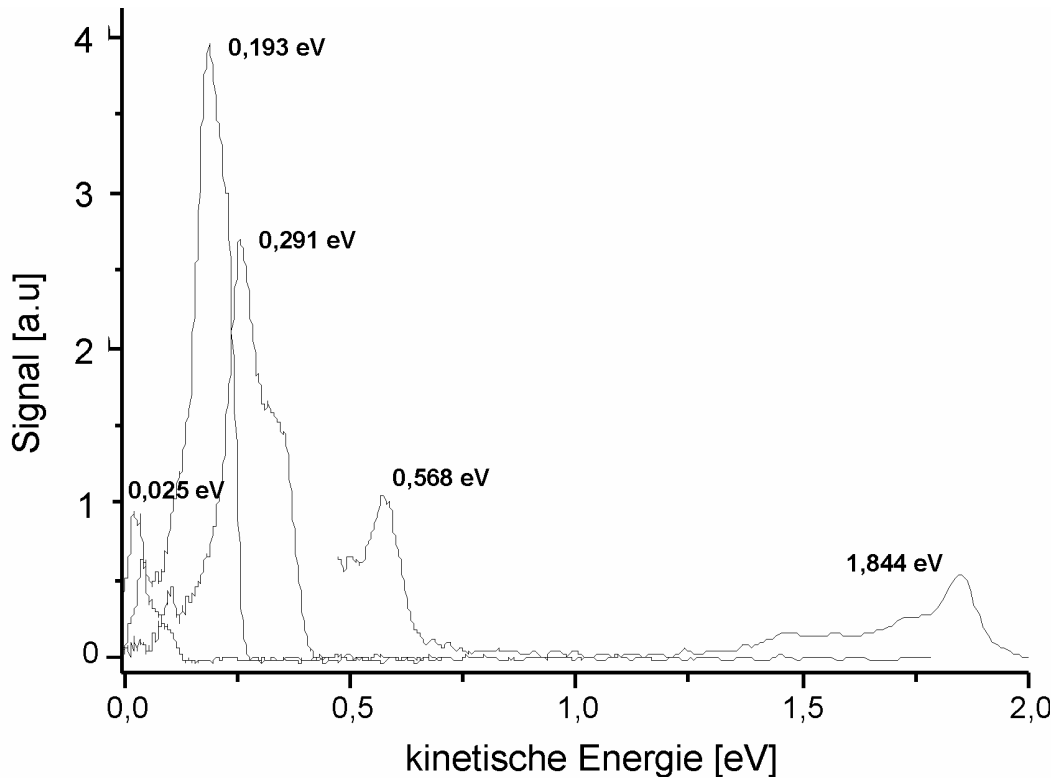


Abbildung A.36: Als Grundlage für die Kalibrierung dienen die Elektronenenergien 0,010 eV (K 4s, 570 nm), 0,184 eV (K 4s, 548 nm), 0,320 eV (K 4s, 532 nm), 0,557 eV (Xe  $5^2p_{1/2}$ , 532 nm) 1,853 eV (Xe  $5^2p_{3/2}$ , 532 nm). Mit Hilfe der in Abbildung A.34 gezeigten Kalibrierungskurve wurden die für eine Gridspannung  $U_g = 2,0$  V aufgenommenen Daten auf sich selbst zurückgerechnet. Die maximale Abweichung beträgt ca. 0,03 eV.

### A.5.4.3 Schnellkalibrierung

Da für eine wie in A.5.4.2 beschriebene Kalibrierung durchaus eine Messzeit zwischen ein und zwei Stunden benötigt wird, kann es sich als sinnvoll erweisen, dass dort beschriebene Kalibrierungsverfahren zu verkürzen. Basis der „verkürzten Kalibrierung“ bilden wie in A.5.4.2 Messungen am Xenon- und am Kaliumatom. Auch bei dieser Kalibrierung wird Xenon (aus dem  $5^2P_{3/2}$  und dem  $5^2P_{1/2}$  Zustand) und Kalium (aus dem 4s Zustand) mit Hilfe von Laserlicht mit verschiedenen Wellenlängen (Nd:YAG: 532 nm, Farbstofflaser: 548 nm, 570 nm) ionisiert. Aufgenommen werden bei der „Schnellkalibrierung“ allerdings keine ganzen Retardierungsmessserien, sondern jeweils nur ein Spektrum und dieses bei der Retardierungsspannung (Gridspannung)  $U_g$ , welche auch für die weiteren Messungen des Messtages relevant ist. Grundlage des folgenden Beispiels sind die Messdaten, die bereits in A.5.4.2 Verwendung fanden. Ausgewählt wurden die Messdaten die mit einer Gridspannung  $U_g = 2,0$  V aufgenommen wurden:

Zustand	Laser (Wellenlänge)	kinetische Energie der emittierten Elektronen	TOF
Xenon $5^2P_{3/2}$	Nd:YAG (532 nm)	1,853 eV	522 ns
Xenon $5^2P_{1/2}$	Nd:YAG (532 nm)	0,557 eV	755 ns
Kalium 4s	Nd:YAG (532 nm)	0,320 eV	868 ns
Kalium 4s	Farbstofflaser (548 nm)	0,184 eV	915 ns
Kalium 4s	Farbstofflaser (570 nm)	0,010 eV	1034 ns

Mit Hilfe eines Polynoms zweiten Grades (Gleichung A.36) werden diese Daten angefitet (siehe Abbildung A.37):

$$E = a_0 + a_1 t + a_2 t^2 \quad (\text{A.36})$$

Für das hier beschriebene Beispiel erhält man die folgenden Parameter

$$a_0 = 6,995 \text{ eV}$$

$$a_1 = -0,0131 \frac{\text{eV}}{\text{ns}}$$

$$a_2 = 6,138 \cdot 10^{-6} \frac{\text{eV}}{\text{ns}^2}$$

Rechnet man mit Hilfe dieser Parameter die ermittelten Flugzeiten in Energien zurück, ergeben sich die folgenden Daten:

Zustand (Wellenlänge)	kinetische Energie der emittierten Elektronen	zurückkalibrierte Energie	Differenz
Xenon $5^2P_{3/2}$ (532 nm)	1,853 eV	1,840 eV	- 0,013 eV
Xenon $5^2P_{1/2}$ (532 nm)	0,557 eV	0,618 eV	+ 0,061 eV
Kalium 4s (532 nm)	0,320 eV	0,267 eV	- 0,053 eV
Kalium 4s (548 nm)	0,184 eV	0,167 eV	- 0,017 eV
Kalium 4s (570 nm)	0,010 eV	0,003 eV	- 0,007 eV

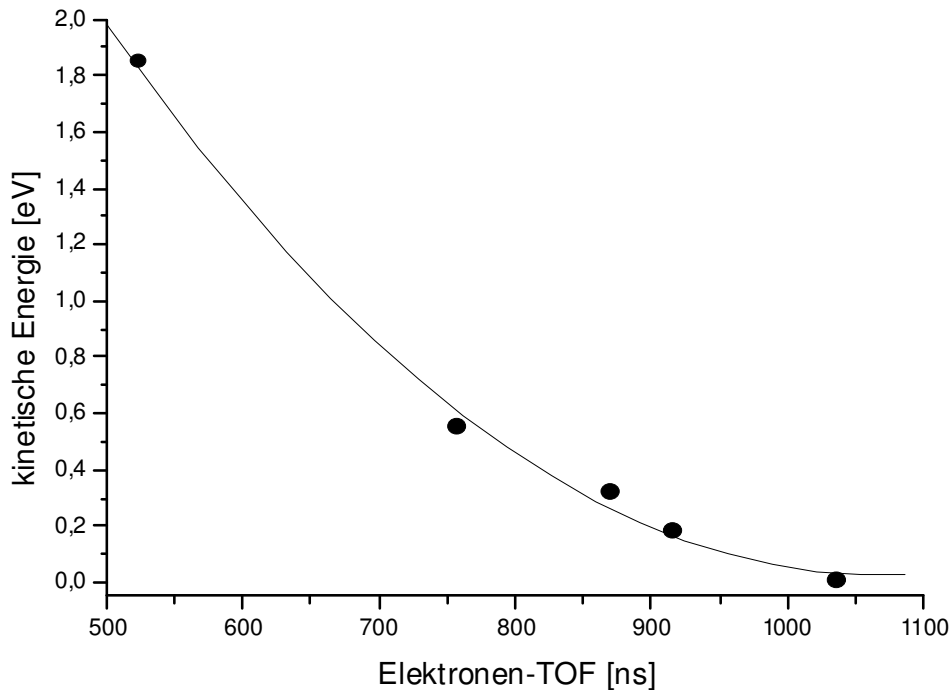


Abbildung A.37: Mit Hilfe von 5 Wertepaaren (TOF /  $E_{\text{kin}}$ ) wurde mittels eines Polynom zweiten Grades eine „Schnellkalibrierung“ durchgeführt. Grundlage bildeten auch bei diesen Kalibrierungsmessungen die Ionisation von Xenon ( $5^2P_{3/2}$ ,  $5^2P_{1/2}$ ) und Kalium (4s). Hier allerdings nur bei Verwendung einer einzigen Gridspannung:  $U_g = 2,0$  V.

## A.6 Flugzeitmassenspektrometer

### A.6.1 Aufbau

Neben der magnetischen Flasche zum detektieren der emittierten Elektronen, besitzt die Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS noch ein zweites Spektrometer, mit welchem Ionen detektiert werden können (siehe Abbildung A.38). Dieses Flugzeitmassenspektrometer ist eine Wiley-McLaren-Modifizierung. Im Gegensatz zum Wiley-McLaren-Originaltyp [128] bewirken die Form der Polschuhe und Polschuhblenden bereits eine Fokussierung der Ionen. Mit Hilfe der Blenden (untere Blende:  $U_1 = 390$  V, obere Blende:  $U_2 = 410$  V) und dem geerdeten unteren Polschuh, der als eine weitere Blende dient, werden die Ionen aus dem Ionisationsgebiet abgezogen und nachbeschleunigt. Bereits kurz nach Durchlaufen des unteren Polschuhs würden die Ionen gegen die Wand der 1 T-Spule (magnetische Flasche) laufen, würde nicht eine Einzellinse als Ionenoptik ( $U_{EL} = 160$  V) verwendet werden. Diese parallelisiert die Ionentrajektorien. Nach Verlassen der 31 cm langen Driftstrecke werden die Ionen auf eine Chevron-MCP-Anordnung des Typs Burle APD 3025 12/10/12 D STD beschleunigt (2 keV). Abbildung A.39 zeigt die Beschaltung der Anordnung [64]. Die vervielfachten Elektronen verlassen die MCPs mit geringerer kinetischer Energie. Daher werden sie, um Überschwinger sowie Signalverbreiterungen zu vermeiden, gegen eine Anode beschleunigt. Diese besitzt eine Kegelform, welche für die Impedanzanpassung auf die für das Signalkabel benötigten  $50 \Omega$  sorgt. Ein Widerstand von  $470 \text{ k}\Omega$ , welcher zwischen der Anode



und deren Spannungsversorgung (100 V) liegt, verhindert eine Auskopplung des Signals über diese.

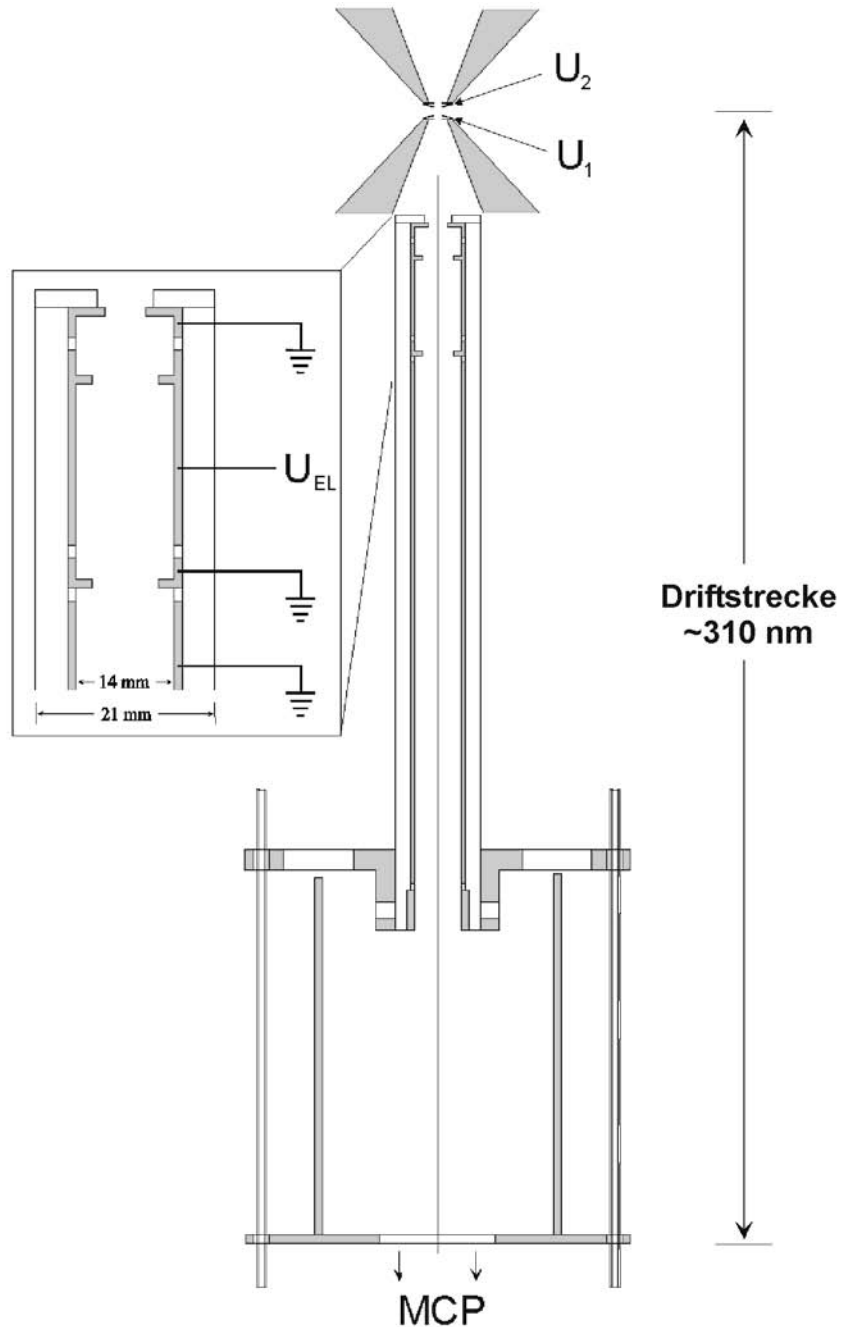


Abbildung A.38: Vertikaler Schnitt durch das Flugzeitmassenspektrometer. Die schmale obere Röhre im oberen Driftstreckenbereich wurde aus dem Polyamid PA 66 (Ertalon 66 SA) hergestellt. Dieses Material besitzt eine große Kriechstromfestigkeit sowie einen hohen Oberflächen- und Durchgangswiderstand. Die meisten anderen Bestandteile des Spektrometers bestehen aus V4A-Edelstahl.

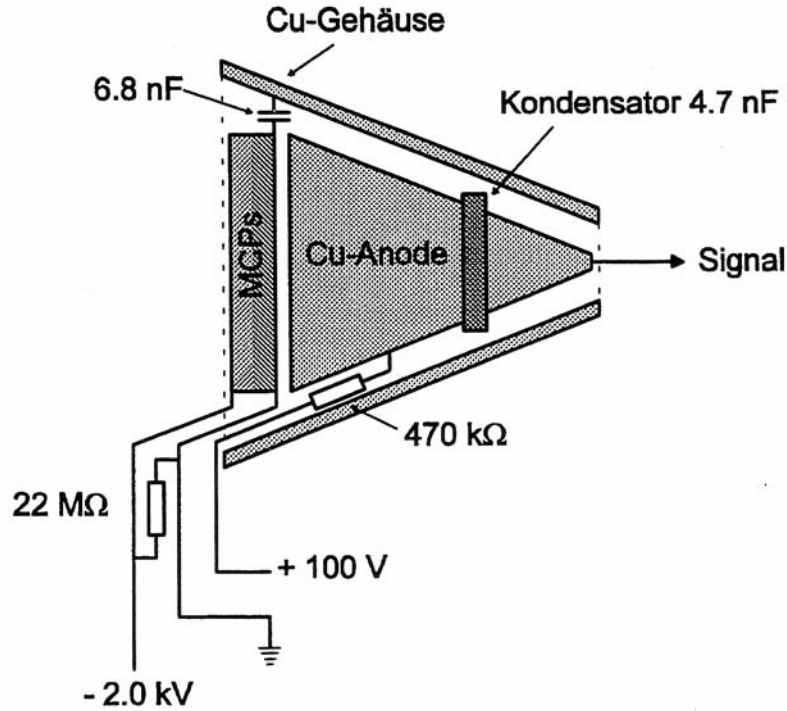


Abbildung A.39: Beschaltung der Chevron-MCP-Anordnung des Flugzeitmassenspektrometers [64].

### A.6.2 Kalibrierung

Nach [64, 66, 125, 127] gelten für die Flugzeiten eines idealen Wiley-McLaren Flugzeitmassenspektrometers für die folgenden Bereiche die folgenden Gleichungen:

$$T_s = c_s m^{1/2} : \quad c_s = \frac{\sqrt{2}}{qE_s} \left( \sqrt{U_0 + qsE_s} \mp \sqrt{U_0} \right) \quad (\text{A.37})$$

$$T_d = c_d m^{1/2} : \quad c_d = \frac{\sqrt{2}}{qE_d} \left( \sqrt{U_0 + qsE_s + qdE_d} - \sqrt{U_0 + qsE_s} \right) \quad (\text{A.38})$$

$$T_D = c_D m^{1/2} : \quad c_D = \frac{D}{\sqrt{2(U_0 + qsE_s + qdE_d)}} \quad (\text{A.39})$$

In diesen stehen  $s$ ,  $d$  und  $D$  für die Längen des Abzugsgebietes, der Beschleunigungsstrecke und der feldfreien Driftstrecke.  $T_s$ ,  $T_d$  und  $T_D$  sind die Flugzeiten in den eben erwähnten Regionen. Mit  $E_s$ ,  $E_d$  und  $E_D$  werden die elektrischen Feldstärken angegeben.  $m$ ,  $q$  und  $U_0$  sind die Masse, die Ladung und die Anfangsenergie des Ions. In (A.37) steht das Minuszeichen für Ionen, welche sich nach ihrer Ionisation direkt in Richtung Detektor bewegen, das Pluszeichen somit für solche, die sich in entgegengesetzte Richtung bewegen. Eine Veranschaulichung findet sich in Abbildung A.40.

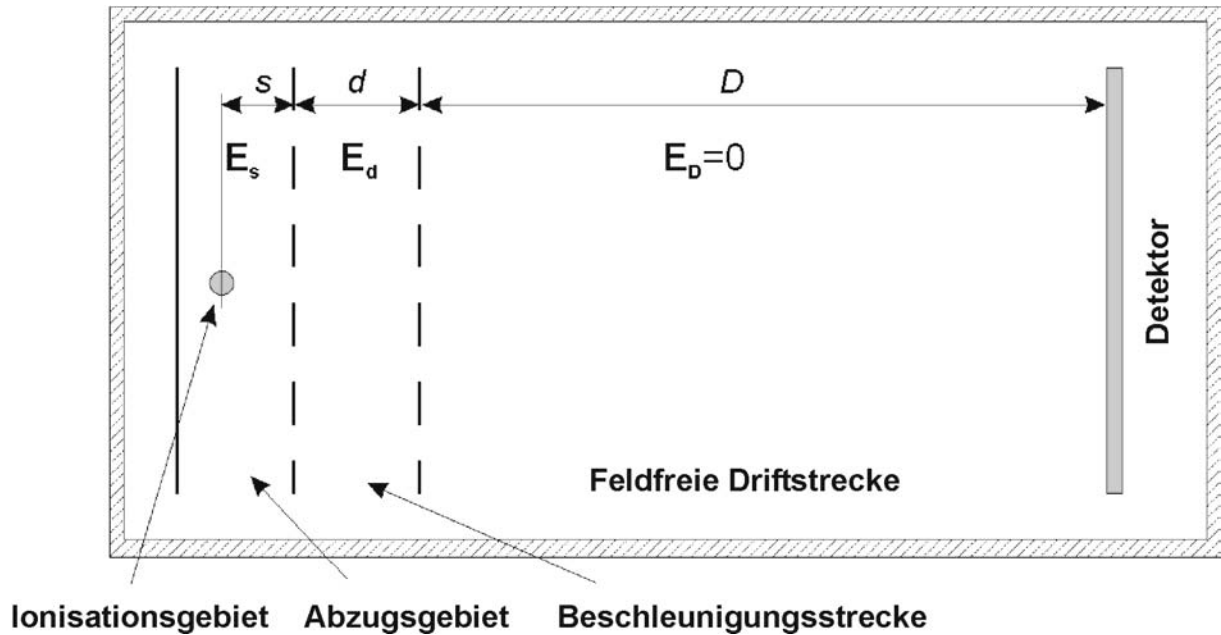


Abbildung A.40: Prinzip eines Wiley-McLaren Flugzeitmassenspektrometers [128]

Falls die Konstanten  $c_s$ ,  $c_d$  und  $c_D$  bekannt sind, kann die Masse leicht aus den Flugzeiten berechnet werden. Unter Berücksichtigung, dass  $c = c_s + c_d + c_D$  ist, gilt

$$m = \left( \frac{t + \delta t}{c} \right)^2 \quad (\text{A.40}).$$

In dieser Gleichung steht  $\delta t$  für die Triggerverzögerung. Steht die zum Triggern verwendete Photodiode in der Nähe des Wechselwirkungsgebietes, in welcher die Ionisation stattfindet, was in der Regel der Fall ist, kann dieser zusätzliche zeitliche Betrag vernachlässigt werden. Wie bereits in A.5.4.1 erwähnt, beträgt für einen zusätzlichen Lichtweg von 1 m bis zur Diode die Zeitdifferenz lediglich 3 ns.

Wie im Falle der magnetischen Flasche (Anhang A.5) sind auch im Falle des Flugzeitmassenspektrometers nicht alle Parameter hinlänglich bekannt: Hierzu gehören die exakten Abmessungen des Spektrometers, der Ort der Ionisation sowie die Triggerverzögerung. Die in oben beschriebenen Aufbau verwendeten Lochblenden, als auch die Form der Polschuhe, führt überdies zu inhomogenen Feldern. Somit bietet sich auch im Falle des Flugzeitmassenspektrometers die Verwendung eines Polynoms in  $t$  an:

$$m = \sum_{i=0}^p a_i t^i \quad (\text{A.41})$$

Mit Hilfe der gemessenen Flugzeiten von Ionen bekannter Masse lassen sich die Parameter  $a_i$  bestimmen. Unter Verwendung eines Polynoms zweiten Grades ( $p = 2$ ) erhält man bereits zufriedenstellende Ergebnisse.

Analog wie bei den Elektronenspektren müssen auch im Falle der Ionen die Signalhöhen angepasst werden. Aus

$$S(t)dt = S'(m)dm \quad (\text{A.42})$$

folgt für die über die Masse aufgetragene Signalstärke die Gleichung

$$S'(m) = S(t) \left( \frac{dm}{dt} \right)^{-1} \quad (\text{A.43}).$$

### A.6.2.1 Kalibrierung mit bekannten Ionenmassen

Auch zur Kalibrierung des Flugzeitmassenspektrometers eignet sich das Edelgas Xenon. Auf Grund seiner natürlichen Isotopenverteilung stehen für eine Kalibrierung bis zu sieben relevante Atommassen zur Verfügung. In der folgenden Tabelle sind die einzelnen Isotope gelistet:

Isotopenmasse in u	relative Häufigkeit
128	0.0714
129	0.9814
130	0.1487
131	0.7881
132	1.0000
134	0.3903
136	0.3309

Um allerdings den gesamten Bereich von 1 u bis 136 u abzudecken, werden noch eins bis zwei zusätzliche Eichpeaks benötigt. Auf Grund der Fragmentierung von sich in der Anlage befindenden Vorpumpenöls, sind wir in der Lage hierfür Wasserstoff (1 u) und Kohlenstoff (12 u) zu verwenden. Abbildung A.41 zeigt ein unkalibriertes Flugzeitmassenspektrum: Während bereits mit Hilfe des Ofens ein Kaliumatomstrahl generiert wurde, wurden mit Hilfe eines 6 mm starken Kupferrohres, welches direkt in das Wechselwirkungsgebiet hineinreicht, sehr geringe Mengen Xenon eingelassen. Der Druck in der Hauptkammer stieg da bei auf lediglich  $p = 1,1 \cdot 10^{-6}$  mbar. (Um eine bessere Xenonsignalhöhe zu erreichen, kann Gas bis zu einem Gesamtdruck von  $p = 1,5 \cdot 10^{-5}$  mbar eingelassen werden.) Ionisiert wurde mit der dritten Harmonischen des Nd:YAG-Lasers (355 nm, 0,5 mJ). In der Abbildung sind die für die Kalibrierung verwendeten Wasserstoff- (H), Kohlenstoff- (C) und Xenonpeaks (Xe) gekennzeichnet. Abbildung A.41 zeigt einen Ausschnitt aus Abbildung A.41: Zu sehen sind die vier verwendeten Peaks der Xenonisotope  $^{129}\text{Xe}$ ,  $^{132}\text{Xe}$ ,  $^{134}\text{Xe}$  und  $^{136}\text{Xe}$ .

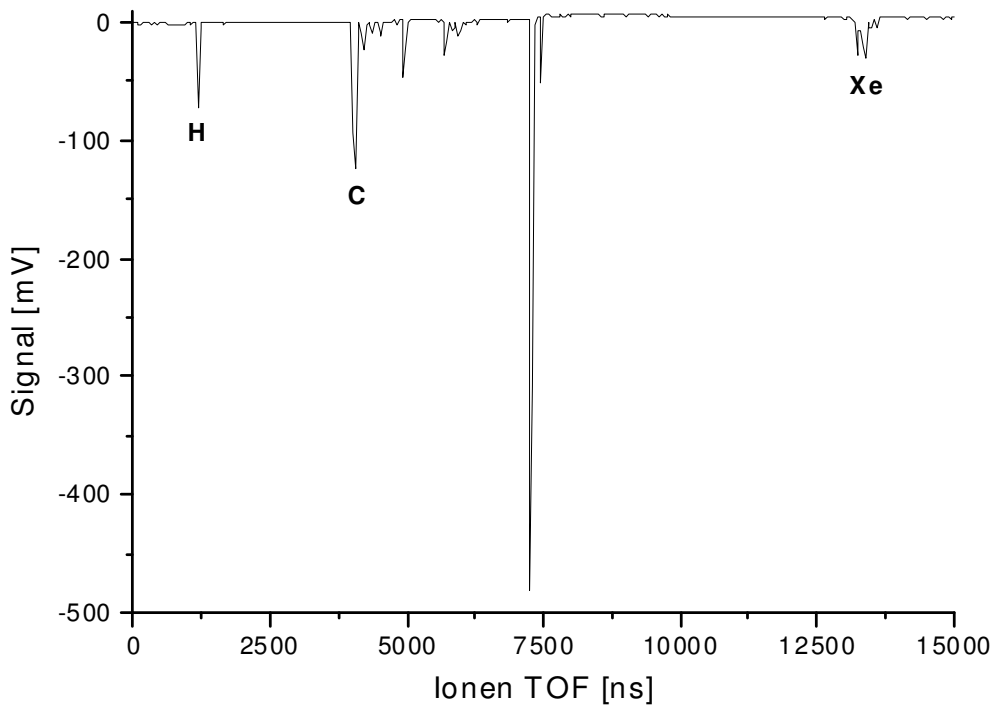


Abbildung A.41: Flugzeitmassenspektrum. Ionisiert wurde mit der dritten harmonischen eines Nd:YAG-Lasers (355 nm, 0,5 mJ). Für die Kalibrierung mit Hilfe der Gleichung (A.44) wurden die Elemente Wasserstoff, Kohlenstoff und Xenon verwendet. Abbildung A.41 zeigt einen Teilausschnitt dieser Abbildung (13000 ns – 13800 ns)

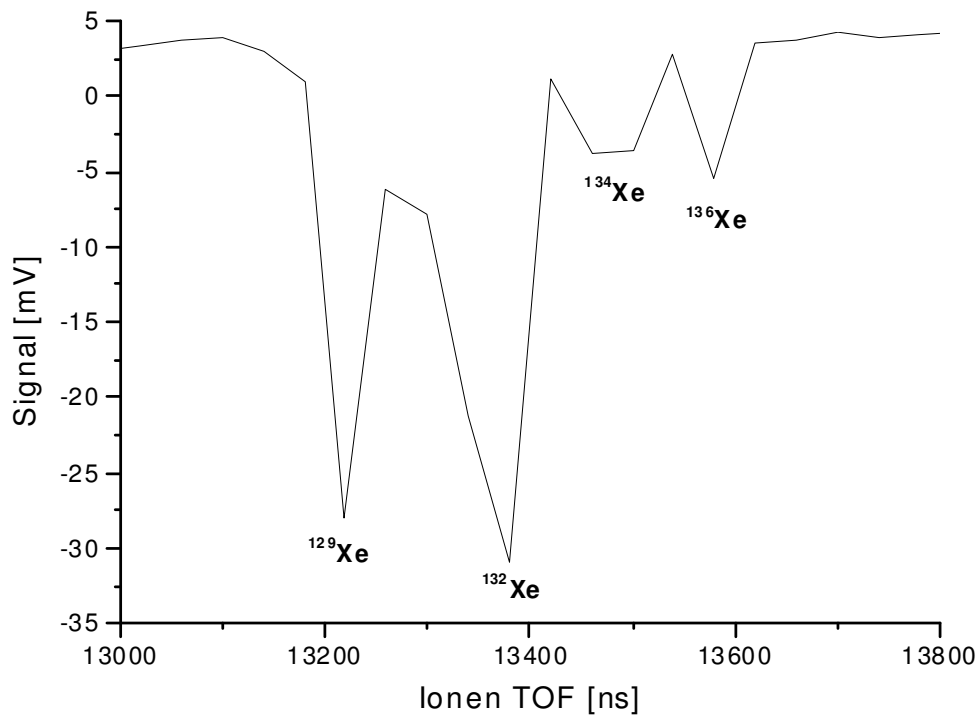


Abbildung A.42: Dieser Teilausschnitt aus Abbildung A.41 zeigt die für die Kalibrierung mitverwendeten Xenonisotope.

Durch Anfiten der Flugzeiten (H: 1180 ns, C: 4060 ns,  $^{129}\text{Xe}$ : 13220 ns,  $^{132}\text{Xe}$ : 13380 ns,  $^{134}\text{Xe}$ : 13480 ns und  $^{136}\text{Xe}$ : 13580 ns) unter Verwendung der Kalibrierungsgleichung (A.41) für  $p = 2$ , also mit

$$m = a_0 + a_1 t + a_2 t^2 \quad (\text{A.44}),$$

lassen sich die Parameter  $a_i$  bestimmen. Man erhält:

$$a_0 = 2,773 \cdot 10^{-2} u$$

$$a_1 = -5,775 \cdot 10^{-5} \frac{u}{ns}$$

$$a_2 = 7,417 \cdot 10^{-7} \frac{u}{ns^2}$$

Die zugehörige Kalibrierungskurve ist in Abbildung A.43 zu sehen. Unter Verwendung der Parameter  $a_i$  lassen sich nun die in Abbildung A.41 geplotteten Flugzeiten in Atommasseneinheiten  $u$  übertragen: Abbildung A.44 zeigt das so kalibrierte Atommassenspektrum. Neben den für die Kalibrierung verwendeten Massen von Wasserstoff, Kohlenstoff und Xenon sind deutlich die Atommassen für die beiden Kaliumisotope  $^{39}\text{K}$  und

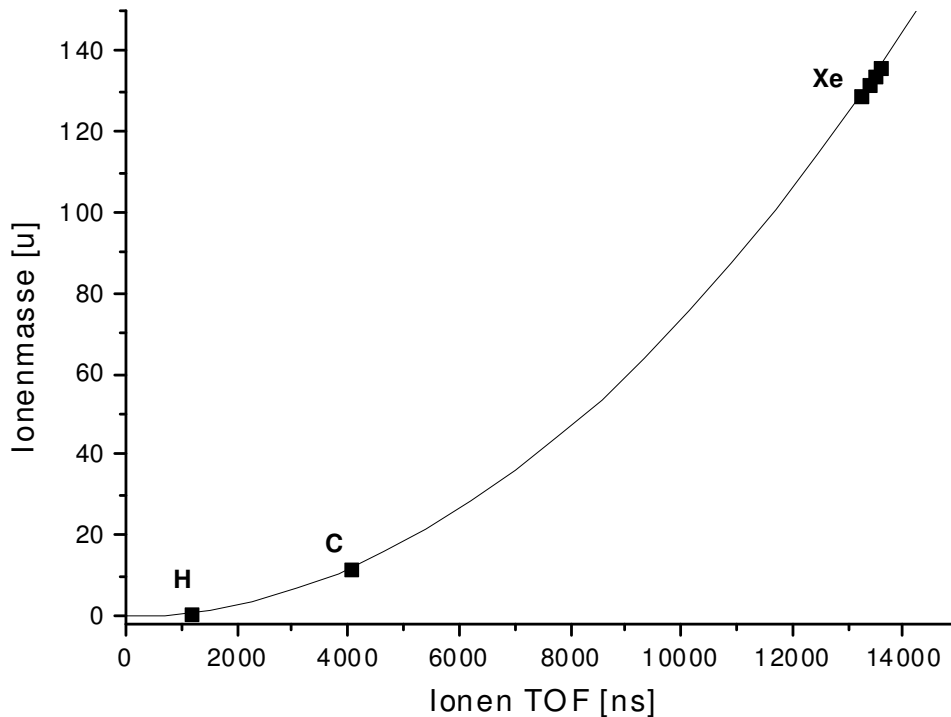


Abbildung A.43: Unter Verwendung der Elemente Wasserstoff, Kohlenstoff und Xenon wurden mittels eines Fits die Parameter der Gleichung  $m = c_0 + c_1 t + c_2 t^2$  bestimmt:  $c_0 = 2,773 \cdot 10^{-2} u$ ,  $c_1 = -5,775 \cdot 10^{-5} u/ns$ ,  $c_2 = 7,417 \cdot 10^{-7} u/ns^2$ .

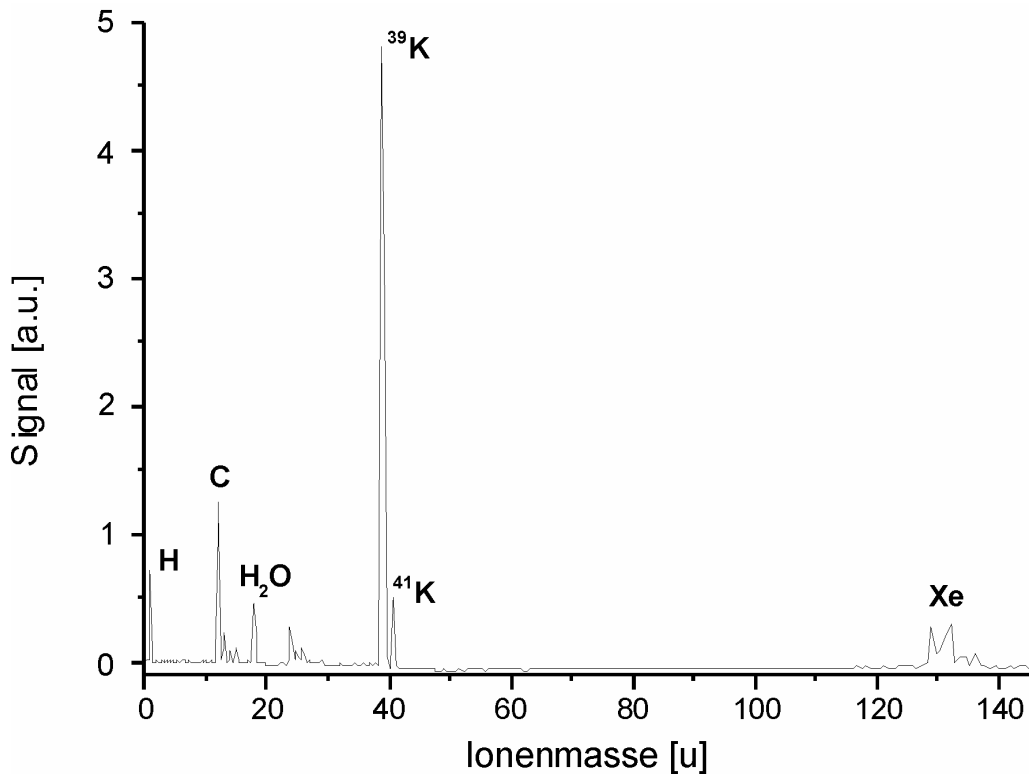


Abbildung A.44: Mittels der ermittelten Parameter  $c_i$  lässt sich das in Abbildung A.41 gezeigte Flugzeitmassenspektrum in ein Atommassenspektrum übertragen. Deutlich sind die beiden Peaks der Kaliumisotope  $^{39}\text{K}$  und  $^{41}\text{K}$  zu erkennen. Ein Bildausschnitt des Bereiches zwischen 12 u und 30 u findet sich unten.

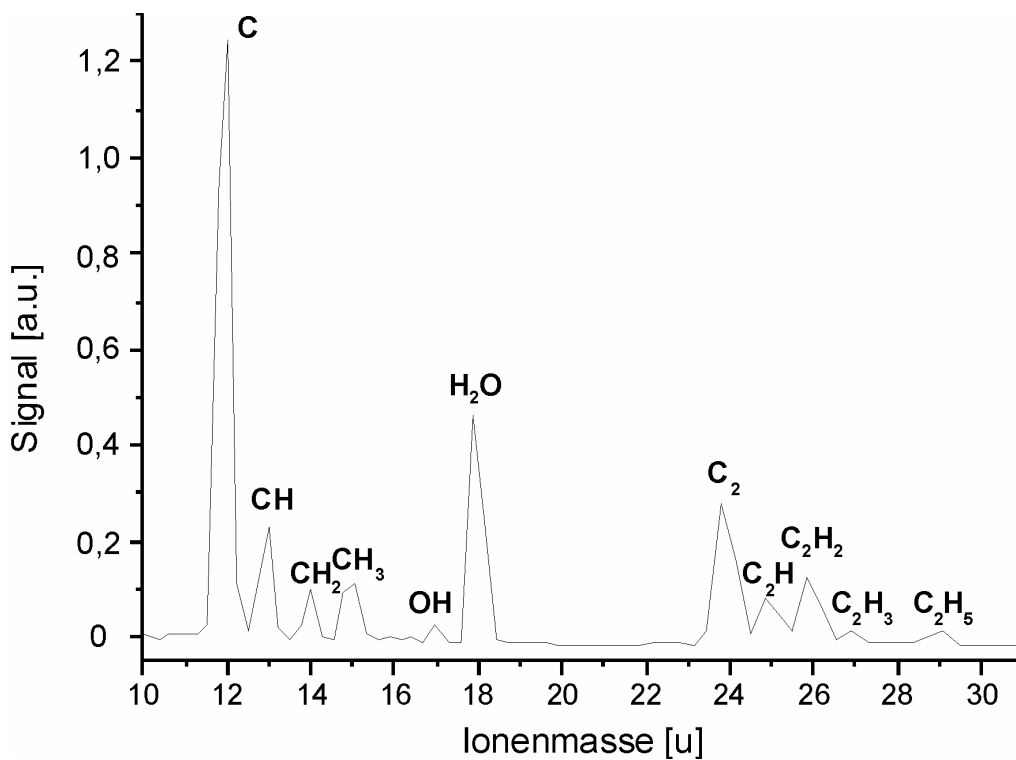


Abbildung A.45: Teilausschnitt der oben gezeigten Abbildung: Mit Hilfe der durchgeführten Kalibrierung lassen sich Wasser, Wasserstoffoxid und Pumpenölfragmente eindeutig zuordnen.

$^{41}\text{K}$  abzulesen. Auch die sich in dem Bereich zwischen 12 u und 30 u befindenden Atommassen, lassen sich problemlos zuordnen (siehe Abbildung A.44): Neben Wasser (18 u) sind dort Wasserstoffoxid (17 u) und Pumpenölfragmente anzutreffen.

## A.7 Datenaufnahme

Die aus den beiden Spektrometern (magnetische Flasche oder Flugzeitmassenspektrometer) ausgekoppelten Signale werden jeweils mit einem Breitbandverstärker (Phillips Scientific 6954, 100 kHz bis 1,8 GHz) um das zehnfache verstärkt. Mit Hilfe eines digitalen Speicheroszilloskopes des Typs LeCroy LC 564 DL wird das Signal aufgenommen. Die Bandbreite des Oszilloskops beträgt 1 GHz, die maximale Zählrate beträgt im Dualmodus 4 Gigasamples pro Sekunde. Ausgelesen wird das Oszilloskop mit Hilfe eines Computers unter Zuhilfenahme diverser LabView Anwendungen. Für einzelne Spektren wurde zum Beispiel in der Regel die Anwendung „Read\_osci.vi“ verwendet. Die Scans im Falle der in den Kapiteln 4 und 5 beschriebenen Experimente wurden mit Hilfe der Anwendung „MM-O\_v3.vi“ (bzw. mit der erweiterten Version „MM-OS\_v3.vi“) durchgeführt. Eine genaue Beschreibung dieser Programme befindet sich in [127]. Im Falle des in Kapitel 6 beschriebenen Experimentes kam Anwendung „ATMeasure-LongDelayLine-v03b.vi“ zum Einsatz.

Getriggert wurde jeweils mit Hilfe einer schnellen Photodiode, welche im Falle der Messungen mit dem Nd:YAG Laser bzw. dem Farbstofflasersystem vor dem Einkopplungsfenster der Molekularstrahlapparatur MaBoS stand. Bei Verwendung eines Femtosekundenlaserstrahls wurde hinter der MaBoS getriggert (nach dem Austritt des Laserstrahles aus der Maschine).

## A.8 MaBoS Startup und Shutdown

Am Ende dieses Anhangs sollen noch ein paar Dinge erwähnt werden, welche bezüglich des „Hoch-“ und des „Runderfahrens“ der Molekular- und Atomstrahlapparatur MaBoS zu beachten sind, bzw. nützlich sein könnten.

### A.8.1 Startup

*Wasserkühlung sicherstellen:*

Da verschiedenste Bestandteile der Molekular- und Atomstrahlapparatur MaBoS unbedingt einer Kühlung bedürfen, sollte diese sichergestellt sein. Je nach Art des Experimentes sind dies

- Die Öldiffusionspumpe
- Die Turbomolekularpumpe
- Der Elektromagnet der 1 Tesla Spule
- Der Ofen zur Generierung eines Atom- / Molekularstrahles
- Der Cariergasanschluss bei Verwendung der Seeded-Beam Technik

Damit die Kühlung gewährleistet ist, müssen zunächst die Ventile des Wasserprimärkreislauf, welcher das Wasser im Wärmetauscher kühlt, geöffnet sein. Dieses sind für Vor- und Rücklauf je ein per Hand bedienbares Ventil, außerdem zusätzlich für den Vorlauf ein Magnetventil, welches von einem mit zwei Wassersensoren bestückten elektronischen Wassermelder geschlossen werden kann. Zweitens müssen die Pumpe des Wärmetauschers



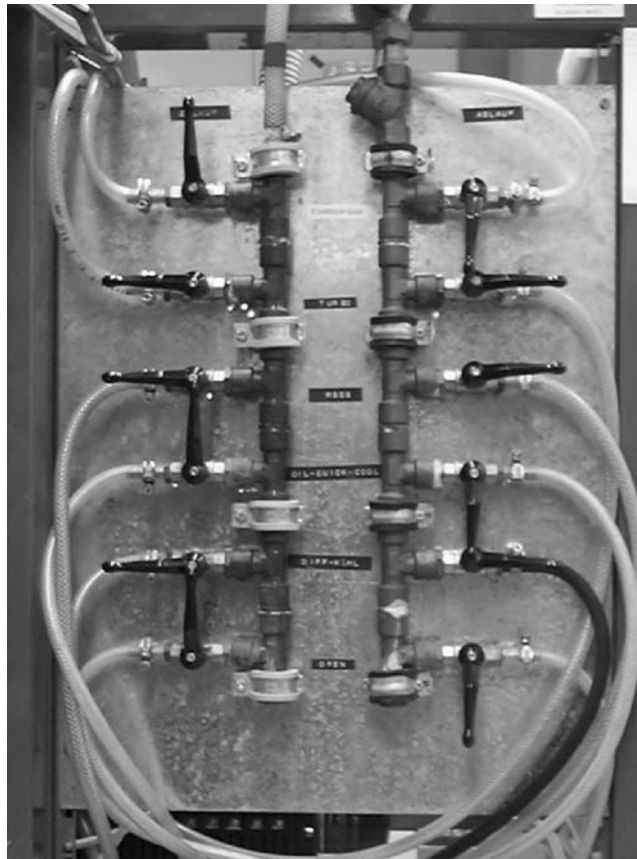


Abbildung A.46: Wasserbord der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS. Von oben nach unten sind die einzelnen Absperrventile für Zulauf (links) und Ablauf (rechts) zu erkennen: Carriergas, Turbomolekularpumpe, 1 Tesla Spule, Oil-Quick-Cool, Diffusionspumpe, Ofen

eingeschaltet sowie die zwei Ventile (Vor- und Rücklauf) des hiervon bepumpte Sekundärkreislaufes geöffnet sein. Drittens muss das Hauptventil am MaBoS-Wasserbord (Abbildung A.46) geöffnet werden. Schlussendlich sind eben dort die einzelnen Ventile, welche die Kreisläufe für die jeweilig zu kühlenden Anlagen öffnen, ebenfalls zu öffnen.

#### *Einschalten der Vorpumpen:*

Zunächst müssen die beiden Varian Drehschieberpumpen CD-700 und CD-1400, welche für das Vorvakuum der Turbomolekularpumpe Varian V550 und der Diffusionspumpe Varian VHS-10 sorgen, eingeschaltet werden. Dies geschieht jeweils mittels eines Kippschalters am MaBoS-Pumpenbord (Abbildung A.47). Zu Beachten ist, dass jeweils die Ventile zwischen Vor- und Hauptpumpe geöffnet sind (Ventile 12, 2 und 22, siehe Abbildung A.3). Wenn die sich vor der Diffusionspumpe befindende Drehschieberpumpe Varian CD-1400 einen Vordruck produziert hat, welcher kleiner 10 mbar ist, kann nun zur Verbesserung des Vordruckes zusätzlich die Rootspumpe Alcatel RSV 301 eingeschaltet werden. Nach kurzer Zeit werden die folgenden Vordrücke erreicht:



Abbildung A.47: Pumpenboard der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS. Von links nach rechts sind die Kippschalter für den Start / Stop der einzelnen Pumpen ersichtlich: Drehschieberpumpe Varian CD-1400 (Vorpumpe für Diffusionspumpe), Drehschieberpumpe Varian CD-700 (Vorpumpe für Turbomolekularpumpe), Roots Pumpe Alcatel RSV 301, Diffusionspumpe Varian VHS-10, Turbomolekularpumpe Varian V550. In der unteren Reihe sind die Bypassschalter zu sehen.

$$P_{\text{Ofenkammer}} \sim 4,0 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$$

$$P_{\text{Hauptkammer}} \sim 7,0 \cdot 10^{-2} \text{ mbar}$$

#### *Einschalten der Hauptvakuumpumpen:*

Ist der Pumpenvordruck für die jeweilige Hauptpumpe (aber auch für die Rootspumpe) hinreichend gering, gibt das jeweilige Varian SenTorr CC2C Kaltkathoden- bzw. Piranisteuergerät den Start für die Hauptpumpe frei. Dies wird durch eine leuchtende grüne LED-Lampe am Pumpenboard angezeigt. Auch ohne die Freigabesignale durch das SenTorr Steuergeräte können die einzelnen Pumpen gestartet werden. Hierfür existieren in der unteren Reihe des Pumpenboards Kippschalter (Bypass), mit welchen die fehlenden Freigabesignale überbrückt werden können.

Die Diffusionspumpe ist in etwa einer Stunde nach Einschalten auf Betriebstemperatur und bringt dann ihre volle Leistung (5300 l/s). Die Turbomolekularpumpe fährt je nach eingestelltem Modus unterschiedlich schnell hoch. Werkseitig ist der Softstartmodus empfohlen. Aber auch in diesem langsamen Modus hat die Pumpe innerhalb von ca. 20 Minuten die maximale Umdrehungszahl von 42000 U/min erreicht. Das maximal erreichbare Hochvakuum in den beiden Kammern beträgt jeweils ca.  $1 \cdot 10^{-7}$  mbar.

#### *Ofenheizung hochfahren:*

Eine genaue Beschreibung bezüglich des Ofenheizens befindet sich im Anhang A.3.2.2 bis A.3.2.2.5.

#### *MCP's hochfahren:*

Auch die beiden Chevron-MCP-Anordnungen der magnetischen Flasche sowie des Flugzeitmassenspektrometers sind im Anhang weiter oben beschrieben (A.5.2 und A.6.1). An dieser Stelle möchte ich aber darauf hinweisen, dass MCP's nur unter einem hinreichenden

Vakuum betrieben werden dürfen: Der Druck in der Hauptkammer muss kleiner  $10^{-4}$  mbar sein. Die Betriebsspannungen der einzelnen MCP-Anordnungen sind:

Magnetische Flasche:  $U = 2100 \text{ V}$   
Flugzeitmassenspektrometer:  $U = 2000 \text{ V}$

Die Betriebsspannungen sind am Struck Hochspannungsrack (Abbildung A.48) langsam hochzufahren.

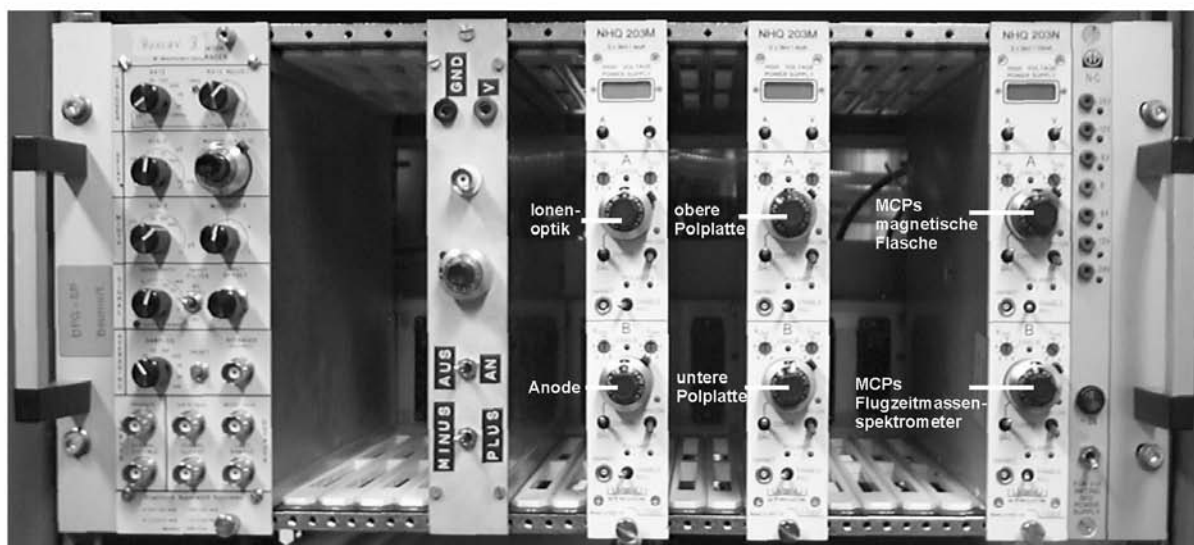


Abbildung A.48: Hochspannungseinschieberack der Firma Struck. Hier werden sämtliche Spannungen, die für das Flugzeitmassenspektrometer benötigt werden, eingestellt. Außerdem wird hier die Spannung für die MCPs der magnetischen Flasche hochgeregelt.

#### Weitere Spannungsversorgungen hochfahren:

Achtung: Je nachdem ob mit dem Ionen- oder dem Elektronen-TOF gemessen werden soll, wird mit verschiedenen Spannungen an den Elektroden (Polschuhen) gearbeitet, die von zwei verschiedenen Spannungsquellen geliefert werden. Die jeweilige zu verwendende Spannungsquelle muss unter Umständen vor Messbeginn erst angeschlossen (die andere abgeschlossen) werden. Um Stromschläge (mit Lebensgefahr) zu vermeiden, muss unbedingt vor Umschluss sichergestellt sein, dass keine Spannungen auf den Leitungen liegen!

Im Falle der Verwendung des Flugzeitmassenspektrometers müssen die Spannungen für die Ionenoptik am Hochspannungsrack hochgefahren werden. Folgend Spannungen werden am Struck Hochspannungseinschieberack (Siehe Abbildung A.48) eingestellt:

Obere Polplatte : 409 V  
Untere Polplatte: 390 V

Ionenoptik:	160 V
Anode:	100 V

Im Falle der Verwendung der magnetischen Flasche werden die Polplattenspannungen  $U_{pp}$  (ca. 0 V bis ca. +2 V) über eine kleine kompakte Spannungsquelle eingestellt (Abbildung A.49), welche zwei 4,5 V 3R12 Batterien beinhaltet. Die Gridspannung  $U_{grid}$  (ca. -1 V bis ca. + 3 V) wird über eine baugleiche Spannungsquelle eingestellt. Zusätzlich müssen für den Betrieb der magnetischen Flasche die Spannungsquellen für die drei Magnetfelder hochgefahren werden. Folgende Ströme werden benötigt:

1 T Spule (EA PS 3065-10 B):	4 A
1 mT Spule (Voltcraft DIGI 40):	2 A
Helmholtz Spulen (Voltcraft TNG 235):	nur einschalten (Stromstärke bereits eingestellt)

Die Spannungsquellen für die Magnetfelder sind in der linken Hälfte der Abbildung A.50 zu sehen, welche einen großen Teil des elektronischen Equipments der Atom- und Molekularstrahlapparatur MaBoS in Gesamtansicht zeigt.



Abbildung A.49: Spannungsquellen für Polplatten und Grid bei Verwendung der magnetischen Flasche. Jede Spannungsquelle ist mit zwei 3R12 4,5 V Batterien bestückt.

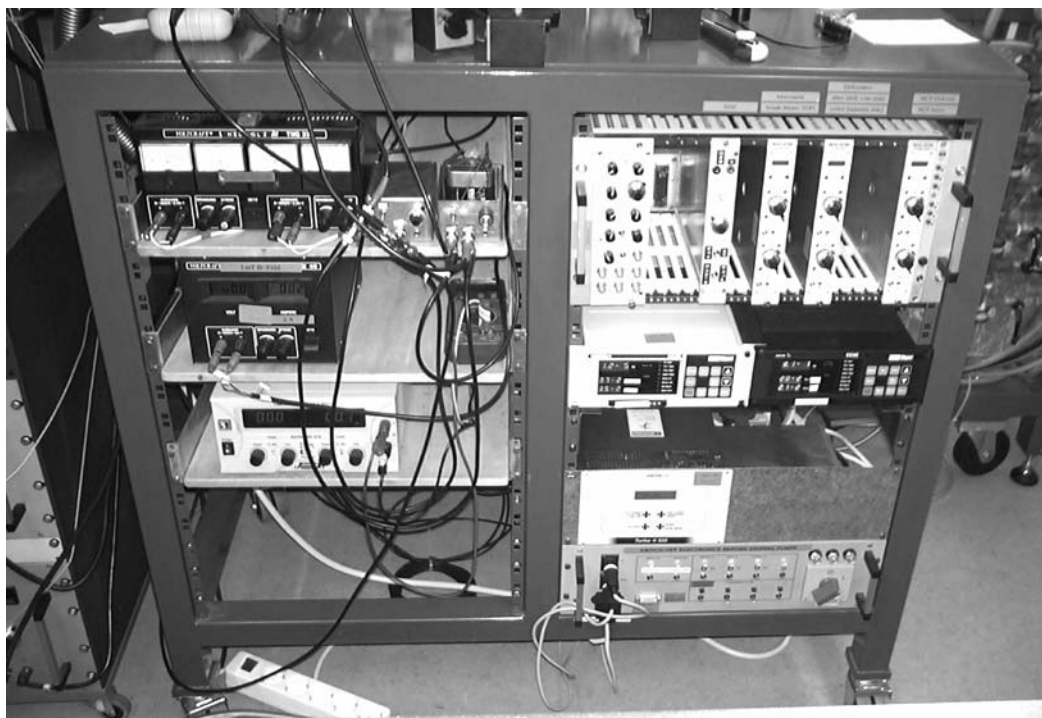


Abbildung A.50: In dieser Abbildung ist ein Großteil der für die MaBos benötigten Spannungsquellen bzw. Steuergeräte zu sehen: In der linken Hälfte sieht man von oben nach unten: 1. Reihe: Labornetzgerät Voltcraft TNG 235 (Helmholtzspulen), daneben die beiden Spannungsquellen aus Abbildung A.49; 2. Reihe: Labornetzgerät Voltcraft DIGI 40 (1 mT Spule); 3. Reihe: Labornetzgerät EA-PS 3065-10 B (1 T Spule). In der rechten Hälfte sieht man von oben nach unten: 1. Reihe: Struck Hochspannungsrack (siehe auch Abbildung A.47); 2. Reihe: Varian SenTor CC2C Kaltkathoden bzw. Pirani Steuergeräte; 3. Reihe: Steuergerät für die Varian Turbomolekularpumpe V550; 4. Reihe: Pumpenbord (siehe auch Abbildung A.47).

## A.8.2 Shutdown

### *Mikrokanalplatten runterregeln:*

Als erstes sollten unbedingt die jeweils verwendeten MCPs (Magnetische Flasche oder Flugzeitmassenspektrometer) heruntergeregelt werden. Falls diese bei Belüftung der Anlage noch an Hochspannung liegen, werden sie zerstört!

### *Weiter Spannungsversorgungen herunterregeln:*

Nun sollten die anderen Spannungsquellen herunter geregelt werde. Je nach verwendeten Spektrometer sind dies:

#### Magnetische Flasche:

- Helmholtz-Feld (Voltcraft TNG 235) (nur ausschalten)
- 1 T Feld (EA PS 3065-10 B)
- 1 mT Feld (Voltcraft DIGI 40)

- Polplattenspannung (kleine 2 x 4,5 V Spannungsquelle, siehe Abbildung A.49)
- Gridspannung (kleine 2 x 4,5 V Spannungsquelle, siehe Abbildung A.49)

Flugzeitmassenspektrometer:

- Obere Polplatte (siehe Abbildung A.48)
- Untere Polplatte (siehe Abbildung A.48)
- Ionenoptik (siehe Abbildung A.48)
- Anode (siehe Abbildung A.48)

*Ofen herunterregeln:*

Das Herunterkühlen des Ofens ist detailliert in Abschnitt A.3.2.6 beschrieben.

*Druckgasflaschen schließen:*

Es soll an dieser Stelle daran erinnert werden, die Druckgasflaschen (Xenon bzw. Argon) zu schließen (falls dies noch nicht nach Benötigung geschehen ist). Gerade im Falle von Xenon kann ein offenes Ventil, eine „kostspielige Angelegenheit“ sein.

*Pumpen herunterfahren:*

In der Regel ist es nur im Falle einer geplanten Anlagenbelüftung notwendig, die Pumpen herunterzufahren. Bevor die erste Pumpe ausgeschaltet werden kann, muss die Offentemperatur hinreichend gesunken sein. (Am besten lässt man den Ofen über Nacht auskühlen.)

Zunächst wird die Diffusionspumpe am Pumpenboard (Abbildung A.47) ausgeschaltet. Nun muss gewartet werden bis diese hinreichend kalt ist. Hinreichend kalt ist sie, wenn man ungefährdet einer Verbrennung seine Hand an den unteren Ring der Diffusionspumpe legen kann. Die Belüftung der Anlage sollte auf keinen Fall im Zustand einer zu heißen Diffusionspumpe statt finden, da das verwendete Diffusionspumpenöl Diffilen sich im heißen Zustand bei Sauerstoffkontakt entzünden kann! Zur Beschleunigung der Pumpenabkühlung kann ein zusätzlicher Wasserkühlkreislauf, genannt „Oil-Quick-Cool“, am MaBoS-Pumpenboard (siehe Abbildung A.46) geöffnet werden. Bislang wurde dieses Feature aber nur selten benutzt, da nach Verwendung Wasser im Kreislauf, also in den Schläuchen zurück bleibt, welches sich dort nach Wiedereinschalten der Pumpe erhitzt und in Folge dessen die Schläuche zum Abplatzen an ihren Anschlüssen zwingen kann.

Ist die Diffusionspumpentemperatur hinreichend gering, können nun die Turbomolekularpumpe sowie die Rootspumpe ausgeschaltet werden.

Ist die Rootspumpe zum Stillstand gekommen, kann definiert mit der Belüftung angefangen werden. Hierzu wird Stickstoff aus einer Druckgasflasche verwendet, von welchem zu Beginn allerdings, um eine Beschädigung der Turbomolekularpumpe zu vermeiden, nur sehr kleine Mengen eingeleitet werden. Sind nun die Vordrücke um zwei Größenordnungen gestiegen, was sehr schnell der Fall ist, können die beiden Drehschieberpumpen ausgeschaltet werden. Die Stickstoffzufuhr wird aber, solange die Turbomolekularpumpe nicht zum Stillstand gekommen ist, nicht weiter gesteigert. Steht sie schlussendlich, kann nun mehr Stickstoff eingeleitet werden. Vorher sollten aber, zum Schutze gegen eines Überdruckes in der Anlage, die Schrauben eines kleinen

Ofenklammerflansches gelockert werden. Wenn die Vordruckmessanzeiger Atmosphärendruck anzeigen, kann der Stickstoffeinlass beendet werden. Die Anlage kann jetzt geöffnet werden.

## Anhang B

# Gewichtungsmethoden beim Fitten von Signal-Laserenergie-Messserien

In Kapitel 6.3.3 werden mit Hilfe einer LabView-Anwendung unter Verwendung der Gleichung

$$S(E) = A \cdot \exp \left[ \alpha \cdot \int \frac{\exp(-\beta \cdot E)}{E_{\text{Laser}}} dE + \gamma \cdot \log(E) \right] \quad (6.4)$$

Photoelektronensignal-Laserenergie-Messdaten angefitet, so dass man als Ergebnis neben dem eigentlichen Fit die reduzierten Parameter  $A$ ,  $\alpha$ ,  $\beta$  und  $\gamma$  erhält. Mit Hilfe des LabView-Programms ist es möglich die Messdaten, d. h. die Laserenergiewerte zu gewichten. Drei Optionen stehen zur Verfügung. Wählt man Option 1 gehen die Laserenergiewerte ungewichtet in die Fiterstellung ein, Option 2 gewichtet mit Hilfe der reziproken Werte der Laserenergie, Option 3 bildet zur Gewichtung die Logarithmen der Laserenergien.

Fall 1 (der „Normalfall“) wurde bereits in Kapitel 6.3.3 dargestellt. Es sollen die Ergebnisse aber an dieser Stelle noch einmal vergegenwärtigt werden. Somit sind in Abbildung B.1 noch einmal die Messdaten inklusive Fit in linearer Auftragung (Kopie von Abbildung 6.83) und in Abbildung B.2 die gleichen Daten mit dem gleichen Fit doppeltlogarithmisch aufgetragen (Kopie von Abbildung 6.84) zu sehen. Auf Grund einer Betrachtung der linearen Auftragung (Abb. B.1) lassen sich keine markanten Mängel des Fit feststellen. Aus dem doppeltlogarithmischen Plot (Abb. B.2) wird aber deutlich, dass im Bereich niedriger Laserenergien ( $E_{\text{Laser}} < 1,0 \mu\text{J}$ ) der Fit zu einer deutlich höheren Photoelektronensignalstärke verschoben ist. Wenn bedacht wird, dass bei normaler Gewichtung die Werte der hohen Laserenergien viel stärker ins Gewicht schlagen, überrascht die Abweichung im niedrigen Laserenergiebereich nicht wirklich.

Abbildung B.3 zeigt in doppeltlogarithmischer Auftragung die Gewichtung mit Hilfe



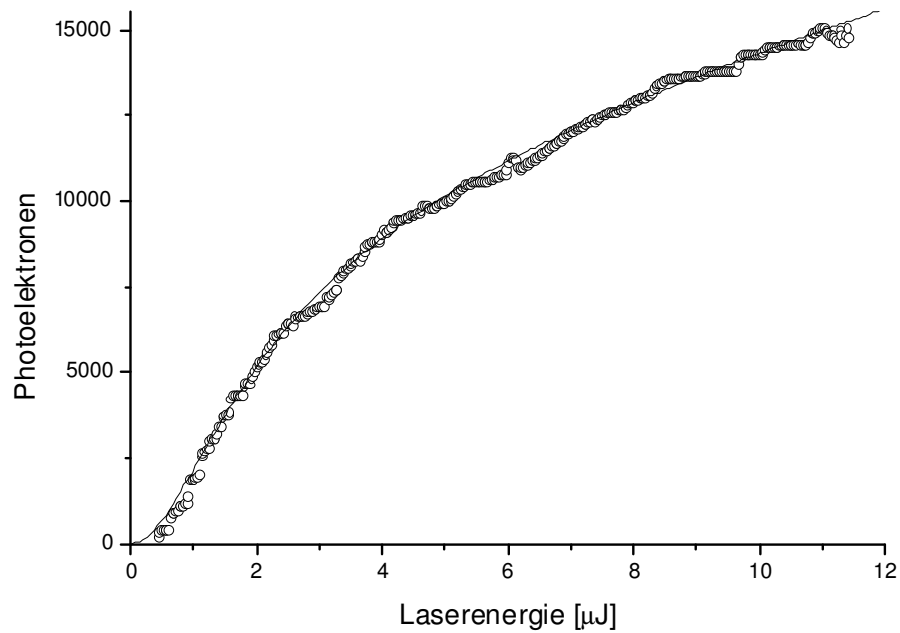


Abbildung B.1: Mit Hilfe einer LabView-Anwendung konnten unter Verwendung der Gleichung 6.4 die gemessenen Signal-Laserenergie-Kurven gefittet werden. In dieser Abbildung, welche exakt der Abbildung 6.83 entspricht, ist eine Auftragung für das Theshold-Signal bei der Verwendung von linear polarisiertem Laserlicht zu sehen. Die gemessenen Daten sind in Form der kleinen Kreise dargestellt, der Fit, welcher in dieser linearen Auftragung gut die Positionen der Messdaten wiedergibt, ist mit einer durchgezogenen Linie eingezeichnet.

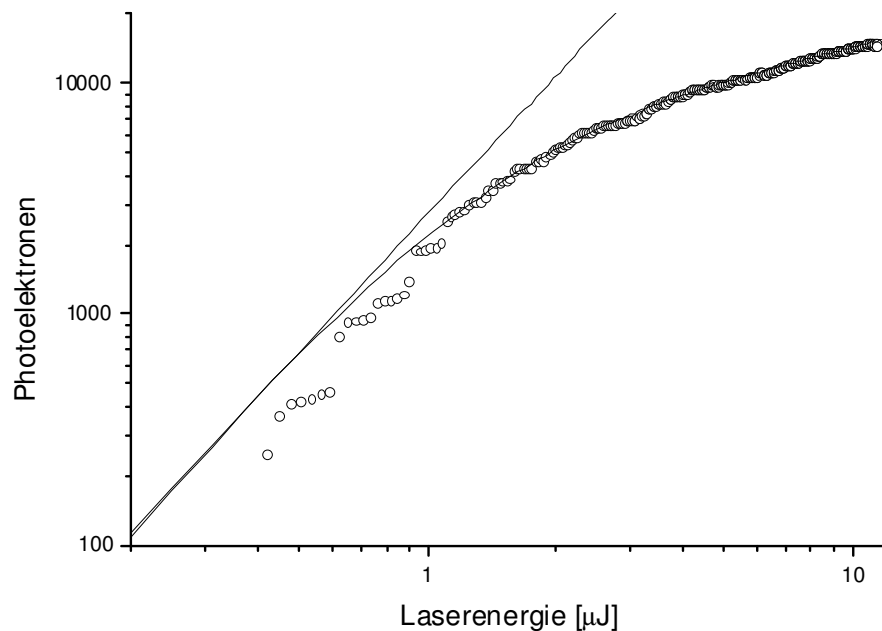


Abbildung B.2: Betrachtet man die gleichen Messdaten wie auch den gleichen Fit aus Abbildung B.1 (Kopie der Abbildung 6.84) in doppeltlogarithmischer Auftragung, wird deutlich, dass im Bereich niedriger Laserenergien ( $E_{\text{Laser}} < 1,0 \mu\text{J}$ ) der Fit nicht mehr exakt die Messdaten wiedergibt: Er ist hin zu größeren Photoelektronensignalstärken verschoben. In die Abbildung wurde eine Tangente mit der Steigung zwei eingefügt.

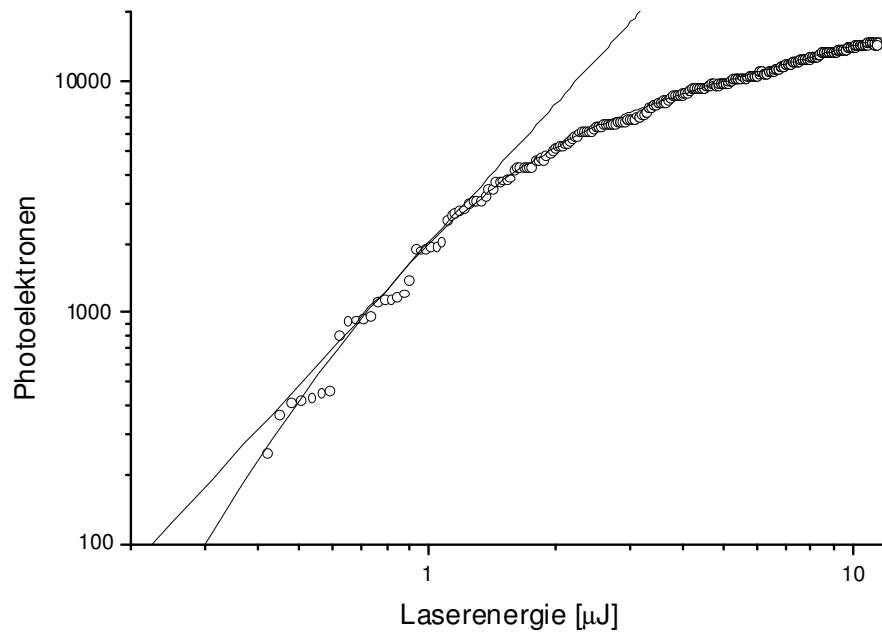


Abbildung B.3: Gewichtung mit Hilfe der reziproken Werte der Laserenergie. Im Gegensatz zu Abbildung B.2 werden hier die gemessenen Daten auch im niedrigen Laserenergiebereich durch den Fit gut wieder gegeben. Auch in dieser Abbildung wurde eine Tangente mit der Steigung zwei eingefügt.

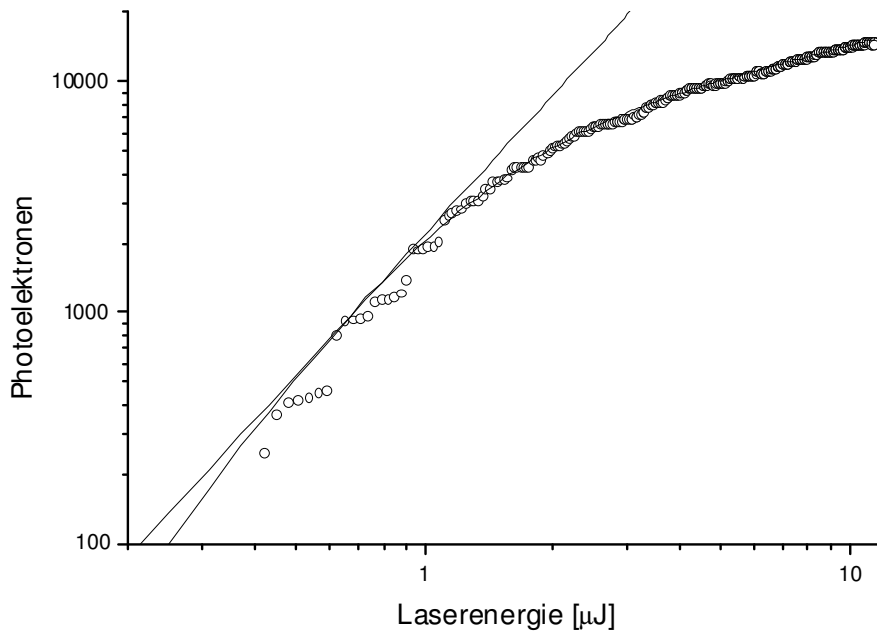


Abbildung B.4: Gewichtung mit Hilfe der logarithmierten Laserenergien. Im niedrigen Laserenergiebereich weichen Fit und Messdaten voneinander ab. Die Diskrepanz von diesen ist aber nicht so groß wie im „normal“ gewichteten Fall. Wieder wurde zusätzlich eine Tangente mit der Steigung zwei eingefügt.

der reziproken Werte der Laserenergie. Die Messdaten werden jetzt durch den Fit auch im niedrigen Laserenergiebereich gut wiedergegeben.

Die Visualisierung der Messdaten sowie des Fits in doppeltlogarithmischer Auftragung begünstigt eine genauere Darstellung der Ergebnisse im niedrigen Laserenergiebereich. Es erscheint somit als naheliegend die Gewichtung der Laserenergien mit Hilfe ihrer Logarithmen durchzuführen. In Abbildung B.4 ist das resultierende Ergebnis dargestellt. Während im Bereich hoher Laserenergien der Fit die Messdaten gut wiedergibt, ist auch hier im niedrigen Laserenergiebereich der Fit zu größeren Photoelektronensignalstärken verschoben. Die Differenz zwischen Messwert und zugehörigen Wert auf der Fitkurve ist allerdings geringer als im „normal“ gefitteten Fall.

## Literaturverzeichnis

- [1] Euklid: Die Elemente. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt am Main 2003.
- [2] Archimedes: Abhandlungen. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt am Main 2003.
- [3] Robert Boyle: Der skeptische Chemiker. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt am Main 2000.
- [4] Christian Huygens: Abhandlung über das Licht. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt am Main 1996.
- [5] Isaac Newton: Optik. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt am Main 1996.
- [6] Thomas Young: On the theory of light and colours. Philosophical Transactions of the Royal Society of London 92, 12-48, 1802.
- [7] Albert Einstein: Über einen die Erzeugung und Verwandlung des Lichtes betreffenden heuristischen Gesichtspunkt. Annalen der Physik 17, 132, 1905.
- [8] Max Planck: Die Ableitung der Strahlungsgesetze. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt am Main 1997.
- [9] A. L. Schawlow / C. H. Townes: Infrared and Optical Masers, Physical Review, 112, 1940, 1958.
- [10] T. H. Maiman: Stimulated Optical Radiation in Ruby. Nature 187, 493-494, 1960.
- [11] Arthur Ashkin: The Pressure Of Laser Light. Scientific American, 226, 2, 63, 1972.
- [12] R. L. Fork, C. H. BritoCruz, P. C. Becker, C. V. Shank: Compression of optical pulses to six femtoseconds by using cubic phase compensation. Opt. Lett. 12, 483, 1987.
- [13] J. Diels and W. Rudolph: Ultrashort Laser Pulse Phenomena. Academic Press, San Diego, 1996.
- [14] Diverse Artikel in Appl. Phys B 65, 2 (Ultrashort Pulse Generation), 1997.
- [15] Paul Corkum: Breaking the attosecond barrier. Optics and Photonics News 6, 18-22, 1995.
- [16] Ferenc Krausz: From femtochemistry to atophysics. Physic World 14, 9, 41, 2001.

- [17] Markus Drescher, Michael Hentschel, Reinhard Kienberger, Gabriel Tempea, Christian Spielmann, Georg A. Reider, Paul B. Corkum, Ferenc Krausz: X-ray Pulses Approaching the Attosecond Frontier. *Science* 291, 1923-1927, 2001.
- [18] George D. Tsakiris, Klaus Eidmann, Jürgen Meyer-ter-Vehn, and Ferenc Krausz: Route to intense single attosecond pulses. *New Journal of Physics* 8. 2006.
- [19] A. Assion, T. Baumert, M. Bergt, T. Brixner, B. Kiefer, V. Seyfried, M. Strehle and G. Gerber: Control of Chemical Reactions by Feedback-Optimized Phase-Shaped Femtosecond Laser Pulses. *Science*, Vol. 282, 919 – 923, 1998.
- [20] M. Shapiro and P. Brumer: Quantum Control of Chemical Reactions. *Trans. Faraday Soc.* 93, 1263-1277, 1997.
- [21] Jörn Manz und Ludger Wöste: "Femtosecond Chemistry Vol. 1 und Vol. 2.", Weinheim, Verlag Chemie 1995.
- [22] M. Wollenhaupt, V. Engel, T. Baumert: Femtosecond Laser Photoelectron Spectroscopy On Atoms And Small Molecules: Prototype Studies in Quantum Control. *Annual Review of Physical Chemistry*, Vol. 56, 25-56, 2005.
- [23] M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Bazhan, D. Liese, T. Baumert: Femtosecond Pump-Probe Photoelectron-Spectroscopy On Electronic States Of Na<sub>2</sub>: A Tool To Study Ultrafast Quantum Control of Chemical Reactions; *Femtochemistry and Femtobiology*, ed.: A. Douhal and J. Santamaria, World Scientific Publishing, 568-575, 2002.
- [24] M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Bazhan, D. Liese C. Sarpe-Tudoran and T. Baumert: One Parameter Control of Quantum Dynamics using Femtosecond Pump-Probe Photoelectron-Spectroscopy on a Model System", *Appl. Phys. B* 74, 121-125, 2002.
- [25] M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Graefe, D. Liese, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, T. Baumert: Changes of the electronic structure along the internuclear coordinate studied by ultrafast photoelectron spectroscopy: the 2<sup>1</sup>Σ<sub>u</sub><sup>+</sup> Na<sub>2</sub> double-minimum state. *Chem. Phys. Lett.* 376, 457-464, 2003.
- [26] M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Graefe, Ch. Horn, D. Liese, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, T. Baumert: Quantum control beyond spectral interference and population control: can resonant laser pulses freeze the population?, *Femtochemistry VI*, Elsevier, 2004.
- [27] Ahmed H. Zewail: *Femtochemistry*, Vol. 1 and 2. World Scientific, Singapore 1994.
- [28] Ahmed H. Zewail: Atomic-Scale Dynamics of the Chemical Bond. *J. Phys. Chem. A* 104(24); 5660-5694, 2000.
- [29] The Nobel Foundation:  
[http://nobelprize.org/nobel\\_prizes/chemistry/laureates/1999/index.html](http://nobelprize.org/nobel_prizes/chemistry/laureates/1999/index.html)
- [30] The Nobel Foundation:  
[http://nobelprize.org/nobel\\_prizes/physics/laureates/2005/index.html](http://nobelprize.org/nobel_prizes/physics/laureates/2005/index.html)
- [31] Moshe Shapiro and Paul Brumer: *Principles of the Quantum Control of Molecular Processes*. Wiley-Interscience, Hoboken 2003.
- [32] Stuart. A. Rice and Meishan Zhao: *Optical Control of Molecular Dynamics*. Wiley-Interscience, New York 2000.
- [33] N. V. Vitanov, T. Halfmann, B. W. Shore, and K. Bermann: Laserinduced population transfer by adiabatic passage techniques. *Annu. Rev. Phys. Chem.* 52, 763-809, 2001.

- [34] N. V. Vitanov, M. Fleischhauer, B. W. Shore, and K. Bergmann: Coherent manipulation of atoms and molecules by sequential laser pulses. *Adv. Atom. Molec. Opt. Phys.* 46, 55-190, 2001.
- [35] Debabrata Goswami: Optical pulse shaping approaches to coherent control. *Physics Reports* 374, 385-481, 2003.
- [36] N. N. Greenwood, A. Earnshaw: *Chemie der Elemente*. VCH, Weinheim 1988.
- [37] Erwin Riedel: *Anorganische Chemie*, 6. Auflage. Walter de Gruyter, Berlin 2004.
- [38] W. Schröter, K.-H. Lautenschläger, H. Bibrack, A. Schnabel: *Chemie*. VEB Fachbuchverlag Leipzig, 1986
- [39] NIST Atomic Spectra Database Levels Data: [http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/levels\\_form](http://physics.nist.gov/cgi-bin/AtData/levels_form)
- [40] Torsten Fließbach: *Quantenmechanik*, 2. Auflage. Spektrum Akademischer Verlag, Heidelberg 1995.
- [41] Wolfgang Nolting: *Grundkurs Theoretische Physik 5/2, Quantenmechanik – Methoden und Anwendungen*. Springer Verlag, Berlin 2004.
- [42] Walter Greiner, Herbert Diehl: *Theoretische Physik, Band 4, Quantenmechanik*. Verlag Harri Deutsch, Thun 1975.
- [43] D. F. Walls, G. J. Milburn: *Quantum Optics*. Springer Verlag, Berlin 1995.
- [44] Miguel Orszag: *Quantum Optics*. Springer Verlag, Berlin 2000.
- [45] Robert W. Boyd: *Nonlinear Optics*. 2. Auflage, Academic Press, San Diego 2003.
- [46] J. H. Eberly, J. Javanainen, K. Rzazewski: Above Threshold Ionisation. *Physics reports* 204, 331-383, 1991.
- [47] V. S. Letokhov: *Laser Photoionization Spectroscopy*. Academic Press, New York 1981.
- [48] P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, N.K. Rahman : Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon-Atoms. *Phys. Rev. Lett.* 42, 1127-1130, 1979.
- [49] P. Kruit, J. Klimman, H.G. Muller and M.J. Van der Weil: Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064, 532, and 355 nm. *Phys. Rev. A* 28, 248, 1983.
- [50] P. Kruit: Photoionisation of atoms in strong laser fields, an electron spectroscopy study. Dissertation, Universiteit van Amsterdam 1982.
- [51] F. Fabre, G. Petite, P. Agostini und M. Clement : Multi-photon above-threshold ionization of xenon at 0,53 and 1,06  $\mu\text{m}$ . *J. Phys. B – At. Mol. Opt. Phys.* 15, 1353-1369, 1982.
- [52] G. Petite, F. Fabre, P. Agostini, M. Crance und M. Aymar : Nonresonant multiphoton ionization of cesium in strong fields – angular distribution and above-threshold ionization. *Phys. Rev. Lett. A* 29, 2677-2689, 1985.
- [53] L. A. Lompre, A. L’Huillier, B. Mainfray und C. Manus: Multiphoton ionization of He atoms at 532 nm. *Phys. Rev A* 112, 319-322, 1985.
- [54] R. R. Freeman und P. H. Bucksbaum: Investigations of above-threshold ionization using subpicosecond laser pulses. *J. Phys. B – At Mol. Opt. Phys.* 24, 325-347, 1991.

- [55] A. Assion, T. Baumert, J. Helbing und G. Gerber: Molecular ATI and ATD with femtosecond laser pulses. *Ultrafast Phenomena X*, eds.: J. Fujimoto, W. Zinth, P. F. Barbara and W. H. Knox; Springer Verlag Berlin Heidelberg, 270 – 271, 1996.
- [56] A. Assion, T. Baumert, J. Helbing, V. Seyfried und G. Gerber: Femtosecond time-resolved observation of above threshold ionization in Na<sub>2</sub>. *Phys. Rev. A* 55, 1899-1902, 1997.
- [57] D. M. Volkov: Über eine Klasse von Lösungen der Diracschen Gleichungen. *Z. Phys.* 94, 250-260, 1935.
- [58] P. Kruit und F. Read. *J. Phys. E – Scientific Instruments* 16, 313, 1983.
- [59] H. G. Muller, A. Tip und M. J. van der Weil: Ponderomotive force and AC Stark shift in multiphoton ionisation. *J. Phys. B – At. Mol. Phys.* 16, 679-685, 1983.
- [60] R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher und M. E. Geusic: Above-Threshold Ionization with Subpicosecond Laser Pulses. *Phys. Rev. Lett.* 59, 1092, 1987.
- [61] P. Avan, C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, and C. Fabre. Effect of high frequency irradiation on the dynamical properties of weakly bound electrons. *J. Physique*, 37, 993, 1976.
- [62] Ingolf V. Hertel, C.-P. Schulz: *Atom-, Molekül- und optische Physik*. Springer Verlag, Berlin 2007.
- [63] Andreas Präkelt. Geformte Femtosekundenlaserpulse in der kohärenten elektronischen Anregung und der nichtlinearen Optik. Dissertation, Fachbereich Naturwissenschaften der Universität Kassel, 2006.
- [64] Dirk Wössner: Femtosekundenzeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie am Natrium-Dimer und Aufbau einer Molekularstrahlapparatur. Diplomarbeit, Physikalisches Institut der Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 1997.
- [65] M. Hofmann: Femtosekundenzeitaufgelöste Photoelektronenspektroskopie am Na<sub>2</sub> in intensiven Laserfeldern. Diplomarbeit, Physikalisches Institut der Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 1998.
- [66] Thomas Frohnmeyer: Abbildung molekularer Dynamik mittels Femtosekunden-Photoelektronenspektroskopie. Dissertation, Physikalisches Institut der Julius-Maximilians-Universität Würzburg, 1998.
- [67] P. Kruit: Photoionization of atoms in strong laser fields; an electron spectroscopy study. Dissertation, Universiteit van Amsterdam 1982.
- [68] P. Kruit und F. H. Read: Magnetic field paralleliser for  $2\pi$  electron-spectrometer and electron-image magnifier. *J. Phys. E:Sci. Instrum.* 16, 313-324, 1983.
- [69] R. Möller. Photofragmentspektroskopie an Na<sub>2</sub>. Dissertation, Universität Freiburg i.B., 1985
- [70] Femtolasers Produktions GmbH, Wien: User's Manual for Mirror-Dispersion-Controlled Ti:Sapphire Oscillator. Femtsource Scientific SPro, 2000.
- [71] Coherent Inc. Operator's Manual Verdi V-2/V-5 Diode-Pumped Lasers, 1999.
- [72] Femtolasers Produktions GmbH, Wien: User's Manual for Femtosecond Multipass Amplifier. Femtpower Pro, 2000.

- [73] B.M. Industries: 621-D CW pumped doubled Multi-kHz Nd:YLF Laser, Users Manual.
- [74] Light Conversion: Harmonic Generator, Users Manual.
- [75] Light Conversion: Travelling-wave Optical Parametric Amplifier of Superfluorescence, Users Manual.
- [76] A. Präkelt, M. Wollenhaupt, A. Assion Ch. Horn C. Sarpe-Tudoran M. Winter und T. Baumert: Compact, robust, and flexible setup for femtosecond pulse shaping. *Rev. Sci. Instr.*, 74:4950–4953, 2003.
- [77] Andreas Präkelt: Hochleistungspulsformer in Kompaktbauweise. Diplomarbeit, Fachbereich Naturwissenschaften der Universität Kassel, 2003.
- [78] Spectra Physics, Mountain View, CA: Quanta-Ray INDI – Pulsed Nd:YAG Laser, User’s Manual.
- [79] Sirah Laser- und Plasmatechnik GmbH, Kaarst: Cobra-Stretch Dye Laser, Service Manual.
- [80] C. Davisson and L. Germer. Diffraction of electrons by a crystal of nickel. *Phys. Rev.*, 30(6):705-740, 1927
- [81] L. De Broglie. Recherches sur la théorie des quanta. *Ann. Phys. Fr.*; 3:22–128, 1925.
- [82] L. Marton. Electron interferometer. *Phys. Rev.*, 85:1057–1058, 1952.
- [83] C. Jönsson. *Zeitschrift für Physik* 161 454-474, 1961
- [84] M. M. Salour and C. Cohen-Tannoudji. Observation of Ramsey’s Interfernece Fringes in the Profile of Doppler-Free Two-Photon Resonances. *Phys. Rev. Lett.* 38 ,757, 1977
- [85] R. Teets, J. Eckstein, and T. W. Hänsch. Coherent Two-Photon Excitation by Multiple Light Pulses. *Phys. Rev. Lett.* 38 ,760, 1977.
- [86] C. R. Ekstrom, J. Schmiedmayer, M. S. Chapman, T. D. Hammond, and D. E. Pritchard. Measurement of the electric polarizability of sodium with an atom interferometer. *Phys. Rev. A* 51 ,3883, 1995.
- [87] N. F. Scherer, R. J. Carlson, A. Matro, M. D. Anthony, J. Ruggiero, V. Romero-Rochin, J. A. Cina, G. R. Fleming, and S. A. Rice. Fluorescence-detected wave packet interferometry : Time resolved molecular spectroscopy with sequence of femtosecond phase-locked pulses. *J. Chem. Phys.* 95 ,1487, 1991.
- [88] V. Blanchet, M. A. Bouchene, and B. Girard. Temporal coherent in the photoionization of Cs<sub>2</sub>: Theory and experiment. *J. Chem. Phys.* 108 ,4862, 1998.
- [89] L. D. Noordam, D. I. Duncan, and T. F. Gallagher. Ramsey fringes in atomic Rydberg wave packets. *Phys. Rev. A* 45 ,4734, 1992.
- [90] J. F. Christian, B. Broers, J. H. Hoogenraad, W. J. van der Zande, and L. D. Boordam. Rubidium electronic wavepackets probed by a phase-sensitive pump-probe technique. *Opt. Commun.* 103 ,79, 1993.



- [91] M. Strehle, U. Weichmann, and G. Gerber. Femtosecond time-resolved Rydberg wave-packet dynamics in the two-electron system calcium. *Phys. Rev. A* 58 ,450, 1998.
- [92] V. Blanchet, C. Nicole, M. A. Bouchene, and B. Girard. Temporal Coherent Control in Two-Photon Transitions: From Optical Interferences to Quantum Interferences. *Phys. Rev. Lett.* 78 ,2716, 1997.
- [93] M. Wollenhaupt, A. Assion, D. Liese, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert, S. Zamith, M.A. Bouchene, B. Girard, A. Flettner, U. Weichmann, G. Gerber: Interferences of ultrashort free electron wave packets, *Phys. Rev. Lett.* 89, 173001, 2002.
- [94] Matthias Wollenhaupt. Observation And Coherent Control Of Atomic And Molecular Dynamics. Habilitationsschrift, Fachbereich Naturwissenschaften der Universität Kassel, 2004.
- [95] M. Winter, M. Wollenhaupt, and T. Baumert. Coherent matter waves for ultrafast laser pulse characterization. *Opt. Comm.* 264, 285-292, 2006.
- [96] H. Ihee, V. A. Lobastov, U. M. Gomez, B. M. Godson, R. Srinivasan, C.-Y. Ruan, and A. H. Zewail. Direct Imaging of Transient Molecular Structures with Ultrafast Diffraction. *Science* 291, 458-462, 2001.
- [97] V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner, D. M. Villeneuve, and P. B. Corkum. Quantum interference in double ionization and fragmentation of  $C_6H_6$  in intense laser fields. *Phys. Rev. Lett.*, 87(25):253003-1-253003-4, 2001.
- [98] N. V. Vitanov, T. Halfmann, B. W. Shore, and K. Bergmann. Laserinduced population transfer by adiabatic passage techniques. *Annu. Rev. Phys. Chem.*, 52:763–809, 2001.
- [99] Debabrata Goswami. Optical pulse shaping approaches to coherent control. *Physics Reports*, 374:385–481, 2003.
- [100] S. Schiemann U. Gaubatz, P. Rudecki, and K. Bergmann. Population transfer between molecular vibrational levels by stimulated raman scattering with partially overlapping laser: A new concept and experimental results. *J. Chem. Phys.*, 92:5363–5376, 1990.
- [101] T. Frohnmeyer, M. Hofmann, M. Strehle, and T. Baumert. Mapping molecular dynamics ( $Na_2$ ) in intense laser fields - another dimension to femtochemistry. *Chem. Phys. Lett.*, 312(5-6):447–454, 1999.
- [102] A. Assion, T. Baumert, U. Weichmann, and G. Gerber. Photofragmentation of  $Na_2^+$  in intense laser fields: From photodissociation on light-induced potentials to field ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 86(25):5695–5698, 2001.
- [103] D. M. Villeneuve, H. Niikura, and P. B. Corkum. Stopping a vibrational wave packet with laser-induced forces. *Phys. Rev. Lett.*, 92:133002–1–133002–4, 2004.
- [104] M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Bazhan, Ch. Horn, D. Liese, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, and T. Baumert. Control of interferences in an Autler-Townes doublet: Symmetry of control parameters. *Phys. Rev. A* 68, 015401, 2003.

- [105] P. Meystre and M. Sargent. Elements of Quantum Optics, 3<sup>rd</sup> ed, Chap. 12. Springer Verlag, Berlin, 1999.
- [106] Tim Bayer. Kohärente Kontrolle von Kalium-Atomen in intensiven Laserfeldern: Kontrolllandschaften und Optimierung der selektiven Bevölkerung bekleideter Zustände. Diplomarbeit, Fachbereich Naturwissenschaften der Universität Kassel, 2006.
- [107] M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert: Quantum control and quantum control landscapes using intense shaped femtosecond pulses, Journal of Modern Optics, Vol. 52, No. 16 2187-2195, 2005.
- [108] M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert: Strong field quantum control by selective population of dressed states, Journal of Optics B - Topical Issue on Quantum Control, Vol. 7, 270 – 276, 2005.
- [109] M. Wollenhaupt, D. Liese, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert: Quantum control by ultrafast dressed states tailoring, Chemical Physics Letters 419, 184-190, 2006.
- [110] M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert: Quantum control by selective population of dressed states using intense chirped femtosecond laser pulses, Appl. Phys. B 82, 183 – 188, 2006.
- [111] M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Bayer, T. Baumert: Femtosecond strong-field quantum control with sinusoidally phase-modulated pulses, Phys. Rev. A 73, 063409-1-15, 2006.
- [112] N. B. Delone, V. P. Krainov: Multiphoton Processes In Atoms. Springer Verlag, Berlin 2000.
- [113] M. Protopapas, C. H. Keitel, and P. L. Knight: Atomic physics with super-high intensity lasers, Rep. Prog. Phys. 60, 389, 1997.
- [114] D. B. Milosevic, G. G. Paulus, D. Bauer, and W. Becker: Above-threshold ionization by few-cycle pulses, J. Phys. B: At. Mol. Opt. Phys. 39, R203-R262, 2006.
- [115] G. Scoles (editor): Atomic and molecular beam methods. Vol. 1. Oxford University Press, 1988.
- [116] Landolt-Börnstein: Zahlenwerte und Funktionen aus Physik, Chemie, Astronomie, Geophysik und Technik. II. Band, Ed. J. Bartels, P. Ten Bruggencate, H. Hausen, K.H. Hellwege, Kl. Schäfer, E Schmidt. Springer-Verlag, 1960.
- [117] H. Pauly: Atom, Molecule, and Cluster Beams. Springer-Verlag, 2000;
- [118] R. Thalweiser: Femtosekunden-Zeitaufgelöste-Experimente und ZEKE-Photoelektronen-Spektroskopie an Nan-Clustern. Dissertation, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, 1992; S. Rosin and I.I. Rabi: Effective Collision Cross Sections of the Alkali Atoms in Various Gases. Phys. Rev., 48:373-379, 1935.
- [119] R.J. Gordon, Y.T. Lee, and D. Herschbach: Supersonic Molecular Beams of Alkali Dimers. J. Chem. Phys., 54:2393-2409, 1971.
- [120] K. Bergmann, U. Hefter, and P. Hering: Quantum dependent velocity distribution in Na<sub>2</sub> molecular beams. J. Chem. Phys., 65:488-490, 1976.

- [121] Timothy M. Roach, Dwayne Henclewood: A simple rubidium atomic beam with an alkali dispenser source. The College of the Holy Cross, Worcester, MA 601610, veröffentlicht via Internet:  
<http://www.holycross.edu/departments/physics/troach/Research/roach-beam1.pdf>
- [122] Alkali Metal Dispensers. Broschüre der Firma SAES Getters S.p.a., Lainate, Italien
- [123] M. Succi, R. Canino, and B. Ferrario: Atomic absorption evaporation flow rate measurements of alkali metal dispensers. *Vacuum*, 35, 12:579-582, 1985.
- [124] B. G. Koenders. Dissertation, Universiteit van Amsterdam, 1990.
- [125] I. Powis, T. Baer, and C. Y. Ng (Editoren): High Resolution Laser Photoionisation and Photoelectron Studies, John Wiley & Sons Ltd., 1995.
- [126] NIST Atomic Spectra Database: <http://physics.nist.gov/PhysRefData/ASD/> .
- [127] Oksana Graefe: Femtosecond photoelectron spectroscopy for observation of chemical reactions. Dissertation, Fachbereich Naturwissenschaften der Universität Kassel, 2005.
- [128] W. C. Wiley und I. H. McLaren: Time-of-Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution. *Rev. Sci. Instrum.*, 26:1150-1157, 1955.
- [129] Marc Winter: Charakterisierung von Femtosekundenlaserpulsen. Diplomarbeit, Fachbereich Physik der Universität Kassel, 2002.

## Veröffentlichungen

D. Liese: Bestimmung der optischen Konstanten von Kupfer aus Reflexionsmessungen im UV-Bereich, Diplomarbeit, Universität Kassel 2000.

A. Gerlach<sup>1</sup>, F. Pforte<sup>1</sup>, D. Liese<sup>1</sup>, T. Michalke<sup>2</sup>, G. Meister<sup>1</sup>, A. Goldmann<sup>1</sup> (<sup>1</sup>Universität Kassel, <sup>2</sup>Universität Würzburg): Nanoscale surface optical constants of copper determined by angle-resolved photoemission, *Surface Science* 492, 214-224, 2001.

M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Bazhan, D. Liese, T. Baumert (Universität Kassel): Femtosecond Pump-Probe Photoelectron-Spectroscopy On Electronic States Of Na<sub>2</sub>: A Tool To Study Ultrafast Quantum Control of Chemical Reactions; *Femtochemistry and Femtobiology*, ed.: A. Douhal and J. Santamaria, World Scientific Publishing, 568-575, 2002.

M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Bazhan, D. Liese C. Sarpe-Tudoran, and T. Baumert (Universität Kassel): One Parameter Control of Quantum Dynamics using Femtosecond Pump-Probe Photoelectron-Spectroscopy on a Model System", *Appl. Phys. B* 74, 121-125, 2002.

M. Wollenhaupt<sup>1</sup>, A. Assion<sup>1</sup>, D. Liese<sup>1</sup>, C. Sarpe-Tudoran<sup>1</sup>, T. Baumert<sup>1</sup>, S. Zamith<sup>2</sup>, M.A. Bouchene<sup>2</sup>, B. Girard<sup>2</sup>, A. Flettner<sup>3</sup>, U. Weichmann<sup>3</sup>, G. Gerber<sup>3</sup> (<sup>1</sup>Universität Kassel, <sup>2</sup>Université Paul Sabatier Toulouse, <sup>3</sup>Universität Würzburg): Interferences of ultrashort free electron wave packets, *Phys. Rev. Lett.* 89, 173001, 2002.

M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Graefe, D. Liese, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, T. Baumert (Universität Kassel): Changes of the electronic structure along the internuclear coordinate studied by ultrafast photoelectron spectroscopy: the  $2^1\Sigma_u^+$  Na<sub>2</sub> double-minimum state. *Chem. Phys. Lett.* 376, 457-464, 2003.

M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Graefe, Ch. Horn, D. Liese, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, T. Baumert (Universität Kassel): Control of interferences in an Autler-Townes doublet: Symmetry of control parameters, *Phys. Rev. A* 68, 015401, 2003.

M. Wollenhaupt, A. Assion, O. Graefe, Ch. Horn, D. Liese, C. Sarpe-Tudoran, M. Winter, T. Baumert (Universität Kassel): Quantum control beyond spectral interference and population

control: can resonant laser pulses freeze the population?, *Ultrafast Molecular Events in Chemistry and Biology*, eds.: M. Martin and J. Hynes, Elsevier, 2004, 139-142.

T. Brixner<sup>1</sup>, G. Krampert<sup>1</sup>, T. Pfeifer<sup>1</sup>, R. Selle<sup>1</sup>, G. Gerber<sup>1</sup>, M. Wollenhaupt<sup>2</sup>, O. Graefe<sup>2</sup>, C. Horn<sup>2</sup>, D. Liese<sup>2</sup>, T. Baumert<sup>2</sup> (<sup>1</sup>Universität Würzburg, <sup>2</sup>Universität Kassel): Quantum control by ultrafast polarization shaping, *Phys. Rev. Lett.* Vol. 92, No. 20, 208301-1-208301-4, 2004.

T. Brixner<sup>1</sup>, G. Krampert<sup>1</sup>, T. Pfeifer<sup>1</sup>, R. Selle<sup>1</sup>, G. Gerber<sup>1</sup>, M. Wollenhaupt<sup>2</sup>, O. Graefe<sup>2</sup>, C. Horn<sup>2</sup>, D. Liese<sup>2</sup>, T. Baumert<sup>2</sup> (<sup>1</sup>Universität Würzburg, <sup>2</sup>Universität Kassel): Adaptive Polarization Control of Molecular Dynamics, in *Ultrafast Phenomena XIV*, eds.: T. Kobayashi, T. Okada, T. Kobayashi, K. A. Nelson and S. DeSilvestri, Springer Verlag Berlin, 2005.

M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert (Universität Kassel): Quantum control and quantum control landscapes using intense shaped femtosecond pulses, *Journal of Modern Optics*, Vol. 52, No. 16 2187-2195, 2005.

M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert (Universität Kassel): Strong field quantum control by selective population of dressed states, *Journal of Optics B - Topical Issue on Quantum Control*, Vol. 7, 270 – 276, 2005.

M. Wollenhaupt, D. Liese, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert (Universität Kassel): Quantum control by ultrafast dressed states tailoring, *Chemical Physics Letters* 419, 184-190, 2006.

M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Baumert (Universität Kassel): Quantum control by selective population of dressed states using intense chirped femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. B* 82, 183 – 188, 2006.

M. Wollenhaupt, A. Präkelt, C. Sarpe-Tudoran, D. Liese, T. Bayer, T. Baumert (Universität Kassel): Femtosecond strong-field quantum control with sinusoidally phase-modulated pulses, *Phys. Rev. A* 73, 063409-1-15, 2006.

## **Lebenslauf**

Dirk Wilhelm Liese

\* 21.11.1963, Witzenhausen

verheiratet, ein Sohn (5 Jahre)

- |             |   |
|-------------|---|
| 1969 – 1973 | Grundschule, Großalmerode   |
| 1973 – 1979 | Valentin-Traudt Schule, Großalmerode<br>Abschluss: Mittlere Reife   |
| 1979 - 1981 | Fachoberschule Witzenhausen,<br>Schwerpunkt: Wirtschaft / Verwaltung  |
| 1981 - 1984 | Kulturmanagement (selbstständig tätig):<br>Vorbereitung und Organisation von Filmprojekten und Ausstellungen  |
| 1984 - 1985 | Kaufmännischer Kurs an der GfBA, Kassel   |
| 1985 - 1988 | Fa. Vereinigte Landwarenkaufleute, Kassel<br>Ausbildung zum Groß- und Außenhandelskaufmann  |
| 1988 - 1990 | Zivildienst: Ludwig-Noll-Krankenhaus, Kassel  |
| 1990 - 1993 | Hessenkolleg Kassel<br>Abschluss: Allgemeine Hochschulreife   |
| 1993 - 2000 | Studium der Physik, Universität Kassel<br>Diplomarbeit in der Arbeitsgruppe Experimentalphysik II:<br>Oberflächenphysik (Prof. Dr. Albrecht Goldmann).<br>Thema: Bestimmung der optischen Konstanten von Kupfer aus |

2000 - 2006      Reflexionsmessungen im UV-Bereich  
Wissenschaftlicher Mitarbeiter,  
Experimentalphysik III: Femtosekundenspektroskopie  
(Prof. Dr. Thomas Baumert)

Kassel, den 24. Januar 2007

## **Danksagung**

Wenn die Welt mit samt ihren physikalischen Grundlagen ein streng determiniertes System ist und somit alle Begebenheiten in ihr seit ihrem Herauswachsen aus einer Singularität vor 14 Milliarden Jahren streng in einer Abfolge kausaler Ketten von sich gegangen sind, könnte man der Meinung sein, dass so etwas wie eine Danksagung eine Art unnötige Gefühlsduselei sei, welche uns unser limbisches System unter Zusammenspiel von Hormonen und Nervenzellen lediglich aufzwingt.

Die Quantenphysik, oder vielleicht besser gesagt die Kopenhagener Deutung von dieser, verliert im Vergleich zur klassischen Physik das Deterministische: Sie verneint die Existenz jeglicher Beziehung zwischen den Objekten des quantentheoretischen Formalismus einerseits und der realen Welt andererseits. Einzig den durch die Theorie vorhergesagten Messwerten wird Realität zugewiesen. Mit Hilfe seiner Katze versuchte Erwin Schrödinger den Brückenschlag von dem Verhalten subatomarer Systeme hin auf das makroskopische System. Gut, Schrödinger wollte mit seinem Gedankenexperiment lediglich auf die Unvollständigkeit der Quantenphysik hinweisen. Doch in dem scheinbar widersprüchlichen Übergang aus der Quantenwelt heraus hin zur makroskopischen Welt, wie wir sie mit unseren Augen täglich wahrnehmen, steckt mehr als eine bloße Gedankenspielerei, bleibt doch durch die nicht deterministische Deutung der Quantenphysik ein wenig Hoffnung, dass zu sein, was wir gerne wären: Mensch, und zwar im humanistischem Sinne.

Wie auch immer: Voltaire empörte sich im November 1755 gegen ein damals Lissabon zerstörendes Erdbeben, bei dem 60000 Menschen ums Leben kamen. Viele wunderten sich, wie es möglich sei, oder welchen Sinn es vermöge, sich gegen etwas zu empören, dass natur- (oder vielleicht sogar Gott-) gegeben, also unabänderbar sei, vielen wird es heute nicht anders gehen. Dennoch oder gerade zeigt sich in den Worten bzw. Schriften Voltaires der tiefe Drang zur eigenen Selbstbestimmung. Die Welt ist nicht „die beste aller möglichen Welten“, wie es der in Göttingen lehrende Mathematiker, Philosoph und auch Physiker Gottfried Wilhelm Leibnitz in seiner Theodizee behauptete.

Ich möchte somit an dieser Stelle mir die Freiheit nehmen, einigen zu danken, die mich direkt oder auch indirekt bei der Erstellung dieser Dissertation unterstützt haben. Zunächst natürlich meiner Frau Anja und meinem Sohn Jean-Maurice, die mir auch in



schwierigen Zeiten Wärme, Zuflucht und Perspektive geboten haben. Zum anderen möchte ich meinem Bruder Uwe Liese, meiner Mutter Hildegard Liese sowie deren langjährigen Lebenspartner Eberhard Freyer (\*13.06.1939, †21.01.2006), der nun vor einem Jahr plötzlich und unerwartet von uns gegangen ist und der für uns mehr als ein Freund war, danken. Meinen Vater Horst Liese (\*01.03.1934, †16.08.1976), der mich während meiner ersten 12 Lebensjahre begleitete, möchte ich an dieser Stelle nicht vergessen.

Natürlich gilt besonderem Dank meinem Betreuer Prof. Dr. Thomas Baumert, der es mir ermöglichte in seiner Arbeitsgruppe, der Experimentalphysik III – Femtosekundenspektroskopie, an solch einem interessanten Thema zu arbeiten, der stets für Diskussionen zur Verfügung stand und viele Ideen einbrachte. Besonderen Dank gilt auch Priv. Doz. Dr. habil Matthias Wollenhaupt, der ein Urquell an Ideen ist, bei dem ich stets mit meinen Anliegen anklopfen konnte. Dank gilt meiner MaBoS Mitstreiterin Oksana Graefe. Besonderen Dank bezüglich meiner Kollegen möchte ich aber Cristian Sarpe-Tudoran, Tim Bayer und Andreas Präkelt aussprechen. Aber auch die vielen anderen seien hier namentlich erwähnt. Nur in einem gut zusammenarbeitenden Team war es möglich die besprochenen Experimente zufriedenstellend durchzuführen: Andreas Assion, Ronja Bäumner, Edith Brühl, Lars Englert, Lars Haag, Christian Horn, Petra Kasper, Andrea Klumpp, Jens Köhler, Fedor Majorov, Ute Meier-Diedrich, Jutta Mildner, Johannes Schneider, Elma Weber und Mark Winter.

Zurückkehrend zu kausalen Zusammenhängen, möchte ich anmerken, dass nicht nur der Flügelschlag eines Schmetterlings imstande ist, die Welt zu verändern. So gab es natürlich auch außerhalb von Familie und Universität Impulse denen ich dankbar bin. Es soll hier nicht alles und jeder aufgezählt werden. An dieser Stelle könnte vieles stehen, z. B. eine Liste meiner Freunde. Zwei von diesen möchte ich aber hier dennoch erwähnen, da sie vor kurzen den Gang vollzogen haben, den alles Irdische ging, geht oder gehen wird: Bernd Schneider (\*03.02.1964 †11.04.2005) und Andreas Stranz (\*08.10.1962 †25.05.2005).

## **Erklärung**

Hiermit versichere ich, dass ich die vorliegende Dissertation selbständig und ohne unerlaubte Hilfe angefertigt und andere als die in der Dissertation angegebenen Hilfsmittel nicht benutzt habe. Alle Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus veröffentlichten oder unveröffentlichten Schriften entnommen sind, habe ich als solche kenntlich gemacht. Kein Teil dieser Arbeit ist in einem anderen Promotions- oder Habilitationsverfahren verwendet worden.



