

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Bachelorarbeit

Im Studiengang Physik

vorgelegt von

Georg Schmid

geboren in

Reutlingen

Juli 2011

Charakterisierung eines Iod-Überschallgasjets für ein Reaktionsmikroskop am Freie-Elektronen-Laser in Hamburg

Diese Bachelorarbeit wurde am
Max-Planck-Institut für Kernphysik Heidelberg
in der Arbeitsgruppe „Experimentelle Mehrteilchen-Quantendynamik“ und am
Freie-Elektronen-Laser in Hamburg unter Betreuung von

Priv.-Doz. Dr. Robert Moshhammer

durchgeführt.

Abstract

In a supersonic gas jet, gas is expanded adiabatically through a nozzle from a high pressure reservoir (\sim bar) into a low pressure region ($\sim 10^{-3} - 10^{-4}$ mbar). In doing so the free enthalpy of the gas is (partially) transformed into directed motion. Supersonic jets find use in momentum spectroscopy experiments like for example reaction microscopes.

In the course of this bachelor thesis the operation of a supersonic jet using iodine as target gas was characterized. The target density as well as target temperature are studied as function of the essential operation parameters (temperature of iodine reservoir, type of carrier gas and back pressure). It could be shown that highest iodine target density was achieved for low back pressures $p_0 = 1 - 2$ bar and high reservoir temperatures $T_0 > 100$ °C. By rising the back pressure p_0 , a decrease in the gas particles' temperature $T_{||}$ along the jet propagation direction was observed. Contrary to the expectations, no significant enhancement in $T_{||}$ with rising reservoir temperature T_0 was found.

By performing short-time IR/XUV pump-probe experiments on dissociation dynamics of iodine at FLASH, we found iodine ions up to I^{6+} at 88 eV photon energy. A dependence of the yield as well as the angular distribution of the ions as function of the delay between IR and FEL pulse was observed.

Zusammenfassung

Bei einem Überschallgasjet wird ein Gas aus einem Reservoir bei hohem Vordruck (\sim bar) durch eine Düse in einen Bereich deutlich geringeren Drucks ($\sim 10^{-3} - 10^{-4}$ mbar) adiabatisch expandiert. Hierdurch kommt es zur (partiellen) Umwandlung der freien Enthalpie des Gases in gerichtete Bewegungsenergie. Der so erzeugte kalte gerichtete Gasstrahl wird u.a. als Target für die Impulsspektroskopie in sogenannten Reaktionsmikroskopen verwendet. Im Rahmen dieser Bachelorarbeit wurde der Betrieb eines Überschallgasjets mit Iod charakterisiert. Dabei wurden sowohl die Abhängigkeit der Targetdichte als auch der Targettemperatur als Funktion der wesentlichen Betriebsparameter des Jets (Temperatur des Iodreservoirs, verwendetes Trägergas und Vordruck des Trägergases) untersucht. Es konnte gezeigt werden, dass bei niedrigen Vordrücken $p_0 = 1 - 2$ bar und hohen Reservoirtemperaturen $T_0 > 100$ °C die Targetdichte maximal wird. Mit steigendem Vordruck p_0 wurde eine Abnahme der Temperaturkomponente $T_{||}$ der Gasteilchen in Jetrichtung beobachtet. Entgegen der Erwartungen konnte eine signifikante Zunahme von $T_{||}$ mit steigender Reservoirtemperatur T_0 nicht nachgewiesen werden.

In Kurzzeit IR/XUV Pump-Probe-Experimenten zur Dissoziationsdynamik von Iodmolekülen am FLASH wurden bei Photonenenergien von 88 eV bis zu 6-fach geladene Iodionen beobachtet. Dabei zeigte sich eine Abhängigkeit sowohl der Ausbeute als auch der Winkelverteilung der Iodionen als Funktion der Zeitverzögerung des IR- und des FEL-XUV-Pulses.

Inhaltsverzeichnis

1	Motivation	9
2	Testmessung	11
2.1	Einfachionisation von Atomen in starken Laserfeldern	12
2.1.1	Ponderomotorisches Potential	12
2.1.2	Multiphotonenionisation	14
2.1.3	Above-Threshold-Ionisation	16
2.1.4	Tunnelionisation	18
2.2	Reaktionsmikroskop	21
2.2.1	Spektrometer	22
2.2.2	Detektor	22
2.3	Überschallgasjet	24
2.3.1	Theorie	24
2.3.2	Technische Umsetzung	27
2.4	Iodreservoir	30
2.4.1	Betriebsarten	31
2.4.2	Heizung	32
2.5	Laserstrahlführung zum Experiment	33
2.5.1	Laserlabor	33
2.5.2	Rohrsystem	34
2.5.3	Fokussierung	35
2.5.4	Laser	35
2.6	Messung und Ergebnisse	37
2.6.1	Flugzeitspektren	37
2.6.2	Argon	41
2.6.3	Neon	58
2.6.4	Helium	59
2.6.5	Verstopfte Düse	59
3	Messung am FLASH	63
3.1	Experimentelle Rahmenbedingungen	63
3.2	Physikalische Motivation	64
3.3	Mehrfachionisation von I ₂ -Molekülen	66
3.4	Pump-Probe-Messungen an I ₂ -Molekülen	69

4 Zusammenfassung	71
Anhang	73
A Verhältnis I^+ -Ionen zu Ar^+ -Ionen	73
B Verhältnis I^+ -Ionen zu H_2O^+ -Ionen	73
Literaturverzeichnis	75

1 Motivation

Die Untersuchung der Wechselwirkung von Licht mit Materie ist ein zentrales Thema der Atom- und Molekülphysik. Während im 20. Jahrhundert der Forschungsschwerpunkt vornehmlich auf der Untersuchung der Struktur der Materie lag, eröffnen neuartige Strahlungsquellen die Möglichkeit, die Dynamik atomarer und molekularer Prozesse in Echtzeit zu verfolgen. Essentiell hierfür ist dabei vor allem die Entwicklung von Strahlungsquellen, deren Pulsdauer sich in der selben Größenordnung befindet, oder sogar kürzer ist, als die Zeitskala der untersuchten Dynamik. Ein Beispiel für eine solche Strahlungsquelle stellen sogenannte Freie-Elektronen-Laser (FEL) dar. In einem FEL werden Elektronenpakete, bereitgestellt durch eine gepulste Elektronenquelle, mit einem Linearbeschleuniger auf relativistische Geschwindigkeiten gebracht. Die so präparierten Elektronenpakete werden in einem Undulator senkrecht zu ihrer Flugrichtung sinusförmig ausgelenkt, wobei die Elektronen beginnen Strahlung zu emittieren. Aufgrund der Länge des Undulators (ca. 30 m) und der geringen räumlichen Ausdehnung des Elektronenstrahls, kann das Strahlungsfeld mit den Elektronen wechselwirken. Es findet eine Modulation des Elektronenpakets statt, was dazu führt, dass die Elektronen kohärente Strahlung emittieren. Mit einem FEL lassen sich auf diese Weise XUV-Pulse mit Pulsdauern im Bereich mehrerer 10 fs erzeugen, womit z.B. die Vibration von Molekülen ($\sim 10-100$ fs) aufgelöst werden kann. Somit sind Experimente zur lichtinduzierten Fragmentierung von Atomen und Molekülen mit bisher noch nie dagewesener Zeitauflösung möglich. Die Perspektive eine chemische Reaktion in Echtzeit zu verfolgen eröffnet die Vision eines „molekularen Films“. Von besonderer Bedeutung sind hierbei Pump-Probe-Experimente. Eine Reaktion wird mit einem „Pump“-Puls eingeleitet und der Zustand des Systems zu einem späteren Zeitpunkt mit dem „Probe“-Puls abgefragt. Durch die Variation des zeitlichen Abstands zwischen Pump- und Probe-Puls ist es somit möglich, den zeitlichen Ablauf der vom Pump-Puls induzierten Reaktion abzubilden.

Um solche Messungen durchführen zu können, werden höchste Ansprüche nicht nur an die Lichtpulse, sondern auch an die experimentelle Technik gestellt. Ein zentrales Ziel stellt die Durchführung von Experimenten dar, die vollständig differentielle Daten zur Ionisation und Fragmentierung einfacher Atome und Moleküle bereitstellen. Die von Ullrich et al. entwickelte „cold target recoil-ion and electron momentum spectroscopy“ kombiniert verschiedene Technologien, um den Ladungszustand und die vollständigen dreidimensionalen Impulsvektoren mehrerer geladener Reaktionsfragmente in Koinzidenz zu messen. Mit „Reaktionsmikroskopen“ sind solche kinematisch vollständigen Experimente möglich. Am Freie-Elektronen-Laser in

Hamburg (FLASH) werden Experimente mit einem mobilen Reaktionsmikroskop durchgeführt. Neben der Untersuchung zu Mechanismen der Einfach- und Mehrfachionisation von Atomen, werden hierbei auch Pump-Probe-Experimente an einfachen Molekülen bewerkstelligt.

Ein zentraler Aspekt bei der Impulsspektroskopie mit Reaktionsmikroskopen ist die Erzeugung eines kalten Gastargets. Hierzu wird ein sogenannter Überschallgasjet verwendet. In Vorbereitung einer Pump-Probe-Messung an Iodmolekülen am FLASH wurde in dieser Arbeit der Betrieb eines Überschallgasjets mit Iod charakterisiert. Weil Iod bei Zimmertemperatur fest ist, muss es zunächst verdampft werden. Da der Dampfdruck des Iods zur Erzeugung eines Überschallgasjets nicht ausreicht, bedarf es eines Trägergases mit ausreichendem Vordruck. Ziel dieser Arbeit war es, das optimale Verhältnis zwischen Vordruck des Trägergases und der Heiztemperatur des Iods zu finden. Des Weiteren stellte sich die Frage, ob mit dem vorhandenen Aufbau ein stabiler Iodgasjet über mehrere Stunden Messzeit aufrecht erhalten werden kann.

Die nachfolgende Arbeit gliedert sich dabei wie folgt:

Im ersten Kapitel wird ausführlich auf die Vorbereitungen und die Ergebnisse der Testmessungen zum Iodgasjet am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg eingegangen. Des Weiteren wird ein Einblick in die Physik von Atomen in starken Laserfeldern geboten und die Funktionsweise des Reaktionsmikroskops erläutert.

Das anschließende Kapitel behandelt die Pump-Probe-Messungen mit Iod am FLASH. Dazu wird zunächst die Idee des dortigen Experiments skizziert, bevor die Ergebnisse der IR/XUV Pump-Probe-Messung qualitativ diskutiert werden.

Abschließend werden die wichtigsten Resultate dieser Arbeit zusammengefasst.

2 Testmessung

Die Ergebnisse und Erfahrungen aus Untersuchungen zum Betrieb eines Überschallgasjets mit Iod am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg erwiesen sich auf einer Strahlzeit am Freie-Elektronen-Laser in Hamburg als besonders nützlich. Das folgende Kapitel befasst sich daher umfassend mit den Vorbereitungen und den Ergebnissen dieser Untersuchungen.

Zur Ionisation des Targets wurde ein fokussierter Titan-Saphir-Laser mit 795 nm Wellenlänge (Photonenenergie 1.55 eV) und 25 fs Pulsdauer verwendet. Die Intensität lag im Bereich von $I = 10^{12} - 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Mechanismen und Effekte der Einfachionisation von Atomen, die bei diesen Intensitäten und Photonenergien auftreten, werden im ersten Abschnitt des Kapitels vorgestellt. Dabei wird auf theoretische Modelle sowie wichtige experimentelle Ergebnisse der letzten Jahrzehnte eingegangen. Herzstück des Experiments ist das Reaktionsmikroskop, weshalb dessen Funktionsweise und wichtigsten Komponenten detailliert in Abschnitt 2.2 erläutert werden. Die Erzeugung eines kalten Gasjets beruht auf dem thermodynamischen Effekt der Überschallexpansion. In Abschnitt 2.3 wird dazu genauer auf die Theorie und technische Umsetzung eines Überschallgasjets eingegangen. Die Abschnitte 2.4 und 2.5 befassen sich mit dem Verdampfungssystem zur Erzeugung gasförmigen Iods und der Strahlführung des Titan-Saphir-Lasers zum Reaktionsmikroskop. Schließlich werden in Abschnitt 2.6 die Ergebnisse der Testmessungen vorgestellt und dabei auftretende Probleme diskutiert.

2.1 Einfachionisation von Atomen in starken Laserfeldern

Ein zentrales Thema der Atomphysik ist die Einfachionisation in starken Laserfeldern [Protopapas et al., 1997]. Beobachtet wurden Ionisationsraten als Funktion von Laserintensität und Wellenlänge, Energien und Winkelverteilung der Photoelektronen sowie die Emission von höher harmonischem Licht [Dörner et al., 2002]. Im nachfolgenden Abschnitt werden die wichtigsten Prozesse der Einfachionisation vorgestellt. Die Ausführung orientiert sich an den Darstellungen in Weckenbrock [2004], Noerenberg [2007] und Kremer [2009].

2.1.1 Ponderomotorisches Potential

Betrachten wir zur Einführung ein freies Elektron im oszillierenden elektromagnetischen Feld. Es führt dort eine Zitterbewegung durch und besitzt dadurch zusätzlich zu seiner kinetischen Energie auch Schwingungsenergie. Die mittlere Energie dieser Schwingung wird als ponderomotorisches Potential bezeichnet. Zur Herleitung betrachtet man die klassische Bewegungsgleichung eines freien Elektrons im oszillierenden Feld der Amplitude E_0 [Hertel and Schulz, 2011, S. 334]:

$$m_e \frac{dv}{dt} = e_0 E_0 \cos(\omega t) \quad (2.1)$$

e_0 ist hier die Elementarladung und ω die Frequenz des Laserfelds. Integriert man Gleichung 2.1, ergibt sich für die Geschwindigkeit des Elektrons im stationären Fall:

$$v(t) = \frac{e_0 E_0}{m_e \omega} \sin(\omega t) \quad (2.2)$$

Erneutes Integrieren liefert die Auslenkung des Elektrons um einen Mittelpunkt:

$$x(t) = -\frac{e_0 E_0}{m_e \omega^2} \cos(\omega t) = -x_0 \cos(\omega t) \quad (2.3)$$

Mit der allgemein gültigen Beziehung $I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c E_0^2$ wird die Auslenkungsamplitude berechnet nach:

$$x_0 = \frac{e_0 E_0}{m_e \omega^2} = \frac{e_0}{m_e \omega^2} \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}} = \frac{e_0 \lambda^2}{4\pi^2 m_e c^2} \sqrt{\frac{2I}{\epsilon_0 c}} \quad (2.4)$$

Hierbei ist I die Intensität, c die Lichtgeschwindigkeit und ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante im Vakuum.

Mit Gleichung 2.2 gilt für die kinetische Energie des Elektrons:

$$\frac{1}{2}m_e v^2 = \frac{e_0^2 E_0^2}{2m_e \omega^2} \sin^2(\omega t) \quad (2.5)$$

Das ponderomotorische Potential U_p ist die mittlere Energie:

$$U_p = \overline{\frac{1}{2}m_e v^2} = \overline{\frac{e_0^2 E_0^2}{2m_e \omega^2} \sin^2(\omega t)} = \frac{e_0^2 E_0^2}{4m_e \omega^2} = \frac{1}{4}m_e \omega^2 x_0^2 \quad (2.6)$$

bzw. mit $I = \frac{1}{2}\epsilon_0 c E_0^2$:

$$U_p = \frac{e_0^2 I}{2\epsilon_0 m_e \omega^2 c} = \frac{e_0^2 I \lambda^2}{8\pi^2 \epsilon_0 m_e c^3} \propto I \lambda^2 \quad (2.7)$$

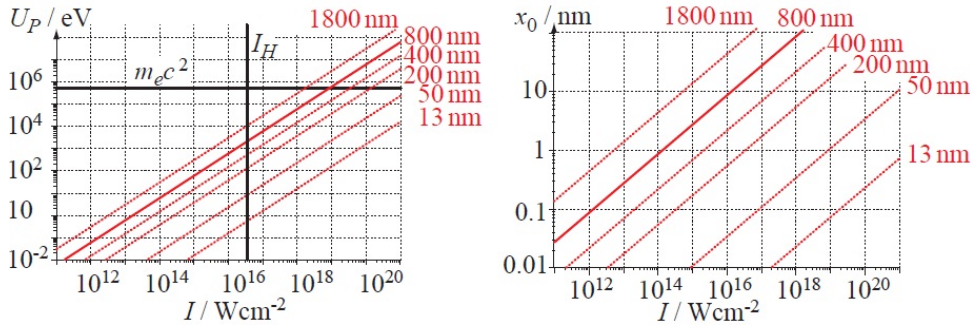


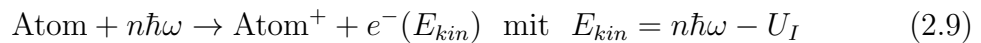
Abbildung 2.1: Ponderomotorisches Potential U_p (links) und maximale Amplitude x_0 (rechts) des Elektrons als Funktion der Laserintensität I und in Abhängigkeit der Wellenlänge λ . [Hertel and Schulz, 2011, S. 336]

Abbildung 2.1 zeigt das ponderomotorische Potential U_p und die maximale Auslenkung x_0 eines Elektrons in Abhängigkeit der Laserintensität I und der Wellenlänge λ . Um die Wirkung des ponderomotorischen Potentials abzuschätzen, wird folgendes Beispiel betrachtet. Bei einer Intensität von $10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ beträgt das ponderomotorische Potential eines Titan-Saphir-Lasers mit 800 nm Wellenlänge $U_p = 5.976$ eV und die maximale Auslenkung $x_0 = 8.7$ nm. Dies liegt eine Größenordnung über den typischen Atomabmessungen 0.1 - 0.5 nm. Gebundene Elektronen erfahren in so starken Feldern eine Veränderung ihrer Wellenfunktionen und Termenergien. Für starke und langwellige Laserfelder kann nicht mehr von stationären Zuständen ausgegangen werden. In Abbildung 2.1 links sind zwei charakteristische Größen eines intensiven Laserfelds eingetragen. Wenn $U_p > m_e c^2$ wird das System hochrelativistisch. Ab einer Intensität I_H wird das elektrische Feld im Laserfokus größer als das atomare Feld E_H , welches ein Elektron im H-Atom im Abstand des Bohrschen Atomradius a_0 erfährt. [Hertel and Schulz, 2011, S. 335 f.]

$$I_H = \frac{1}{2}\epsilon_0 c E_H^2 = \frac{1}{2}\epsilon_0 c \left(\frac{e_0}{4\pi\epsilon_0 a_0^2} \right)^2 = 3.15 \cdot 10^{16} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2} \quad (2.8)$$

2.1.2 Multiphotonenionisation

Bei der Multiphotonenionisation (MPI) absorbiert ein Atom n niederenergetische Photonen der Energie $\hbar\omega$. Die Gesamtenergie $E_{ges} = n\hbar\omega$ der n Photonen kann nun höher liegen als das Ionisationspotential U_I des Atoms [Protopapas et al., 1997]. Obwohl die Energie des Einzelphotons $\hbar\omega < U_I$ kann also ein Elektron von einem gebundenen Zustand ins Kontinuum gehoben werden. Es findet folgender Prozess statt [Hertel and Schulz, 2011, S. 189]:



In Gleichung 2.9 erkennt man, dass die kinetische Energie E_{kin} des Elektrons nach der Ionisation von der Zahl n der absorbierten Photonen abhängt. Das Beispiel in Abbildung 2.2 veranschaulicht dies. Absorbiert das Elektron mehr Photonen, als zur Überwindung der Potentialbarriere notwendig sind, spricht man von „Above-Threshold-Ionisation“, auf die im Abschnitt 2.1.3 genauer eingegangen wird.

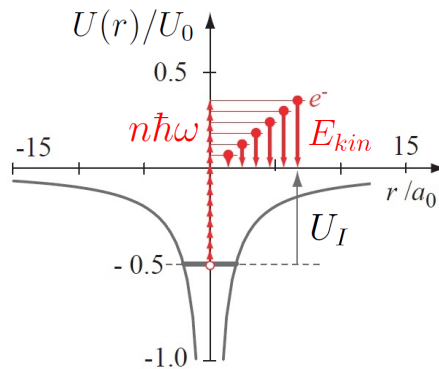


Abbildung 2.2: Multiphotonenionisation am Beispiel des Wasserstoffatoms. Die kinetische Energie des Elektrons im Kontinuum ergibt sich dabei aus Gleichung 2.9. Skizze in atomaren Einheiten und maßstäblich für Photonen mit 800 nm. [Hertel and Schulz, 2011, S. 189]

Die theoretische Beschreibung der MPI erfolgt häufig mit Hilfe der Störungstheorie niedrigster Ordnung [Fabre et al., 1982] [Petite et al., 1984]. Es zeigt sich, dass die Ionisationsrate $R_{n,a \rightarrow e}$ beim Übergang von einem gebundenen Anfangszustand $|a\rangle$ in einen Kontinuumszustand $|e\rangle$ proportional zur n -ten Potenz der Intensität ist.

$$R_{n,a \rightarrow e} \propto I^n \quad (2.10)$$

Führt man einen generalisierten Wirkungsquerschnitt $\sigma_{n,a \rightarrow e}$ ein, so wird aus der Abhängigkeit 2.10:

$$R_{n,a \rightarrow e} = \sigma_{n,a \rightarrow e} I^n \quad (2.11)$$

Experimentell ist die Abhängigkeit zur n -ten Potenz der Laserintensität bis zur Ordnung $n = 22$ bestätigt [Lompre et al., 1977].

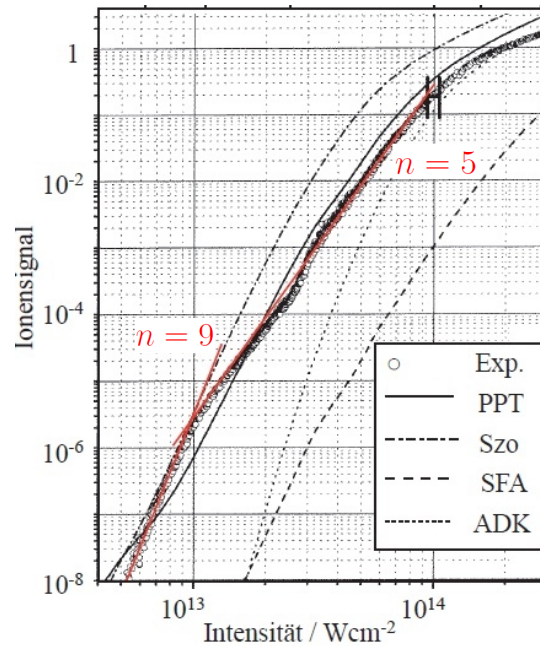


Abbildung 2.3: Multiphotonenionisation von Xe bei 800 nm nach Larochelle et al. [1998]. In doppelt-logarithmischer Darstellung gibt die Steigung die Anzahl n der beteiligten Photonen an. Die gemessenen Werte werden mit verschiedenen theoretischen Modellen verglichen. [Hertel and Schulz, 2011, S. 338]

Ein prominentes Beispiel für die MPI ist die Untersuchung an Xe mit Femtosekundenlaserpulsen bei 800 nm [Hertel and Schulz, 2011, S. 337] [Larochelle et al., 1998]. Das Ionisationspotential von Xe liegt bei $U_I = 13.44$ eV. Somit würden nach Gleichung 2.11 mindestens $\frac{U_I}{\hbar\omega} = 8.67$, also 9 Photonen zur Ionisation benötigt. In Abbildung 2.3 erkennt man für niedrige Intensitäten die erwartete Steigung $n = 9$. Ab einer Intensität von $I = 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ trifft dies nicht mehr zu. Man stellt eine Abhängigkeit zur Potenz $n = 5$ fest. Gleichung 2.11 verliert ihre Gültigkeit. Xe ist ein komplexes Atom mit vielen Zuständen oberhalb des ersten angeregten Zustands. Für dessen Anregung werden etwa 5 Photonen gebraucht. Bei hohen Intensitäten reicht es anscheinend aus, diesen ersten Anregungsschritt auszulösen und Ionisation

findet sehr wahrscheinlich statt [Hertel and Schulz, 2011, S. 338]. Ab der Sättigungsintensität von $I = 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ verläuft die Kurve in Abbildung 2.3 flacher. Bei dieser Intensität sind alle Atome im Zentrum des Laserfokus bereits ionisiert. Der weitere flache Anstieg erklärt sich durch das gaußförmige Profil des Laserstrahls. Die Randzonen erreichen nach und nach den Sättigungsbereich [Hoffmann, 2000].

Die Steigerung der Intensität führt auch zu Problemen in störungstheoretischen Berechnungen [Weckenbrock, 2004]. Die atomaren Zustände koppeln an das intensive Laserfeld und können nicht mehr als ungestört betrachtet werden. Die Energieniveaus des Atoms verschieben sich in Abhängigkeit der Laserintensität. Dieser Effekt wird als „AC-Stark Shift“ bezeichnet [Freeman et al., 1987].

2.1.3 Above-Threshold-Ionisation

Wie in Abschnitt 2.1.2 angedeutet, ist die Above-Threshold-Ionisation (ATI) ein Spezialfall der Multiphotonenionisation, welcher nur bei ausreichend hohen Intensitäten ($I > 10^{11} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$) auftritt. Hierbei absorbiert ein Photoelektron mehr niederenergetische Photonen, als zur Überwindung des Bindungspotentials notwendig sind [Agostini et al., 1979] [Kruit et al., 1983] [Petite et al., 1988]. Dabei absorbiert das eigentlich schon im Kontinuum befindliche Elektron weitere Photonen. Allerdings kann das Elektron nur zusätzlich m Photonen absorbieren, solange es sich noch im Einfluss des Bindungspotential des Kerns befindet. Andernfalls wäre die Drehimpuls- und Impulserhaltung verletzt. Der Kern kompensiert den Photoelektronenimpuls [Noerenberg, 2007]. Aus Abhängigkeit 2.10 wird somit:

$$R_{n+m} \propto I^{n+m} \quad (2.12)$$

Beispielhaft ist in Abbildung 2.4 das Photoelektronenspektrum für die Ionisation von Xe mit 130 ps Nd:YAG-Laserpulsen bei einer Wellenlänge von 1064 nm gezeigt [Petite et al., 1988]. Das Photoelektronenspektrum weist regelmäßige Strukturen im Abstand der Photonenenergie auf. Man erkennt, dass deutlich mehr als die zur Ionisation nötigen 11 Photonen absorbiert werden. Entsprechend Gleichung 2.9 steht die zusätzliche Energie den Photoelektronen als kinetische Energie E_{kin} zur Verfügung [Weckenbrock, 2004].

$$E_{kin} = (n + m)\hbar\omega - U_I \quad (2.13)$$

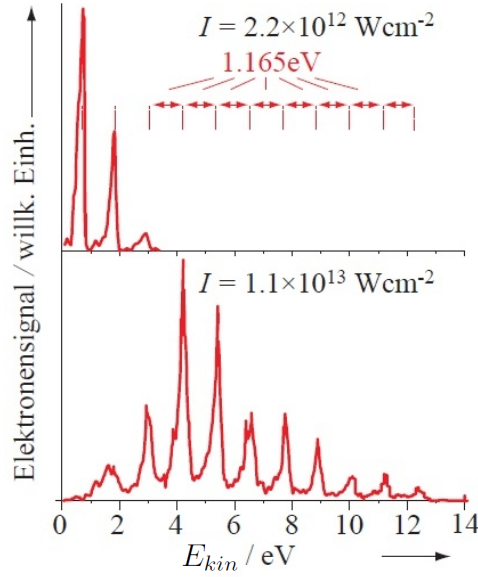


Abbildung 2.4: Experiment nach Petite et al. [1988] mit 130 ps Nd:YAG-Laserpulsen bei $\lambda = 1064$ nm (1.165 eV). Gezeigt ist das Photoelektronenspektrum für zwei Intensitäten I . [Hertel and Schulz, 2011, S. 190]

In Abbildung 2.4 sieht man, dass die Zahl der zusätzlich absorbierten Photonen m schnell mit Zunahme der Laserintensität ansteigt. Bei höheren Intensitäten geht allerdings der erste Peak des ATI-Spektrums verloren und die anderen Peaks lassen sich nicht mehr durch Gleichung 2.13 beschreiben. Vor allem Peaks höherer Ordnung werden überproportional hoch. Diese Diskrepanz lässt sich durch den bereits in Abschnitt 2.1.2 erwähnten AC-Stark Effekt und das in Abschnitt 2.1.1 eingeführte ponderomotorische Potential U_p erklären.

Wie in Abschnitt 2.1.2 angedeutet, hat ein starkes Laserfeld Einfluss auf die Wellenfunktion und Termenergien der gebundenen Elektronen. Zustände großer Bindungsenergie erfahren geringere Verschiebungen als Zustände kleiner Bindungsenergie. Die Verschiebung der höheren Zustände liegt in der Größenordnung des ponderomotorischen Potentials U_p [Weckenbrock, 2004]. Das effektive Ionisationspotential wird um U_p erhöht. Die Zustände können nun so verschoben sein, dass die Energiedifferenz bei bestimmten Intensitäten mit der Photonenenergie übereinstimmt. Dies erklärt die in Abbildung 2.4 beobachtete Zunahme der Ionisationsrate für höhere Ordnungen.

Die Verschiebung der Zustände führt zu kinetischen Energien der Elektronen von:

$$E_{kin} = (n + m)\hbar\omega - U_I - U_p \quad (2.14)$$

Der Vergleich von Gleichung 2.14 mit Gleichung 2.13 deutet auf eine Verschiebung der Peaks im ATI-Spektrum um U_p hin. Dies ist allerdings nicht zu beobachten. Grund hierfür ist, dass die Elektronen beim Verlassen des Laserfokus aufgrund der Inhomogenität des Laserfelds eine Kraft erfahren. Diese Kraft $-\nabla U_p$ wird in Energie umgewandelt [Bucksbaum et al., 1987] und entspricht genau dem ponderomotorischen Potential U_p . Somit gleicht diese Energie das Anwachsen der Potentialbarriere um U_p aus und die Peaks im ATI-Spektrum liegen nach wie vor an den nach Gleichung 2.13 erwarteten Stellen.

2.1.4 Tunnelionisation

Die Tunnelionisation tritt bei sehr hohen Laserintensitäten auf. Das elektrische Feld des Lasers nähert sich dem atomaren Coulombfeld an und kann dieses in hohem Maße verändern. Aufgrund der vergleichbaren Feldstärken ist eine semiklassische Beschreibung ein gängiger Ansatz. Das Atom wird quantenmechanisch dargestellt, wohingegen das Laserfeld klassisch beschrieben wird. Als wichtige Arbeit zum Verständnis von Ionisation in starken Laserfeldern gilt die Veröffentlichung von Keldysh [1965]. Hierin wird ein theoretisches Modell geschildert, das sowohl die MPI, als auch die Tunnelionisation beschreiben kann. Keldysh untersuchte die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen einer Stark-verschobenen Wellenfunktion des Wasserstoffelektrons im Grundzustand und der Wellenfunktion des ungebundenen Elektrons in einer ebenen elektromagnetischen Welle außerhalb der Reichweite des Kernpotentials [Weckenbrock, 2004]. Nach der Keldysh-Theorie gilt für kleine Intensitäten weiter die MPI. Für höhere Laserintensitäten bietet sich eine semiklassische Beschreibung an. Für das ionisierte Elektron kann das Kernpotential vereinfacht als Coulombpotential der Ladung Ze_0 angesehen werden. Überlagert man diesem Potential ein in z -Richtung polarisiertes Laserfeld $E(t)$, so befindet sich das Elektron in folgendem Potential $U(r, t)$ [Hertel and Schulz, 2011, S. 339]:

$$U(r, t) = -\frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{Ze_0^2}{r} - e_0 E(t)z \quad (2.15)$$

Für das Maximum des oszillierenden Felds mit Amplitude E_0 ist die Überlagerung in Abbildung 2.5 dargestellt.

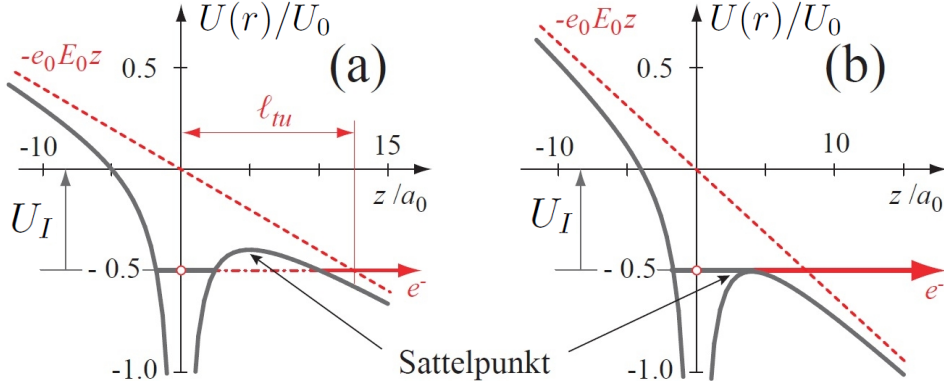


Abbildung 2.5: (a) Tunnelionisation. (b) Over-The-Barrier-Ionisation [Hertel and Schulz, 2011, S. 339].

In (a) kann das Elektron mit einer gewissen Wahrscheinlichkeit aus dem Kernpotential heraustunneln. Im Fall (b) ist der Potentialberg soweit gesenkt, dass das Elektron über die Barriere aus dem Atom austreten kann. Man nennt dies „Over-The-Barrier-Ionisation“, auf die noch genauer eingegangen wird. Tunnelt das Elektron wie in Abbildung 2.5 im Feldmaximum, so tragen Elektron und Ion keinen Impuls. Erst im elektrischen Feld werden sie beschleunigt [Dörner et al., 2002]. Das Auftreten von Tunnelionisation ist experimentell bestätigt [Augst et al., 1989] [Mevl et al., 1993].

Keldysh-Parameter

Der Keldysh-Parameter γ ist ein Maß dafür, ob Multiphotonenionisation oder Tunnelionisation der vorherrschende Ionisationsprozess ist. Er ist definiert durch das Verhältnis von Ionisationspotential U_I und ponderomotorischem Potential U_p [Hertel and Schulz, 2011, S. 337]:

$$\gamma = \sqrt{\frac{U_I}{2U_p}} = \sqrt{\frac{\epsilon_0 c m_e \omega^2 U_I}{e_0^2 I}} = 2.31 \cdot 10^3 \sqrt{\frac{U_I/\text{eV}}{[I/(10^{12} \text{ Wcm}^{-2})][\lambda/\text{nm}]^2}} \quad (2.16)$$

Hierbei ist c die Lichtgeschwindigkeit, m_e die Masse des Elektrons, ω die Frequenz des Laserfelds und ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante. Für $\gamma < 1$ ist Tunnelionisation vorherrschend, für $\gamma > 1$ MPI der dominante Prozess.

Over-The-Barriere-Ionisation

Die kritische Intensität I_{krit} ab der Over-The-Barriere-Ionisation (OTBI) auftritt, berechnet sich durch Gleichsetzen des Sattelpunktpotentials mit dem Ionisationspotential U_I [Protopapas et al., 1997]. Daraus erhält man [Hertel and Schulz, 2011, S. 339]:

$$I_{krit} = \frac{\pi^2 c \epsilon_0^3}{2 Z^2 e_0^6} U_I^4 \quad (2.17)$$

bzw.

$$\frac{I_{krit}}{\frac{\text{W}}{\text{cm}^2}} \approx \frac{4 \cdot 10^9}{Z^2} \left(\frac{U_I}{\text{eV}} \right)^4 \quad (2.18)$$

Für Wasserstoff mit $Z = 1$ und $U_I = \frac{U_0}{2}$ wird $I_{krit} \approx 1.4 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$.

ADK-Theorie

Ein weiteres theoretisches Modell zur Beschreibung der Tunnelionisation in starken Feldern stellt die Arbeit von Ammosov, Delone und Krainov (ADK-Theorie) dar [Ammosov et al., 1986]. Hierbei wird der Einfluss des Coulombpotentials auf das tunnelnde Elektron berücksichtigt, noch bevor sich dieses im Einfluss des Laserfelds befindet. Die Theorie stimmt mit gemessenen Ionisationsraten gut überein, dies allerdings mit den Einschränkungen, dass OBTI nicht stattfindet, also $\gamma < 1$ und $I < I_{krit}$. Die Tunnelwahrscheinlichkeit $w_{tunnel}(t)$ berechnet sich nach:

$$w_{tunnel}(t) = \frac{4(2U_I)^{5/2}}{E(t)} \exp\left(\frac{2(2U_I)^{2/3}}{3E(t)}\right) \quad (2.19)$$

Hier ist U_I das Ionisationspotential und $E(t)$ das oszillierende elektrische Feld [Kremer, 2009].

2.2 Reaktionsmikroskop

Um die Kinematik der Wechselwirkung von Photonen mit Atomen oder Molekülen komplett untersuchen zu können, müssen die bei der Reaktion entstandenen Fragmente in Koinzidenz gemessen werden. Das Reaktionsmikroskop ist ein Spektrometer, welches es erlaubt, mehrere geladene Teilchen mit hoher Impulsaufösung in Koinzidenz zu detektieren. Als Target werden üblicherweise Atome, Moleküle oder Cluster verwendet. Zur Untersuchung der entstandenen Ionen wird die von Ullrich et al. [1997] entwickelte COLTRIMS-Technik (cold target recoil-ion momentum spectroscopy) eingesetzt. Diese Art der Spektroskopie erlaubt es, die Ladungszustände und Impulsvektoren der Ionen zu ermitteln. Die Kombination der COLTRIMS-Technik mit einem hochauflösenden Elektronenspektrometer erlaubt den koinzidenten Nachweis von Ionen und Elektronen. In den folgenden Abschnitten wird auf das Funktionsprinzip und die einzelnen Komponenten eines Reaktionsmikroskops eingegangen. Die Ausführung orientiert sich an den Beschreibungen in Fischer [2000] und Kurka [2007]. Abbildung 2.6 zeigt einen schematischen Aufbau des Reaktionsmikroskops mit Spektrometer und Detektoren.

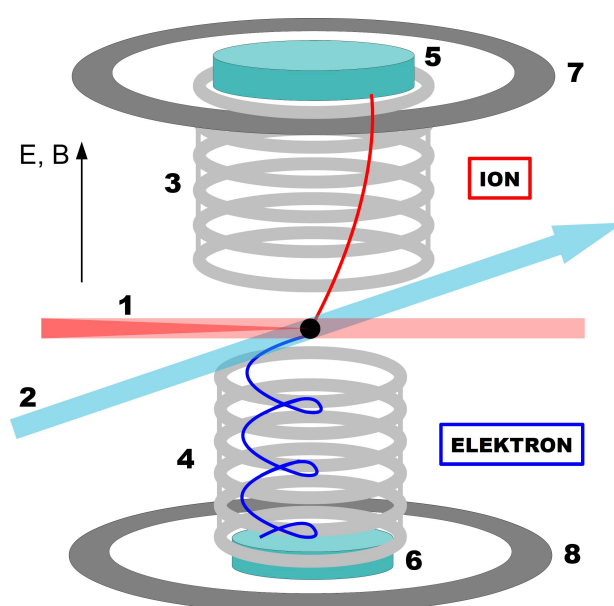


Abbildung 2.6: Schematischer Aufbau des Reaktionsmikroskops. 1: Fokussierter Laserstrahl. 2: Kalter Überschallgasjet. 3: Spektrometer Ionenseite. 4: Spektrometer Elektronenseite. 5: Ionendetektor. 6: Elektronendetektor. 7 und 8: Helmholtz-Spulenpaar.

2.2.1 Spektrometer

Ein fokussierter Laserstrahl wird in der Mitte einer Ultrahochvakuumkammer (Druck $p \approx 10^{-11} - 10^{-12}$ mbar) mit einem kalten Überschallgasjet gekreuzt und es kommt zur Reaktion. Werden Targetatome bzw. -moleküle ionisiert bzw. dissoziiert, so entstehen positiv geladene Ionen und ein oder mehrere Elektronen. Entlang der Spektrometerachse befinden sich koaxial mehrere Metallringe, die über eine Widerstandskaskade miteinander verbunden sind. Legt man eine Spannung an, so erzeugen die Metallringe ein homogenes elektrisches Feld. Die Ionen und Elektronen werden entsprechend ihrer Ladung in entgegengesetzte Richtung beschleunigt und treffen auf ortsauflösende Detektoren. Über die Abhängigkeit der Flugzeit vom Masse-zu-Ladungsverhältnis lassen sich die Ionenarten unterscheiden. Dazu müssen sich ihre Flugzeiten wesentlich unterscheiden. Um diese Bedingung zu erfüllen, muss die kinetische Energie, die die Ionen durch das angelegte elektrische Feld im Spektrometer erhalten, größer sein als die beim Reaktionsprozess selbst übertragene Energie. Diese Bedingung ist meistens gut erfüllt. Das elektrische Feld hilft auch, die Winkelakzeptanz des Detektors zu verbessern, da auch Ionen, die ohne Feld nicht in Richtung Detektor fliegen würden, auf eine Flugbahn in Richtung Detektor gezwungen werden. Die Elektronen sind um ein Vielfaches leichter als die Ionen und haben bei gleichem Impuls eine wesentlich höhere Geschwindigkeit. Durch ein außerhalb der Vakuumkammer befindliches Helmholtz-Spulenpaar wird entlang der Spektrometerachse ein homogenes Magnetfeld erzeugt (≈ 10 Gauss). Dieses Magnetfeld zwingt Elektronen auf eine Spiralbahn und lenkt sie auf den Detektor.

2.2.2 Detektor

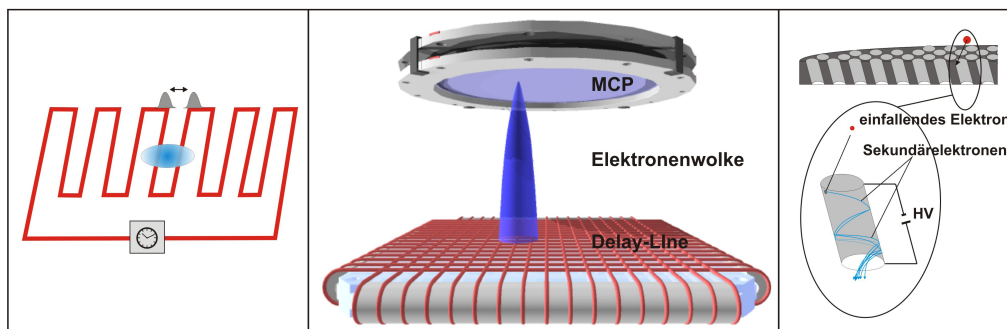


Abbildung 2.7: Rechts: Ein geladenes Primärteilchen (rot) löst in einem MCP Kanal eine Elektronenkaskade aus. Mitte: Die Elektronenwolke trifft nach dem MCP auf die Delay-Line-Anode. Links: Delay-Line-Anode. Die Elektronenwolke vom MCP (blau) löst ein Signal (grau) aus, das an die beiden Drahtenden läuft. [Kurka, 2007]

Die Aufgabe des Detektors ist es, die Flugzeit und den Auftreffort eines geladenen Teilchens möglichst genau zu messen. Ein vom Spektrometer kommendes geladenes Teilchen wird daher im Detektor zunächst durch eine Multichannelplate (MCP) verstärkt, bevor es mit einer Delay-Line-Anode orts aufgelöst wird.

Multichannelplate (MCP)

Ein Multichannelplate (MCP) besteht aus einer ca. 1 mm dicken Glasplatte, durch die parallele, mikroskopische Kanäle mit einem Durchmesser von $10 - 100 \mu\text{m}$ verlaufen. Auftreffende Primärteilchen lösen aus der Oberfläche der Kanalwände Sekundärelektronen aus. Durch ein angelegtes Potential vervielfachen sich diese kaskadenartig in Kanalrichtung (siehe Abbildung 2.7, rechts). Es kann vorkommen, dass Restgasatome noch innerhalb eines MCP Kanals von dort emittierten Elektronen ionisiert werden. Durch das angelegte Potential werden sie in Gegenrichtung beschleunigt und lösen beim Auftreffen auf die Kanalwand weitere Sekundärelektronen aus. Um dieser sogenannten Ionenrückkopplung entgegenzuwirken, sind die Kanäle des MCP um einige Grad gegen die Flächennormale der Platte verkippt. Ionen, die durch Ionenrückkopplung entstehen, treffen dank dieser Anordnung schon nach kurzer Beschleunigungsstrecke auf die Kanalwand, ohne die Energie erreicht zu haben, die zum Herauslösen weiterer Sekundärelektronen notwendig ist. Die Verstärkung der Elektronen führt zu einem Abfall der angelegten MCP-Spannung. Der Zeitpunkt dieses Signals stellt die Flugzeitinformation bereit.

Delay-Line-Anode

Um den Auftreffort des Primärteilchens zu bestimmen, wird die Elektronenwolke hinter dem MCP von einer ortsauflösenden Delay-Line-Anode detektiert (siehe Abbildung 2.7, Mitte). Die Delay-Line-Anode besteht aus vier Drähten. Zwei dieser Drähte sind horizontal und zwei vertikal um eine Keramikhalterung gewickelt. Die Drähte sind dabei so gewickelt, dass sie sich nicht kontaktieren. Trifft eine Elektronenwolke vom MCP auf die Drahtebene, entsteht ein Spannungssignal, das vom Entstehungspunkt zu den Drahtenden läuft und dort ausgelesen werden kann (siehe Abbildung 2.7, links). Eine Spannung zwischen den zwei jeweils in eine Richtung laufenden Drähten sorgt dafür, dass nur einer der beiden Drähte die Elektronenwolke anzieht. Der andere Draht dient als Referenzdraht. Bildet man die Differenz der Signale beider Drähte, so erhält man ein rauschärmeres Signal. Die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Signale in den Drähten ist konstant. Kennt man die Ankunftszeiten des Signals an beiden Drahtenden, so kann man den Auftreffort x errechnen:

$$x \propto (t_{x1} - t_{MCP}) - (t_{x2} - t_{MCP}) \quad (2.20)$$

Hier ist t_{MCP} die Zeitinformation vom MCP und t_{x1} und t_{x2} die Ankunftszeiten des Signals in x -Richtung. Analog erhält man den Auftreffort in y -Richtung.

2.3 Überschallgasjet

Um Energien im meV Regime zu messen, müssen nicht nur die Detektoren hohe Anforderungen in Bezug auf Auflösungsvermögen erfüllen, sondern auch das Gastarget. Zum einen sollte das Reaktionsvolumen möglichst klein sein, da die im Spektrometerfeld aufgenommenen kinetischen Energien der Fragmente vom Ort der Wechselwirkung abhängen. Zum anderen sollte die thermische Bewegung der Targetteilchen möglichst gering sein, zumindest kleiner als die Energie der Fragmente, die gemessen werden sollen. Bei Zimmertemperatur liegt die mittlere kinetische Energie von Gasen bei ca. 40 meV. Das Gastarget muss also gekühlt werden. Im Reaktionsmikroskop werden die räumlichen und thermischen Anforderungen an das Target durch einen Überschallgasjet erreicht. Diese Arbeit befasst sich in weiten Teilen mit der Untersuchung eines Iod-Überschallgasjets. Deshalb wird im folgenden ausführlich auf die Theorie und die technische Umsetzung eines Überschallgasjets eingegangen.

2.3.1 Theorie

Die Kühlung des Gastargets basiert auf dem thermodynamischen Effekt der Überschallexpansion. Hierbei expandiert das Gas durch eine kleine Öffnung von einem Bereich hohen Drucks in einen Bereich niedrigen Drucks. Die Expansion erfolgt adiabatisch, sodass die Entropie bei diesem Prozess erhalten ist. Als Ausgleich zur Abnahme der räumlichen Dichte nimmt die Dichte im Impulsraum zu, was gleichbedeutend mit einer Temperaturabnahme ist [Fischer, 2000]. Die nachfolgende genauere Betrachtung der Überschallexpansion folgt den Darstellungen in Langbrandtner [2007]. Abbildung 2.8 zeigt schematisch den Überschallgasjet direkt nach der Düse.

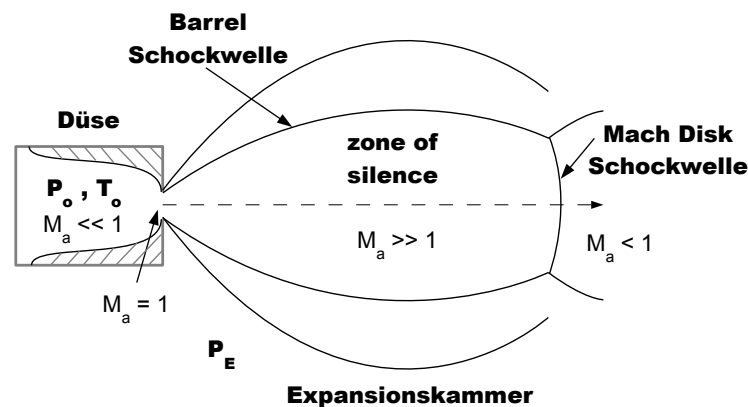


Abbildung 2.8: Schema der Überschallexpansion. Das Gas expandiert in Pfeilrichtung. [Langbrandtner, 2007]

Im Bereich vor der Düse herrscht der Druck p_0 und die Temperatur T_0 . Das Gas bewegt sich sehr langsam und für die Machzahl M_a gilt $M_a \ll 1$. Die Machzahl ist definiert als Quotient der Geschwindigkeit der Gasteilchen v_{Jet} und der lokalen Schallgeschwindigkeit v_{Schall} . In der Expansionskammer herrscht der Druck p_E , der viel niedriger ist als p_0 . Der Druckunterschied zwischen Düse und Expansionskammer beschleunigt das Gas in Pfeilrichtung. Aufgrund der kurzen Düsenlänge können Wärmeleitungseffekte vernachlässigt werden und die Expansion verläuft adiabatisch [Langbrandtner, 2007]. $p_0/p_E = 2.1$ ist gerade das Druckverhältnis, für das für alle Gasteilchen an der Düse $M_a = 1$ gilt [Scoles, 1988, S. 14]. Die Gasteilchen bewegen sich also mit der lokalen Schallgeschwindigkeit v_{Schall} . Wird der Druck p_0 weiter erhöht, so wird der Druck am Düsenende höher als p_E . Das Gas ist unterexpandiert. Um den Druck auszugleichen, dehnt sich das Gas in Expansionswellen aus. Im Bereich der sogenannten „zone of silence“ ist $M_a \gg 1$ und der Jet erreicht Überschallgeschwindigkeit. Die maximale Jetgeschwindigkeit v_{Jet} ist gegeben durch:

$$v_{Jet} = \sqrt{\frac{2k_B T_0}{m} \frac{\gamma}{\gamma - 1}} \quad (2.21)$$

In Gleichung 2.21 ist m die Masse der Gasteilchen, $k_B = 1.38 \cdot 10^{-23} \text{J/K}$ die Boltzmann-Konstante, T_0 die Temperatur vor der Expansion, p_0 der Düsenvordruck, p_{Jet} der Druck des Jets und $\gamma = \frac{f+2}{f}$ der Adiabatenexponent mit f Anzahl der Freiheitsgrade des betrachteten Gases.

Druckwellen breiten sich in einem Gas mit Schallgeschwindigkeit aus. In einem Strahl mit Unterschallgeschwindigkeit können sich Information über Randbedingungen, z.B. das Restgas oder die Wände der Expansionskammer, in alle Richtungen ausbreiten [Fischer, 2000]. In einem Überschallgasjet können die Teilchen nicht auf Randbedingungen reagieren. Das Gas überexpandiert zu Drücken kleiner als p_E . Es bilden sich sogenannte Barrel Schockwellen (siehe Abbildung 2.8), die sich durch sehr hohe Druck- und Temperaturgradienten auszeichnen. In diesem Bereich ist die Teilchenzahldichte sehr hoch und ein Großteil des Jets wird in Richtung Mach Disk Schockwelle reflektiert [Scoles, 1988, S. 15] (siehe Abbildung 2.8). Dort addieren sich die reflektierten Gasteilchen zu einer Schockwelle mit sehr großen Druck- und Temperaturgradienten [Fischer, 2000].

Die Teilchenzahldichte nimmt mit steigender Machzahl M_a rasch ab. Da die Teilchen dann weniger häufig untereinander stoßen, geht die viskose in molekulare Strömung über. Eigenschaften des Gases, wie zum Beispiel die Geschwindigkeit des Jets und die longitudinale Komponente der Jettemperatur, werden „eingefroren“. Die transversale Komponente der Jettemperatur nimmt mit wachsender Entfernung von dieser Übergangsregion ab [Langbrandtner, 2007].

Als wichtige Größe zur Untersuchung eines Gasjets wird das Speedratio S als Quotient von Jetgeschwindigkeit v_{Jet} (siehe Gleichung 2.21) und thermischer Geschwindigkeit der Gasteilchen $v_{therm} = \sqrt{2k_B T_{||}/m}$ definiert [Langbrandtner, 2007]:

$$S = \frac{v_{Jet}}{v_{therm}} = \sqrt{\frac{\gamma}{\gamma - 1} \frac{T_0}{T_{||}}} \quad (2.22)$$

Es wird nur die Temperaturkomponente $T_{||}$ in Jetrichtung betrachtet, deren Betrag stets über dem der transversalen Temperaturkomponente T_{\perp} liegt. Das Speedratio S aus Gleichung 2.22 wird erst nach vollständiger Expansion erreicht. Für Überschall-expansion ergibt sich aus Lösung der klassischen Boltzmann-Gleichung das Speedratio S zu [Scoles, 1988, S. 30]:

$$S = A \left(\sqrt{2} \frac{p_0 d}{k_B T_0} \left(\frac{53 C_6}{k_B T_0} \right)^{1/3} \right)^B \quad (2.23)$$

A , B , C_6/k_B sind gasspezifische Konstanten. Für das zweiatomige Iodmolekül ist $\gamma = 7/5$ und damit $A = 0.783$ und $B = 0.353$ [Scoles, 1988, S. 30]. C_6/k_B beträgt für Iod $336 \cdot 10^{-43} \text{ K} \cdot \text{cm}^6$ [Scoles, 1988, S. 46].

2.3.2 Technische Umsetzung

Düse

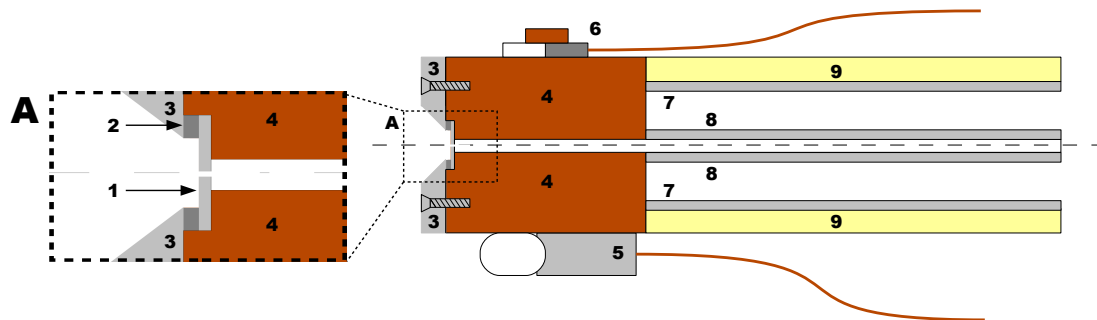


Abbildung 2.9: Skizze der Düse (nicht maßstäblich). Links: Vergrößerung des Ausschnitts A. Gestrichelt: Rotationssymmetrieachse. 1: Rundes, dünnes Platinplättchen. Zentrisch befindet sich ein Loch mit $30\ \mu\text{m}$ Durchmesser. 2: Indiumdichtring. 3: Halbrunde Klemmrings zur Fixierung von Dichtring und Platinplättchen. 4: Kupferblock mit Halterungen für Temperaturfühler und Halogenlampe. 5: Halogenlampe. 6: Thermoelement. 7: Großes Edelstahlrohr (Durchmesser: ca. 1.5 cm, Länge: ca. 30 cm). 8: Kleines Edelstahlrohr (Durchmesser: ca. 4 mm, Länge: ca. 30 cm). 9: Keramikisolierung.

Das Herzstück der Düse zeigt der vergrößerte Ausschnitt A in Abbildung 2.9. Die Überschallexpansion erfolgt durch eine runde Öffnung mit $30\ \mu\text{m}$ Durchmesser, die sich zentrisch in einem dünnen Platinplättchen befindet (1). Dieses Plättchen stellt die Grenze zwischen einem Bereich hohen Drucks und einem Bereich niedrigen Drucks dar und muss deshalb mit einem 0.1 mm dicken Indiumring gedichtet werden (2). Ring und Plättchen liegen in einer rund gefrästen Vertiefung. Fixiert und angezogen werden Ring und Plättchen mit zwei halbrunden Klemmrings (3). Auf einem zylindrischen Kupferblock (4) ist eine Halogenlampe (5) und ein Temperaturfühler (6) angebracht. Der Kupferblock (4) stellt den Abschluss eines ca. 30 cm langen Edelstahlrohrs mit ca. 1.5 cm Außendurchmesser dar (7). Das Edelstahlrohr ist senkrecht auf einen CF35 Flansch geschweißt. Innerhalb des großen Edelstahlrohrs befindet sich zentrisch ein kleineres Edelstahlrohr mit 4 mm Innendurchmesser (8), das mittig auf den CF35 Flansch geschweißt ist. Durch dieses kleine Rohr strömt das Gas in Richtung Platinplättchen und Öffnung. Das Iodverdampfungssystem aus Abschnitt 2.4 kann mit *Swagelok* an das kleine Rohr angeschlossen werden. Die Keramik (9) dient der Wärmeisolierung¹. Die komplette Düse befindet sich auf einem

¹Die verwendete Düse wurde in früheren Experimenten zur Erzeugung eines Heliumgasjets eingesetzt. Dazu wurde die Düse mit einem Kaltkopf gekühlt.

x-y-z-Manipulator, um den Targetjet in alle Raumrichtungen justieren zu können. Die Düse und der Manipulator werden dann als Einheit an die erste Jetstufe montiert (vergleiche Abbildung 2.11).

Skimmer

Mit einem feinen sogenannten Skimmer (grün in Abbildung 2.10), der in die „zone of silence“ hineinragt, werden die Gasteilchen mit geringer transversaler Geschwindigkeit selektiert [Fischer, 2000].

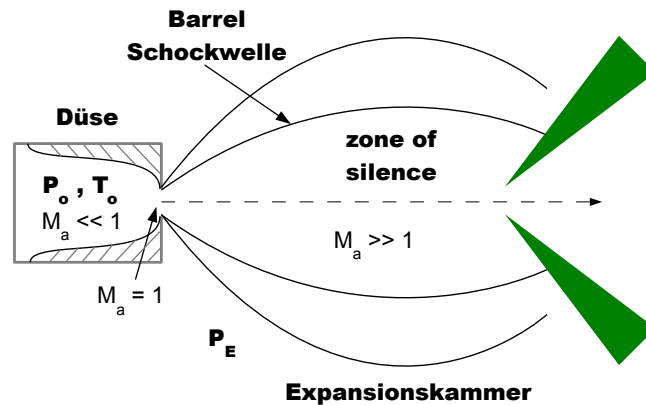


Abbildung 2.10: Schema der Überschall-Expansion mit Skimmer. Der Skimmer (grün) ragt in die „zone of silence“ hinein und selektiert Gasteilchen geringer transversaler Geschwindigkeit (nach Fischer [2000]).

Jetstufen

Eine Besonderheit dieses Experiments ist die hohe Zahl an differentiellen Pumpstufen. Insgesamt sechs dieser Stufen sorgen dafür, dass trotz bis zu 18 bar Vordruck an der Düse in der Hauptkammer Drücke im 10^{-12} mbar Bereich gehalten werden können [Kurka, 2007]. Abbildung 2.11 zeigt einen schematischen Querschnitt durch das Reaktionsmikroskop. Zu sehen sind die Hauptkammer, die Jetstufen und der Jet Dump.

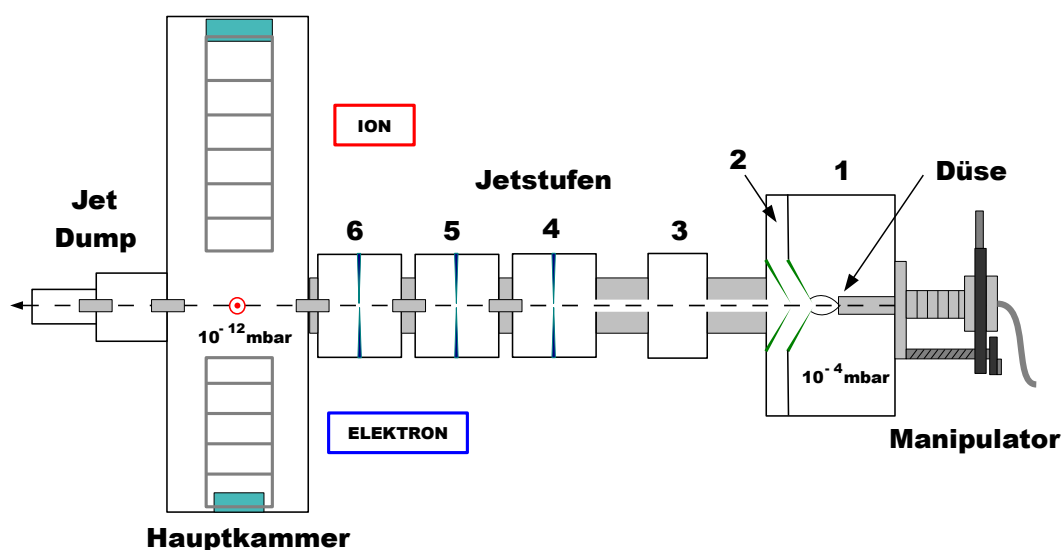


Abbildung 2.11: Schematischer Querschnitt durch das Reaktionsmikroskop. Zu sehen sind die Düse, die Jetstufen (Nummer 1 - 6), die Hauptkammer und der Jet Dump. Das Gas strömt in Pfeilrichtung. Grün eingezeichnet sind die zwei Skimmer, blau die drei Kollimatoren in den Jetstufen 4, 5 und 6. Die Detektoren in der Hauptkammer sind türkis angedeutet. Der rote Kreis in der Mitte der Hauptkammer symbolisiert den Laserstrahl.

Das Gas gelangt über eine Zuleitung (siehe Abschnitt 2.4) unter Druck in die Düse. Durch die Düsenöffnung expandiert das Gas in die Jetstufe 1. Zwei Skimmer (in Abbildung 2.11 grün) „schneiden“ die kalten Gasteilchen aus der „zone of silence“ (siehe auch Abbildung 2.10). Diese Gasteilchen strömen weiter in Richtung Hauptkammer. Drei Kollimatoren (in Abbildung 2.11 blau) ermöglichen eine sehr feine Einstellung der räumlichen Ausdehnung des Targets und der Targetdichte. In die Hauptkammer gelangt so ein sehr kalter und räumlich eng begrenzter Gasjet. Dort findet die Wechselwirkung mit dem orthogonal zur Jetrichtung eingestrahlt Laser statt (roter Kreis mit Punkt in Abbildung 2.11). Die dabei entstehenden geladenen Fragmente werden auf die entsprechenden Detektoren (in Abbildung 2.11 türkis) geleitet. Da nicht alle Gasteilchen im Jet ionisiert werden, wird der Jet durch die Hauptkammer und zwei weitere differentielle Pumpstufen in den Jet Dump geschossen. Auf diese Weise wird Hintergrundgas in der Hauptkammer minimiert.

2.4 Iodreservoir

Iod liegt bei Zimmertemperatur in kristalliner Form vor. Um es im Reaktionsmikroskop untersuchen zu können, muss es in den gasförmigen Aggregatzustand überführt werden. Eine einfache Möglichkeit, um dies zu erreichen, stellt das Verdampfen des festen Iods dar. Dazu muss das Iod erhitzt werden. Dies geschieht im Iodreservoir. Um gasförmiges Iod in das Reaktionsmikroskop zu transportieren, bedarf es eines Trägergases. Es entsteht ein Gemisch aus gasförmigem Iod und Trägergas. Das komplette Iodverdampfungssystem bis zur ersten Jetstufe ist in Abbildung 2.12 schematisch dargestellt.

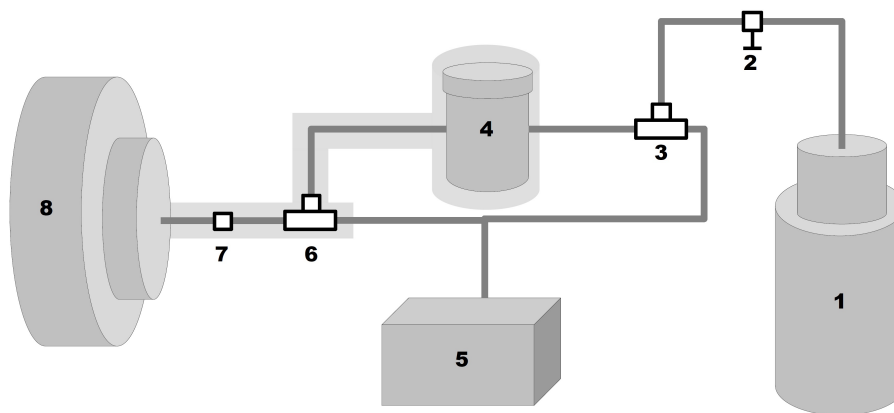


Abbildung 2.12: Schematische Darstellung des Iodverdampfungssystems. Die Zahlen 1 - 8 stehen für: 1: Reservoir des Trägergases. 2: Druckminderer. 3: Erster Dreiweghahn. 4: Mit kristallinem Iod gefülltes Reservoir. 5: Pumpe zum Spülen von Iodreservoir und Trägergaszuleitung. 6: Zweiter Dreiweghahn. 7: Filter. 8: Erste Jetstufe des Reaktionsmikroskops. Die Teile 4, 6, 7 und deren Zuleitungen sind mit einem Heizband umwickelt (grau hinterlegter Bereich).

Das Iodreservoir (4) ist ein zylindrisches Edelstahlgefäß (Durchmesser ≈ 4 cm, Höhe ≈ 10 cm) mit dicht verschließbarem Deckel. Gedichtet werden kann mit herkömmlichen Viton- bzw. Kupferringen. Geringe Mengen Iod (wenige g) werden in das Reservoir gegeben, bevor dieses verschlossen wird. Die Trägergase befinden sich in handelsüblichen Gasflaschen (1). Der Trägergaszufluss zum Iodverdampfungssystem wird mit einem Druckminderer (2) reguliert. Durch zwei Dreiweghähne (3) und (6) wird eine Umgehung realisiert, die es erlaubt, Iodreservoir und Trägergaszuleitung mit einer Pumpe (5) separat zu spülen. Dies ist besonders dann von Vorteil, wenn das Trägergas gewechselt wird. Der Filter (7) soll verhindern, dass makroskopische Partikel (Durchmesser $\geq 50 \mu\text{m}$) ins Reaktionsmikroskop gelangen und die Düse verstopfen oder die Skimmer zerstören. Das präparierte Gasgemisch gelangt in die erste

Jetstufe (8). Das Iodreservoir, der zweite Dreiwegehahn, der Filter sowie die weiteren Leitung in Richtung Reaktionsmikroskop sind mit einem Heizband umbunden. Das Heizband ist zur besseren Wärmeisolierung mit Aluminiumfolie umwickelt. Alle Leitungen sind entweder Schläuche oder Rohre mit *Swagelok*-Schraubverbindern.

2.4.1 Betriebsarten

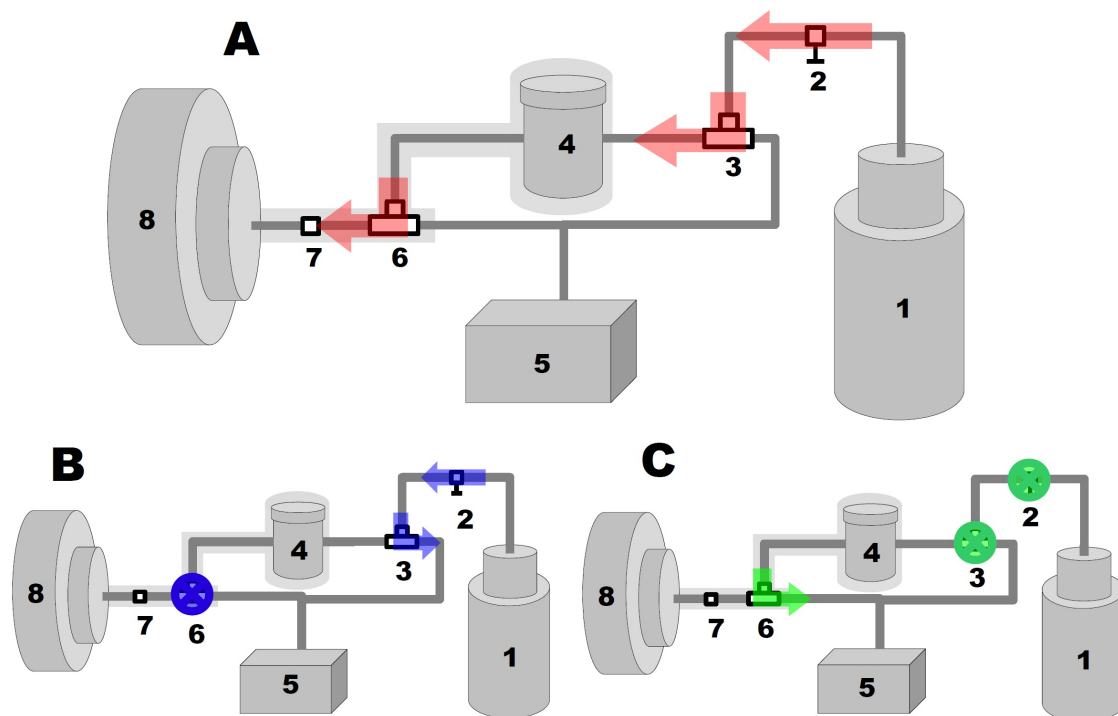


Abbildung 2.13: Betriebsarten des Iodverdampfungs-systems. A: Iodbetrieb. B: Spülen Trägergaszuleitung. C: Spülen Iodreservoir. Die transparenten Pfeile zeigen die Durchflussrichtung der Hähne an. Die durchkreuzten Kreise bedeuten, dass diese Hähne komplett geschlossen sind.

- Im *Iodbetrieb* gelangt ein Gemisch aus gasförmigem Iod und Trägergas in die erste Jetstufe des Reaktionsmikroskops. Den genauen Gasfluss entnimmt man Darstellung A in Abbildung 2.13. Der Druckminderer (2) ist geöffnet. Der erste Dreiwegehahn (3) lässt einen Gasfluss in Richtung Iodreservoir (4) zu. Der zweite Dreiwegehahn (6) steht so, dass das Gasmisch in Reaktionsmikroskop (8) gelangen kann.
- Darstellung B in Abbildung 2.13 zeigt das Iodverdampfungs-system im *Spülmodus der Trägergaszuleitung*. Der zweite Dreiwegehahn (6) ist komplett geschlossen. Der Druckminderer (2) ist geöffnet und der erste Dreiwegehahn (3) so gestellt, dass eine Verbindung zur Pumpe (5) besteht.

- Zum *Spülen des Iodreservoirs* werden die Einstellungen aus Darstellung C in Abbildung 2.13 benutzt. Der erste Dreiwegehahn (3) und der Druckminderer (2) sind geschlossen. Der zweite Dreiwegehahn (6) lässt einen Gasfluss vom Iodreservoir (4) zur Pumpe (5) zu.

2.4.2 Heizung

Wie in Abbildung 2.12 zu sehen, kann das Iodreservoir und alle Zuleitungen in Richtung Reaktionsmikroskop mit einem 3 m langen Heizband der Firma *Hemi Heating* geheizt werden. Das Heizband kann bis zu einer Temperatur von maximal 400 °C betrieben werden. Die Temperaturregelung erfolgt mit einem TD 2000 Tischregler der Firma *Isopad*. Dieser deckt eine Temperaturspanne von 0 °C bis 1200 °C ab. Die Genauigkeit beträgt im Bereich 0 - 100 °C ± 1 K. Im Bereich von 70 °C bis 150 °C wurde gemessen. Als Temperaturfühler wurde ein NiCr-Ni Element verwendet. Die Düse kann zusätzlich zum Iodreservoir mit einer Halogenlampe geheizt werden. Die Düsentemperatur wird mit einem Thermoelement überwacht.

2.5 Laserstrahlführung zum Experiment

Zur Ionisation des Targets wird ein Titan-Saphir-Laser verwendet. Da sich der Laser in einem Labor direkt neben der eigentlichen Experimentierhalle befindet, muss der Strahl über ein Rohrsystem zum Reaktionsmikroskop geleitet werden. Das Rohrsystem dient zum Schutz der Experimentatoren. Das menschliche Auge kann IR-Strahlung nicht registrieren. Um Unfällen vorzubeugen, muss der Strahl des Klasse 4 Lasers außerhalb des Laserlabors durch ein Rohrsystem komplett abgeschirmt werden. Das Rohrsystem besteht aus mehreren Aluminiumrohren (Innendurchmesser ≈ 7 cm). Überall dort, wo der Strahl umgeleitet werden muss, befinden sich blickdichte quadratische Boxen aus schwarz eloxierten Aluminiumblechen ($\approx 25 \times 25$ cm²), in die optische Elemente eingebaut werden können. Der Boxunterboden ist deshalb aus einer 1.5 cm dicken Aluminiumplatte mit regelmäßig angeordneten Gewinden gefertigt. Das Umlenken des Strahls erfolgt durch mehrere Spiegel. Zum Einstimmen der Spiegel wird ein sichtbarer Helium-Neon-Laser (Wellenlänge 633 nm) verwendet, der auf dem optischen Tisch im Laserlabor aufgebaut ist. Später soll an Stelle des Helium-Neon-Strahls der Titan-Saphir-Laserstrahl durch das einjustierte Rohrsystem zum Reaktionsmikroskop gelangen.

2.5.1 Laserlabor

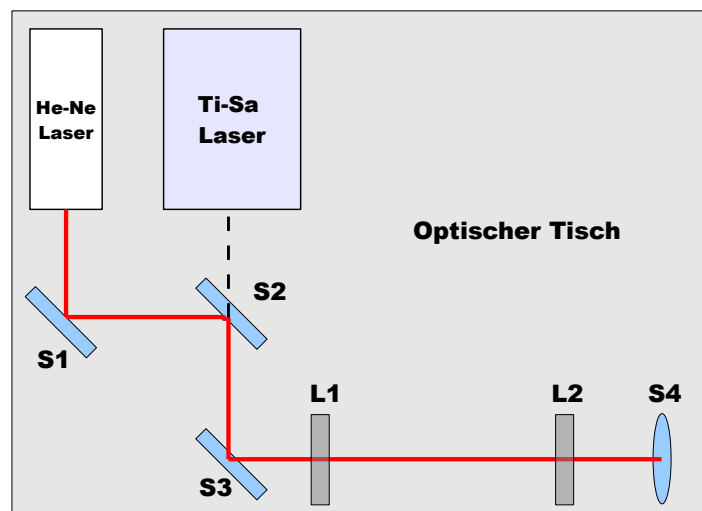


Abbildung 2.14: Schematische Darstellung zur Spiegeljustierung auf dem optischen Tisch im Laserlabor. Rot: Strahlengang He-Ne-Laser. S1 - S4: Spiegel. L1 und L2: Lochblenden.

Um zu gewährleisten, dass der IR-Strahl nach Justierung der Spiegel mit dem sichtbaren He-Ne-Laser den selben Weg durch das Rohrsystem nimmt, muss schon auf dem optischen Tisch eine entsprechende Einkopplung aufgebaut werden. Die Realisierung ist schematisch in Abbildung 2.14 gezeigt. Der Spiegel S3 ist fix und bereits so eingestellt, dass der IR-Strahl zentrisch durch die beiden Lochblenden L1 und L2 gelenkt wird. Der Abstand der Lochblenden beträgt etwa 2 m. Durch Variation der Position und Winkel der Spiegel S1 und S2 wird der He-Ne-Laserstrahl auf die Lochblenden L1 und L2 justiert. Geht der Strahl zentrisch durch beide Lochblenden ist gewährleistet, dass der He-Ne-Laserstrahl den selben Weg nimmt wie der IR-Strahl. Über ein Periskop (S4 ist der untere Periskopspiegel) wird der Strahl im 90° Winkel in Box 1 (siehe Abbildung 2.15) in der Experimentierhalle gelenkt. Für den Betrieb mit Titan-Saphir-Laser muss Spiegel S2 aus dem Strahlengang entfernt werden.

2.5.2 Rohrsystem

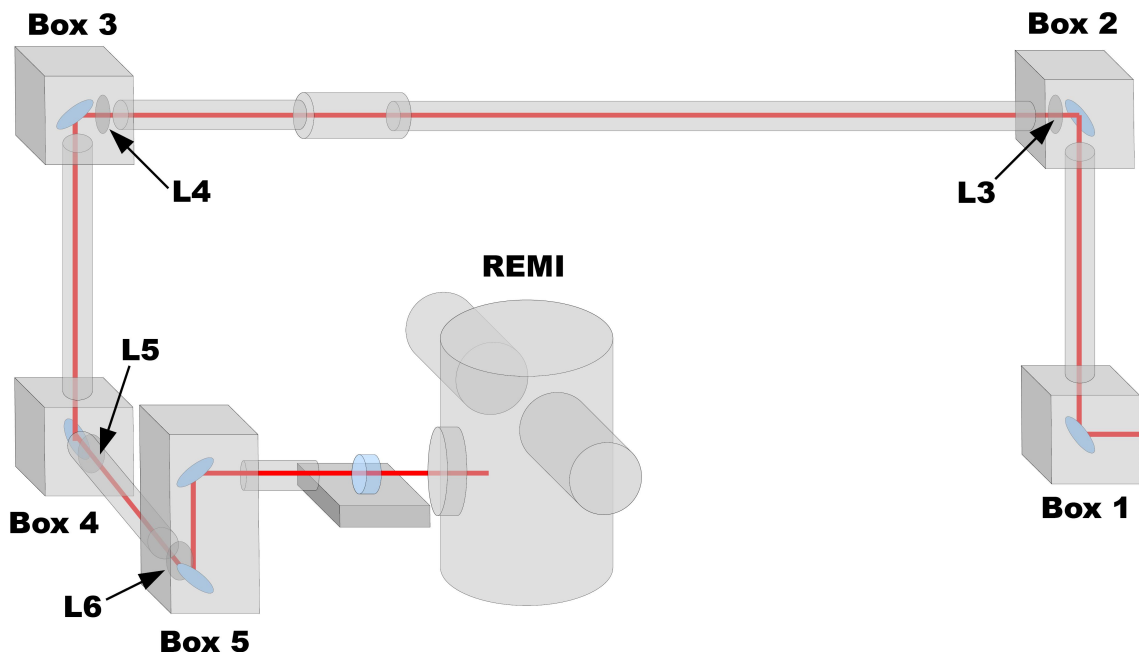


Abbildung 2.15: Skizze des Rohrsystems in der Experimentierhalle. Rot: Strahlengang. In Box 1 - 5 befinden sich justierbare Umlenkspiegel (hellblau). L3, L4, L5 und L6: Lochblenden zur Strahlengangsicherung.

Der im Laserlabor einjustierte He-Ne-Strahl kann nun mit Umlenkspiegeln in den Boxen des Rohrsystems ins Reaktionsmikroskop geleitet werden. Da sich das Reaktionsmikroskop auf der gegenüberliegenden Hallenseite befindet, wurde das Rohrsystem in ca. 2 m Höhe angebracht. Dabei muss eine Strecke von 8 m überwunden werden. Das 8 m lange Rohr besteht aus zwei Teilen, die durch eine Manschette

zusammengehalten werden. Abbildung 2.15 zeigt eine Skizze des Rohrsystems. Der Laserstrahl gelangt in Box 1 aus dem Laserlabor in das Rohrsystem. Die Lochblenden L3 (Box 2), L4 (Box 3), L5 (Box 4) und L6 (Box 5) dienen der Reproduzierbarkeit des Strahlengangs. Die Umlenkspiegel in den Boxen 1 bis 5 lassen sich in Höhe, Position und Winkel verstellen.

2.5.3 Fokussierung

Um schließlich den Strahl auf den Gasjet zu fokussieren, wird vor der Reaktionskammer die Linsenkonstruktion aus Abbildung 2.16 aufgebaut.

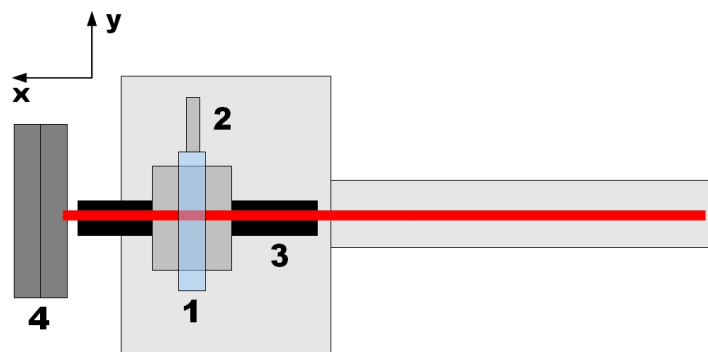


Abbildung 2.16: Linsenkonstruktion zur Fokussierung des Laserstrahls. 1: konvexe Linse (Brennweite $b \approx 20$ cm). 2: Manipulator für y-Richtung. 3: Optische Schiene zur x-Manipulation. 4: Fensterflansch zur Hauptkammer des Reaktionsmikroskops.

Die konvexe Linse (1) mit Brennweite $b \approx 20$ cm kann in x- und y-Richtung manipuliert werden. Mit der Möglichkeit, den oberen Spiegel in Box 5 (siehe Abbildung 2.15) in Höhe und Winkel zu verstellen sowie die x-y-Manipulationsmöglichkeit der konvexen Linse, kann der Fokus des Laserstrahls auf den Targetjet in der Hauptkammer justiert werden.

2.5.4 Laser

Zur Ionisation des Targets wird ein Titan-Saphir-Laser mit 795 nm Wellenlänge, 25 fs Pulsdauer (FWHM) und 3 kHz Repetitionsrate eingesetzt. Am Ausgang des Lasers sind Pulsenergien von bis zu $350 \mu\text{J}$ erreichbar [Rudenko et al., 2008]. Durch die Strahlführung zum Experiment über 9 Spiegel kommt allerdings nicht die volle Leistung am Reaktionsort an.

Direkt nach dem Laser sollte die Leistung \bar{P} im Mittel

$$\bar{P} = 3 \text{ kHz} \cdot 350 \text{ } \mu\text{J} = 1 \text{ W} \quad (2.24)$$

betragen. Dies wurde auch in einer Leistungsmessung bestätigt. Nach Umlenken über die Spiegel wurde direkt vor der Hauptkammer des Experiments eine mittlere Leistung von $\bar{P} \approx 0.2 \text{ W}$ gemessen. Die Pulsenergie beträgt dann noch etwa $70 \text{ } \mu\text{J}$. Nimmt man an, dass der fokussierte Laserstrahl am Reaktionsort einen Durchmesser von $d_{\text{Laser}} \approx 100 \text{ } \mu\text{m}$ und der Targetjet einen Durchmesser von $d_{\text{Target}} \approx 100 \text{ } \mu\text{m}$ hat, dann ist die Wechselwirkungsfläche $A \approx 10^{-4} \text{ cm}^2$. Die Intensität I am Reaktionsort beträgt dann

$$I = \frac{P_{\text{Puls}}}{A} = \frac{E_{\text{Puls}}}{t_{\text{Puls}} \cdot A} \approx 3 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}. \quad (2.25)$$

Bei einem Durchmesser des Laserstrahls am Reaktionsort von $d_{\text{Laser}} \approx 1 \text{ mm}$, ist die Intensität I noch $I \approx 3 \cdot 10^{12} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$.

Nun stellt sich die Frage, welcher Ionisationsprozess bei diesen Intensitäten dominiert. Hierzu betrachtet man den in Abschnitt 2.1.4 in Gleichung 2.16 eingeführten Keldysh-Parameter γ . Für die Einfachionisation von Argon ergibt sich ein Keldysh-Parameter von

$$\gamma = \sqrt{\frac{U_I}{2U_p}} = 2.31 \cdot 10^3 \sqrt{\frac{U_I/\text{eV}}{[I/(10^{12} \text{ Wcm}^{-2})][\lambda/\text{nm}]^2}} \approx 2 \quad (2.26)$$

mit $U_I = 15.4 \text{ eV}$ im Grundzustand, $\lambda = 795 \text{ nm}$ und $I = 3 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. $\gamma \approx 2$ bedeutet, dass Multiphotonenabsorption der dominante Prozess ist. Dazu müssen mindestens 10 Photonen mit 1.55 eV absorbiert werden.

2.6 Messung und Ergebnisse

Die Testmessungen werden mit den Trägergasen Argon, Neon und Helium durchgeführt. Durch Variation des Vordrucks p_0 und der Reservoirtemperatur T_0 werden die optimalen Jeteinstellungen für das Gasgemisch gesucht. Als optimal wird hierbei ein hohes, sauberes Iodsignal angesehen. Ein hohes Iodsignal steht hierbei stellvertretend für eine hohe Iodtargetdichte. Da die Verhältnissen der Ionen von Interesse sind, werden nur diese detektiert. Die emittierten Elektronen werden nicht gemessen. Nach Einführung der Flugzeitspektren im folgenden Abschnitt, befasst sich Abschnitt 2.6.2 mit Messungen, bei denen Argon als Trägergas zum Einsatz kam. Zuerst werden die Verhältnisse gemessener Ionen analysiert, bevor auf die Temperatur des Gasjets eingegangen wird. Die Messungen mit Argon erlauben zudem eine Abschätzung der Jetgeschwindigkeit. Ergebnisse mit Neon und Helium als Trägergas werden in Abschnitt 2.6.3 und 2.6.4 diskutiert. Abschließend wird in Abschnitt 2.6.5 auf Probleme mit der Düse und deren Lösung eingegangen.

2.6.1 Flugzeitspektren

Zur Analyse der gemessenen Daten wird ein speziell auf die Anforderungen eines Reaktionsmikroskops entwickelter Code verwendet, welcher mit der am CERN entstandenen Datenanalysesoftware *ROOT* kombiniert wird. Damit lassen sich u.a. Flugzeitspektren erstellen. Flugzeitspektren (TOF-Spektren)¹ zeigen die Häufigkeit detektierter Ionen in Abhängigkeit der Flugzeit zum Detektor. Die Flugzeit *TOF* der Ionen hängt im wesentlichen vom Masse-zu-Ladungsverhältnis m/q ab:

$$TOF \propto \sqrt{\frac{m}{q}} \quad (2.27)$$

Somit können im Flugzeitspektrum Ionen mit unterschiedlichem Masse-zu-Ladungsverhältnis identifiziert werden. Können markante Peaks im Spektrum bestimmten Ionen zugeordnet werden, so ermöglicht die Proportionalität von 2.27 eine Umrechnung von Flugzeit in das Masse-zu-Ladungsverhältnis.

Das TOF-Spektrum gibt also Aufschluss über die im Reaktionsvolumen enthaltenen Teilchen. Es besteht aus scharfen Peaks der Ionen aus dem Target und einem breiten Untergrund von Restgasionen. Die Peaks der Ionen aus dem Gasjet sind so scharf, da diese Gasteilchen nach der Überschallexpansion sehr kalt sind. Die longitudinale Komponente der Jetgeschwindigkeit ist nach der Überschallexpansion „eingefroren“ und verändert sich nicht mit wachsender Entfernung vom Ort der Überschallexpansion [Langbrandtner, 2007]. Ionen aus dem Restgas der Vakuumkammer weisen eine breitere Geschwindigkeitsverteilung auf, was sich in breiteren Peaks im TOF-Spektrum widerspiegelt.

¹Der englische Begriff für Flugzeit ist **Time-Of-Flight**. Als Abkürzung wird deshalb häufig TOF-Spektrum verwendet.

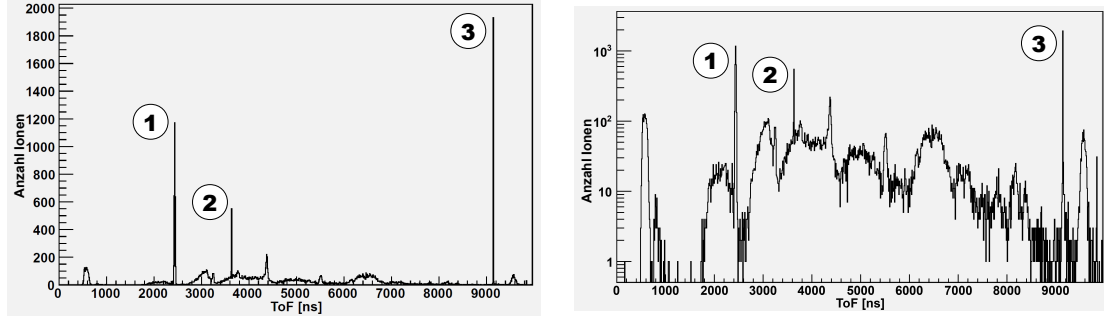


Abbildung 2.17: Häufigkeit der gemessenen Flugzeiten mit Argon als Trägergas, $T_0 = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ und $p_0 = 1 \text{ bar}$ in linearer (links) und logarithmischer (rechts) Darstellung.

In Abbildung 2.17 fallen drei markante Peaks auf. Vor allem in logarithmischer Darstellung zeigt sich aber deutlich ein großer Untergrund im Spektrum. Bei den Vorbereitungen und Umbauten für die Messkampagne in Hamburg musste das Reaktionsmikroskop häufig belüftet werden. Zum Zeitpunkt der Testmessungen war es nicht ausgeheizt. Dies sind Ursachen für den großen Hintergrund in der Reaktionskammer.

Die Spektren in Abbildung 2.17 weisen noch einen Offset in der Flugzeit auf. Da man davon ausgehen kann, dass die Flugzeit der Ionen unabhängig vom Vordruck und der Reservoirtemperatur ist, kann über alle gemessenen Flugzeitspektren gemittelt werden, um den Flugzeit-Offset zu bestimmen. Iodmoleküle gehören sicher zu den schwersten Teilchen im Reaktionsvolumen. Die Flugzeit einfach geladener Iodmolekülionen I_2^+ wird nach Gleichung 2.27 groß sein. Zudem sind die Iodmoleküle kalt und ihr Peak im TOF-Spektrum muss scharf sein. Aus diesen Überlegungen wird den I_2^+ -Ionen Peak 3 (siehe Abbildung 2.17) zugeordnet. Der scharfe Peak Nummer 2 wird den ebenfalls kalten einfach geladenen Ar^+ -Ionen zugeschrieben. Durch das mehrmalige Belüften der Reaktionskammer im Vorfeld der Messung wird sicher viel Wasser in der Kammer sein. Der breite Peak 1 wird daher den einfach geladenen H_2O^+ -Ionen zugewiesen. Nachfolgende Tabelle gibt einen Überblick über die gewählten Zuordnungen. Die Position der Peaks auf der *TOF*-Achse wurde mit einem Gaußfit bestimmt.

Peak	<i>TOF</i> [ns]	ΔTOF [ns]	Ion	Masse m [u]
1	2601	9	H_2O^+	18
2	3794	1	Ar^+	40
3	9311	2	I_2^+	254

Zeichnet man die Flugzeit gegen die Wurzel des Masse-zu-Ladungsverhältnis und führt eine lineare Regression durch, dann entspricht der Schnittpunkt mit der *TOF*-

Achse dem gesuchten Offset. Gleichzeitig ist der Fit eine Probe der vorgenommenen Zuordnung.

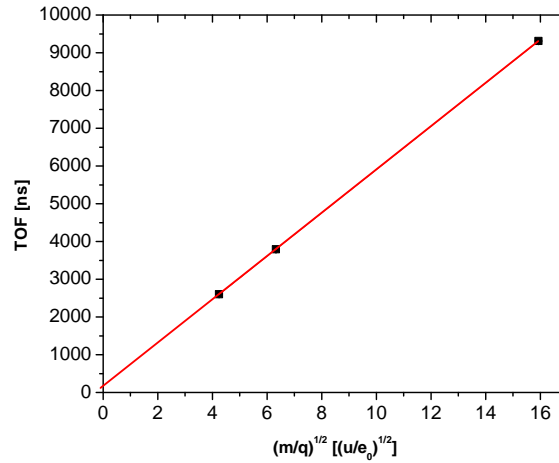


Abbildung 2.18: Bestimmung des TOF-Offsets. Die Flugzeit TOF ist gegen die Wurzel des Masse-zu-Ladungsverhältnis $\sqrt{m/q}$ geplottet.

Der lineare Fit ergibt folgenden Zusammenhang zwischen der gemessenen TOF^* und $\sqrt{m/q}$:

$$TOF^* = (573.9 \pm 0.1) \text{ ns} \sqrt{\frac{e_0}{u}} \cdot \sqrt{\frac{m}{q}} + \underbrace{(164.3 \pm 0.4) \text{ ns}}_{TOF_{Offset}} \quad (2.28)$$

Hier ist m die Ionenmasse in u und q die Ladung der Ionen in Elementarladung e_0 . Wie in Abbildung 2.18 zu sehen, liegen alle Punkte auf der durch Gleichung 2.28 festgelegten roten Geraden. Die Zuordnung der Ionen zu den Peaks im TOF-Spektrum ist also korrekt. Alle Spektren werden mit $TOF_{Offset} = 164.3 \text{ ns}$ korrigiert, sodass gilt:

$$TOF = (573.9 \pm 0.1) \text{ ns} \sqrt{\frac{e_0}{u}} \cdot \sqrt{\frac{m}{q}} \quad (2.29)$$

I⁺-Ionen

Bei der Analyse der TOF-Spektren fällt eine interessante Struktur bei ~ 6500 ns Flugzeit auf. In Abbildung 2.19 ist ein Ausschnitt eines TOF-Spektrums beispielhaft gezeigt.

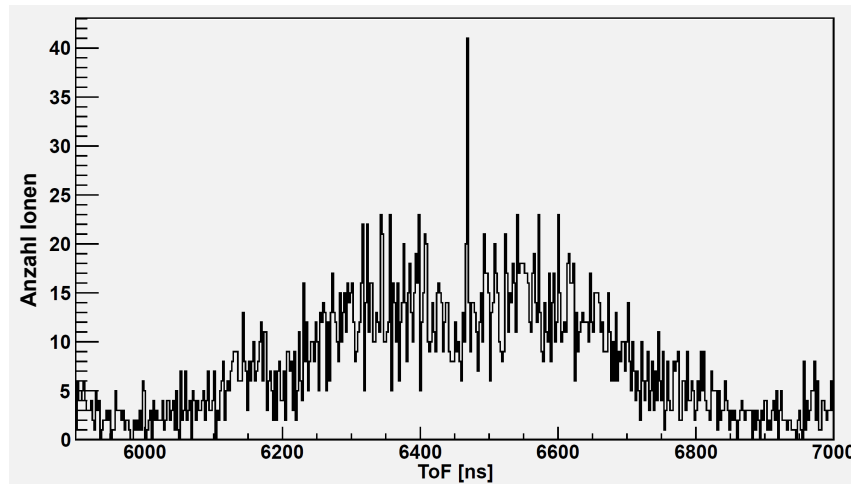


Abbildung 2.19: Ausschnitt aus dem TOF-Spektrum um 6500 ns Flugzeit mit Trägergas Argon, $T_0 = 70$ °C und $p_0 = 1$ bar.

Um einen scharfen Hauptpeak liegen symmetrisch zwei breite Peaks. Die Flugzeit der Ionen des Hauptpeaks liegt bei 6470 ns. Nach Gleichung 2.29 entspricht dies einem Masse-zu-Ladungsverhältnis von $m/q \approx 127$. Dies ist das Masse-zu-Ladungsverhältnis von I⁺-Ionen. Allerdings ist nicht zu erwarten, dass die I⁺-Ionen einen scharfen Peak im TOF-Spektrum ergeben. I⁺-Ionen entstehen hauptsächlich durch Coulombexplosion, d.h. es entstehen pro fragmentiertem Iodmolekül zwei I⁺-Ionen. Dabei erhalten beide Ionen jeweils eine Energie $E_{Coulomb}$ von:

$$E_{Coulomb} = \frac{1}{2} \frac{q_1 q_2 e_0}{4\pi\epsilon_0 R} \quad (2.30)$$

Hierbei sind q_1 und q_2 die Ladungszustände der fragmentierten Ionen, e_0 die Elementarladung, ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante und R der internukleare Abstand vor der Coulombexplosion. Diese Energie steht den I⁺-Ionen als kinetische Energie zur Verfügung. Die Iodmoleküle des Targets sind nicht ausgerichtet. Alle räumlichen Orientierungen sind möglich. Die Emissionsrichtung der I⁺-Ionen hängt auch von der Polarisationsrichtung des Lasers ab. Die breiten Peaks links und rechts des scharfen Hauptpeaks lassen folgende Interpretation zu: Zwei durch Coulombexplosion entstandene I⁺-Ionen müssen nicht zwangsläufig in der Ebene parallel zum Ionendetektor emittiert werden, sondern können auch in einem Winkel relativ zu dieser Ebene

emittiert werden. Dann haben beide eine ähnliche, aber nicht die selbe Flugzeit zum Ionendetektor. Im TOF-Spektrum zeigt sich dies an den beiden breiten Peaks. Iodmoleküle, die in Polarisationsrichtung ausgerichtet sind, werden bevorzugt in diese emittiert.

Was ist nun der scharfe Peak in der Mitte? Das Ladungsverhältnis von $m/q \approx 127$ besitzen nicht nur I^+ -Ionen, sondern auch metastabile I_2^+ -Ionen. Diese entstehen nicht durch Coulombexplosion. Im TOF-Spektrum zeigen sie sich durch einen scharfen Peak bei ~ 6470 ns.

Die beschriebene Struktur aus Abbildung 2.19 wurde auch von Stapelfeldt et al. [1998] beobachtet.

2.6.2 Argon

Als erstes Trägergas wird Argon getestet. Argon hat den Vorteil, dass die Intensität der IR-Strahlung am Reaktionsort ausreicht, um es einfach zu ionisieren (siehe Abschnitt 2.5.4). Das Verhältnis von Iod- zu Argonsignal kann somit untersucht werden. Die Argonmessreihe besteht aus zwei Teilen, die an zwei aufeinander folgenden Tagen durchgeführt wurden. Der erste Teil umfasst den Temperaturbereich von $T_0 = 70$ °C – 100 °C, der zweite den Bereich von $T_0 = 110$ °C – 150 °C. Die Temperatur wird in 10 °C - Schritten erhöht. Pro eingestellter Temperatur werden Vordrücke von $p_0 = 1 - 5$ bar verwendet. Pro Druck wird 5 Minuten gemessen. Der Vordruck p_0 wird mit einer Genauigkeit von $\Delta p_0 = \pm 0.2$ bar eingestellt. Die Düse wird mit ~ 80 °C vorgeheizt. Während der Messung wird versucht, die Düsentemperatur im Bereich von $\sim 80 - 90$ °C zu halten, um zu vermeiden, dass die Indiumdichtung der Düse schmilzt. Der Schmelzpunkt von Indium liegt bei ~ 160 °C. Das Heizen der Düse soll hauptsächlich verhindern, dass diese verstopft. Das Iodreservoir und die Zuleitungen in Richtung Reaktionsmikroskop werden, wie in Abschnitt 2.4 beschrieben, geheizt.

Verhältnisse der Ionen

Nachdem es möglich ist, Ionen den Peaks im TOF-Spektrum zuzuordnen, werden nun die Verhältnisse der Anzahl detektierter Ionen verglichen, um die optimalen Einstellungen von Vordruck und Reservoirtemperatur zu finden.

Um die absolute Anzahl detektierter Ionen zu messen, wird über die entsprechenden Peaks im TOF-Spektrum integriert. Untersucht werden die Peaks von H_2O^+ , Ar^+ , I^+ bzw. I_2^+ und I_2^+ . Wie in Abbildung 2.17 zu erkennen, weisen die Spektren einen erheblichen Untergrund, v.a. im Bereich von Ar^+ und I^+ bzw. I_2^+ , auf. Eine Untergrundkorrektur ist notwendig. Dazu werden für jeden der vier zu untersuchenden Peaks TOF-Spektren mit passenden Grenzen und feinerem Bining erstellt (siehe beispielhaft Abbildung 2.20 und 2.21). Zuerst wird über den Hauptpeak, dann über

den Untergrund links und rechts des Peaks integriert. Für den Untergrund wird ein Mittelwert aus dem Untergrund links und Untergrund rechts gebildet, der vom Integral über den Hauptpeak abgezogen wird. Als Fehler wird der gemittelte Untergrund angenommen.

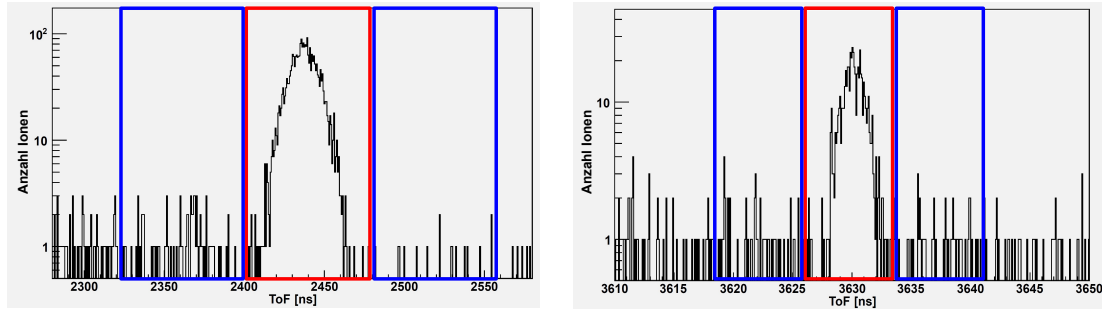


Abbildung 2.20: Zwei Ausschnitte aus dem TOF-Spektrum mit Trägergas Argon, $T_0 = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ und $p_0 = 1 \text{ bar}$. Links: H_2O^+ -Peak. Rechts: Ar^+ -Peak. Über den roten Bereich wird der Hauptpeak integriert. Die blauen Bereiche links und rechts des Hauptpeaks markieren den jeweiligen Untergrund.

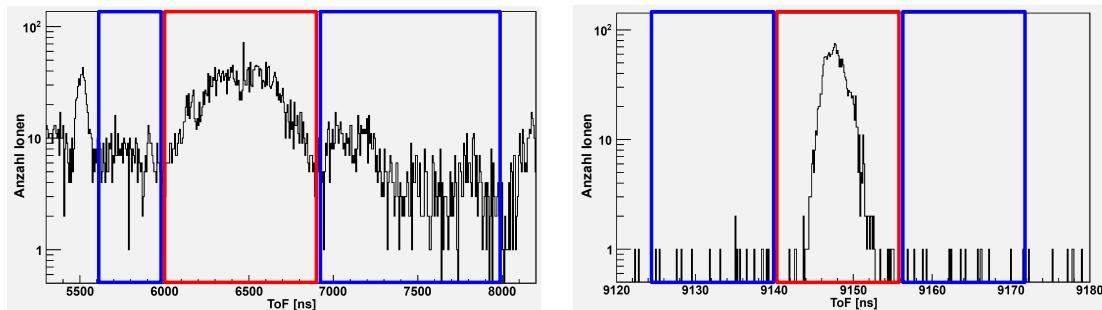


Abbildung 2.21: Zwei Ausschnitte aus dem TOF-Spektrum mit Trägergas Argon, $T_0 = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ und $p_0 = 1 \text{ bar}$. Links: I^+ -Peaks und I_2^{2+} -Peak. Rechts: I_2^+ -Peak. Über den roten Bereich wird der Hauptpeak integriert. Die blauen Bereiche links und rechts des Hauptpeaks markieren den jeweiligen Untergrund.

Verhältnis I_2^+ -Ionen zu Ar^+ -Ionen

Das Verhältnis von Iod- zu Ar^+ -Ionen erlaubt Aussagen über den relativen Anteil von Iod im Targetjet. Als Iodsignalreferenz wird die Anzahl detektierter I_2^+ -Ionen untersucht. Die nachfolgende Abbildung 2.22 zeigt das Verhältnis von I_2^+ - zu Ar^+ -Ionen

für verschiedene Vordrücke in Abhängigkeit der Reservoirtemperatur. Entsprechende Plots für das Verhältnis von I_2^+ - zu Ar^+ -Ionen zeigen sehr ähnliche Verläufe und können im Anhang betrachtet werden.

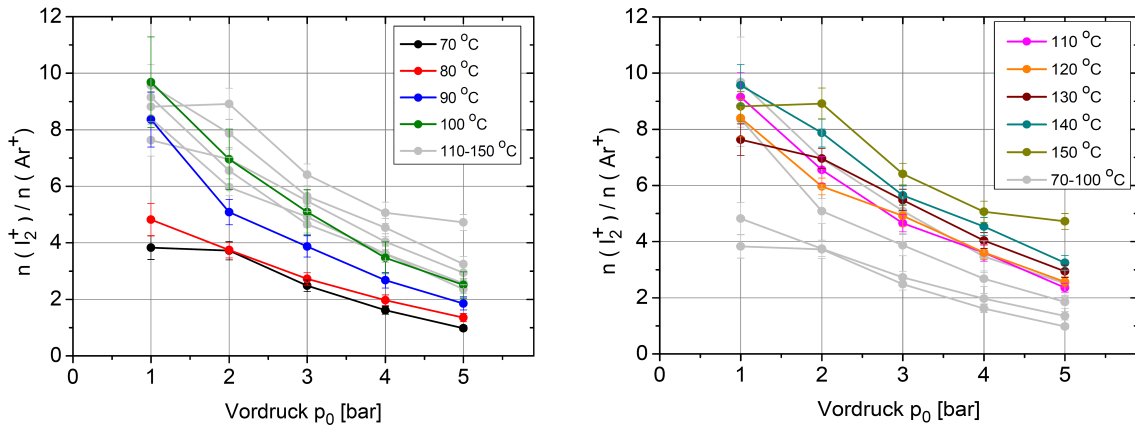


Abbildung 2.22: Verhältnis I_2^+ -Ionen zu Ar^+ -Ionen (Ordinate) gegen Vordruck p_0 (Abszisse) in Abhängigkeit der Reservoirtemperatur T_0 . Messung im Bereich 70 °C bis 100 °C (links) und 110 °C bis 150 °C (rechts). Grau: jeweils andere Messreihe.

Zunächst fällt auf, dass $n(I_2^+)/n(Ar^+) > 1$ für alle Messpunkte, d.h. für alle Einstellungen werden mehr Iod- als Argonionen detektiert. Dies hängt neben den relativen Teilchenzahlen von Argon und Iod im Gasjet auch von der Ionisationswahrscheinlichkeit von Argon bzw. Iod bei der vorhandenen Intensität und Wellenlänge der IR-Strahlung ab. Der Wirkungsquerschnitt im IR-Bereich ($\lambda = 795$ nm) ist für Iod höher als für Argon. Er ist aber unabhängig von Vordruck und Reservoirtemperatur und somit für alle Messungen gleich, da die Einstellungen des Lasers nicht verändert werden. Durch Variation von Vordruck und Reservoirtemperatur wird das Mischungsverhältnis von Iod und Argon im Gasjet bestimmt. Im Iodverdampfungssystem gibt es zwei Größen, die in gegenseitiger Konkurrenz stehen: der Vordruck und der Dampfdruck des Iods. Der Vordruck bewegt sich in einem Bereich von $p_0 = 1 - 5$ bar. Der Dampfdruck des Iods beträgt bei 70 °C etwa 10 mbar, bei 150 °C etwa ≈ 400 mbar.

In beiden Messreihen nimmt das $n(I_2^+)/n(Ar^+)$ -Verhältnis bei konstanter Temperatur tendenziell mit erhöhtem Vordruck ab. Bei konstant angenommener Temperatur nimmt der Dampfdruck des Iods nicht zu. Erhöht man den Vordruck des Trägergases, dann vergrößert sich der relative Argonanteil, der durch die Düse strömt, und das Verhältnis verschiebt sich zugunsten des Argons. Mit erhöhter Temperatur steigt der Dampfdruck des Iods. Bei konstantem Vordruck wird das Verhältnis $n(I_2^+)/n(Ar^+)$ größer.

Das größte $n(I_2^+)/n(Ar^+)$ -Verhältnis erreicht man demnach bei niedrigem Vordruck und hohen Reservoirtemperaturen. In Abbildung 2.22 links ist dieses Verhalten für

alle Temperaturen zu beobachten. In Abbildung 2.22 rechts fällt die Kurve bei $T_0 = 120\text{ °C}$ (orange) für niedrige Vordrücke etwas aus der Reihe. Der starke „Knick“ der Kurven für $T_0 = 130\text{ °C}$ (braun) und $T_0 = 150\text{ °C}$ (oliv) bei 2 bar Vordruck kann dadurch erklärt werden, dass die Verhältnisse für 1 bar zu niedrig gemessen wurden. Die Messungen bei $T_0 = 120\text{ °C}$ und $T_0 = 130\text{ °C}$ bzw. $T_0 = 140\text{ °C}$ und $T_0 = 150\text{ °C}$ erfolgten sehr kurz aufeinander, sodass die Reservoirtemperatur noch nicht die neu eingestellte Temperatur erreicht hatte. Dementsprechend war der Dampfdruck bei 1 bar niedriger als bei den folgenden Messungen.

Verhältnis I_2^+ -Ionen zu H_2O^+ -Ionen

Der Vergleich von I_2^+ -Ionen mit H_2O^+ -Ionen enthält Informationen über die absolute Menge an Iod, die an den Reaktionsort gelangt, da der Wasseranteil in der Vakuumkammer bei allen Messungen konstant sein sollte.

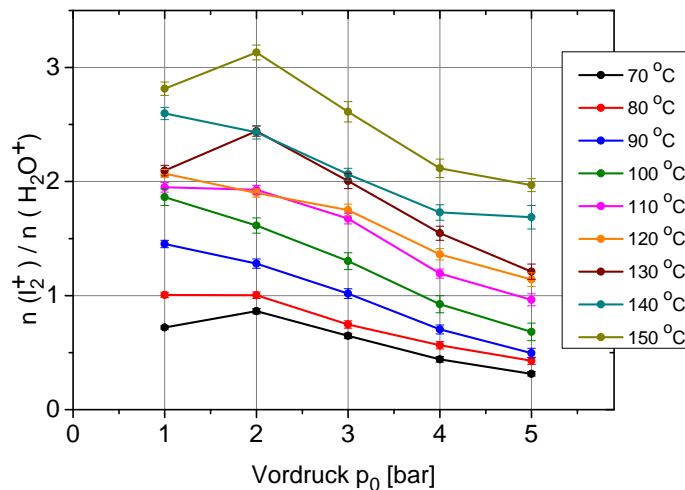


Abbildung 2.23: Verhältnis I_2^+ -Ionen zu H_2O^+ -Ionen (Ordinate) gegen Vordruck p_0 (Abszisse) in Abhängigkeit der Reservoirtemperatur T_0 . Messungen im Bereich 70 °C bis 150 °C .

Tendenziell entnimmt man Abbildung 2.23, dass wie zu erwarten das Verhältnis $n(\text{I}_2^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)$ mit steigender Reservoirtemperatur zunimmt. Dieses Ergebnis bestätigt die Überlegungen zu Abbildung 2.22. Mehr Heizen erhöht demnach nicht nur den relativen Anteil von Iod im Gasjet, sondern auch die absolute Iodtargetdichte im Reaktionsvolumen. Das beste Verhältnis $n(\text{I}_2^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+) \approx 3$ wird für $T_0 = 150\text{ °C}$ und niedrige Vordrücke erreicht. Man erkennt, dass bei konstanter Temperatur und steigendem Vordruck weniger Iod ins Reaktionsmikroskop gelangt. Erhöht man den Vordruck, dann steigt der Anteil an Argon, der durch die Düse strömt, der von

Iod wird weniger. Das absolute Iodsignal steigt also nicht linear mit Erhöhung des Vordrucks.

Bei der Interpretation von Abbildung 2.23 muss beachtet werden, dass zwischen den Messreihen $T_0 = 70 - 100 \text{ }^\circ\text{C}$ und $T_0 = 110 - 150 \text{ }^\circ\text{C}$ ein Tag liegt. In dieser Zeit wurde die Vakuumkammer weiter gepumpt und in der Kammer sollte weniger Wasser vorhanden sein als bei der ersten Messreihe. Demnach wird das Verhältnis $n(\text{I}_2^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)$ im Temperaturbereich $T_0 = 110 - 150 \text{ }^\circ\text{C}$ im Vergleich zum Vortag etwas überschätzt. Dieser Effekt tritt beim $n(\text{Ar}^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)$ -Verhältnis noch deutlicher hervor.

Man erkennt in Abbildung 2.23 analog zu Abbildung 2.22 die zu niedrig gemessenen Iodmengen für 1 bar Vordruck, die auf ein noch nicht thermalisiertes Iodreservoir zurückzuführen sind.

Verhältnis Ar^+ -Ionen zu H_2O^+ Ionen

Als nächste interessante Größe wird das Ar^+ -zu- H_2O^+ -Verhältnis analysiert. Analog zum vorherigen Abschnitt gibt dieses Aufschluss über den absoluten Anteil von Argon im Reaktionsvolumen.

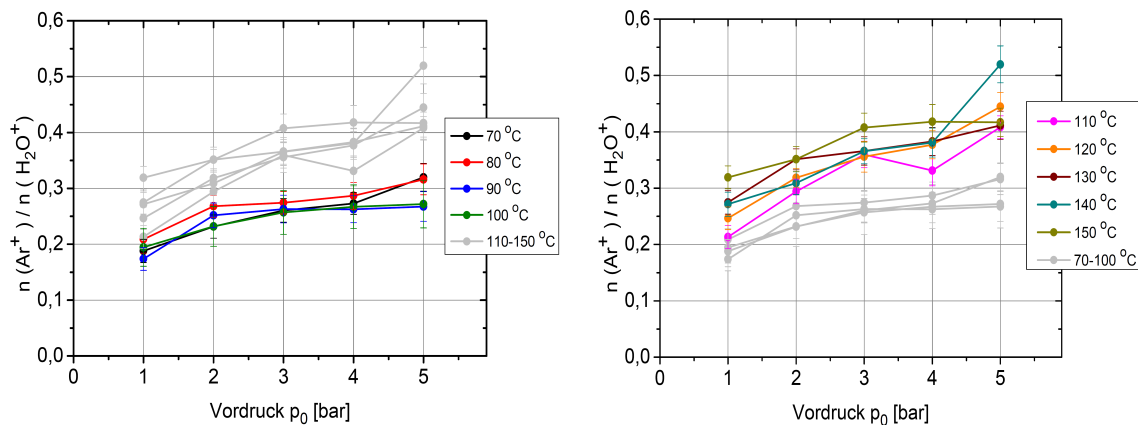


Abbildung 2.24: Verhältnis Ar^+ -Ionen zu H_2O^+ -Ionen (Ordinate) gegen Vordruck p_0 (Abszisse) in Abhängigkeit der Reservoirtemperatur T_0 . Messung im Bereich $70 \text{ }^\circ\text{C}$ bis $100 \text{ }^\circ\text{C}$ (links) und $110 \text{ }^\circ\text{C}$ bis $150 \text{ }^\circ\text{C}$ (rechts). Grau: jeweils andere Messreihe.

Das Verhältnis von Ar^+ zu H_2O^+ ist für alle Druck- und Temperatureinstellungen deutlich kleiner 1. In Abbildung 2.24 zeigt sich wie erwartet, dass das Verhältnis von Ar^+ - zu H_2O^+ -Ionen für alle Temperaturen und Vordrücke nahezu konstant ist. Argon ist Trägergas und sollte keine Temperaturabhängigkeit aufweisen. Allerdings zeigt sich die Tendenz, dass das Verhältnis für höhere Vordrücke bei konstanter Temperatur zunimmt.

Beim $n(\text{Ar}^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)$ -Verhältnis zeigt sich das Abpumpen des Wassers über Nacht deutlich. Als Folge sind die Messkurven für $T_0 = 110 - 150 \text{ }^\circ\text{C}$ nach oben verschoben.

Verbreiterung I_2^+ -Peak und Jettemperatur

Bei der Untersuchung der TOF-Spektren um den I_2^+ -Peak werden für zunehmende Reservoirtemperaturen rechts und links des I_2^+ -Peaks Strukturen erkennbar. Illustriert wird dieser Effekt an zwei TOF-Spektren mit großem Temperaturunterschied.

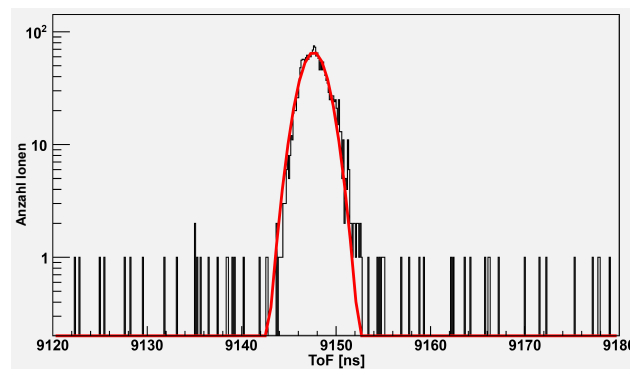


Abbildung 2.25: TOF-Spektrum für Zeitfenster um den I_2^+ -Peak für $T_0 = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ und 1 bar Vordruck in logarithmischer Darstellung. Rot eingezeichnet ist ein Gaußfit an den Peak.

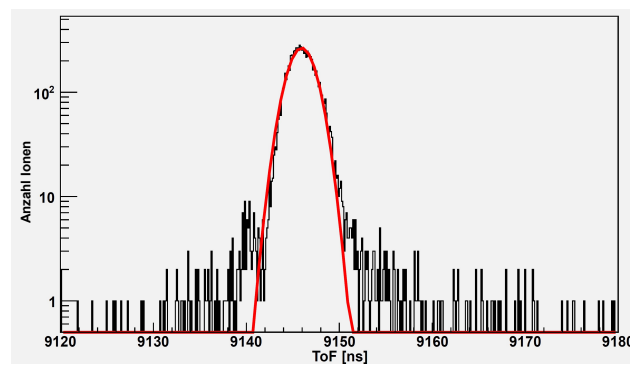


Abbildung 2.26: TOF-Spektrum für Zeitfenster um den I_2^+ -Peak für $T_0 = 150 \text{ }^\circ\text{C}$ und 1 bar Vordruck in logarithmischer Darstellung. Rot eingezeichnet ist ein Gaußfit an den Peak.

Abbildung 2.25 zeigt ein TOF-Spektrum für $T_0 = 70 \text{ }^\circ\text{C}$ und 1 bar Vordruck. Die angesprochenen Strukturen sind nicht auszumachen. Anders sieht dies beim TOF-

Spektrum für $T_0 = 150 \text{ °C}$ und 1 bar Vordruck in Abbildung 2.26 aus. Deutlich erkennbar sind Strukturen rechts und links des I_2^+ -Peaks.

Zunächst einmal demonstrieren beide Abbildungen die wichtige Funktion der Skimmer (siehe Abschnitt 2.3). Die Skimmer filtern Gasteilchen mit hohen Geschwindigkeitskomponenten senkrecht zur Jetrichtung aus dem Jet. Sie sorgen so für eine gute Impulsauflösung in Jetrichtung. Dies resultiert in scharfen Peaks im TOF-Spektrum, wie dies in Abbildung 2.25 beobachtet wird. Man kann vermuten, dass mit zunehmender Reservoirtemperatur die Geschwindigkeitsverteilung der Gasteilchen in Jetrichtung breiter wird und dies der Grund für die in Abbildung 2.26 erkennbaren Strukturen ist. Eine breitere Geschwindigkeitsverteilung bedeutet, dass die Temperatur der Gasteilchen zunimmt. Deshalb wollen wir nun die Temperatur der Gasteilchen in Jetrichtung bestimmen, um zu überprüfen, ob sich diese mit steigender Reservoirtemperatur merklich ändert. Dazu ist die Bestimmung der Impulse der Ionen bzw. die Breite der Impulsverteilung σ_p in Jetrichtung erforderlich.

Ionenimpuls senkrecht zur Flugzeitrichtung

Senkrecht zur Flugzeitrichtung (entspricht der Jetrichtung) werden die Ionen durch das elektrische Feld im Spektrometer nicht beschleunigt. Der Auftreffort eines Ions mit Masse m auf dem Detektor ist deshalb nur abhängig vom anfänglichen Transversalimpuls p_\perp und der genäherten Flugzeit t_{TOF} . Genähert bedeutet, dass die durch die longitudinale kinetische Startenergie des Ions bedingte Flugzeitänderung Δt_{TOF} , vernachlässigt werden kann, da sie in den meisten Fällen nur wenige Promille beträgt. Als Ursprung eines Polarkoordinatensystems wird der Schwerpunkt bzw. Symmetriepunkt der Verteilung der Auftrefforte der Ionen auf dem Detektor gewählt. Hier treffen Fragmente mit $p_\perp = 0$ auf. In Fischer [2003] wird die Berechnung des Transversalimpulses p_\perp hergeleitet und es ergibt sich:

$$p_\perp = \left(11.6 \frac{\text{a.u.}}{\sqrt{u \text{ eV}}} \right) \frac{R}{2a} \sqrt{qU \cdot m} \quad (2.31)$$

In Gleichung 2.31 ist R der Auftreffort des Ions in Polarkoordinaten¹, a die Beschleunigungsstrecke im Spektrometer, q der Ladungszustand in Elementarladung e_0 , U die Extraktionsspannung und m die Masse des Ions in u. Die Verteilung der Auftrefforte auf dem Detektor kann aus den orts aufgelösten Detektorbildern bestimmt werden.

¹Wir werden später sehen, dass es für unsere Zwecke ausreicht, den Impuls in einer Richtung senkrecht zur Flugzeitrichtung der Ionen zu bestimmen. Auf die Einführung eines Polarwinkels wird zur Vereinfachung verzichtet.

Verteilung der Auftrefforte auf dem Ionendetektor

Die Bestimmung der Impulsbreite σ_p der Gasteilchen in Jetrichtung erfolgt mit Gleichung 2.31 über die Breite σ_x der Verteilung der Auftrefforte senkrecht zur Flugzeitrichtung der Ionen. Abbildung 2.27 zeigt ein beispielhaftes Detektorbild.

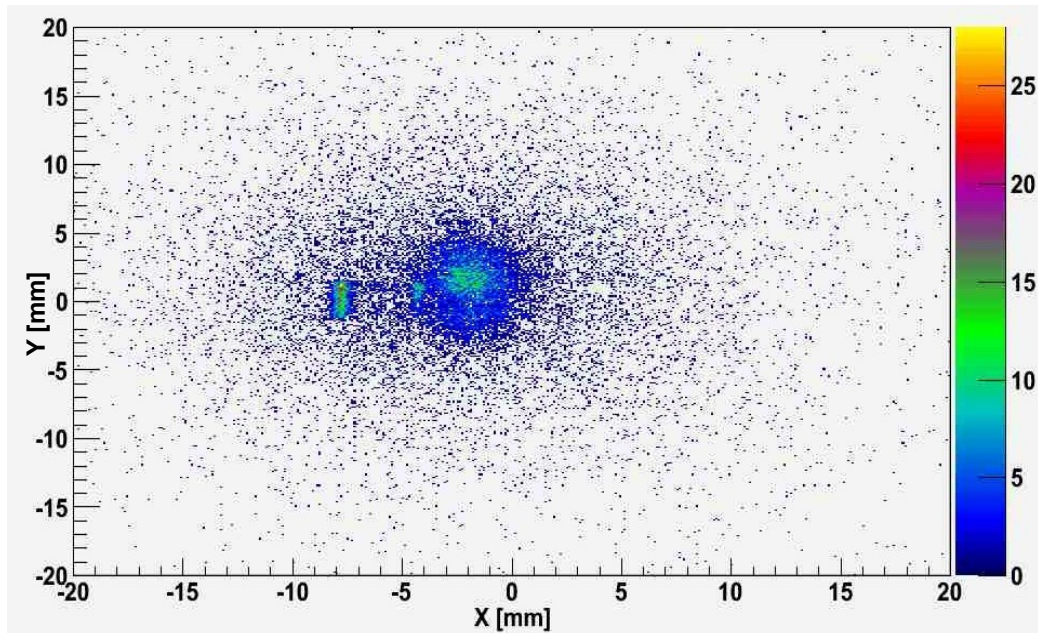


Abbildung 2.27: Ionendetektorbild für $T_0 = 70 \text{ °C}$ und 1 bar Vordruck. Die Farbskala rechts gibt die Anzahl detektierter Ionen an. Die x Koordinate zeigt in Jetrichtung.

Die Ionen aus dem Restgas der Vakuumkammer haben im Vergleich mit Ionen aus dem Jet viel geringere Impulse senkrecht zur Flugzeitrichtung ($p_{\perp} \approx 0 \text{ a.u.}$). Sie landen deshalb bei $x \approx 0 \text{ mm}$ auf dem Detektor. Bei $x \approx -8 \text{ mm}$ treffen die I_2^+ -Ionen auf den Detektor. I_2^+ -Ionen sind die schwersten Ionen im Jet und haben den größten Impuls p_{\perp} ¹ senkrecht zur Flugzeitrichtung und die längste Flugzeit. Dementsprechend landen sie am weitesten vom Auftreffort der Ionen mit $p_{\perp} \approx 0 \text{ a.u.}$ entfernt auf dem Detektor. Auch die Ar^+ -Ionen sind bei $x \approx -4.5 \text{ mm}$ auszumachen. Mit der Darstellung aus Abbildung 2.27 sind aber keine qualitativen Aussagen zur Ortsverteilung der I_2^+ -Ionen auf dem Detektor möglich. Dazu müssen die I_2^+ -Ionen mit einer Zeit- und Ortsbedingung von den anderen Ionen separiert werden. Als

¹Es wird angenommen, dass der Jet vollständig expandiert ist. Alle Jetteilchen haben dann die selbe Geschwindigkeit.

Zeitbedingung wählen wir das Flugzeitfenster 9140 - 9180 ns (vergleiche Abschnitt 2.6.1), für den Ort $x_{min} = -10$ mm bis $x_{max} = -5$ mm und $y_{min} = -3$ mm bis $y_{max} = 4$ mm. Dann schaut man die projizierte Verteilung in Jetrichtung (x-Koordinate)¹ an. Es ergibt sich eine Verteilung der I_2^+ -Ionen in Abhängigkeit vom Auftreffort in Richtung x, wie sie beispielhaft in Abbildung 2.28 zu sehen ist.

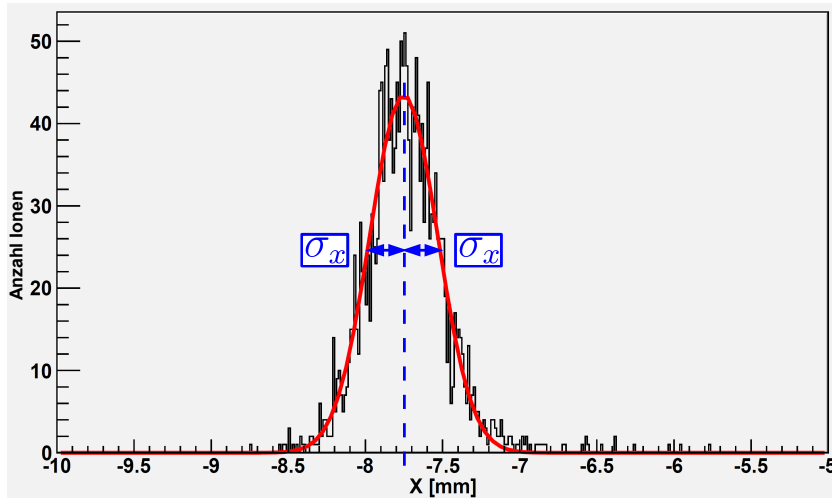


Abbildung 2.28: Verteilung der Häufigkeit der I_2^+ -Ionen in x-Richtung (Jetrichtung) auf dem Detektor mit Orts- und Zeitbedingung. Es wird die Messung mit $T_0 = 70$ °C und 1 bar Vordruck gezeigt. Rot eingezeichnet ist ein Gaußfit zur Bestimmung der Breite σ_x der Verteilung.

Die Bestimmung der Breite der Ortsverteilung σ_x wird wie in Abbildung 2.28 skizziert für alle Messungen ($p_0 = 1 - 5$ bar und $T_0 = 70 - 150$ °C) mittels Gaußfit durchgeführt. Mit Gleichung 2.31 kann damit die Breite der Impulsverteilung σ_p der Gasteilchen in Jetrichtung berechnet werden.

Berechnung Jettemperatur

Nun gilt es, einen Zusammenhang zwischen Impulsbreite σ_p in Jetrichtung und Jettemperatur $T_{||}$ zu finden. Dabei geht man zunächst von einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung der thermischen Geschwindigkeiten der Gasteilchen im Jet aus:

$$P(v_x) = \frac{1}{\sigma_v \sqrt{2\pi}} \exp\left(-\frac{mv_x^2}{k_B T_{||}}\right) = \sqrt{\frac{m}{2\pi k_B T_{||}}} \exp\left(-\frac{mv_x^2}{k_B T_{||}}\right) \quad (2.32)$$

¹Die Näherung, dass der Jet exakt parallel zur x-Koordinate des Detektorbildes ist, ist gut erfüllt.

Gleichung 2.32 beschreibt die thermische Geschwindigkeitsverteilung $P(v_x)$ der Gas-
teilchen mit Masse m und Temperatur $T_{||}$ in Jetrichtung. $k_B = 1.38 \cdot 10^{-23}$ J/K ist die
Boltzmann-Konstante. Die Breite σ_v der Verteilung ist nach Gleichung 2.32 gerade:

$$\sigma_v = \sqrt{\frac{kT_{||}}{m}} \quad (2.33)$$

Mit der Breite σ_p der Impulsverteilung ist σ_v über die Masse m verknüpft:

$$\sigma_p = m \cdot \sigma_v = \sqrt{k \cdot T_{||} \cdot m} \quad (2.34)$$

Formt man Gleichung 2.34 nach $T_{||}$ um, dann erhält man die Temperatur der Gas-
teilchen in Jetrichtung.

$$T_{||} = \frac{\sigma_p^2}{k_B m} \quad (2.35)$$

Temperatur in Jetrichtung

Nach den soeben erarbeiteten Methoden wird die Temperatur der Iodmoleküle in
Jetrichtung aus der Breite der Ortsverteilung der I_2^+ -Ionen für die komplette Argon-
messreihe bestimmt. Abbildung 2.29 zeigt einen Plot der Jettemperatur $T_{||}$ gegen
die Reservoirtemperatur T_0 für Vordrücke von 1 - 5 bar.

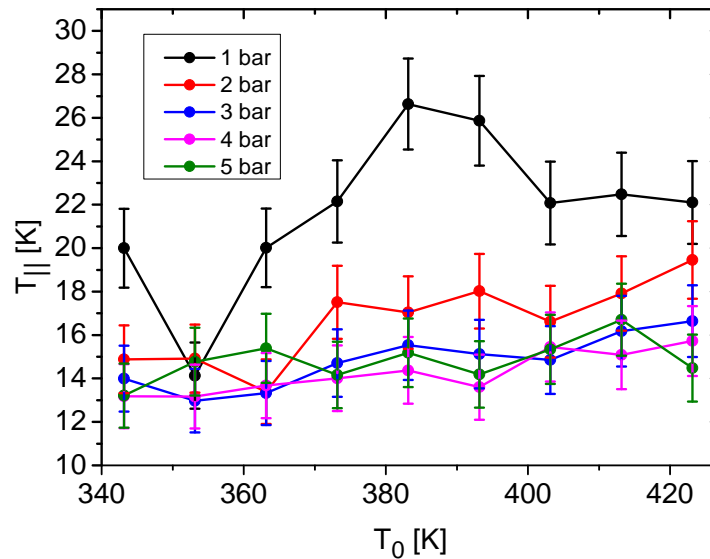


Abbildung 2.29: Temperatur $T_{||}$ der Iodmoleküle in Jetrichtung gegen die Reservoir-
temperatur T_0 für Vordrücke von 1 - 5 bar.

Die Messreihe für 1 bar Vordruck (schwarz) zeigt einen unerwarteten Verlauf. Wir wollen uns erstmal auf die Messreihen für 2 - 5 bar konzentrieren (siehe Abbildung 2.30).

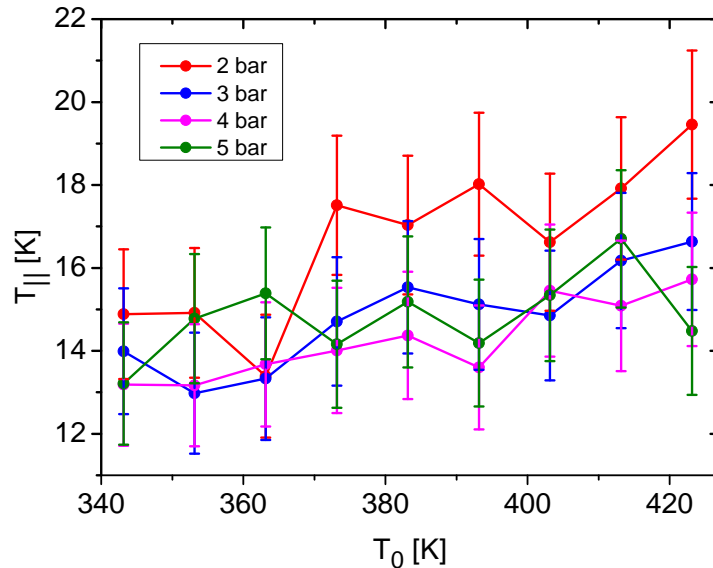


Abbildung 2.30: Temperatur $T_{||}$ der Iodmoleküle in Jetrichtung gegen die Reservoirtemperatur T_0 für Vordrücke von 2 - 5 bar.

Innerhalb der Fehlerbereiche kann man die Tendenz erkennen, dass mit zunehmender Reservoirtemperatur T_0 auch die Jettemperatur $T_{||}$ zunimmt. Nun gilt es herauszufinden, welcher Zusammenhang zwischen den variierten Größen Reservoirtemperatur T_0 und Vordruck p_0 und der Jettemperatur $T_{||}$ besteht. Dabei spielt das Speedratio S eine Rolle. Dieses wurde in Abschnitt 2.3 in Gleichung 2.22 definiert als:

$$S = \frac{v_{Jet}}{v_{therm}} = \sqrt{\frac{\gamma T_0}{\gamma - 1 T_{||}}} \quad (2.36)$$

Gleichung 2.36 gilt für einen reinen Gasjet. Wir betrachten aber ein Gasgemisch und definieren das Speedratio S^* wie folgt:

$$S^* = \sqrt{c \frac{T_0}{T_{||}}} \quad (2.37)$$

Dabei bezeichnet c eine Konstante, die berücksichtigt, dass ein Gasgemisch vorliegt. c hängt also vom Mischungsverhältnis und dem Adiabatenexponenten der Gasteilchen ab. Für die Jettemperatur $T_{||}$ gilt damit:

$$T_{\parallel} = c \frac{T_0}{(S^*)^2} \quad (2.38)$$

Wie wir aus Abbildung 2.29 entnehmen, hängt die Jettemperatur T_{\parallel} auch vom Vordruck p_0 ab. Das Speedratio S ist sowohl eine Funktion von p_0 als auch T_0 . Aus Abschnitt 2.3 ist bekannt:

$$S = A \left(\sqrt{2} \frac{p_0 d}{k_B T_0} \left(\frac{53 C_6}{k_B T_0} \right)^{1/3} \right)^B \quad (2.39)$$

Die Konstanten A , C_6 und B sind gasspezifisch. Für ein Gasgemisch sind sie nicht bekannt. Wir vereinfachen Gleichung 2.39 in dem Sinne, dass alle bekannten und unbekannt Konstanten bis auf B in einer Konstanten K zusammengefasst werden. Somit gilt für das Speedratio S^* :

$$S^* = K \left(\frac{p_0}{T_0^{4/3}} \right)^B \quad (2.40)$$

Setzt man S^* aus Gleichung 2.40 in Gleichung 2.38 ein und formt um, so erhält man:

$$T_{\parallel} = \frac{c}{K^2} \frac{T_0^{(1+8/3 \cdot B)}}{p_0^{2B}} \quad (2.41)$$

Da $B > 0$ ergibt sich, dass wie in Abbildung 2.29 beobachtet, bei konstantem Druck und steigender Reservoirtemperatur T_0 die Jettemperatur T_{\parallel} steigt. Welchem Potenzgesetz diese Abhängigkeit folgt, ist schwer abzuschätzen, da ein Gasgemisch betrachtet wird. Das Mischungsverhältnis von Iod und Argon wird vom Vordruck p_0 und der Reservoirtemperatur T_0 beeinflusst, was sich auf die Konstanten c , K und B auswirkt. Der Vordruck p_0 und v.a. die Reservoirtemperatur T_0 sind ihrerseits mit großen Unsicherheiten behaftet.

Festzuhalten bleibt, dass die Jettemperatur T_{\parallel} wie erwartet von der Reservoirtemperatur T_0 abhängt, aufgrund der vielen Einflussfaktoren aber keine eindeutige Gesetzmäßigkeit festgestellt werden kann. Es muss auch beachtet werden, dass die Reservoirtemperatur in einem Bereich von ~ 340 K bis ~ 420 K variiert wird. Der Druck wird von 1 bar auf 5 bar, also relativ zur Temperatur in einem viel größeren Bereich, erhöht. Dieser stärkere Einfluss auf T_{\parallel} im betrachteten Messbereich ist in Abbildung 2.29 erkennbar und wird in Abbildung 2.31 deutlich.

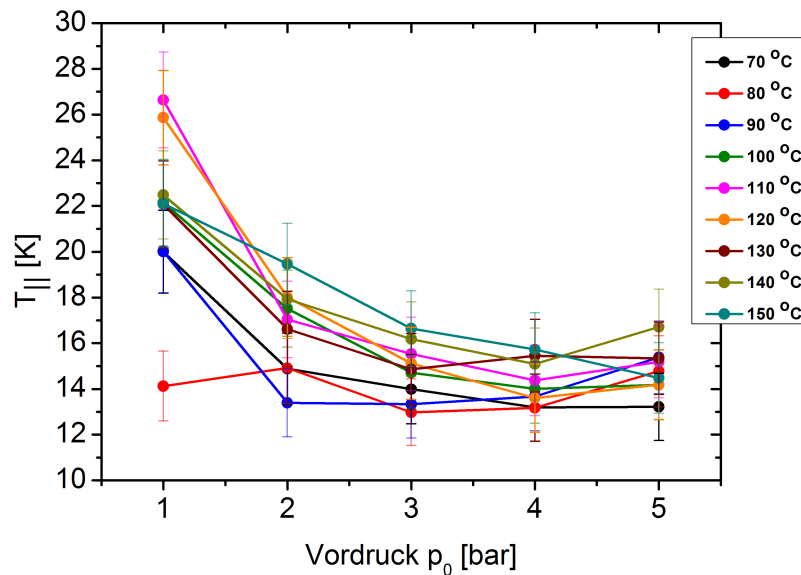


Abbildung 2.31: Temperatur in Jetrichtung $T_{||}$ als Funktion des Vordrucks p_0 für $T_0 = 70 - 150$ ° C.

Nach Gleichung 2.41 ist eine Abnahme der Jettemperatur mit steigendem Druck zu erwarten. Dies wird in Abbildung 2.31 bestätigt. Eine eindeutige Gesetzmäßigkeit ist aus den Messdaten nicht abzuleiten.

Wie in den Abschnitten 2.6.2 und 2.6.2 erarbeitet, nimmt mit steigender Reservoirtemperatur T_0 und geringem Vordruck p_0 die Iodtargetdichte zu. Dies ist erfreulich, da Iod gemessen werden soll. Die Zunahme der Jettemperatur $T_{||}$ mit steigender Reservoirtemperatur T_0 ist hingegen ein unerwünschter, negativer Effekt. Um diesem Rechnung zu tragen, soll nun untersucht werden, wie groß dieser Effekt ist und ob ein optimales Verhältnis zwischen Jettemperatur und Iodtargetdichte erzielt werden kann. Zu diesem Zweck wird die Größe

$$\kappa = \frac{n(\text{I}_2^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)}{T_{||}} \left[\frac{1}{\text{K}} \right] \quad (2.42)$$

definiert.

$n(\text{I}_2^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)$ ist ein Maß für die Iodtargetdichte, respektive für das gemessene absolute Iodsignal. Ein hoher Wert von κ bedeutet demnach ein gutes Verhältnis von Iodtargetdichte zu Jettemperatur.

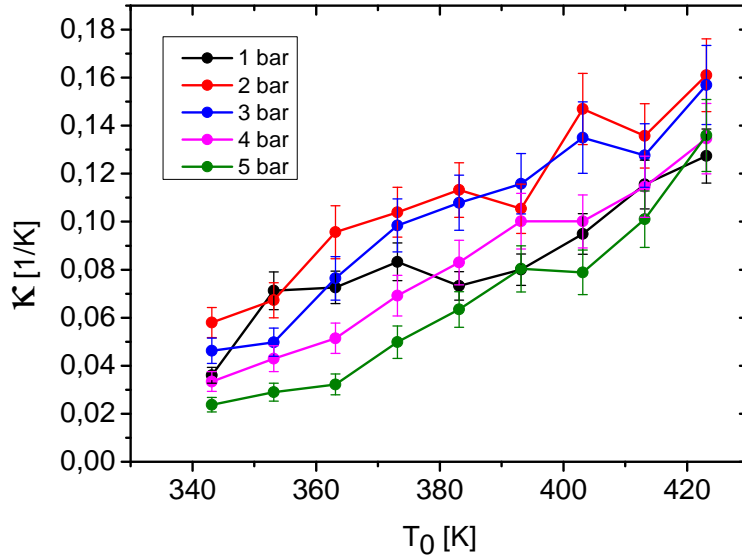


Abbildung 2.32: κ für Vordrücke von 1 - 5 bar als Funktion von T_0 .

In Abbildung 2.32 ist ein Anstieg von κ mit steigender Reservoirtemperatur T_0 für alle Vordrücke auszumachen. Dies bedeutet, dass die Jettemperaturzunahme im Vergleich zur Iodsignalzunahme ein kleinerer Effekt ist. Das ist nicht verwunderlich, da $n(\text{I}_2^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)$ sich im Temperaturbereich ~ 340 K bis ~ 420 K relativ um ungefähr 75 % ändert, wohingegen T_{\parallel} sich in diesem Bereich nur um maximal 20 % ändert. Bis auf die Kurve für 1 bar (schwarz) nimmt κ mit sinkendem Vordruck zu. Das liegt daran, dass bei niedrigen Vordrücken die höchsten Iodsignale gemessen wurden (siehe Abbildung 2.23). Dass die Messung für 1 bar nicht dieser Tendenz folgt, liegt an der hohen Jettemperatur dieser Messung (vergleiche Abbildung 2.29).

Wir haben festgestellt, dass die beobachtete Peakverbreiterung der I_2^+ -Ionen im TOF-Spektrum auf die Zunahme der longitudinalen Jettemperatur zurückzuführen ist. Der Vergleich von Iodsignal zu Temperaturzunahme durch die Größe κ hat gezeigt, dass dieser Effekt im Bezug auf eine höhere Iodtargetdichte in Kauf genommen werden kann.

Jetgeschwindigkeit

In den theoretischen Betrachtungen zum Gasjet in Abschnitt 2.3 wurde auch die Jetgeschwindigkeit v_{Jet} als charakteristische Größe eingeführt. Mit der Kenntnis der Auftrefforte der Ionen auf dem Detektor ist es möglich, die Jetgeschwindigkeit abzuschätzen. Dabei wird angenommen, dass sich die Geschwindigkeit aller Gasteilchen im Jet nach der Überschallexpansion angeglichen hat. Der Impuls p_x eines Ions nach der Reaktion, senkrecht zur Flugzeitrichtung, berechnet sich mit:

$$p_x = m \cdot \frac{x}{t} - p_{Jet} \quad (2.43)$$

Hierbei wird wieder angenommen, dass die Jetrichtung in guter Näherung exakt parallel zur x-Koordinate des Detektorbilds ist. Formt man Gleichung 2.43 um, so erhält man für den Auftreffort x des Ions der Masse m und Flugzeit t :

$$x = \frac{p_x + p_{Jet}}{m} \cdot t \quad (2.44)$$

In guter Näherung ist $p_{Jet} \gg p_x$ und für Ionen, die diese Bedingung erfüllen, gilt:

$$x_0 = \frac{p_{Jet}}{m} \cdot t = \frac{m \cdot v_{Jet}}{m} \cdot t = v_{Jet} \cdot t \quad (2.45)$$

Die Jetgeschwindigkeit lässt sich dann mit

$$v_{Jet} = \frac{x_{Iod} - x_{Ar}}{t_{Iod} - t_{Ar}} \quad (2.46)$$

bestimmen.

In Gleichung 2.46 ist x_{Iod} der Auftreffort der I_2^+ -Ionen in x-Richtung, x_{Ar} der Auftreffort der Ar^+ -Ionen in x-Richtung, $t_{Iod} = 9146$ ns die Flugzeit der I_2^+ -Ionen und $t_{Ar} = 3630$ ns die Flugzeit der Ar^+ -Ionen. Abbildung 2.33 zeigt ein beispielhaftes Detektorbild.

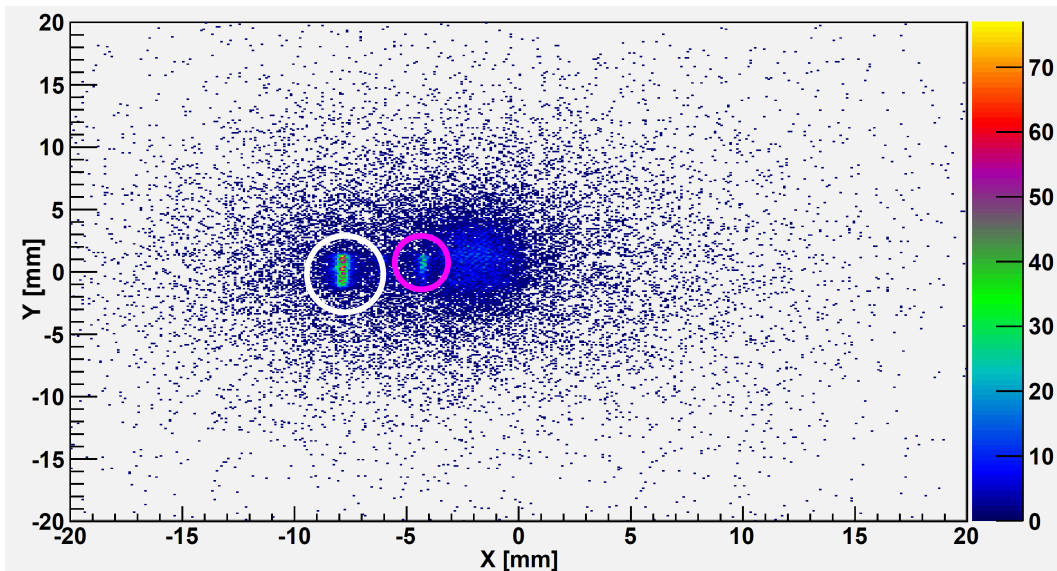


Abbildung 2.33: Ionendetektorbild der Messung für $T_0 = 150 \text{ °C}$ und $p_0 = 5 \text{ bar}$.
 Weißer Kreis: Auftrefforte der I_2^+ -Ionen. Magentafarbener Kreis:
 Auftrefforte der Ar^+ -Ionen.

Der weiße Kreis markiert den Auftreffort der I_2^+ -Ionen, der magentafarbene den der Ar^+ -Ionen. Die Bestimmung der Auftrefforte der Ionen aus Detektorbildern wie Abbildung 2.33 ist zu ungenau. Deshalb werden, wie in Abschnitt 2.6.2 kennengelernt, 2-dimensionale Spektren mit Zeit- und Ortsbedingung für die Auftrefforte der I_2^+ - und Ar^+ -Ionen erstellt. Aus diesen wird mittels Gaußfit der Auftreffort bestimmt. Diese Prozedur ist beispielhaft in Abbildung 2.34 gezeigt.

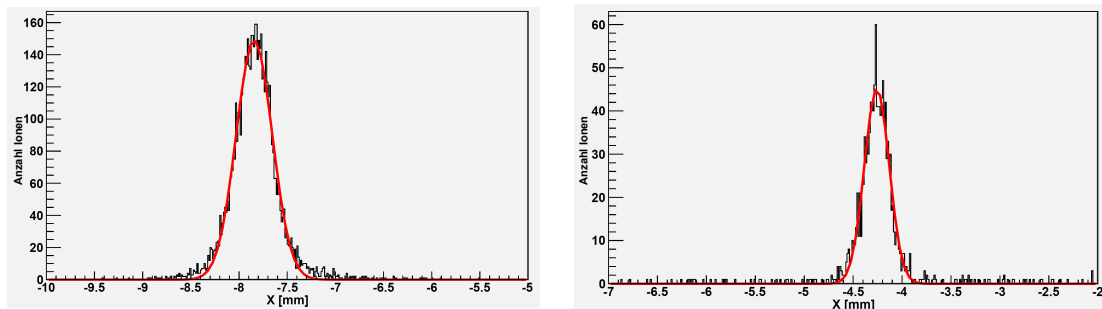


Abbildung 2.34: Bestimmung der Auftrefforte von I_2^+ -Ionen (links) und Ar^+ -Ionen
 (rechts) mittels Gaußfit (rot). Beispielhaft für $T_0 = 150 \text{ °C}$ und
 $p_0 = 5 \text{ bar}$.

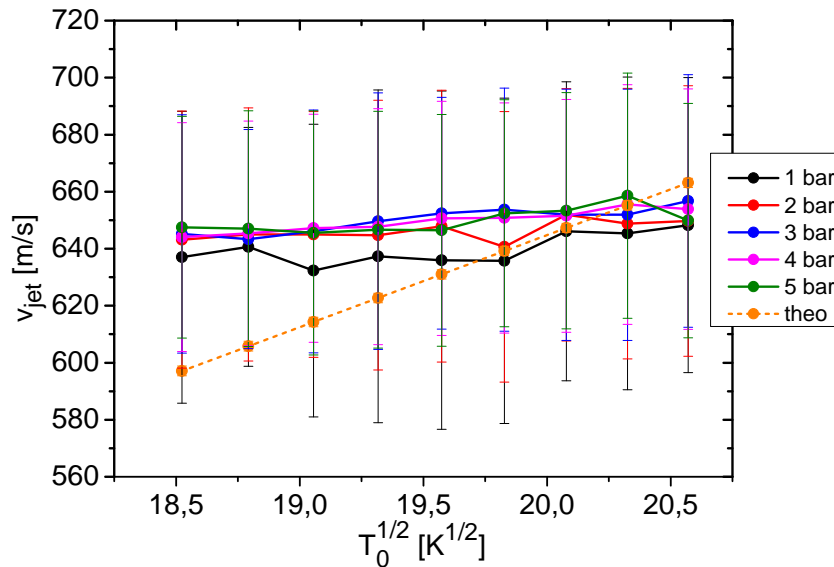


Abbildung 2.35: Jetgeschwindigkeit v_{Jet} gegen die Wurzel der Reservoirtemperatur $\sqrt{T_0}$ für Drücke von 1 - 5 bar. Orange-gestrichelt eingezeichnet ist die errechnete maximale Jettemperatur für einen reinen Argonjet.

Aus Abbildung 2.35 entnimmt man, dass die Jetgeschwindigkeit innerhalb des Fehlerbereichs für alle Einstellungen als konstant angenommen werden kann. Die Druckunabhängigkeit ist nach Gleichung 2.21 aus Abschnitt 2.3 so zu erwarten, denn es gilt:

$$v_{Jet} = \sqrt{\frac{2k_B T_0}{m} \frac{\gamma}{\gamma - 1}} \quad (2.47)$$

Allerdings erwartet man nach Gleichung 2.47 eine Abhängigkeit zur Wurzel der Reservoirtemperatur. Diese ist in Abbildung 2.35 nicht erkennbar, innerhalb des Fehlerbereichs aber nicht auszuschließen. Die orange-gestrichelt eingezeichnete theoretisch maximale Jettemperatur für einen reinen Argonjet liegt im Fehlerbereich der Messwerte. Dass die gemessene Jetgeschwindigkeit im Bereich der zu erwartenden Jetgeschwindigkeit eines reinen Argonjets liegt, ist nicht verwunderlich, da sich die Geschwindigkeiten aller Gasteilchen des Jets im Kontinuumslimit angleichen. Argon ist Trägergas. Dementsprechend passt sich die Jetgeschwindigkeit aller Gasteilchen im Jet der Trägergasgeschwindigkeit an. Auf diese Weise können schwere Gase mit einem leichten Trägergas beschleunigt werden.

2.6.3 Neon

Nach Argon wird als nächstes Trägergas Neon getestet. Neon kann mit dem vorhandenen IR-Laser nicht ionisiert werden. Dementsprechend kann nicht analog zu Abschnitt 2.6.2 das Verhältnis zwischen I_2^+ -Signal und Trägergassignal verglichen werden. Der Wasserhintergrund ist aber nach wie vor in den TOF-Spektren erkennbar und mit dem Verhältnis $n(I_2^+)/n(H_2O^+)$ ist ein Maß für die Iodmenge im Reaktionsvolumen gegeben. Es wurden Messungen bei 5 bar Vordruck und Reservoirtemperaturen von 100 – 150 °C durchgeführt. Die Datenaufnahmezeit betrug pro Messung 5 min. Der hohe Vordruck wurde gewählt, da es bei dieser Messreihe Anzeichen für Probleme mit der Düse gab. Erste Indizien waren der Druck in der ersten Jetstufe und die Drücke im Jet Dump. Bei Vordrücken von 1 - 4 bar konnte kein merklicher Jet erzeugt werden. Erst ab 5 bar Vordruck wurden Targetionensignale gemessen. Der Druck in der ersten Jetstufe betrug dabei $p_{Jet1} \approx 1 \cdot 10^{-5}$ mbar. Üblich sind Werte im 10^{-4} mbar Bereich. Auch im Jet Dump wurde bei geöffnetem Jet keine wesentliche Druckzunahme registriert. Die Drücke im Jet Dump 1 und 2 liegen ohne Jet im 10^{-10} mbar Bereich. Bei offenem Jet geht der Druck im Jet Dump normalerweise um ca. 1 - 2 Größenordnungen nach oben. Das war nicht der Fall. Die Drücke in Jet Dump 1 und 2 wurden mit $p_{Dump1} = 1 \cdot 10^{-10}$ mbar und $p_{Dump2} = 2.7 \cdot 10^{-10}$ mbar gemessen und dies bei 5 bar Vordruck. Die Druckabnahme in der ersten Jetstufe und im Jet Dump sprechen dafür, dass die Düse verstopft ist und weniger Target in die Reaktionskammer gelangt. Zur Manifestierung dieser These wird nun das gemessene $n(I_2^+)/n(H_2O^+)$ -Verhältnis für Neon mit dem von Argon bei 5 bar Vordruck verglichen.

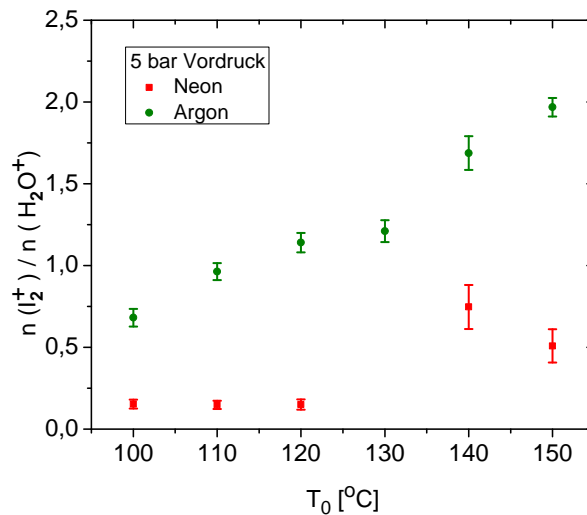


Abbildung 2.36: Vergleich von $n(I_2^+)/n(H_2O^+)$ für Argon (grün) und Neon (rot) bei 5 bar Vordruck im Temperaturbereich 100 – 150 °C.

Abbildung 2.36 zeigt für Argon die bekannte Temperaturabhängigkeit vom I_2^+ -zu- H_2O^+ -Verhältnis. Für die Messung bei $T_0 = 130$ °C lagen bei Neon keine Daten vor. Die Werte von $n(I_2^+)/n(H_2O^+)$ mit Neon als Trägergas liegen für alle Temperaturen deutlich unter den entsprechenden mit Argon. Es gelangt weniger Target ins Reaktionsvolumen. Dies spricht neben den beobachteten Drücken ebenfalls für eine Verstopfung der Düse.

2.6.4 Helium

Obwohl bei den Messungen mit Neon bereits erste Anzeichen für Probleme mit der Düse erkennbar waren, wurde zur Vollständigkeit Helium als Trägergas getestet. Auch Helium kann mit dem vorhandenen IR-Laser nicht ionisiert werden. Der Wasserhintergrund ist aber nach wie vor in den Flugzeitspektren vorhanden. Es wurden Messungen bei 4 bar Vordruck und Temperaturen von 80 – 100 °C durchgeführt. Die Datenaufnahmezeit betrug pro Messung 5 min.

Bei $T_0 = 80$ °C beträgt $n(I_2^+)/n(H_2O^+) \approx 0.9$, bei $T_0 = 90$ °C hingegen nur noch $n(I_2^+)/n(H_2O^+) \approx 0.5$. Das ist unerwartet, da wir bei Argon gesehen haben, dass $n(I_2^+)/n(H_2O^+)$ mit der Temperatur zunimmt. Bei $T_0 = 100$ °C sind die I_2^+ - und H_2O^+ -Peaks im TOF-Spektrum nicht mehr vorhanden. Es wurden keine Ionen detektiert. Alle folgenden Messungen lieferten keine Ionensignale mehr. Der Druck in der ersten Jetstufe nahm sogar im Jetbetrieb ab, ebenso die Drücke im Jet Dump. Heizen der Düse mit der Halogenlampe auf bis zu 100 °C behob das Problem nicht. Die Düse musste für genauere Untersuchungen ausgebaut werden.

2.6.5 Verstopfte Düse

Reinigung der Düse

Bevor ein neues Platinplättchen eingebaut wurde, wurde versucht, die Düse auf anderem Wege frei zu bekommen. Da Iod gut in Ethanol löslich ist, wurde der komplette Vorderteil der Düse (etwa so, dass der Kupferblock bis zur Hälfte in Ethanol steht, siehe Abbildung 2.9 in Abschnitt 2.3) senkrecht in ein Ethanolbad getaucht. Zusätzlich wurde von oben Ethanol eingespritzt. Als nächstes wurde die Indium Dichtung unter die Lupe genommen. Hier zeigte sich, dass es nicht flüssiges Indium war, das die Düse verstopft hat. Der Indiumdichtring war noch gut erkennbar. Die Düse wurde wieder eingebaut und das Experiment in Betrieb genommen. Es stellte sich heraus, dass die Reinigungsaktion das Problem noch verstärkt hat. Nun wurde in Jetstufe 1 einen Druck von $\approx 10^{-7}$ mbar bei einem Injektionsdruck (Argon) von ≈ 5 bar erreicht. Die Turbomolekularpumpen in Jetstufe 1 zogen nicht mehr Leistung als im Ruhebetrieb. Dies konnte als Indiz gewertet werden, dass tatsächlich die Düse und nicht der erste Skimmer verstopft war. Wäre dies der Fall, müssten

die Turbomolekularpumpen mehr arbeiten, da sich der Gasjet in Jetstufe 1 stauen würde. Da die erste Reinigungsaktion ohne Erfolg blieb, wurde die Düse komplett aus dem Manipulator ausgebaut und ein neues Platinplättchen samt Bleidichtung (höherer Schmelzpunkt als Indium) eingesetzt. Zuvor wurde das komplette Düseninnenrohr (siehe (8) in Abbildung 2.9 in Abschnitt 2.3) mit Ethanol und Druckluft gereinigt. Dabei wurde sehr viel Iod ausgespült. Auch die Zuleitung vom Reservoir zum Reaktionsmikroskop war voller Iod. Mit der gereinigten und neu aufgebauten Düse ließ sich wieder ein Gasjet erzeugen. Allerdings wurde dies nur für Argon getestet, da bei weiterem Betrieb mit Iod ein erneutes Verstopfen der Düse befürchtet wurde. Weitere Testmessungen waren mit der vorhandenen Düse nicht möglich.

Ursachen

Dass die Düse schon nach zwei Messtagen nicht mehr funktionstüchtig war, war im Hinblick auf die Strahlzeit am FLASH ein schlechtes Ergebnis. Die Verstopfung wird nach obiger Analyse direkt vorne an der Öffnung des Platinplättchens oder im Düseninnenrohr vermutet. Beim (schnellen) Abkühlen der Düse und des Reservoirs wird gasförmiges Iod wieder fest und lagert sich ab. So kann es zu Verstopfungen durch festes Iod kommen. Die Heizleistung der Halogenlampe reicht nicht aus, um diese durch Abdampfen wieder zu lösen. Vielmehr wird eine Düse benötigt, die homogen hoch erhitzt werden kann.

Homogen heizbare Düse

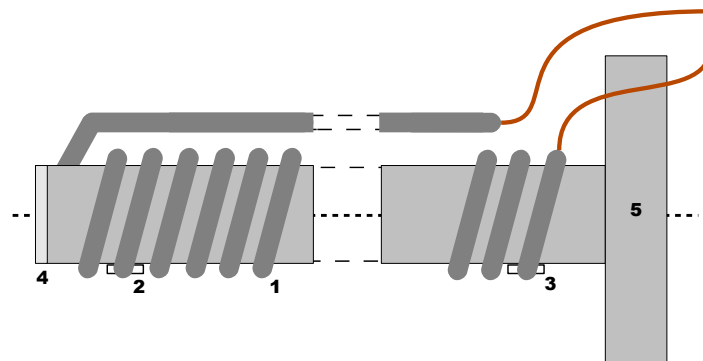


Abbildung 2.37: Seitenansicht der heizbaren Düse. Über ein Edelstahlrohr (Außendurchmesser ca. 1.5 cm, Länge ca. 30 cm) ist eine Heizspirale (dunkelgrau, 1) gestülpt. Braun: Stromanschlüsse der Heizspirale. 2 und 3: Thermoelemente. 5: CF35 Flansch. 4: hellgrau: Halteringe für Dichtung und Platinplättchen mit 30 μm Öffnung. Fein gestrichelt: Symmetrieachse.

Nach Schilderung der Sachlage wurde von Dr. Claus-Dieter Schröter eine komplett heizbare Düse entwickelt. Das homogene Heizen des Düsenrohrs geschieht mit einer Heizspirale (1, dunkelgrau). Die Thermoelemente (2 und 3) ermöglichen die Temperaturüberwachung an beiden Enden des Düsenrohrs. Die Heizspirale kann mit Strömen bis zu 1 A betrieben werden.

3 Messung am FLASH

Bei der Messung am FLASH wurde die Mehrfachionisation von I_2 -Molekülen untersucht. Dabei wurden zwei Messungen durchgeführt. In der ersten Messung wurde die Mehrfachionisation von Iodmolekülen, ausgelöst durch XUV-Strahlung des FLASH, untersucht. Der FEL wurde dazu bei einer Wellenlänge von 14.1 nm ($\hbar\omega = 88$ eV) betrieben. In der zweiten Messung wurden die Iodmoleküle sowohl den XUV Pulsen des FLASH als auch den IR-Pulsen eines zusätzlichen Titan-Saphir-Lasers (Pulslänge ~ 100 fs, Wellenlänge 800 nm) ausgesetzt. Ergebnisse der beiden Messungen werden in Abschnitt 3.3 analysiert.

Die Kombination von FEL- mit IR-Pulsen eröffnet die Möglichkeit, die Dynamik der Dissoziation der Iodmoleküle in einer Pump-Probe-Messung zu untersuchen (Abschnitt 3.4). Mit Hilfe eines Autokorrelators wurde hierbei der Ankunftszeitpunkt der beiden jeweiligen Pulse im Target relativ zueinander variiert. Die maximale Zeitdifferenz zwischen XUV- und IR-Puls betrug dabei ~ 20 ps.

3.1 Experimentelle Rahmenbedingungen

Für die Messung wurde die komplett heizbare Düse (siehe Abschnitt 2.6.5) eingesetzt. Als Trägergas wurde Helium verwendet. Helium besitzt bei der gewählten Photonenenergie von 88 eV den kleinsten Wirkungsquerschnitt der getesteten Targetgase. Außerdem haben Heliumionen ein wesentlich geringeres Masse-zu-Ladungsverhältnis als Iodionen und besitzen dementsprechend deutlich geringere Flugzeiten als die Iodfragmente. Im Flugzeitfenster der Iodionen sind somit keine Heliumionen zu erwarten, welche bei der Datenanalyse störend sein könnten. Der Vordruck der Düse wurde nach den Testergebnissen in Heidelberg bei niedrigen Drücken ($p_0 \approx 1$ bar) gehalten. Um zu vermeiden, dass sich Iod an den Leitungswänden des Iodverdampfungssystems, insbesondere beim Abkühlen, anlagert, wird das Iodreservoir als Kältefalle eingesetzt. Dazu werden die Leitungen höher geheizt ($\sim 100 - 110$ °C), als das Iodreservoir (~ 60 °C). Die Düse wurde auf ~ 150 °C geheizt, um Verstopfungen mit Iod zu verhindern.

Die Betriebsparameter des FLASH während der Messung sind in nachfolgender Tabelle zusammengefasst.

FEL-Parameter	
Anzahl Elektronen-Bunches	30
Ladung	0.5 nC
Bunch Repetitionsrate	100 kHz
Energie	683 MeV
Wellenlänge	14.1 nm
Photonenenergie	88 eV
Pulsenergie	$\sim 30 \mu\text{J}$
Pulsdauer	$\sim 150 \text{ fs}$

Der zusätzliche Titan-Saphir-Laser erzeugt bei einer Wellenlänge von 800 nm Pulse einer Dauer von $\sim 100 \text{ fs}$.

3.2 Physikalische Motivation

Die Photodissoziation von Iodmolekülen wurde in früheren Experimenten bei Wellenlängen im sichtbaren und infraroten Regime untersucht [Stapelfeldt et al., 1998] [Larsen et al., 1998]. Wegen der relativ hohen Masse von Iodatomen ($m_{\text{Iod}} = 127 \text{ u}$) beträgt die Schwingungsperiode von Iodmolekülen $\sim 300 \text{ fs}$ und die Dissoziationszeit einige 100 fs [Larsen et al., 1998]. Geht man von einer Zeitauflösung von etwa 100 fs, die zum einen durch die Dauer der verwendeten Pulse und zum anderen durch die erreichbare Genauigkeit bei der Synchronisation begrenzt wird [Azima et al., 2009], kann die Dissoziation von I_2 gut aufgelöst werden. Eine weitere interessante Eigenschaft von Iod ist, dass es viele Gemeinsamkeiten mit Xenon bezüglich Anregung und Wirkungsquerschnitten im XUV aufweist. Experimente zur Mehrfachionisation von Edelgasen durch XUV-Strahlung wurden von Richter et al. [2009] an FLASH durchgeführt. Dabei wurden bis zu 21-fach geladene Xenonionen gemessen, wozu bei der in diesem Experiment verwendeten Wellenlänge (13 nm, 93 eV) die Absorption von ~ 60 XUV Photonen notwendig ist. Vergleicht man dies mit der Mehrfachionisation anderer Edelgase bei der gleichen Wellenlänge, so zeigt sich, dass die Einkopplung der Strahlungsenergie bei Xenon deutlich effektiver ist. Die Ursache hierfür ist bisher noch unklar. Im Regime von Photonenergien um 90 eV wird vermutet, dass eine sogenannte „giant resonance“ in Xenon für die gleichzeitige Emission mehrerer Elektronen der 4d Schale verantwortlich ist.

Im hier diskutierten Experiment soll deshalb die XUV Photoionisation von dissoziierenden I_2^+ -Molekülen nach Anregung mit einem IR-Puls untersucht werden. Dabei stehen folgende physikalischen Aspekte im Fokus der Untersuchung:

Wie für Xenon beobachtet, sorgt ein hoher Absorptionswirkungsquerschnitt um 90 eV auch bei Iod für die Erzeugung hoher Ladungszustände in intensiver XUV-Strahlung. Die Entstehung dieser hohen Ladungszustände wird in Abhängigkeit der

Zeitverzögerung zwischen Pump- und Probe-Puls gemessen. Die Zeitverzögerung korrespondiert hierbei zum internuklearen Abstand der Atome des dissozierenden Moleküls.

Weniger intensive FEL-Pulse mit 90 eV erzeugen mit hoher Wahrscheinlichkeit innere Elektronenlöcher. Diese Löcher werden unter Emission von Augerelektronen gefüllt. Das Spektrum der Augerelektronen enthält Informationen zur elektronischen Konfiguration des dissozierenden Moleküls.

Ein zeitverzögerter FEL-Puls mit schwacher Intensität ionisiert das angeregte Molekül. Die durch Coulomb-Explosion entstandenen Ionen enthalten Informationen über die Orientierung und den internuklearen Abstand des Moleküls zum Zeitpunkt der Reaktion.

Vorteile FEL

Kurze und intensive Lichtpulse lassen sich auch mit anderen Strahlungsquellen erzeugen. Die Pulsdauer alleine ist daher nicht der Grund, warum für dieses Experiment Strahlung eines FELs benötigt wird.

Entscheidend ist, dass abstimmbare Photonenenergien im XUV-Bereich benötigt werden. Wie in Abschnitt bereits erwähnt, sorgt ein hoher Absorptionswirkungsquerschnitt um 90 eV Photonenenergie für die Entstehung innerer Elektronenlöcher (4d Schale). Mit einem FEL können einzelne Photonen mit 90 eV erzeugt werden, mit dem Vorteil, dass die Absorption eines einzelnen Photons das System weniger stört, als die Absorption mehrerer niederenergetischer Photonen. Die Ionisation eines Elektrons der 4d Schale durch Multiphotonenionisation vieler niederenergetischer Photonen ist zudem sehr unwahrscheinlich. Elektronen äußerer Schalen sind weniger stark gebunden als die innerer. Bei Multiphotonenionisation ist der Wirkungsquerschnitt für äußere Elektronen daher größer. Diese werden bevorzugt ionisiert, bevor es zur Ionisation innerer Schalen kommt. In einem reinen IR/IR Pump-Probe-Experiment, z.B. mit dem Titan-Saphir-Laser der Testmessungen (1.55 eV Photonenenergie, siehe Abschnitt 2.5.4), lassen sich, selbst bei sehr hohen Intensitäten, die zu studierenden physikalischen Effekte nur schwer bzw. gar nicht beobachten.

3.3 Mehrfachionisation von I_2 -Molekülen

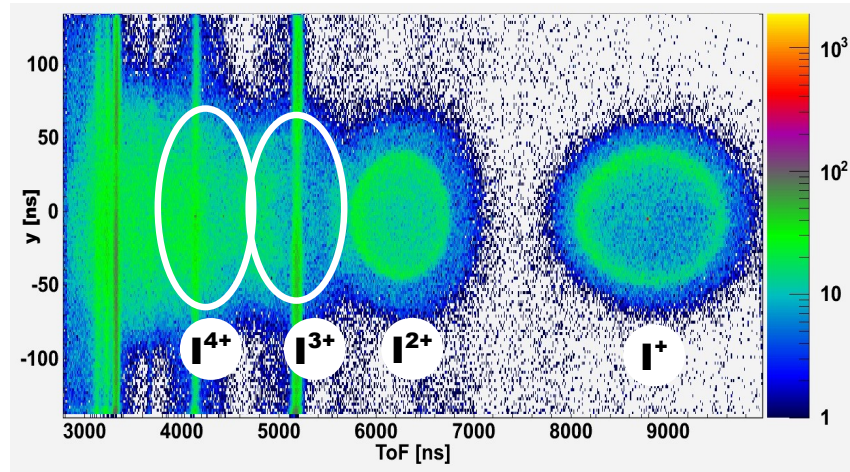


Abbildung 3.1: Nur FEL-Puls. Häufigkeit der Auftrefforte der Ionen auf dem Detektor in Richtung y in Abhängigkeit der Flugzeit. Polarisation FEL in x -Richtung. Die Farbskala (logarithmisch) rechts gibt die Anzahl detektierter Ionen an.

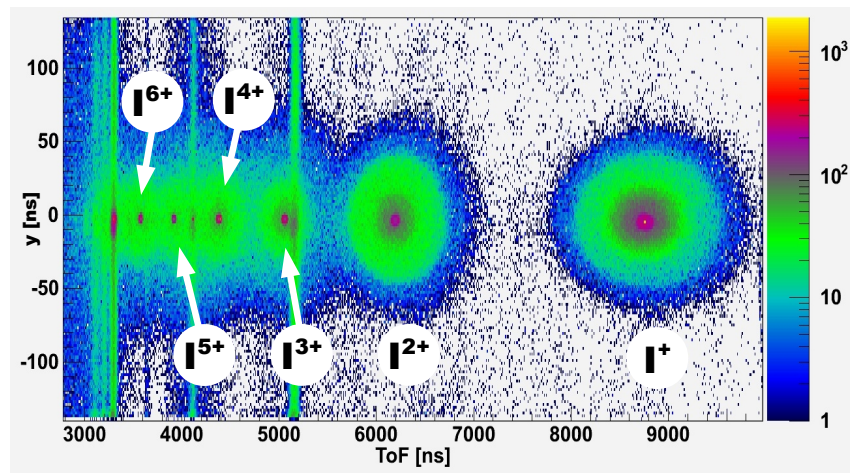


Abbildung 3.2: FEL-Puls und IR-Puls. Häufigkeit der Auftrefforte der Ionen auf dem Detektor in Richtung y in Abhängigkeit der Flugzeit. Polarisation FEL und IR-Laser in x -Richtung. Die Farbskala (logarithmisch) rechts gibt die Anzahl detektierter Ionen an.

In den dargestellten Verteilungen (Abbildung 3.1 und 3.2) gibt die x-Koordinate die Flugzeit der detektierten Ionen, die y-Koordinate die jeweilige Projektion des Auftrefforts auf eine der beiden Detektorachsen an (in diesem Fall die y-Achse, welche senkrecht zur Polarisierung der FEL Strahlung ausgerichtet ist). Der Auftreffort der Teilchen auf dem Detektor ist dabei abhängig vom Anfangsimpuls der Ionen. Dies lässt sich wie folgt verstehen. Die Ionen werden in dem in guter Näherung als punktförmig annehmbaren Reaktionsvolumen erzeugt, das durch die Überlappung von Gasjet und FEL-Strahl gegeben ist. Das elektrische Feld besitzt nur eine Komponente entlang der Spektrometerachse (siehe Abbildung 2.6 in Abschnitt 2.2). Die Auslenkung in der Detektorebene ist daher ausgehend vom Reaktionspunkt ausschließlich abhängig vom Anfangsimpuls der Teilchen. Die Abbildung des Reaktionspunkts in y-Richtung auf dem Detektor ist bei ca. $y = 0$ ns zu finden. Das Bild der dargestellten Verteilung ist symmetrisch um diesen Punkt. Die Auslenkung in y-Richtung ist also direkt proportional zur y-Komponente des Startimpulses der Fragmente. Die Flugzeit der Teilchen wird neben dem Anfangsimpuls $p_{||}$ der Fragmente entlang der Spektrometerachse zusätzlich durch den Impuls bestimmt, der sich aus der Beschleunigung der Teilchen im Spektrometerfeld ergibt. Für Teilchen, die verschiedenen Anfangsimpuls $p_{||}$ in Flugzeitrichtung besitzen, ergibt sich die Flugzeit nach Fischer [2003]:

$$t_{\pm}(E_{||}) = f \cdot \sqrt{m} \cdot \left(\frac{2a}{\sqrt{E_{||} + qU} \pm \sqrt{E_{||}}} \right) \quad \text{mit} \quad f = 719.9 \frac{\text{ns}}{\text{cm}} \sqrt{\frac{\text{eV}}{\text{u}}} \quad (3.1)$$

Hierin ist $E_{||} = p_{||}^2/2m$ die Startenergie der Ionen mit Masse m [u] und dem Startimpuls $p_{||}$ in Flugzeitrichtung. q ist die Ladung des Teilchens, U die Extraktionsspannung, a die Beschleunigungsstrecke und f eine spezifische Konstante des Spektrometers. Das „+“ steht für Ionen, die sich direkt nach der Reaktion auf den Detektor zu bewegen, das „-“ für solche, die sich vom Detektor entfernen.

Die Farbskala rechts in den obigen Abbildungen 3.1 und 3.2 gibt die Anzahl detektierter Ionen in logarithmischer Darstellung an. Über ihre Flugzeit und dem dazu korrespondierenden Masse-zu-Ladungsverhältnis werden die Ionen im Spektrum identifiziert. Die Zuordnung ist in Abbildung 3.1 und 3.2 eingetragen.

In Abbildung 3.1 sind deutlich konzentrische Ringe im Bereich der Flugzeiten von I^+ - und I^{2+} -Ionen zu erkennen. Für höhere Ladungszustände (I^{3+} und I^{4+}) sind die Ringe schwerer auszumachen. Sie sind deshalb durch weiße Ringe angedeutet. Ringe entsprechen ganz bestimmten Gesamtimpulsen. Diese festen Gesamtimpulse korrespondieren ihrerseits zur Anregung eines Zustands zu einem festen internuklearen Abstand. Die senkrechten Linien bei $TOF \sim 3000$ ns, $TOF \sim 4000$ ns und $TOF \sim 5000$ ns sind auf Restgasionen (H_2O^+ , N_2^+ / CO^+ und CO_2^+) zurückzuführen. Auf seinem Weg zum Target geht der FEL-Strahl senkrecht zur Jetrichtung durch die Reaktionskammer und ionisiert dabei Teilchen des Restgases. Die Linien sind

sozusagen die „Spur“ des FEL-Strahls. Die Ionen aus dem Target starten hingegen alle vom selben Reaktionspunkt und treffen den Detektor weiter im Zentrum.

Um die Ringstrukturen zu erklären, muss überlegt werden, was passiert, wenn der FEL-Puls ein Iodmolekül trifft und die geladenen Fragmente dann zum Detektor fliegen. Wir wollen nun davon ausgehen, dass der FEL-Puls beide Iodatome des Moleküls ionisiert und es zur Coulomb-Explosion kommt. Nach dem Coulombgesetz gilt für die potentielle Energie zweier Ladungen q_1 und q_2 :

$$E_{Coulomb} = \frac{1}{2} \frac{q_1 q_2 e_0}{4\pi\epsilon_0 R} \quad (3.2)$$

Hierbei sind e_0 die Elementarladung und ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante. Die potentielle Energie aus Gleichung 3.2 geht während der Fragmentation in die kinetische Energie der Ionen über. Der Vorfaktor $1/2$ bedeutet dabei, dass aus Impulserhaltung die Energie gleichmäßig auf beide Reaktionspartner gleicher Masse verteilt wird. Dabei erhalten beide Fragmente einen Impuls in entgegengesetzte Richtung. Im Spektrometerfeld des Reaktionsmikroskops werden sie aufgrund ihrer Ladung auf den Detektor gelenkt. Der Auftreffort auf dem Detektor hängt dabei vom Anfangsimpuls der Fragmente ab. Geht man von einer isotropen Winkelverteilung der Fragmente aus, so ergeben sich Ringe in Darstellungen wie Abbildung 3.1 und 3.2. Jeder dieser Ringe steht nun für einen ganz bestimmten Ionenimpuls. Exakt dies wird in Abbildung 3.1 beobachtet. Die Ringe entsprechen also Ionenimpulsen, die ihrerseits für unterschiedliche Fragmentierungskanäle stehen.

Nun wollen wir den Fall betrachten, indem das Target gleichzeitig dem FEL-Puls und dem IR-Puls ausgesetzt ist (Abbildung 3.2). Sofort fallen sechs Maxima auf der Linie bei $y \approx 0$ ns parallel zur TOF-Achse auf, die in Abbildung 3.1 nicht vorhanden sind. Jetzt werden auch bis zu sechsfach geladene Ionen erkennbar. Ein weiterer Unterschied sind die stärker ausgeprägten Ringstrukturen. Wie wir aus Abbildung 3.1 gelernt haben, entsprechen die Ringe Ionenimpulsen. Demnach haben die Ionen, die bei $y \approx 0$ ns auf den Detektor treffen keinen bzw. sehr kleinen Impuls. Nach Krikunova et al. [2011] sind dies Ionen, die entstehen, wenn durch den IR-Puls zunächst ein neutral dissoziierender Zustand angeregt wird. In diesem Fall bricht das Molekül in zwei neutrale Atome auseinander. Erfolgt die Ionisation durch den XUV-Puls nun zu einem Zeitpunkt, zu dem sich die beiden Fragmente bereits weit voneinander entfernt haben, so kann schon nicht mehr von einem gebundenen Molekül gesprochen werden, sondern von zwei getrennten Atomen. Die kinetische Energie der beiden Fragmente ist in diesem Fall somit hauptsächlich durch die freiwerdende Bindungsenergie bei der neutralen Dissoziation gegeben und damit deutlich geringer, als die Energie, die freiwerden würde, falls es bei kleinen internuklearen Abständen zur mehrfachen Ionisation und damit zur Coulombexplosion kommen würde. Die aus solchen Zuständen entstandenen Ionen zeichnen sich durch kleine Impulse aus. Man erkennt dies an den Maxima entlang $y \approx 0$ ns und der höheren Anzahl an Ringen.

3.4 Pump-Probe-Messungen an I_2 -Molekülen

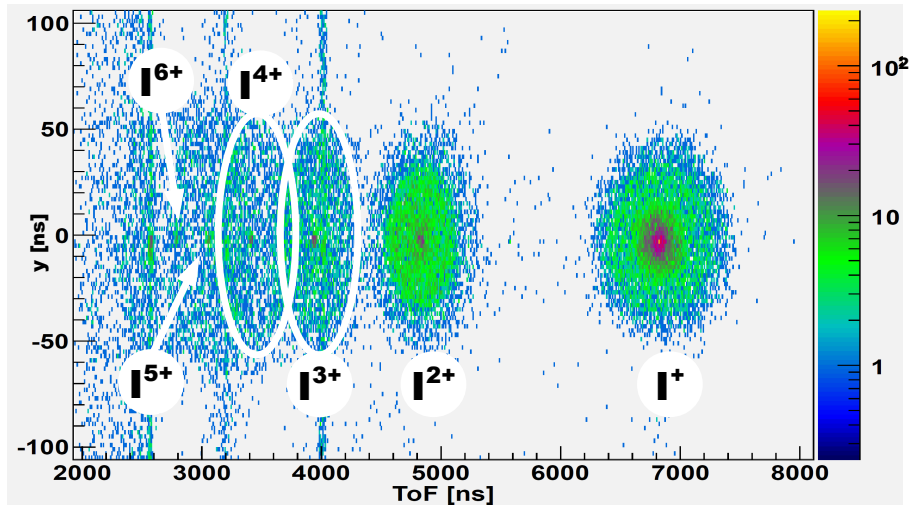


Abbildung 3.3: FEL-Puls vor IR-Puls. Häufigkeit der Auftrefforte der Ionen auf dem Detektor in Richtung y in Abhängigkeit der Flugzeit. Integriert über 20 ps. Polarisation FEL und IR-Laser in x -Richtung. Die Farbskala (logarithmisch) rechts gibt die Anzahl detektierter Ionen an.

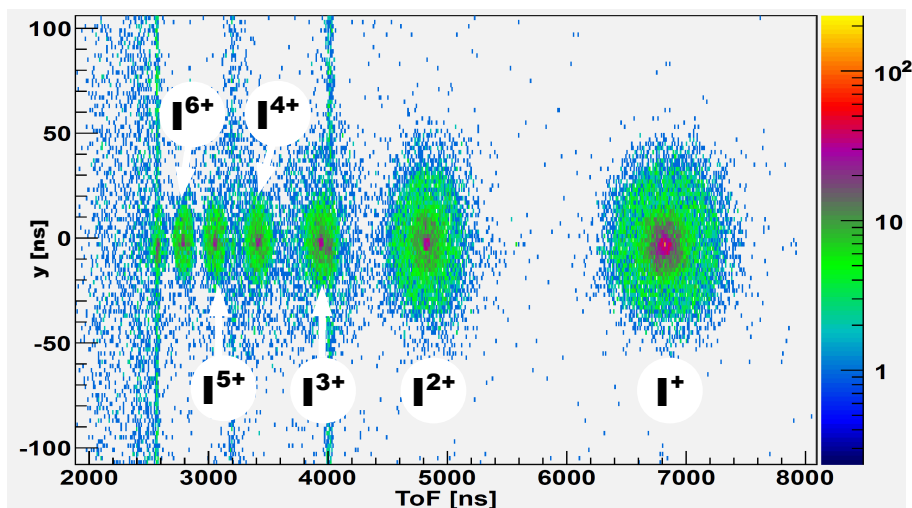


Abbildung 3.4: IR-Puls vor FEL-Puls. Häufigkeit der Auftrefforte der Ionen auf dem Detektor in Richtung y in Abhängigkeit der Flugzeit. Integriert über 20 ps. Polarisation FEL und IR-Laser in x -Richtung. Die Farbskala (logarithmisch) rechts gibt die Anzahl detektierter Ionen an.

Als nächster Schritt wurde nun die Ankunftszeit von FEL- und IR-Puls variiert. Zuerst wurde eine Messung durchgeführt, bei der der FEL-Puls vor dem IR-Puls auf das Target trifft (Abbildung 3.3), bevor in einer weiteren Messung der umgekehrte Fall untersucht wurde (Abbildung 3.4). In beiden Fällen wurde über den maximalen Zeitverzögerungsbereich von ~ 20 ps integriert.

In Abbildung 3.4 ähneln die Ringstrukturen, die durch I^+ - und I^{2+} -Ionen entstehen, denen für die Messung, bei der FEL- und IR-Puls gleichzeitig das Target treffen (siehe Abbildung 3.2) Deutlich zu erkennen sind Maxima bei $y \approx 0$ ns, um die viele konzentrische Ringe liegen. Auch der FEL-Puls kann neutral dissoziierenden Zustände anregen, bei denen die beiden Fragmente schon soweit von einander entfernt sind, dass von zwei getrennten Atomen gesprochen werden kann. Ein verspätet eintreffender IR-Puls kann nun solche Zustände weiter dissoziieren. Die kinetische Energie der beiden Fragmente ist dann wieder durch die freiwerdende Bindungsenergie gegeben. Die Ionen, die aus solch neutral dissoziierenden Zuständen auf diese Weise entstehen, besitzen kleine Impulse, was sich in den Maxima um $y \approx 0$ ns und kleinen Ringen zeigt.

Die Ringstrukturen, die durch höher geladene Ionen (I^{n+} , $n > 3$) entstehen, ähneln denen für die entsprechenden Ionen aus Abbildung 3.1, wo nur der FEL-Puls auf das Target trifft. Die Ringe sind größer als die, die durch I^+ - und I^{2+} -Ionen gebildet werden, was bedeutet, dass die Ionen dieser Ringe durch Mehrfachionisation bei kleinen internuklearen Abständen durch den FEL-Puls und anschließender Coulombexplosion entstehen. Dabei wird mehr kinetische Energie frei als bei der bloßen Dissoziation des Moleküls.

Im umgekehrten Fall (Abbildung 3.4) regt der IR-Puls das Target an, bevor es dem nachfolgenden FEL-Puls ausgesetzt wird. Nun erkennt man auch für höher geladene Ionen kleine Ringe und Maxima bei $y \approx 0$ ns, was gleichbedeutend mit kleinen Impulsen dieser Ionen ist. Bei dieser Messung wird die neutrale Dissoziation durch den IR-Puls angeregt, der internukleare Abstand vergrößert sich und man kann wieder von Zuständen mit zwei ungebundenen Atomen ausgehen, die dann vom später eintreffenden FEL-Puls ionisiert werden. Hierbei erhalten die Ionen weniger kinetische Energie, als die, die durch Coulombexplosion bei kleinen internuklearen Abständen entstehen. Die Ringe, die durch Ionen hoher Ladungszustände gebildet werden, sind dabei kleiner als die derer niedriger Ladungszustände (I^+ und I^{2+}). Bei der Erzeugung von I^+ - und I^{2+} -Ionen gibt es anscheinend Mechanismen, bei denen viel kinetische Energie frei wird.

4 Zusammenfassung

Das wesentliche Ziel dieser Arbeit waren Untersuchungen zum Betrieb eines Überschallgasjets mit Iod. Die daraus gewonnenen Erfahrungen und Kenntnisse konnten direkt bei Pump-Probe-Messungen zur Photodissoziation von Iodmolekülen am Freie-Elektronen-Laser in Hamburg (FLASH) angewendet werden. Die Arbeit ist dementsprechend in zwei Teile gegliedert. Im ersten Teil wird die Testmessung am Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg beschrieben. Der zweite Teil behandelt die Messungen am FLASH.

In einem einführenden Kapitel sind die Theorie, wichtige Phänomene und experimentelle Beobachtungen der Einfachionisation von Atomen in starken Laserfeldern dargestellt. Darüber hinaus wurde in diesem Kapitel auch der für die Messung verwendete experimentelle Aufbau, ein sogenanntes Reaktionsmikroskop, vorgestellt. Dabei wurden Aufbau und die Funktionsweise der wichtigsten Komponenten des Reaktionsmikroskops, das Spektrometer sowie der Überschallgasjet, ausführlich erläutert.

Bevor mit den Testmessungen begonnen werden konnte, waren umfassende Vorbereitungsmaßnahmen notwendig. So musste für das bei Zimmertemperatur feste Iod ein Verdampfungssystem entworfen und aufgebaut werden, um aus gasförmigem Iod und einem Trägergas einen Gasjet erzeugen zu können.

Bei den Testmessungen wurde die Abhängigkeit der Targetdichte von den wesentlichen Betriebsparametern des Jets (Temperatur des Iodreservoirs T_0 , verwendetes Trägergas und Vordruck des Trägergases p_0) untersucht. Dabei wurde die Temperatur des Iodreservoirs im Bereich von $T_0 = 70 - 150$ °C und der Vordruck p_0 zwischen 1 bar und 5 bar variiert. Als Trägergase kamen Argon, Neon und Helium zum Einsatz. Aufgrund von Problemen mit der Düse bei der Verwendung von Neon und Helium als Trägergas, konnten im wesentlichen nur die Daten der Messreihe mit Argon als Trägergas ausgewertet werden.

Die Messung der Targetdichte erfolgte hierbei durch Ionisation der Targetmoleküle innerhalb eines konstant gehaltenen Targetvolumens mit Hilfe eines fokussierten Titan-Saphir-Laser mit 795 nm Wellenlänge und ~ 25 fs Pulsdauer.

Durch die Analyse der Verhältnisse der Anzahl detektierter Ionen ($n(\text{I}_2^+)/n(\text{Ar}^+)$, $n(\text{I}_2^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)$, $n(\text{Ar}^+)/n(\text{H}_2\text{O}^+)$) konnte gezeigt werden, dass die Targetdichte, gemessen im absoluten Iodsignal, bei niedrigen Vordrücken $p_0 = 1 - 2$ bar und hohen Temperaturen des Iodreservoirs $T_0 > 100$ °C maximal wird.

Die Berechnung der Ionenimpulse senkrecht zur Flugzeitrichtung zum Detektor er-

laubte die Bestimmung der Temperatur T_{\parallel} der Gasteilchen in Jetrichtung. Für steigende Vordrücke p_0 wurde eine Abnahme der Temperaturkomponente T_{\parallel} beobachtet. Eine eindeutige Gesetzmäßigkeit, die diese Abnahme beschreibt, konnte nicht gefunden werden. Ebenfalls untersucht wurde T_{\parallel} als Funktion der Reservoirtemperatur T_0 . Entgegen der Erwartungen konnte eine signifikante Zunahme von T_{\parallel} mit steigendem T_0 nicht nachgewiesen werden. Die maximale Temperatur $T_{\parallel} = (27 \pm 2)$ K wurde für $T_0 = 110$ °C und $p_0 = 1$ bar gemessen, die minimale $T_{\parallel} = (13 \pm 2)$ K für $T_0 = 70$ °C und $p_0 = 5$ bar. Aus den Flugzeiten und den Auftrefforte der Ar^+ - und I_2^+ -Ionen konnte die Jetgeschwindigkeit v_{Jet} abgeschätzt werden. Es ergab sich $v_{Jet} \approx (655 \pm 50)$ m/s, unabhängig von der Reservoirtemperatur T_0 . Zu erwarten ist eine lineare Abhängigkeit zur Wurzel von T_0 , welche im Fehlerbereich nicht ausgeschlossen werden kann.

Nach zwei Messtagen traten erste Probleme mit der eingesetzten Düse auf. Es stellte sich heraus, dass diese durch Iod verstopft war und kein Gasjet mehr erzeugt werden konnte. Um im Hinblick auf die anstehende Strahlzeit am FLASH einen kontinuierlichen Messbetrieb auch über einen längeren Zeitraum gewährleisten zu können, wurde eine homogen heizbare Düse entwickelt.

Bei den Messungen am FLASH wurde die Mehrfachionisation und Photodissoziation von I_2 -Molekülen untersucht. Dabei wurde das Target neben den XUV-Pulsen des FELs auch den IR-Pulsen eines Titan-Saphir-Lasers ausgesetzt. Mit einem Autokorrelator war es möglich, den Ankunftszeitpunkt der jeweiligen Pulse relativ zueinander zu variieren. Dabei zeigte sich eine Abhängigkeit sowohl der Ausbeute als auch der Winkelverteilung der hoch geladenen Iodionen als Funktion der Zeitverzögerung des IR- und des FEL-XUV-Pulses.

Anhang

A Verhältnis I^+ -Ionen zu Ar^+ -Ionen

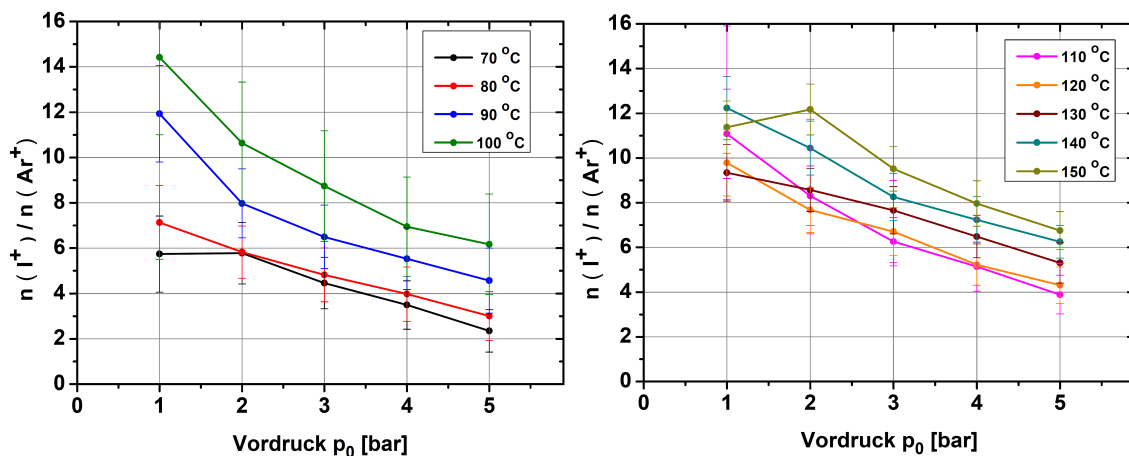


Abbildung A.1: Verhältnis I^+ -Ionen zu Ar^+ -Ionen (Ordinate) gegen Vordruck p_0 (Abszisse) in Abhängigkeit der Temperatur. Messung im Temperaturbereich 70 °C bis 100 °C.

B Verhältnis I^+ -Ionen zu H_2O^+ -Ionen

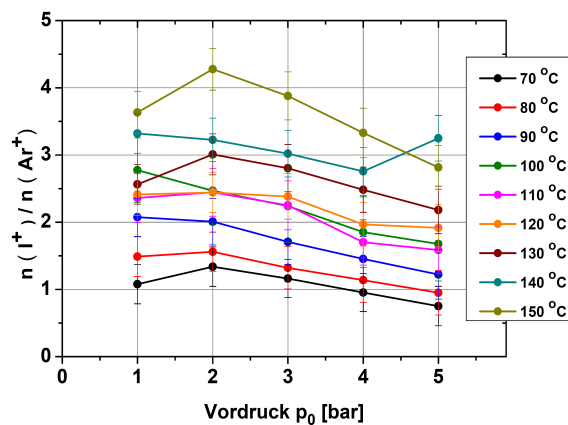


Abbildung B.1: Verhältnis I^+ -Ionen zu H_2O^+ -Ionen (Ordinate) gegen Vordruck p_0 (Abszisse) in Abhängigkeit der Temperatur. Messung im Temperaturbereich 70 °C bis 150 °C.

Literaturverzeichnis

- P. Agostini, F. Fabre, G. Mainfray, G. Petite, and N. K. Rahman. Free-free transitions following six-photon ionization of xenon atoms. *Phys. Rev. Lett.*, 42(17): 1127–1130, Apr 1979. doi: 10.1103/PhysRevLett.42.1127.
- M.V. Ammosov, N.B. Delone, and V.P. Krainov. Tunnelionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field. *Soviet Physics JETP*, 64(6):1191–1194, December 1986.
- S. Augst, D. Strickland, D. D. Meyerhofer, S. L. Chin, and J. H. Eberly. Tunneling ionization of noble gases in a high-intensity laser field. *Phys. Rev. Lett.*, 63(20): 2212–2215, Nov 1989. doi: 10.1103/PhysRevLett.63.2212.
- A. Azima, S. Düsterer, P. Radcliffe, H. Redlin, N. Stojanovic, W. Li, H. Schlarb, J. Feldhaus, D. Cubaynes, M. Meyer, J. Dardis, P. Hayden, P. Hough, V Richardson, E. T. Kennedy, and J. T. Costello. Time-resolved pump-probe experiments beyond the jitter limitations at flash. 94(14):144102, 2009. ISSN 00036951. doi: DOI:10.1063/1.3111789. URL <http://dx.doi.org/doi/10.1063/1.3111789>.
- P. H. Bucksbaum, R. R. Freeman, M. Bashkansky, and T. J. McIlrath. Role of the ponderomotive potential in above-threshold ionization. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(5): 760–764, May 1987. doi: 10.1364/JOSAB.4.000760. URL <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-4-5-760>.
- R. Dörner, Th. Weber, M. Weckenbrock, A. Staudte, M. Hattass, R. Moshhammer, J. Ullrich, and H. Schmidt-Böcking. Multiple ionization in strong laser fields. *Advances in Atomic and Molecular Physics*, 2002.
- F. Fabre, G. Petite, P. Agostini, and M. Clement. Multiphoton above-threshold ionisation of xenon at 0.53 and 1.06 μm . *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 15(9):1353, 1982. URL <http://stacks.iop.org/0022-3700/15/i=9/a=012>.
- D. Fischer. *Aufbau eines Reaktionsmikroskops zur Untersuchung von Ion-Atom-Stößen*. Diplomarbeit, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg im Breisgau, 2000.
- D. Fischer. *Mehr-Teilchen-Dynamik in der Einfach- und Doppelionisation von Helium durch geladene Projektile*. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2003.

- R. R. Freeman, P. H. Bucksbaum, H. Milchberg, S. Darack, D. Schumacher, and M. E. Geusic. Above-threshold ionization with subpicosecond laser pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 59(10):1092–1095, Sep 1987. doi: 10.1103/PhysRevLett.59.1092.
- I.V. Hertel and C.P. Schulz. *Atome, Molekule Und Optische Physik 2: Molekule Und Photonen- Spektroskopie Und Streuphysik*. Springer-Lehrbuch. Springer-Verlag GmbH, 2011. ISBN 9783642119729. URL http://books.google.com/books?id=MFPR_GNy9dEC.
- K. Hoffmann. *Femtosekunden-Laserspektroskopie an Fullerenen*. Dissertation, Freie Universität Berlin, 2000.
- L.V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Soviet Physics JETP*, 20(5):1307–1314, May 1965.
- M. Kremer. *Einfluß der Träger-Einhüllenden-Phase auf die Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit Molekülen*. Dissertation, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2009.
- M. Krikunova, T. Maltezopoulos, P. Wessels, M. Schlie, A. Azima, M. Wieland, and M. Drescher. Ultrafast photofragmentation dynamics of molecular iodine driven with timed xuv and near-infrared light pulses. 134(2):024313, 2011. ISSN 00219606. doi: DOI:10.1063/1.3528722. URL <http://dx.doi.org/doi/10.1063/1.3528722>.
- P. Kruit, J. Kimman, H. G. Muller, and M. J. van der Wiel. Electron spectra from multiphoton ionization of xenon at 1064, 532, and 355 nm. *Phys. Rev. A*, 28(1): 248–255, Jul 1983. doi: 10.1103/PhysRevA.28.248.
- M. Kurka. *Zwei- und Drei-Photonen Doppelionisation von Helium und Neon am Freie-Elektronen Laser in Hamburg*. Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2007.
- C. Langbrandtner. *Experimente zur Ionisation von atomarem Wasserstoff im Ionenstoß*. Diplomarbeit, Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg, 2007.
- S. Laroche, A. Talebpour, and S. L. Chin. Non-sequential multiple ionization of rare gas atoms in a ti:sapphire laser field. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 31(6):1201, 1998. URL <http://stacks.iop.org/0953-4075/31/i=6/a=008>.
- J.J. Larsen, N.J. Morkbak, J. Olesen, N. Bjerre, M. Machholm, S.R. Keiding, and H. Stapelfeldt. Femtosecond photodissociation dynamics of I_2 studied by ion imaging. *Journal of Chemical Physics*, 109(20):8857–8863, 1998.

- L. A. Lompre, G. Mainfray, C. Manus, and J. Thebault. Multiphoton ionization of rare gases by a tunable-wavelength 30-psec laser pulse at 1.06 μm . *Phys. Rev. A*, 15(4):1604–1612, Apr 1977. doi: 10.1103/PhysRevA.15.1604.
- E. Mevel, P. Breger, R. Trainham, G. Petite, P. Agostini, A. Migus, J. P. Chambaret, and A. Antonetti. Atoms in strong optical fields: Evolution from multiphoton to tunnel ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 70(4):406–409, Jan 1993. doi: 10.1103/PhysRevLett.70.406.
- R. Noerenberg. *Aufbau und Test einer COLTRIMS Apparatur zur Untersuchung der Ionisation von metastabilem Helium*. Diplomarbeit, Johann-Wolfgang-Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2007.
- G. Petite, F. Fabre, P. Agostini, M. Crance, and M. Aymar. Nonresonant multiphoton ionization of cesium in strong fields: Angular distributions and above-threshold ionization. *Phys. Rev. A*, 29(5):2677–2689, May 1984. doi: 10.1103/PhysRevA.29.2677.
- G. Petite, P. Agostini, and H. G. Muller. Intensity dependence of non-perturbative above-threshold ionisation spectra: experimental study. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 21(24):4097, 1988. URL <http://stacks.iop.org/0953-4075/21/i=24/a=010>.
- M. Protopapas, C. H. Keitel, and P. L. Knight. Atomic physics with super-high intensity lasers. *Reports on Progress in Physics*, 60(4):389, 1997. URL <http://stacks.iop.org/0034-4885/60/i=4/a=001>.
- M. Richter, M. Ya. Amusia, S. V. Bobashev, T. Feigl, P. N. Jurani, M. Martins, A. A. Sorokin, and K. Tiedtke. Extreme ultraviolet laser excites atomic giant resonance. *Phys. Rev. Lett.*, 102(16):163002, Apr 2009. doi: 10.1103/PhysRevLett.102.163002.
- A. Rudenko, Th. Ergler, K. Zrost, B. Feuerstein, V. L. B. de Jesus, C. D. Schröter, R. Moshhammer, and J. Ullrich. From non-sequential to sequential strong-field multiple ionization: identification of pure and mixed reaction channels. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 41(8):081006, 2008. URL <http://stacks.iop.org/0953-4075/41/i=8/a=081006>.
- G. Scoles. *Atomic and Molecular Beam Methods*. Springer-Verlag GmbH, 1988.
- H. Stapelfeldt, E. Constant, H. Sakai, and P. B. Corkum. Time-resolved coulomb explosion imaging: A method to measure structure and dynamics of molecular nuclear wave packets. *Phys. Rev. A*, 58(1):426–433, Jul 1998. doi: 10.1103/PhysRevA.58.426.

J. Ullrich, R. Moshhammer, R. Dörner, O. Jagutzki, V. Mergel, H. Schmidt-Böcking, and L. Spielberger. Recoil-ion momentum spectroscopy. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 30(13):2917, 1997. URL <http://stacks.iop.org/0953-4075/30/i=13/a=006>.

M. Weckenbrock. *Mehrelektronenprozesse in starken Laserfeldern*. Dissertation, Johann-Wolfgang-Goethe-Universität Frankfurt am Main, 2004.

Danksagung

Zum Schluss möchte ich allen Menschen danken, die mich bei dieser Arbeit, am Institut und während meines bisherigen Studiums unterstützt haben. Mein besonderer Dank gilt

- Kirsten,
die mich herzlich in der Arbeitsgruppe aufgenommen hat und mit der ich die Testmessungen in Heidelberg durchgeführt habe. Unvergessen bleiben die „Schlachten“ die wir dabei zusammen gegen das „Teufelszeug“ Iod geschlagen haben.
- Robert,
der mir diese Bachelorarbeit und den Aufenthalt am DESY in Hamburg ermöglicht hat.
- Moritz,
der wirklich unermüdlich beim Überarbeiten dieser Arbeit war.
- Arne,
der mir viele hilfreiche Tipps und Anregungen beim Verfassen dieser Arbeit gab.
- Claus-Dieter,
der mir gezeigt hat, dass Vakuum mehr ist als „nichts“.
- Bernd und Christian,
ohne deren technische, und kulinarische, Unterstützung die Durchführung keines der Experimente möglich gewesen wäre.
- der WG STRASSER,
also Chris, Franzi und Frieder, weil ich mir wirklich keine besseren Mitbewohner vorstellen kann.
- meiner Familie,
auf die ich mich immer verlassen kann und die mir einen festen Rückhalt bietet.
- allen meinen Freunden.
- Cora,
die ich sehr liebe.

Eigenständigkeitserklärung

Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt habe.

Heidelberg,

.....

Georg Schmid

