

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Masterarbeit

Im Studiengang Physik

vorgelegt von

Patrick Froß

geboren in Koblenz

2016



Simulation, Aufbau und Test eines  
Velocity-Map-Imaging-Spektrometers  
zur Untersuchung niederenergetischer  
Photoelektronen

Die Masterarbeit wurde von Patrick Froß

ausgeführt am

Max-Planck-Institut für Kernphysik

unter der Betreuung von

Priv.-Doz. Dr. Robert Moshhammer



# Danksagung

Ich danke Robert Moshhammer für die Tätigkeit als Betreuer, Korrektor und Ratgeber während meiner Masterarbeit. Danke auch an Thomas Pfeifer für die Bereitschaft die Aufgabe des Zweitkorrektors zu übernehmen. Ein besonderer Dank gilt Lutz, Nicolas, Yonghao, Sofia und Marvin für das regelmäßige Mitpacken, die hilfreichen Diskussionen und das Korrekturlesen der Arbeit. Schließlich will ich mich bei allen Mitgliedern der Abteilung Pfeifer für die stete Freundlichkeit und Hilfsbereitschaft bei der Zusammenarbeit bedanken.



*Für Julchen*



### **Simulation, Aufbau und Test eines Velocity-Map-Imaging-Spektrometers zur Untersuchung niederenergetischer Photoelektronen:**

Auf der Grundlage eines 34-Kreisringelektroden-Spektrometers wurde dessen Nutzbarmachung als Velocity-Map-Imaging(VMI)-Spektrometer systematisch untersucht. Dazu wurden Simulationen von Elektronentrajektorien mit der Software SIMION durchgeführt und ausgewertet. Es zeigt sich, dass der Betrieb als VMI-Spektrometer möglich ist. Die Software optimiert die Elektrodenpotentiale des Spektrometers hinsichtlich gewünschter VMI-Abbildungseigenschaften. Zudem liefern die Simulationen erste theoretische Daten zur Performance und Auflösung. Um ein Zielgas zu ionisieren, wird ein ultraschnelles Titan:Saphir-Femtosekundenlasersystem verwendet. Ein erster Test der Apparatur wurde mit Argon durchgeführt.

### **Simulation, setup and test of a Velocity-Map-Imaging-Spectrometer for the investigation of low-energy-photoelectrons:**

On the basis of a 34-circle-ring electrode spectrometer, its utilization as a Velocity-Map-Imaging (VMI) spectrometer was systematically investigated. For this purpose, simulations of electron trajectories were carried out and evaluated using SIMION software. It is shown that it is possible to operate the spectrometer in VMI mode. The software optimizes the electrode potentials of the spectrometer with regard to the desired VMI imaging properties. In addition, the simulations provide first theoretical data on performance and resolution. In order to ionize a target gas, an ultra-fast titanium: sapphire femtosecond laser system is used. A first test of the apparatus was performed with argon.



# Inhaltsverzeichnis

<b>I</b>	<b>Einführung und Motivation</b>	<b>13</b>
<b>II</b>	<b>Theorie</b>	<b>17</b>
<b>1</b>	<b>Laser</b>	<b>19</b>
<b>2</b>	<b>Ultrakurze Laserpulse</b>	<b>23</b>
2.1	Mode Locking . . . . .	23
2.2	Optischer Kerr-Lens-Effekt und Selbstphasenmodulation . . . . .	25
2.3	Dispersion . . . . .	27
2.4	Fokussierte Laserstrahlen . . . . .	30
<b>3</b>	<b>Atome und Moleküle in starken Laserfeldern</b>	<b>35</b>
3.1	Quantenmechanische Störungstheorie . . . . .	35
3.2	Quasi-adiabatische Näherung und Tunnelionisation . . . . .	40
3.3	Starkfeldnäherung . . . . .	40
3.4	Keldysh-Adiabatizitäts-Parameter . . . . .	41
3.5	Rekollisions-Ionisation . . . . .	43
3.6	Höhere Harmonische . . . . .	43
3.7	Mehrfache Mehr-Photonen-Ionisation . . . . .	44
<b>4</b>	<b>Velocity-Map-Imaging</b>	<b>45</b>
4.1	Das Konzept . . . . .	45
4.2	Newton-Sphären . . . . .	47
4.3	Ionenoptik . . . . .	49
4.4	Rekonstruktion der 3-D Geschwindigkeitsverteilungen . . . . .	51
4.5	Was kann das Verfahren leisten? . . . . .	52
<b>III</b>	<b>Experimenteller Aufbau und Methoden</b>	<b>55</b>
<b>5</b>	<b>Optischer Aufbau</b>	<b>57</b>
5.1	Titan-Saphir-Oszillator . . . . .	58
5.2	Verstärker . . . . .	58
5.3	Kompressor . . . . .	58

<b>6</b>	<b>Vakuumkammer</b>	<b>61</b>
6.1	Gaseinlass und Überschallgasstrahl . . . . .	61
6.2	Velocity Map Imaging Spektrometer . . . . .	63
6.2.1	Elektrodenpotentiale . . . . .	63
6.2.2	Fokussierender Spiegel . . . . .	73
6.3	Detektor, Signalverstärkung und Datenerfassung . . . . .	77
6.4	Kompensationsspulen . . . . .	82
<b>7</b>	<b>Numerische Rekonstruktion des Velocity-Maps – BASEX-Algorithmus</b>	<b>87</b>
<b>IV</b>	<b>Ergebnisse</b>	<b>91</b>
<b>8</b>	<b>VMI-Simulation und Charakterisierung des VMI Spektrometers</b>	<b>93</b>
<b>9</b>	<b>Optimierung der Spiegelsegmentspannungen</b>	<b>103</b>
<b>10</b>	<b>Feldhomogenität der Kompensationsspulen</b>	<b>105</b>
<b>11</b>	<b>Erster Test</b>	<b>109</b>
11.1	Justierung des Gasjets . . . . .	109
11.2	Erste Inbetriebnahme mit Argon . . . . .	110
11.2.1	Ionen-Bildgebung . . . . .	110
11.2.2	Elektronen-Velocity-Map-Imaging . . . . .	115
<b>V</b>	<b>Zusammenfassung und Ausblick</b>	<b>119</b>
<b>VI</b>	<b>Anhang</b>	<b>123</b>
<b>A</b>	<b>Atomare Einheiten</b>	<b>125</b>
<b>B</b>	<b>Verzeichnisse</b>	<b>127</b>
B.1	Abbildungsverzeichnis . . . . .	127
B.2	Tabellenverzeichnis . . . . .	132
<b>C</b>	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>133</b>
<b>D</b>	<b>CD</b>	<b>139</b>

# Teil I

## Einführung und Motivation



Seit der Erfindung des ersten Lasers ist dieser aus unserer heutigen Welt nicht mehr wegzudenken. Seine Anwendungen in den verschiedenen Gesellschaftsbereichen, wie der Medizin, dem alltäglichen Leben, der Industrie, der Unterhaltung und dem Militär, sind zahlreich. Es ist unumstritten, dass er als technologische Errungenschaft das Leben der Menschen entscheidend geprägt hat. Auch die Wissenschaft und Forschung, insbesondere die Naturwissenschaften, profitieren vom Laser, durch den neue Untersuchungsmethoden und die Entdeckung neuer physikalischer Phänomene möglich wurden. An dieser Stelle seien das Laserkühlen und die Laserspektroskopie beispielhaft erwähnt. Durch die Technik der Modenkopplung wurde es möglich ultrakurze Laserpulse mit einer Dauer von mehreren Femtosekunden zu erzeugen. Derart kurze Laserpulse sind überaus interessant, weil sie bisher unerreichte Laserintensitäten ermöglichen. Der heutzutage intensivste Laser HERCULES an der Universität von Michigan liefert eine Intensität von  $2 \times 10^{22} \text{ W cm}^{-2}$  [50]. Zum Vergleich: Die Sonnenkonstante beträgt  $1.4 \times 10^{-1} \text{ W cm}^{-2}$  und die atomare Einheit der Intensität beträgt  $I_a = \frac{1}{2} \epsilon_0 c \left( \frac{e}{(4\pi\epsilon_0)a_0^2} \right)^2 = 3.5 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2}$  [32]. Femtosekundenlaser können zum Beispiel in der Industrie zum Schneiden verschiedener Materialien eingesetzt werden. Für die physikalische Grundlagenforschung sind Femtosekundenlaser so interessant, weil die mit ihnen erreichbaren elektrischen Feldstärken in etwa gleich oder größer sind als die elektrischen Feldstärken in Atomen und Molekülen. Es gelingt mithilfe von ultrakurzen Laserpulsen erstmals die Wechselwirkung von Atomen und Molekülen mit starken Laserpulsen experimentell zu untersuchen. Es zeigt sich, dass Prozesse, bei denen mehr als nur ein Photon beteiligt sind, mit größer werdender Laserintensität immer wahrscheinlicher werden. Die Tatsache, dass die elektrische Feldstärke des Lasers vergleichbar mit der des Atoms ist, ermöglicht es, das Coulombpotential des Atoms derart krass zu verzerren, dass Elektronen die Barriere verlassen können, obwohl sie gar nicht über genügend Energie verfügen, um die Barriere auf klassischem Wege zu überwinden. Man spricht von der sogenannten Tunnelionisation. Rekombiniert das Elektron wieder mit dem Atom, von dem es stammt, dann kommt es zur Emission von elektromagnetischen Wellen, deren Frequenzen einem ungeradzahigen Vielfachen der ursprünglichen Laserfrequenz entsprechen. Man nennt diese Frequenzen, analog zur klassischen Wellenmechanik, Hohe Harmonische. Die Erzeugung solcher „Obertöne“ kann genutzt werden, um die ursprünglichen Laserpulse sogar noch weiter zu verkürzen. Auf diese Weise ist es heutzutage sogar möglich Attosekundenpulse zu erzeugen. Neben der hohen Intensität dieser Pulse spielt auch noch die kurze Dauer eine erhebliche Rolle für die Forschung. Typische Umlaufzeiten von Elektronen im Bohr-Modell liegen bei  $T = \frac{4\pi\hbar}{m_e(ca)^2} \approx 304 \text{ as}$ . Das entspricht eben den Dauern der heutzutage erreichbaren ultrakurzen Laserpulse. Es wird somit möglich die Dynamik von Elektronen in Atomen, Molekülen und sogar chemischen Reaktionen zeitlich nachzuverfolgen.

Elektrisch geladene Teilchen, die infolge der Wechselwirkung mit Laserpulsen entstehen, können mithilfe von Spektrometern getrennt und analysiert werden. Die Arbeitsgruppe unter der Leitung von Prof. Dr. Thomas Pfeifer und Dr. Robert Moshhammer bedient sich eines ganz besonderen Spektrometers, dem sogenannten

Reaktionsmikroskop. Dieser Apparat ermöglicht es, die komplette Impulsverteilung der elektrisch geladenen Bruchstücke unmittelbar nach dem Zeitpunkt der Wechselwirkung mit den Laserpulsen zu rekonstruieren. Nachteilhaft ist dabei, dass die Datenaufnahme relativ viel Zeit in Anspruch nimmt, weil nur einige Events zur gleichen Zeit aufgenommen werden können. Eine andere Art von Spektrometer ist das Velocity-Imaging-Map(VMI)-Spektrometer. Dieses erlaubt, ebenso wie das Reaktionsmikroskop, die Rekonstruktion der Impulsverteilungen der Bruchstücke einer Wechselwirkung. Es hat jedoch den Vorteil, dass die Datenaufnahme wesentlich schneller vorangeht, weil alle Signale in Form eines zusammenhängenden Bildes aufgenommen werden können. Prinzipiell ist es denkbar den Aufbau eines Reaktionsmikroskops zu nutzen, um es ohne aufwändige Umbaumaßnahmen als VMI Spektrometer zu betreiben. Diese Arbeit beschäftigt sich mit der Frage, ob es möglich ist eine bestehende ReMi-Apparatur so zu modifizieren, dass es möglich wird sie als VMI Spektrometer zu betreiben. Das würde es erlauben schnell zwischen verschiedenen Untersuchungsmethoden zu wechseln. Da bei der Methode des VMI keine einzelnen Events, sondern alle Ereignisse auf einmal aufgenommen werden, dauert ein VMI Experiment deutlich kürzer als die Untersuchung mit einem Reaktionsmikroskop.

# Teil II

## Theorie



# 1 Laser

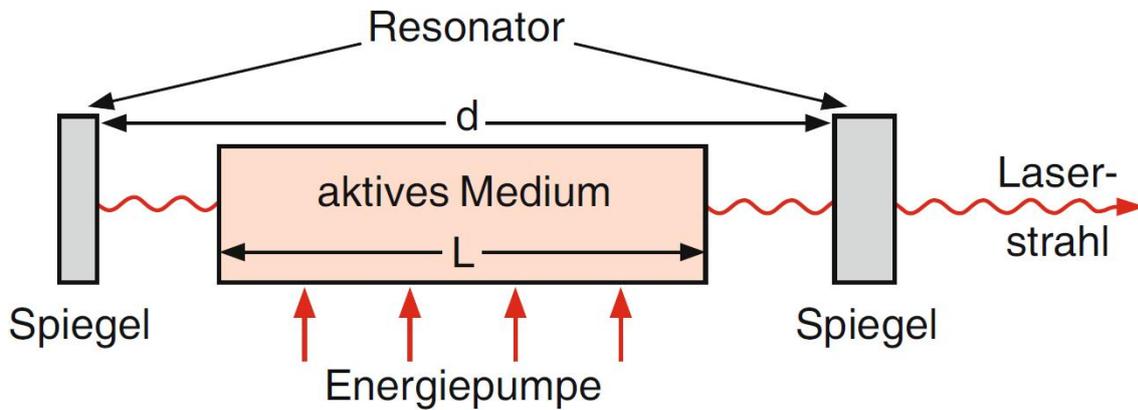


Abbildung 1.1: Grundlegender Aufbau eines Lasers. Quelle: Demtröder [16, S. 271]

Die Abkürzung Laser steht für Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation. Im Allgemeinen besteht ein Laser aus folgenden Komponenten (siehe Abb. 1.1):

- Das aktive Medium sorgt durch Absorption und Emission von Strahlung dafür, dass das Laserlicht erzeugt wird.
- Die Pumpenergie verursacht die Inversion der thermischen Besetzung der Teilchen des aktiven Mediums. Es befinden sich mehr Partikel in höherenergetischen Zuständen als das im thermischen Gleichgewicht gemäß der Maxwell-Boltzmann-Verteilung zu erwarten wäre. Die angeregten Zustände sollen so langlebig wie möglich sein, damit die zugeführte Pumpenergie lange gespeichert werden kann
- Der optische Resonator besteht im Idealfall aus zwei unendlich großen planparallelen Spiegeln, von denen einer das Licht total reflektiert und der andere halbdurchlässig ist. Licht kann innerhalb dieses Resonators mehrere Male hin und her reflektiert werden.

Bei kontinuierlichem Zuführen von Pumpenergie steigt die Intensität des elektromagnetischen Felds innerhalb des optischen Resonators an. Ein Photon stimuliert ein angeregtes Atom des aktiven Mediums zur Emission eines weiteren Photons. Beide Photonen können weitere Atome zur Lichtemission stimulieren. So entsteht ein lawinenartiger Verstärkungseffekt. Wegen der Randbedingungen, die ein beidseitig

geschlossener Resonator dem System auferlegt, müssen elektromagnetische Wellen am Ort der Spiegel Knotenpunkte besitzen. Nur solche Wellen können zeitlich stabile Wellen, sogenannte stehende Wellen, produzieren. Diese stabilen Wellen tragen die Bezeichnung *Moden*. Da das Verhältnis von induzierter zu spontaner Emissionswahrscheinlichkeit einer Mode der Anzahl der Photonen in dieser Mode entspricht [16, p. 235], finden mehr induzierte als spontane Emissionsvorgänge statt, sobald eine Mode mehr als ein Photon beherbergt. Ein großes Laserfeld innerhalb des Resonators generiert ein noch größeres, indem mehr induzierte Emissionsvorgänge stattfinden. Diese Art der positiven Rückkopplung ist imstande eine große Anzahl an Photonen zu erzeugen. Die spektrale räumliche Zustandsdichte  $D_{\nu,V}(\mu)$  der Moden eines Hohlraumstrahlers im thermischen Gleichgewicht wächst proportional mit dem Quadrat der Frequenz  $\nu$  (siehe 1.1)[16, p. 79]. Hierbei bezeichnet  $D_V$  die räumliche Zustandsdichte.

$$D(\nu)_{\nu,V} = \frac{d D_V(\nu)}{d \nu} = \frac{8\pi}{c^3} \nu^2 \quad (1.1)$$

Für die sichtbare Frequenz  $\nu_0 = 600$  THz und der Halbwertsbreite einer dopplerverbreiteten Spektrallinie  $\Delta\nu = 3$  GHz ergibt sich eine räumliche Zustandsdichte von  $10^{15}$  Moden pro  $\text{m}^3$ . Die mittlere Besetzungszahl  $\langle n(E) \rangle$  der Photonen ist durch die Bose-Einstein-Statistik gegeben. Dabei ist das chemische Potential  $\mu$  der Photonen Null, weil ihre Teilchenanzahl keine Erhaltungsgröße ist.

$$\langle n(E) \rangle = \frac{1}{\exp(E - \mu)/(k_B T) - 1} = \frac{1}{\exp E/(k_B T) - 1} \quad (1.2)$$

Bei einer Raumtemperatur von 300 K und einer Lichtwellenlänge von 600 nm beträgt die mittlere Besetzungszahl der Photonen gemäß Gleichung 1.2 quasi Null. Jede Mode wird also im Falle der thermischen Gleichverteilung im Durchschnitt von weitaus weniger als einem Photon besetzt. Das verhindert eine große Verstärkung des Lichtfeldes gemäß der oben beschriebenen positiven Rückkopplung. Deshalb ist es zum Erreichen eines starken Laserfeldes wünschenswert viele Photonen in möglichst wenige Moden zu zwingen. Genau das macht einen Laser aus. Die Selektion bestimmter Moden kann bei offenen optischen Resonatoren über die Resonatorgeometrie erfolgen. Verstärkt werden nur jene Resonanzfrequenzen, die stehende Wellen ausbilden. Alle anderen Moden erleiden derartig große Verluste, dass es zur Nettoverstärkung nicht ausreicht.

Während die Laserfeldmoden in geschlossenen Resonatoren als Überlagerungen ebener Wellen beschrieben werden können, sind die Moden offener Resonatoren mit endlichen Spiegeldurchmessern wegen auftretender Beugungsverluste keine ebenen Wellen mehr [16]. Für zylindrische Geometrien lassen sich die sogenannten transversalen elektromagnetischen Moden ( $\text{TEM}_{mnq}$ ) offener Resonatoren als komplizierte Kombination eines Gaußprofils und eines Laguerre-Polynoms ausdrücken[8]. Fundamentalmoden sind solche, für die die beiden Indizes  $m$  und  $n$  jeweils den Wert Null annehmen. Dann entspricht das radiale Intensitätsprofil einer Gaußverteilung

und  $q$  gibt die Anzahl der Knoten entlang der Resonatorachse wieder. Das Frequenzspektrum des Resonators setzt sich maßgeblich aus den Moden zusammen, die stehende Wellen ausbilden können. Im Fall von ebenen Resonatorspiegeln lautet die Bedingung für stehende Wellen [16, p. 281]

$$\nu_r = \frac{c}{2d} \left( q + \frac{1}{2}(m + n + 1) \right) \quad (1.3)$$

$d$  bezeichnet hier die Resonatorlänge (siehe Abb. 1.1). Damit beträgt die freie Spektralbreite zweier benachbarter Moden  $\frac{c}{4d}$ . Das bedeutet, dass zwischen den Fundamentalmoden des Resonators mit unendlich weit ausgedehnten Spiegeln noch weitere Moden liegen. Die Beugungsverluste dieser nicht-fundamentalen Moden können durch geeignete Wahl der Resonatorgeometrie erhöht werden, sodass nur die Fundamentalmoden maßgeblich zum Laserfeld beitragen [33] (siehe Abb. 1.2).

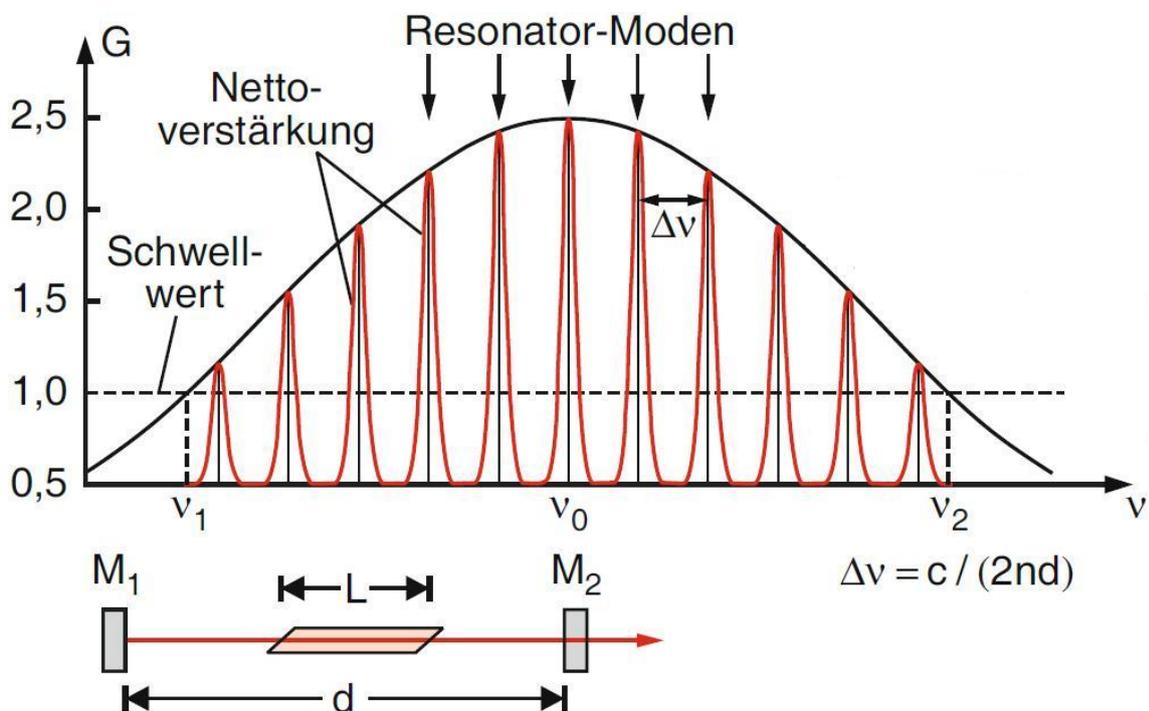


Abbildung 1.2: Nettoverstärkung  $G$  eines offenen Resonators. Die schwarze Kurve beschreibt das spektrale Verstärkungsprofil des aktiven Mediums. Nur jene Frequenzen, für die die Verstärkung durch das aktive Medium größer ist als die auftretenden Verluste, werden schließlich amplifiziert. Die Resonatorgeometrie ist hier so gewählt, dass nur die Fundamentalmoden mit  $m = n = 0$  verstärkt werden. Daher beträgt der freie Spektralbereich hier  $\Delta\nu = \frac{c}{2d}$ . Quelle: Demtröder [16, S. 281]



## 2 Ultrakurze Laserpulse

Eine Möglichkeit einen Laserpuls mathematisch zu beschreiben ist es, ihn als kohärente Überlagerung ebener Wellen unterschiedlicher Frequenzen zu verstehen (siehe Gleichung 2.1). Dabei beschreibt  $E$  die elektrische Feldamplitude an einem festen Ort,  $t$  die Zeit,  $\omega$  die Kreisfrequenz und  $\phi$  den Phasenwinkel.

$$E(t) = \int_0^\infty A(\omega) \exp[i(\omega t - \phi(\omega))] d\omega \quad (2.1)$$

Durch die Fouriertransformation kann das Frequenzspektrum eines zeitlich periodischen Signals gewonnen werden (siehe 2.2).  $\tilde{E}(\omega)$  gibt hierbei an mit welcher Gewichtung die Frequenzkomponente  $\omega$  zum elektrischen Feld des Pulses beiträgt.

$$\tilde{E}(\omega) = \mathcal{F}^{-1}(E(t))(\omega) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^\infty E(t) e^{i\omega t} dt \quad (2.2)$$

Aufgrund der Unschärferelation der Fouriertransformation stehen die spektrale Breite  $\Delta\omega$  und zeitliche Breite  $\Delta t$  einer normierten elektromagnetischen Welle miteinander in Beziehung. Umso kürzer ein erzeugter Laserpuls werden soll, desto mehr Frequenzkomponenten sind zur Erzeugung nötig.

Die Idee ultrakurzer Laserpulse ist es, durch die Konzentration von Energie innerhalb kurzer Zeit hohe Intensitäten zu erzeugen. Dazu muss der Laseroutput zeitlich kontrolliert werden können. Es gibt mehrere Methoden, um das zu erreichen. Im Folgenden wird die dieser Arbeit zugrundeliegende Methode des Kerr-Lens-Mode-Lockings erläutert.

### 2.1 Mode Locking

Die Longitudinalmoden eines einfachen idealen Lasers, wie er in Abschnitt 2.2 beschrieben wurde, sind ebene Wellen mit äquidistanten Frequenzen, die unabhängig voneinander propagieren. Sei  $E_k(t) = E_{0,k} \exp(i(\omega_k t + \varphi_k))$  der zeitliche Verlauf der Feldamplitude der Mode  $k$  mit Kreisfrequenz  $\omega_k$  und zusätzlicher Phase  $\varphi_k$  an einem festen Ort. Die Modenfrequenzen sind gegeben durch  $\omega_k = \omega_0 + k\Delta\omega$  mit der Differenz der Kreisfrequenz zweier benachbarter Moden  $\Delta\omega = 2\pi\Delta\nu$ . Die Überlagerung aller Moden  $k = 0, 1, 2, \dots, K$  liefert:

$$E(t) = \sum_{k=0}^K E_k(t) = \sum_{k=0}^K E_{0,k} e^{i[(\omega_0 + k\Delta\omega)t + \varphi_k]} \quad (2.3)$$

Mode-Locking bedeutet die Phasen bei gleicher maximaler Feldamplitude aller Moden in eine konstante Phasenbeziehung zueinander zu setzen. Das entspricht in unserem Beispiel des einfachen Lasers der Überlagerung mehrerer monochromatischer ebener Wellen mit fester Phasendifferenz.  $E_0$  und  $\Delta\varphi$  beschreiben im Folgenden die konstante Amplitude und die konstante Phasendifferenz zwischen aufeinanderfolgenden Wellen. Die zusätzliche Phase der Mode  $k$  ist nun  $\varphi_k = \varphi_0 + k\Delta\varphi$ . Ohne Beschränkung der Allgemeinheit können wir die zusätzliche Phase der nullten Mode  $\varphi_0$  Null setzen. Das Ergebnis der Überlagerung der Modenkopplung ist eine Schwebung  $E(t)$  (siehe Gleichung 2.5), die sich zeitlich mit fester Periode wiederholt und deren maximale Amplitude viel größer ist als die der einzelnen ebenen Wellen.

$$E(t) = E_0 e^{i\omega_0 t} \sum_{k=-K}^K e^{ik(\Delta\omega t + \Delta\varphi)} \quad (2.4)$$

$$= E_0 e^{i\omega_0 t} A(t) \quad (2.5)$$

Dabei ist  $A(t)$  eine geometrische Reihe, für die gilt [59, p. 340]:

$$A(t) = \sum_{k=-K}^K e^{ik(\Delta\omega t + \Delta\varphi)} \quad (2.6)$$

$$= \frac{\sin^2\left(\frac{2K+1}{2}(\Delta\omega t + \Delta\varphi)\right)}{\sin^2\left(\frac{1}{2}(\Delta\omega t + \Delta\varphi)\right)} \quad (2.7)$$

Für die Intensität gilt dann

$$I(t) = |E(t)|^2 \quad (2.8)$$

$$= E_0^2 |A(t)|^2 \quad (2.9)$$

$$= E_0^2 \left( \frac{\sin^2\left[\frac{K+1}{2}(\Delta\omega t + \Delta\varphi)\right]}{\sin^2\left[\frac{1}{2}(\Delta\omega t + \Delta\varphi)\right]} \right)^2 \quad (2.10)$$

Die Interferenz phasenfester monochromatischer ebener Wellen ermöglicht es ein elektromagnetisches Feld zu erzeugen, dass in zeitlich regelmäßigen Abständen für eine begrenzte Zeitdauer viel Intensität besitzt. Abb. 2.1 zeigt in der oberen Hälfte das Resultat gekoppelter Moden. Nach einer wohldefinierten Periodendauer erreicht das Signal sein globales Maximum, welches um ein Vielfaches größer ist als dessen durchschnittliche Feldstärke ( $|\operatorname{Re}(E(t))|$ ). In der unteren Hälfte ist die Interferenz mehrerer ebener Wellen mit zufälliger Phase dargestellt. Dieses Signal besitzt im Mittel eine durchgängig gleichbleibende Feldstärke und wird deshalb auch als *continuous wave* Modus bezeichnet. Die Dauer zwischen zwei aufeinanderfolgenden Pulsen

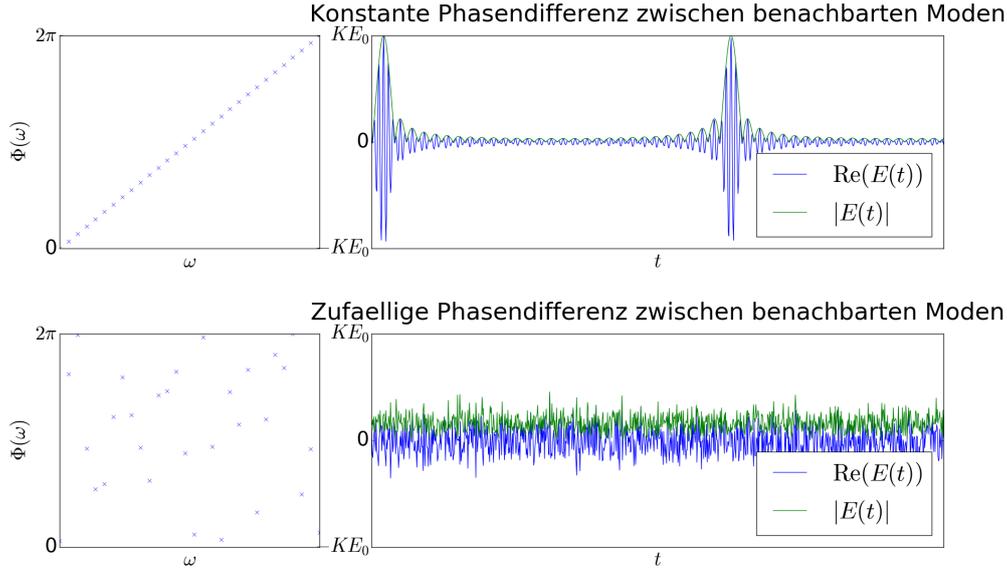


Abbildung 2.1: Kohärente Interferenz von mehreren monochromatischen, ebenen Wellen.

beträgt  $\tau_p = \frac{2\pi}{\Delta\omega} = \frac{1}{\Delta\nu} = \frac{2L}{c}$ . Die Breite eines einzelnen Pulses  $\Delta\tau_p$  ist über die Fouriertransformation mit der Frequenzbandweite des Lasers  $\Delta\nu_l$  gemäß  $\Delta\tau_p = \frac{1}{\Delta\nu_l}$  verknüpft.

In einem einfachen Laser besitzen die unterschiedlichen Moden keine feste Phasenbeziehung zueinander. Es gibt aber mehrere Möglichkeiten Mode Locking experimentell zu realisieren. Allen ist gemein, dass sie den Output der Laserleistung nur während eines periodisch wiederkehrenden kurzen Zeitfensters erlauben. Außerhalb dieses Zeitfensters wird das Laserfeld im Resonator verstärkt. In den vorliegenden Experimenten wird der sogenannte Kerr-Lens-Effekt verwendet, der im Folgenden erläutert wird.

## 2.2 Optischer Kerr-Lens-Effekt und Selbstphasenmodulation

Der Kerr-Effekt beruht auf der Tatsache, dass in nichtlinearen Medien der Brechungsindex von der Intensität des eingestrahnten Laserfeldes abhängt.

$$n(I) = n_0 + n_2 I(t) \quad (2.11)$$

Hierbei ist  $I(t)$  die Einhüllende der Intensität,  $n_0$  der gewöhnliche Brechungsindex und  $n_2$  der Brechungsindex zweiter Ordnung. Letzterer gewinnt Bedeutung, sobald die mittlere Energie des Laserfeldes vergleichbar mit den Energien der elektronischen Zustände wird [30, p. 46]. Wir nehmen im Folgenden an, dass ein Laserstrahl

mit gaußförmigem Intensitätsprofil ein nichtlineares Medium, bei dem der Kerr-Effekt beobachtet werden kann, durchdringt (siehe Abb. 2.2). Wenn  $n_2$  positiv ist, dann ist der Brechungsindex im Mittelpunkt des Strahls am größten und nimmt zu den Flanken hin gaußförmig ab. Es entsteht eine Gauslinse, die den Laserstrahl im Medium fokussiert [30, p. 47]. Dabei werden die schwachen Flanken des Strahls kaum bis gar nicht fokussiert. Nur die ohnehin schon intensive Strahlmitte wird in ihrer Intensität verstärkt. Gemäß Gleichung 2.11 fokussiert sich der Strahl selbst. Durch Einbringen einer Apertur gelingt es die intensiven Signalkomponenten vom CW-Hintergrund zu trennen. Es werden also nur die starken Pulse, die durch die Interferenz phasengekoppelter Moden entstehen, durchgelassen und werden im Folgenden im Resonator verstärkt. Da die anfänglichen und abschließenden Flanken im Vergleich zur Pulsmitte geringere Intensitäten aufweisen, werden sie deutlich weniger gebrochen. Sie tragen nach Durchgang des Mediums deutlich weniger zum verstärkten Puls bei als zuvor. Der Puls wird somit verkürzt. Dadurch, dass die Intensität

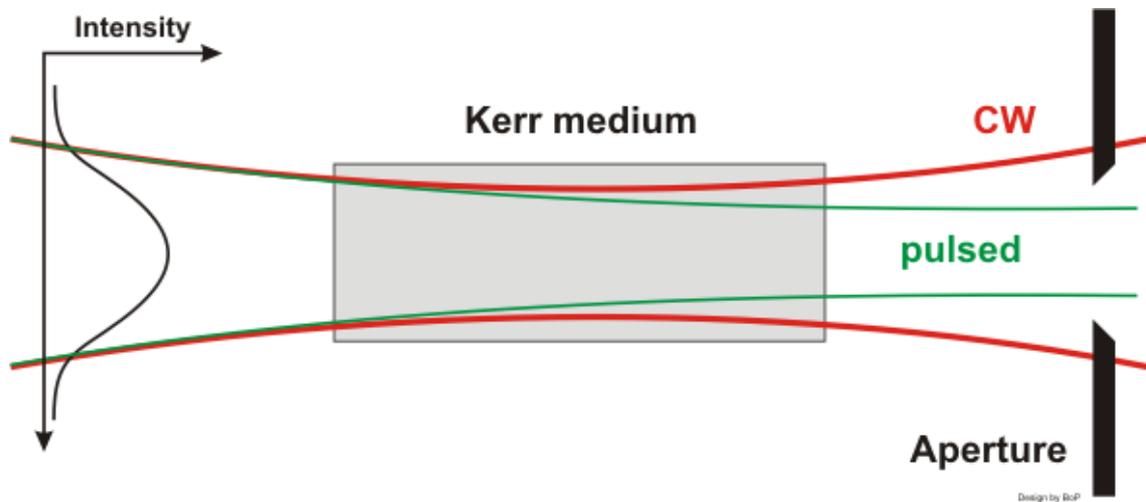


Abbildung 2.2: Anschauliche Erklärung der Kerr-Lens-Modenkopplung. Das nichtlineare Kerr-Medium fokussiert nur sehr starke Intensitäten. Durch Einbringen einer Apertur, werden die modengekoppelten Laserpulse fokussiert und vom CW-Hintergrund getrennt.

des gepulsten Lasers zeitabhängig ist, ändert der Kerr-Lens-Effekt die momentane Frequenz des Laserstrahls im Medium. Um das zu verstehen, nehmen wir an, dass  $\phi(t) = \omega_0 t - k(t)x$  die Phase eines Laserpulses sei, der sich in x-Richtung mit der Wellenzahl  $k(t) = \frac{\omega}{c}n(t)$  ausbreitet. Für die momentane Kreisfrequenz gilt dann:

$$\omega(t) = \frac{\partial \phi(t)}{\partial t} = \omega_0 \left( 1 - \frac{\partial n(t)}{\partial t} \frac{x}{c} \right) = \omega_0 \left( 1 - \frac{\partial I(t)}{\partial t} \frac{n_2 x}{c} \right) \quad (2.12)$$

Die Frequenzen des Pulsanfangs werden zu kleineren Frequenzen verschoben, während die Frequenzen des Pulsendes zu größeren Frequenzen verschoben werden. Das Pulsspektrum wird insgesamt auf symmetrische Art um sein Maximum verbreitert

(siehe Abb. 2.3). Das zeitliche Profil der Intensitätseinhüllenden bleibt jedoch erhalten. Diese Art der Erweiterung des Frequenzspektrums wird Selbstphasenmodulation genannt.

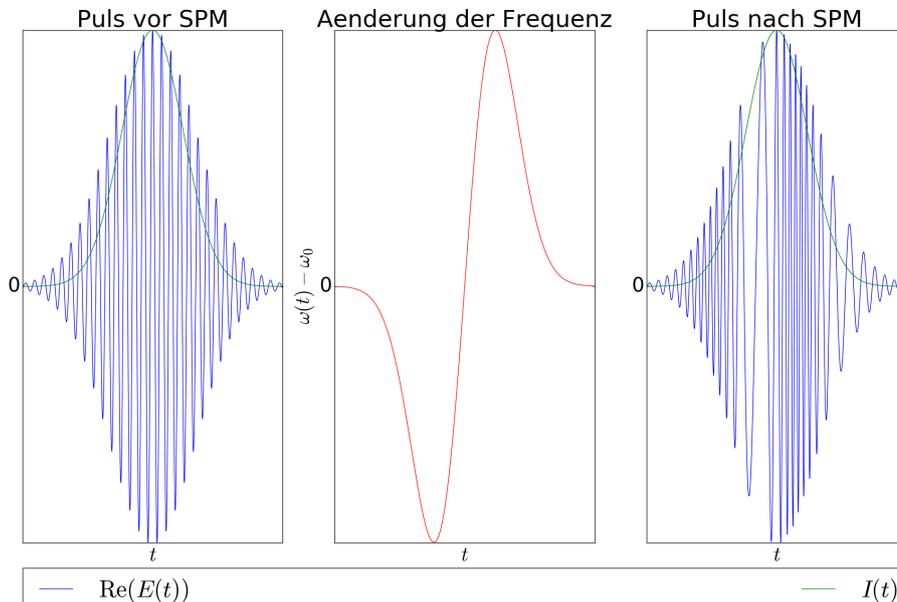


Abbildung 2.3: Anschauliche Erklärung der Selbstphasenmodulation

Neben der Selbstphasenmodulation unterliegt das Licht auch noch dispersiven Effekten. Damit die Erweiterung des Frequenzspektrums letztendlich zur Verkürzung der Pulse genutzt werden kann, ist es notwendig die Dispersion zu kompensieren. Dies ist genauer in Abschnitt 2.3 beschrieben.

## 2.3 Dispersion

Jedes optische Bauelement und die Luft verursachen Dispersion der Gruppengeschwindigkeit des einfallenden Laserlichts. Im Falle der normalen Dispersion wird blaues energiereiches Licht im Medium langsamer transportiert als energieärmeres rotes Licht. Das führt dazu, dass der Laserpuls einer zeitlichen Verbreiterung unterliegt. Um das zu verstehen, wird im Folgenden von einem elektrischen Feld ausgegangen, das durch Superposition ebener Wellen entsteht. Die spektrale Amplitude der einzelnen Frequenzkomponenten wird dabei als gaussförmig angenommen (siehe Gleichung 2.13).

$$E(t) = \sum_{k=-K}^K A(\omega_k) e^{i(\omega_k t - \varphi(\omega_k))} \quad (2.13)$$

Genau wie in Abschnitt 2.2 auch sind die Frequenzkomponenten  $\omega_k = \omega_0 + k\Delta\omega$  äquidistant um eine mittlere Frequenz  $\omega_0$  angeordnet. Sie entsprechen den Fundamentalmoden des einfachen Lasers. Abbildung 2.4 zeigt, wie sich der Laserpuls bei unterschiedlichen Frequenzabhängigkeiten der Phase  $\varphi(\omega)$  verhält. Die Abbildung

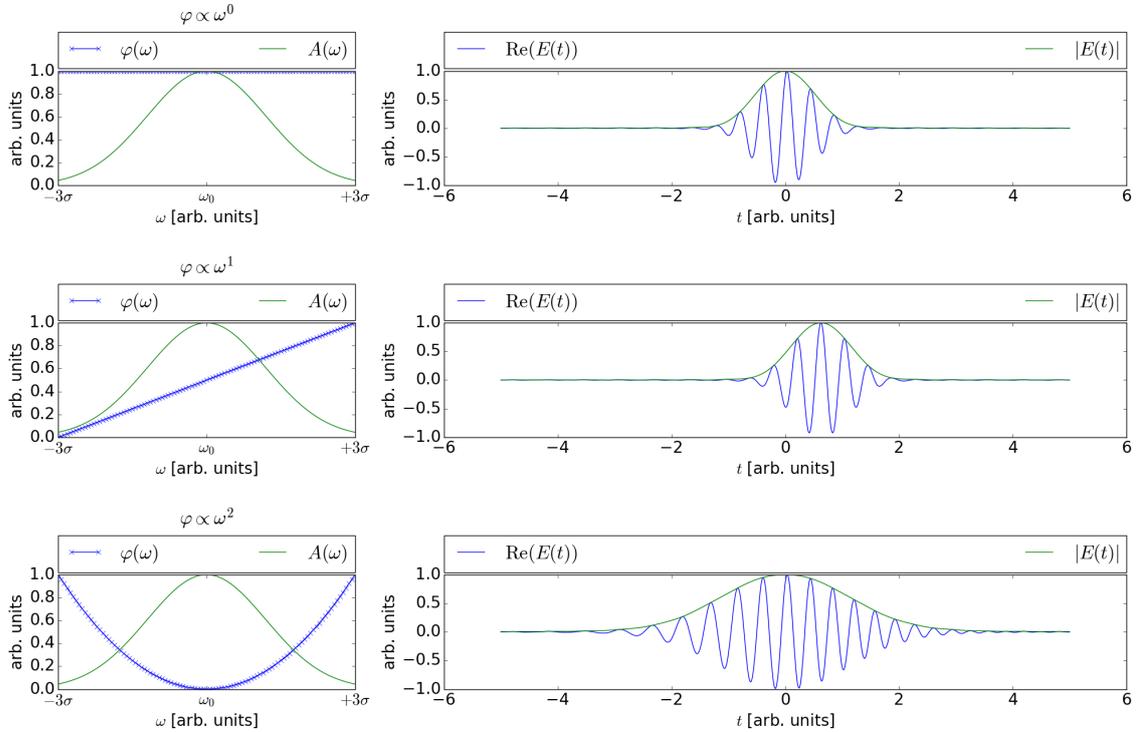


Abbildung 2.4: Zeitliche Pulsentwicklung bei unterschiedlichen Frequenzabhängigkeiten der Phase  $\varphi(\omega)$ .

zeigt klar, dass wenn keine Phasendifferenzen zwischen den einzelnen Moden bestehen, ein symmetrisches Zeitsignal entsteht. Konstante Phasendifferenzen zwischen benachbarten Moden verschieben den Puls unter strikter Beibehaltung seines Profils auf der Zeitachse. Erst eine quadratische Phasenabhängigkeit führt dazu, dass die Pulsdauer verändert wird. Bei genauerem Betrachten des elektrischen Feldes bei quadratischer Phasenabhängigkeit kann man feststellen, dass die Periodendauer des inneren Signals mit der Zeit tatsächlich zunimmt. Ein Signal, welches eine zeitliche Frequenzänderung erfährt, wird *Chirp* genannt. Nichtlineare normale Dispersionen, wie sie in optischen Spiegeln typischerweise vorliegen, führen zu solch einem Chirp und damit zur Verbreiterung eines Pulses.

Um einen möglichst kurzen Puls zu gewährleisten, muss der Chirp gut kompensiert werden. Ein Kompressormodul bestehend aus Prismen und speziell beschichteten Spiegeln kann die Dispersion wieder ausgleichen.

Ein Prismakompressor verwendet mindestens zwei Prismen, um die zurückzulegende Weglänge wellenlängenspezifisch zu verändern (siehe Abb. 2.5). Aufgrund der normalen Dispersion wird Licht in seine spektralen Komponenten aufgetrennt.

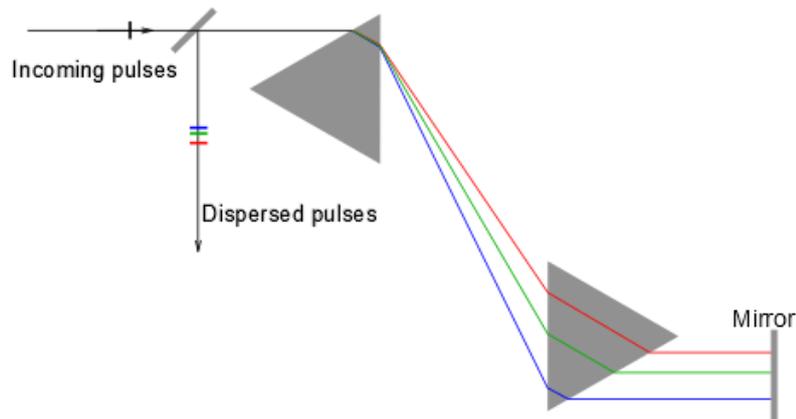


Abbildung 2.5: Grundlegender Aufbau eines Prismakompressors. Quelle: [64]

Blaues Licht wird dabei stärker gebrochen als rotes Licht. Nachdem das erste Prisma passiert wurde, unterscheiden sich die Weglängen in der Luft der unterschiedlichen Frequenzkomponenten bis zum zweiten Prisma. Erneute Brechung durch das zweite Prisma kollimiert die Lichtstrahlen. Insgesamt ist die vom roten Licht zurückgelegte optische Weglänge kürzer als die des blauen Lichts. Das rote Licht ist also schneller als das blaue. Ein Spiegel reflektiert das Licht und sorgt dafür, dass es den selben Weg noch einmal in umgekehrter Richtung durchläuft. Die Differenzen der optischen Weglängen zwischen je zwei Frequenzkomponenten nach einmaligem Passieren des zweiten Prismas verdoppeln sich dadurch.

Gechirpte Spiegel sind dielektrische Spiegel, die aus mehreren feinen Schichten unterschiedlicher Materialien bestehen (siehe Abb. 2.6). Jedes Material reflektiert nur eine bestimmte Wellenlänge. Lichtwellen, die erst in tieferen Schichten reflektiert werden, legen einen längeren Weg zurück. Durch die richtige Wahl der Materialien und Schichtdicken kann so ein Spiegel mit negativer Dispersion hergestellt werden.

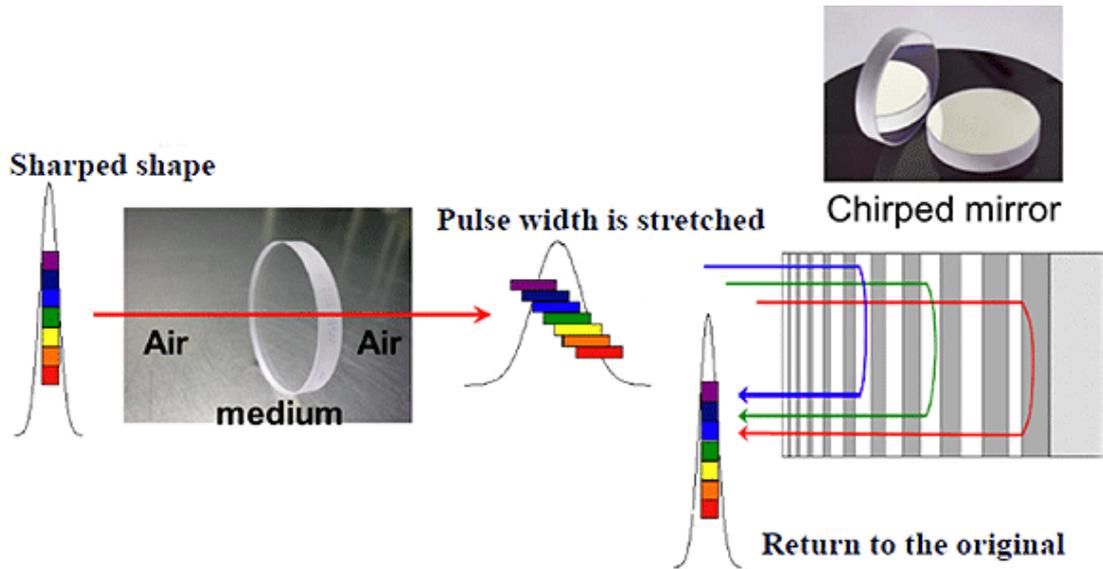


Abbildung 2.6: Skizze zur Erklärung des Prinzips eines gec chirpten Spiegels. Quelle: [60]

## 2.4 Fokussierte Laserstrahlen

Um sehr starke Laserfelder zu erreichen, ist es notwendig den Laserstrahl genügend stark zu fokussieren. Das Reaktionsvolumen wird durch den Überlapp des Laserfokus mit dem Teilchenstrahl bestimmt. Die Kenntnis über die Form des Fokus ist hilfreich, um später in den Simulationen des VMI Spektrometers in Abschnitt 6.2.1 eine passende anfängliche Elektronenverteilung auswählen zu können.

Unter der Annahme, dass lediglich die gaußförmigen Fundamentalmomen zum Laserfeld beitragen, kann die Intensitätsverteilung des noch unfokussierten Laserstrahls wie folgt geschrieben werden[51]:

$$I(r, z) = I_0 \left( \frac{\omega_0}{\omega(z)} \right)^2 \exp \left( -\frac{2r^2}{\omega(z)^2} \right) \quad (2.14)$$

$$\omega(z) = \omega_0 \sqrt{1 + \left( \frac{z}{z_R} \right)^2} \quad (2.15)$$

$$z_R = \frac{\omega_0^2 \pi}{\lambda} \quad (2.16)$$

Hierbei bezeichnen  $r$  den radialen Abstand vom Betrachtungsort zur Symmetrieachse des Laserstrahls,  $z$  die Ortskoordinate in Ausbreitungsrichtung,  $\omega(z)$  den Strahlradius,  $\omega_0$  den Strahlradius am Ort der schmalsten Taille bei  $z = 0$ ,  $z_R$  die Rayleighlänge und  $I_0$  die Intensität im Fokuspunkt  $r = z = 0$  (siehe Abb. 2.7). Die Rayleighlänge gibt an, nach welcher Distanz  $z_R$  von der Taille der Strahldurchmesser  $\omega(z)$  um den Faktor  $\sqrt{2}$  zugenommen hat, d.h. die Intensität auf der Laserstrahlachse um die Hälfte abgenommen hat.  $\omega_0$  kennzeichnet den Strahlradius am Ort

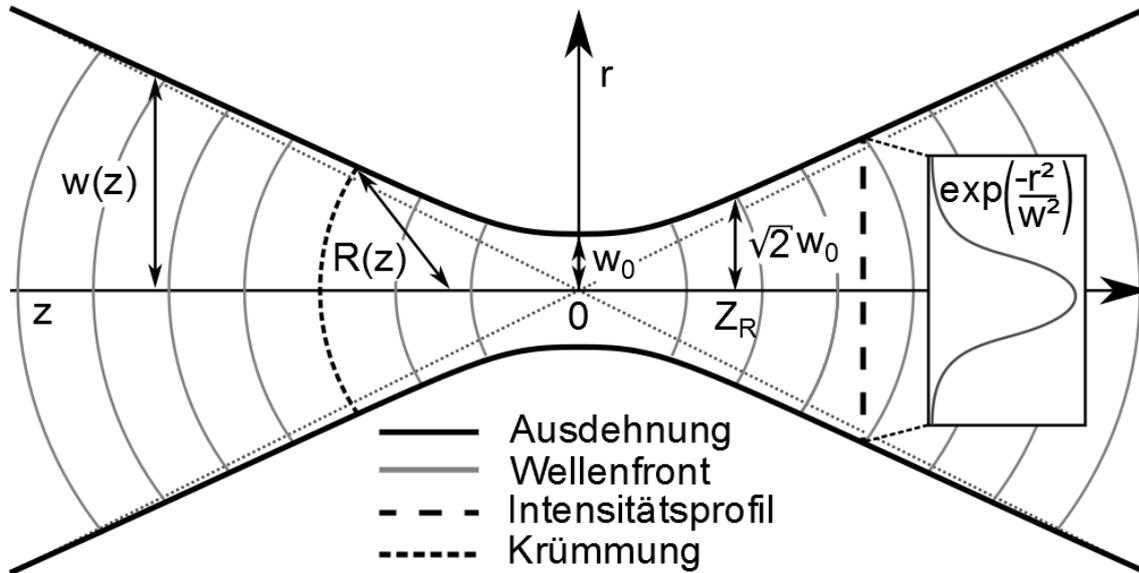


Abbildung 2.7: Schema eines Gaußstrahls mit Strahlradius  $w(z)$ . Quelle: [12]

der Taille bei  $z = 0$ , ab dem die Intensität auf den  $\frac{1}{e^2}$ -ten Teil des Maximalwerts abgefallen ist.

Ein durch eine ideale Linse oder einen idealen Spiegel fokussierter Gaußstrahl bildet wieder einen Gaußstrahl [20]. Deshalb darf in paraxialer Näherung die Matrizenoptik aus der klassischen Optik rigoros angewendet werden. Wie für die geometrische Optik üblich, werden dabei Beugungseffekte komplett vernachlässigt. Für einen sphärischen Spiegel mit Radius  $R$ , wie er in den Experimenten verwendet wird (siehe Abschnitt 6.2.2), beträgt die Brennweite  $f = \frac{R}{2}$  und die Transfermatrix lautet

$$S = \begin{pmatrix} 1 & 0 \\ -\frac{1}{f} & 1 \end{pmatrix} \quad (2.17)$$

Die Transfermatrizen der beiden Translationen lauten

$$T = \begin{pmatrix} 1 & d \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.18)$$

$$T' = \begin{pmatrix} 1 & d' \\ 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (2.19)$$

Dabei bezeichnen  $d$  und  $d'$  die Abstände zwischen der Spiegelfläche und den Tailen des einlaufenden bzw. reflektierten Gaußstrahls auf der Laserachse. Anders als bei der geometrischen Optik, werden die Transfermatrizen bei Gaußstrahlen nicht auf Strahlenvektoren, sondern auf den sogenannten q-Parameter angewendet. Der q-Parameter eines Gaußstrahls ist definiert über:

$$q = z + iz_R \quad (2.20)$$

Der q-Parameter des einlaufenden Gaußstrahls  $q$  transformiert sich zu dem des reflektierten Gaußstrahls  $q'$  für eine beliebige Transfermatrix  $M = \begin{pmatrix} A & B \\ C & D \end{pmatrix}$  via

$$q' = \frac{Aq + B}{Cq + D} \quad (2.21)$$

Die gesamte Transfermatrix  $G$ , bestehend aus den drei Transformationen Translation–Spiegelung–Translation, ergibt sich aus dem Produkt der Matrizen.

$$G = T' \cdot S \cdot T \quad (2.22)$$

$$= \begin{pmatrix} 1 - \frac{d'}{f} & \left(1 - \frac{d'}{f}\right) d + d' \\ -\frac{1}{f} & 1 - \frac{d}{f} \end{pmatrix} \quad (2.23)$$

Unter der Annahme, dass  $d = 0$  (d.h. dass die Taille des einfallenden Gaußstrahls mit dem Mittelpunkt des Spiegels zusammenfällt) folgt gemäß Gleichung 2.20

$$q = iz_R \quad (2.24)$$

Der q-Parameter des reflektierten Gaußstrahls  $q'$  am Ort der Taille lautet nun gemäß der Transformationsvorschrift aus Gleichung 2.21

$$q' \stackrel{(2.21)+(2.23)}{=} \frac{\left(1 - \frac{d'}{f}\right) q + \left(1 - \frac{d'}{f}\right) d + d'}{-\frac{q}{f} + 1 - \frac{d}{f}} \quad (2.25)$$

$$\stackrel{d=0}{=} \frac{\left(1 - \frac{d'}{f}\right) q + d'}{-\frac{q}{f} + 1} \quad (2.26)$$

Um nun den Abstand der Taille des reflektierten Gaußstrahls vom Spiegel  $d'$  zu ermitteln, wird der Realteil von  $q'$  Null gesetzt, denn am Ort der Taille wird  $z' = 0$  und gemäß Gleichung 2.20 wird der q-Parameter  $q' = z' + iz'_R = iz'_R$  somit rein imaginär.

$$\operatorname{Re}(q') \stackrel{(2.24)+(2.26)}{=} \frac{d' - \left(1 - \frac{d'}{f}\right) \cdot \frac{z_R^2}{f}}{1 + \frac{z_R^2}{f^2}} \stackrel{!}{=} 0 \quad (2.27)$$

$$\Rightarrow d' = \frac{f}{\frac{f^2}{z_R^2} + 1} \quad (2.28)$$

Für den Strahlradius der Taille des reflektierten Gaußstrahls  $\omega'_0$  ergibt sich

$$q' \stackrel{(2.20)+z'=0}{=} iz'_R \quad (2.29)$$

$$\stackrel{(2.16)}{=} i \frac{\omega_0'^2 \pi}{\lambda} \quad (2.30)$$

$$\Rightarrow \omega'_0 = \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \text{Im}(q')} \quad (2.31)$$

$$\stackrel{(2.26)}{=} \sqrt{\frac{\lambda}{\pi} \frac{z_R}{1 + \frac{z_R^2}{f^2}}} \quad (2.32)$$

$$\stackrel{(2.16)}{=} \omega_0 \frac{\frac{f}{z_R}}{\sqrt{1 + \frac{f^2}{z_R^2}}} \quad (2.33)$$

Für den Fall, dass die Brennweite des Spiegels viel kleiner ist als die Rayleighlänge  $f \ll z_R$ , erhält man in guter Näherung

$$\omega'_0 = \omega_0 \frac{f}{z_R} \quad (2.34)$$

$$\stackrel{(2.16)}{=} \frac{f\lambda}{\omega_0 \pi} \quad (2.35)$$

$$d' = f \quad (2.36)$$

Gemäß den Gleichungen 2.35 und 2.16 wird der Fokus umso intensiver, je kleiner die Wellenlänge und die Brennweite ausfallen. Die Gleichungen suggerieren außerdem, dass für einen scharfen Fokus eine möglichst große Strahltaile von Vorteil ist. Diese Aussage ist jedoch im Rahmen der hier verwendeten paraxialen Näherung nicht möglich, weil im Falle einer großen einfallenden Strahltaile die Ablenkungswinkel der reflektierten Strahlen nicht mehr vernachlässigbar klein sind.

Will man die Fokusbreiten entlang der und transversal zur Strahlausbreitung vergleichen, ist es notwendig die Rayleighlänge  $z'_R$  und  $\omega'_0$  für den gleichen prozentualen Intensitätsabfall anzugeben. Mit Gleichung 2.14 und dem Quotienten  $\alpha = \frac{I(r, z)}{I_0}$  folgt

$$r^\alpha = \text{Re} \left( \sqrt{-\frac{\omega^2(z)}{2} \ln \left( \alpha \left( \frac{\omega(z)}{\omega_0} \right)^2 \right)} \right) \quad (2.37)$$

Es zeigt sich, wie bereits auf Seite 31 erwähnt, dass  $r^{\alpha=1/e^2}(z=0) = \omega_0$ . Es bleibt herauszufinden, für welches  $z$  die Bedingung  $r^{\alpha=1/e^2}(z) = 0$  erfüllt wird. Es stellt sich heraus, dass dies für  $z = \sqrt{e^2 - 1} z_R$  der Fall ist. Vergleichbarkeit ist also dann gegeben, wenn  $\Delta r' = 2\omega'_0$  mit  $\Delta z' = 2\sqrt{e^2 - 1} z'_R$  verglichen wird. Man findet schließlich

mithilfe der Gleichungen 2.16 und 2.35 für den Quotienten der eindimensionalen Fokusaushendungen  $\Delta r'$  und  $\Delta z'$ :

$$\frac{\Delta z'}{\Delta r'} = \sqrt{e^2 - 1} \frac{f}{\omega_0} \quad (2.38)$$

$$\approx 2.53 \frac{f}{\omega_0} \quad (2.39)$$

Eine einfache Beispielrechnung gibt qualitativ Aufschluss über das Verhältnis der radialen und longitudinalen Fokusbreite. Für eine Wellenlänge von 500 nm, eine Brennweite von 5 cm und einen Strahlradius von 0.5 cm ergeben sich folgende Werte:

$$\Delta r' = 3.18 \mu\text{m}$$

$$\frac{\Delta z'}{\Delta r'} = 25.3$$

Damit ist die longitudinale Fokusbreite etwa 25 Mal größer als die radiale. Abb. 2.8 zeigt die Intensitätsverteilung relativ zum Maximalwert. Man beachte, dass die Skala in z-Richtung deutlich größer als die in transversaler Richtung ist. Reale La-

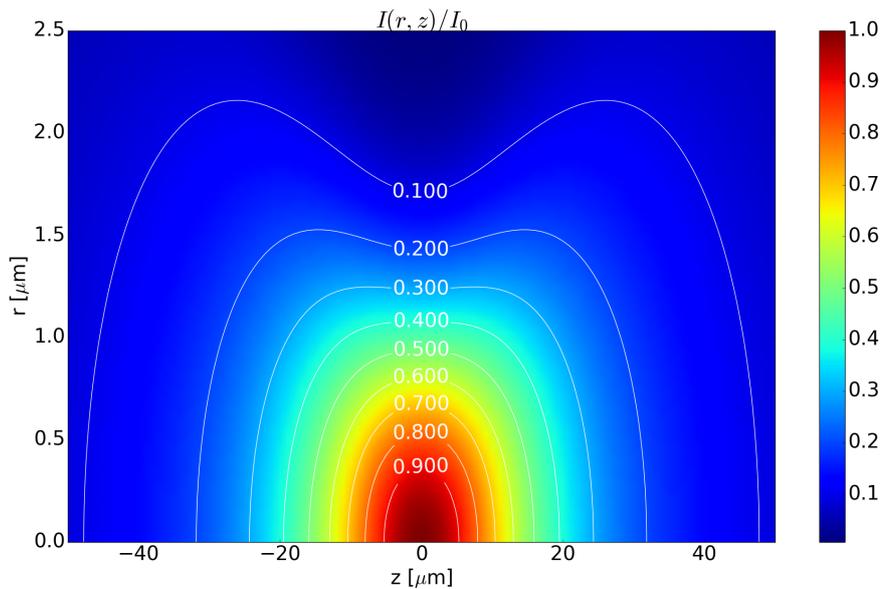


Abbildung 2.8: Intensitätsverteilung in der Foksumgebung eines sphärischen Spiegels für  $\lambda = 500 \text{ nm}$ ,  $f = 50 \text{ mm}$  und  $\omega_0 = 0.5 \text{ cm}$

ser emittieren nicht nur fundamentale TEM-Moden. Durch Inhomogenitäten in der Verstärkung durch das aktive Medium können Störungen in Phasen und Amplituden entstehen. Die hier präsentierte Intensitätsverteilung soll lediglich ein qualitatives Bild vermitteln, um eine grobe Vorstellung von der Form des Fokus zu vermitteln.

# 3 Atome und Moleküle in starken Laserfeldern

Das gesamte nachfolgende Kapitel folgt prinzipiell Joachain, Kylstra, and Potvliege [32]. Die im Folgenden erklärten Theorien und Modelle berücksichtigen weder nicht-dipolare noch relativistische Effekte.

Um definieren zu können, was starke Laserfeld in Bezug auf Atome und Moleküle sind, ist es notwendig sich über die Kräfteverhältnisse in einem gebundenen Atom klar zu werden. Die typische elektrische Feldstärke eines Elektrons in der ersten Bohrschale des Wasserstoffatoms ist

$$E_a = \frac{e}{4\pi\epsilon_0 a_0^2} \simeq 5 \times 10^9 \text{ V cm}^{-1} \quad (3.1)$$

Die damit verbundene Intensität beträgt

$$I_a = \frac{1}{2}\epsilon_0 c E_a^2 \simeq 4 \times 10^{16} \text{ W cm}^{-2} \quad (3.2)$$

## 3.1 Quantenmechanische Störungstheorie

Bei der Vernachlässigung relativistischer Effekte kann die Schrödingergleichung herangezogen werden, um die zeitliche Entwicklung der Wellenfunktion  $\Psi$  eines Elektrons zu erfahren. Die quantenmechanische Störungsrechnung liefert eine Methode solche Probleme, bei denen der Hamiltonoperator  $H(t) = H_0 + H_s$  die Summe des ungestörten Hamiltonians  $H_0$  und einer kleinen Störung  $H_s$  ist, näherungsweise zu lösen. Unter der Annahme, dass die Eigenenergien  $E_k$  und Eigenzustände  $\Psi_k$  der ungestörten Schrödingergleichung bekannt sind, ist die allgemeine Lösung des ungestörten Problems:

$$|\Psi_0(t)\rangle = \sum_k c_k^{(0)} |\Psi_k\rangle e^{-iE_k t/\hbar} \quad (3.3)$$

Mit der Einführung des ungestörten Zeitentwicklungsoperators im Wechselwirkungsbild  $U_0(t, t_0)$  und seiner rekursiven Dyson-Reihe

$$U_0(t, t_0) = 1 - \frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t dt_1 H_0(t_1) U(t_1, t_0) \quad (3.4)$$

findet man nach korrekter mathematischer Behandlung, dass die Eigenzustände der gestörten Schrödingergleichung durch

$$|\Psi_i(t)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} |\tilde{\Psi}_i^{(n)}(t)\rangle \quad (3.5)$$

$$|\tilde{\Psi}_i^n(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^t U_0(t, t') H_S(t') |\Psi_i^{n-1}(t')\rangle dt' \quad (3.6)$$

beschrieben werden können. Dabei ist die Wahrscheinlichkeit  $P_{fi}(t)$ , dass ein Übergang vom Anfangszustand  $\Psi_i(t)$  in den Endzustand  $\Psi_f(t)$  übergeht, durch das Betragsquadrat der Übergangsamplitude  $A_{fi} = \langle \Psi_f(t) | \Psi_i(t) \rangle$  gegeben:

$$P_{fi}(t) = |\langle \Psi_f(t) | \Psi_i(t) \rangle|^2 = |A_{fi}|^2 \quad (3.7)$$

gegeben. Unter Benutzung der Identität aus Gleichung 3.5 folgt weiter:

$$\langle \Psi_f(t) | \Psi_i(t) \rangle = \sum_{n=0}^{\infty} \langle \Psi_f(t) | \tilde{\Psi}_i^{(n)}(t) \rangle \quad (3.8)$$

Quantenmechanische Störungstheorie liefert insbesondere dann gute Resultate, wenn die Beiträge höherer Ordnungen viel geringer sind als die niederer Ordnungen. Eine allgemein gültige und hinreichende Konvergenzbedingung der Lösung aus Gleichung 3.5 ist nicht bekannt. Die Konvergenz muss in jedem Fall explizit nachgewiesen werden. Aber auch im Falle der Nichtkonvergenz können die ersten Ordnungen eine gute Annäherungen an das tatsächliche Problem darstellen.

Die störungstheoretische Behandlung eines Atoms, das sich in einem elektrischen Feld  $\vec{E} = \vec{E}_0 \cos(\omega t + \phi)$  befindet, ergibt in der Dipolnäherung für die erste Ordnung der Übergangsamplitude

$$A_{fi}^{(1)}(t) = \frac{E_0^2}{2\hbar} M_{fi} \left[ \frac{e^{i(\omega_{fi} + \omega)t} - 1}{\omega_{fi} + \omega} e^{i\phi} + \frac{e^{i(\omega_{fi} - \omega)t} - 1}{\omega_{fi} - \omega} e^{-i\phi} \right] \quad (3.9)$$

$M_{fi}$  bezeichnet das Dipolmatrixelement  $M_{fi} = \langle \Psi | \frac{\vec{E}_0}{E_0} \vec{D} | \Psi \rangle$  mit dem Dipoloperator  $\vec{D}$ . Zu der Übergangsamplitude erster Ordnung tragen im Wesentlichen nur solche Terme bei, bei denen der Nenner klein wird. Unter der Annahme der sogenannten Drehwellennäherung, dass die Laserfrequenz nahe der Resonanzfrequenz liegt, erhält man aus Gleichung 3.9 für die erste Ordnung der Übergangswahrscheinlichkeit:

$$P_{fi}^{(1)}(t) = \frac{E_0^2}{\hbar^2} |M_{fi}|^2 \frac{\sin^2\left(\frac{(\omega_{fi} - \omega)t}{2}\right)}{(\omega_{fi} - \omega)^2} \quad (3.10)$$

Für den Fall, dass die Laserfrequenz exakt der Resonanzfrequenz entspricht, erhält man folglich:

$$P_{fi}^{(1)}(t) = \frac{E_0^2}{4\hbar^2} |M_{fi}|^2 t^2 \quad (3.11)$$

Die Übergangsrates  $W_{fi} = \frac{d}{dt}P_{fi}^{(1)}(t)$  nimmt also linear in der Zeit zu. Die Idee von unendlich schmalen Energieniveaus ist unphysikalisch, weil gemäß der Energie-Zeit-Unschärferelation ein unendlich scharf definiertes Energieniveau keine Zeitentwicklung erfahren dürfte. Die Spektroskopie lehrt uns beispielsweise, dass die Elektronenzustände in jedem Atom und Molekül eine natürliche Linienbreite besitzen. Aus diesem Grund macht es mehr Sinn einen Übergang aus einem Anfangszustand in eine Gruppe von Endzuständen zu betrachten. Sei  $\rho(E)$  die Zustandsdichte, dann folgt durch Integration über alle möglichen Endzustandsenergien:

$$P_{fi}^{(1)}(t) = \frac{E_0^2}{2\hbar^2} \int_{-\infty}^{\infty} |M_{fi}|^2 \frac{\sin^2\left(\frac{(\omega_{fi} - \omega)t}{2}\right)}{(\omega_{fi} - \omega)^2} \rho(E_k) dE_k \quad (3.12)$$

Unter der Annahme, dass die Wechselwirkung zwischen dem atomaren Dipol und der Laserstrahlung nur in einem sehr kleinen Energieintervall um  $E_f$  konstant ungleich null ist und die Energiedichte ebenso weitestgehend konstant ist, folgt die berühmte Goldene Regel nach Dirac [18]:

$$W_{fi}^{(1)}(t) = \frac{\pi E_0^2}{2\hbar} |M_{fi}|^2 \rho(E_f) \quad (3.13)$$

Sie besagt, dass die Übergangsrates in der ersten Ordnung der Störungstheorie zeitunabhängig ist.

Untersucht man die zweite oder höhere Ordnungen eines Absorptionsprozesses, fällt auf, dass auch solche Prozesse, bei denen mehr als nur ein Photon absorbiert wird, beitragen können. Der einfachste Fall ist jener, in dem zwei Photonen absorbiert werden. Eine zu Abschnitt 3.1 analoge, adiabatische Behandlung resultiert in folgendem Ausdruck für die zweite beitragende Ordnung der Übergangswahrscheinlichkeit:

$$W_{fi}^{(2)} = \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{E_0^2}{4}\right)^2 |T_{fi}^{(2)}|^2 \rho(E_f) \quad (3.14)$$

Hierbei bezeichnet  $T_{fi}^{(2)}$  das Übergangsdipolmoment für den Zwei-Photon-Prozess. Für die Übergangsrates in der n-ten Ordnung ergibt sich

$$W_{fi}^{(n)} = \frac{2\pi}{\hbar} \left(\frac{E_0^2}{4}\right)^n |T_{fi}^{(n)}|^2 \rho_f(E_f) \quad (3.15)$$

$$= \frac{2\pi}{\hbar} (2\pi\alpha\hbar)^n I^n |T_{fi}^{(n)}|^2 \rho_f(E_f) \quad (3.16)$$

Die Rechnung zeigt, dass laut der niedrigsten, beitragenden Ordnung die Übergangsrates eines n-Photonenprozesses proportional zum n-ten Quadrat der Intensität des elektrischen Feldes ansteigt. Damon and Tomlinson [15] konnten erstmals die Mehrphotonen-Ionisation experimentell beobachten. Die durch die Störungstheorie

vorhergesagte  $I^n$ -Abhängigkeit der Ionisationsrate konnte von L’Huillier et al. [39] bis zur Sättigungsintensität, bei der die Ionisationswahrscheinlichkeit nahezu 1 beträgt, gut bestätigt werden. Der störungstheoretische Ansatz ist erfolgreich in Anwendungen, bei denen  $I \ll I_a$  und  $\omega \gg U_p/\hbar$  [26, 5, 4, 6, 14].  $U_p = \frac{e^2 \mathcal{E}_0^2}{4m\omega^2}$  bezeichnet die sogenannte ponderomotorische Energie. Das ist die mittlere kinetische Energie, die ein Elektron in einem monochromatischen elektrischen Feld der Stärke  $\mathcal{E}_0$  und Kreisfrequenz  $\omega$  erfährt.

Agostini, Fabre, Mainfray, Petite, and Rahman [1] gelang es zu zeigen, dass bei Ionisationsprozessen auch mehr Photonen, als zur Ionisation nötig sind, absorbiert werden können. Charakteristisch für die sogenannte Above-Threshold Ionisation sind äquidistante Peaks im Photoelektronenspektrum (siehe Abb. 3.1). Während für Intensitäten sehr viel kleiner als  $I_a$  die  $I^n$ -Abhängigkeit bestätigt werden kann, ist dies für höhere Intensitäten nicht mehr möglich [48]. Außerdem kann die Signalunterdrückung der niederenergetischen Peaks nicht mehr störungstheoretisch erklärt werden.

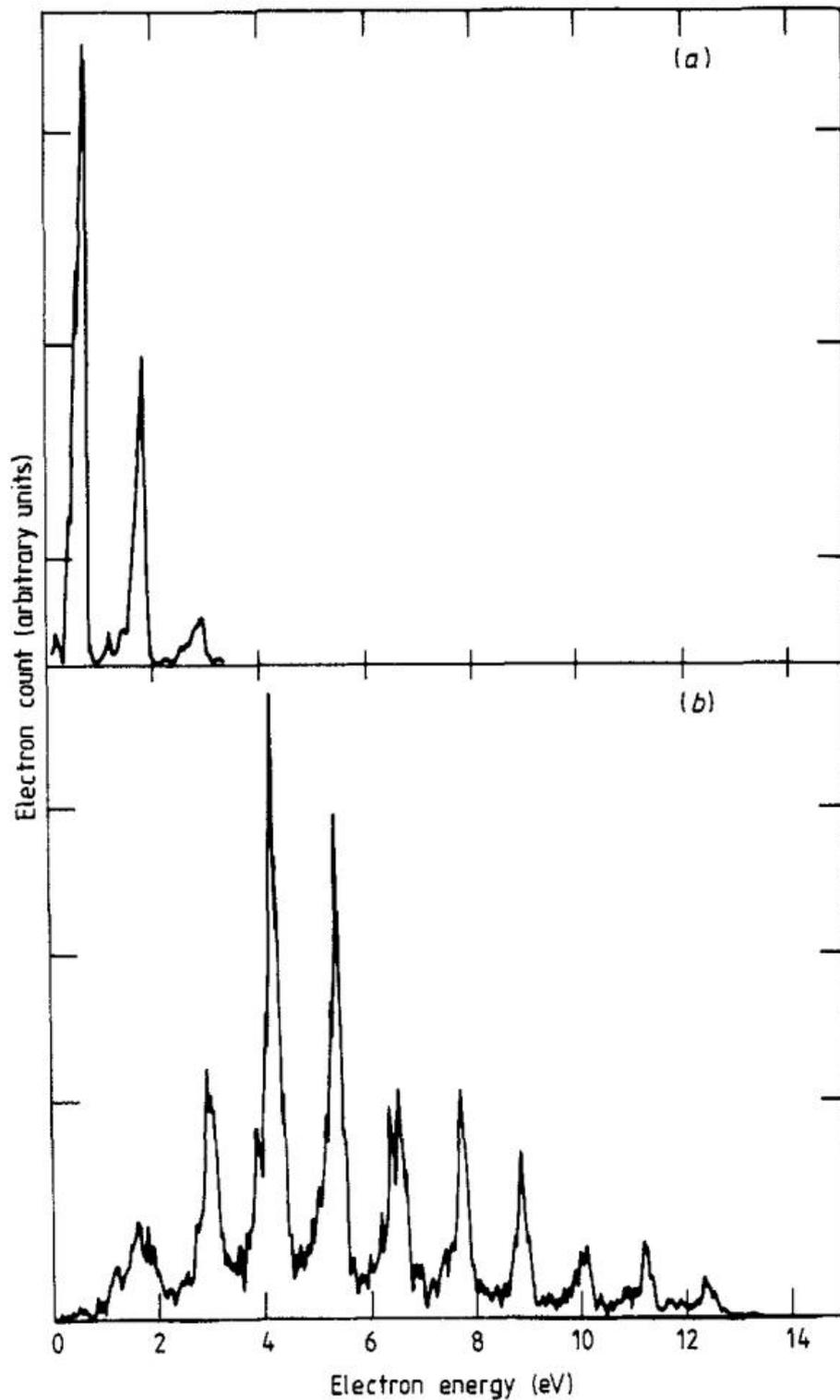


Abbildung 3.1: Energiespektren der Photoelektronen von Xenon bei einer Wellenlänge von 1064 nm und Laserintensität von a)  $2.2 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$  und b)  $1.1 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ . Quelle: Petite et al. [48]

## 3.2 Quasi-adiabatische Näherung und Tunnelionisation

Nützliche Theorien, die das Verhalten von Atomen und Molekülen in intensiven Laserfeldern weitgehender beschreiben, können vor allem dann relativ einfach entwickelt werden, wenn angenommen wird, dass das elektrische Feld über den Zeitraum des Elektronenübergangs oder der Ionisation als quasistatisch angesehen werden kann. Dies ist insbesondere für ausreichend niederfrequente Felder der Fall. Die adiabatische Näherung erlaubt es Ionisationsraten für den Fall von niederfrequenten, monochromatischen Laserfeldern zu untersuchen. Das vorherrschende elektrische Feld, welches vom Elektron wahrgenommen wird, kann als Summe des Coulombfeldes des effektiven Kerns (die effektive Kernladung setzt sich zusammen aus der tatsächlichen Kernladung und den Ladungen der übrigen Elektronen) und des Laserfeldes bei genügend kleinen Laserfrequenzen angesehen werden. Gemäß der Quantenmechanik ist es möglich, dass das Elektron durch die aus der Feldüberlagerung entstandene Barriere durchtunneln kann (siehe Abb. 3.2 b). Die totale Ionisationsrate in einem monochromatischen Laserfeld lautet nach Perelomov et al. [47], Perelomov and Popov [46]:

$$\Gamma_{ad}(E_0) \simeq C_{as}^2 A(l, m) \frac{\kappa}{2} \left( \frac{3E_0}{\pi\kappa^3} \right)^{1/2} \left( \frac{2\kappa^3 {}^{2Z_c/\kappa-|m|-1}}{E_0} \right) e^{-\frac{2\kappa^3}{3E_0}} \quad (3.17)$$

$$\kappa = \sqrt{2I_P} \quad (3.18)$$

$$I_P = \frac{Z_C^2}{2n^{*2}} \quad (3.19)$$

Dabei bezeichnen  $n$  die Hauptquantenzahl,  $l$  die Nebenquantenzahl,  $m$  die magnetische Quantenzahl des Drehimpulses,  $Z_c$  die effektive Kernladung,  $I_P$  das Ionisationspotential und  $n^*$  die effektive Hauptquantenzahl. Der sogenannte asymptotische Koeffizient  $C_{as}$  kann aus dem anfänglichen, feldfreien, gebundenen Zustand des Atoms berechnet werden.

Ab einer genügend großen sogenannten kritischen Intensität wird das Potential des niederfrequenten elektrischen Laserfelds derart steil, dass das Elektron gar nicht mehr durch die Barriere tunneln muss, sondern einfach über die Barriere hinweg ionisiert werden kann. Diese sogenannte Über-die-Schwelle-Ionisation wurde erstmals von Augst et al. [3] beobachtet. Die Formel der Tunnelionisation in der adiabatischen Näherung aus Gleichung 3.17 trifft dann nicht mehr zu.

## 3.3 Starkfeldnäherung

Die Starkfeldnäherung geht davon aus, dass das Elektron das Coulombfeld gar nicht sieht oder dieses lediglich eine kleine Störung des elektrischen Laserfeldes ist. Die totale Ionisationsrate für den Fall  $\gamma_K \ll 1$  eines monochromatischen Laserfeldes laut

Starkfeldtheorie ist:

$$\Gamma^{SFA} \simeq C_{as}^2 A(l, m) \frac{\kappa^2}{2} \sqrt{\frac{3E_0}{\pi\kappa^3}} \left(\frac{2\kappa^3}{E_0}\right)^{-|m|-1} \exp\left[-\frac{2\kappa^3}{3E_0} \left(1 - \frac{\gamma_K^2}{10}\right)\right] \quad (3.20)$$

$$\gamma_K = \frac{\omega(2I_P)^{1/2}}{E_0} = \sqrt{\frac{I_P}{2U_p}} \quad (3.21)$$

$U_p = \frac{e^2 E_0^2}{4m\omega^2}$  bezeichnet die über eine Periode des elektrischen Feldes gemittelte kinetische Energie eines freien Elektrons und  $I_P$  das Ionisationspotential im feldfreien Raum.  $\gamma_K$  wird Keldysh-Adiabatizitäts-Parameter genannt. Im Limit  $\gamma_K \rightarrow 0$  geht  $\Gamma^{SFA}$  in  $\Gamma^{ad}$  über, insofern die effektive Kernladung  $Z_C = 0$  ist. Für  $Z_C \neq 0$  hingegen wird der Einfluss des Coulombfeldes in der Starkfeldnäherung vollkommen vernachlässigt. Deshalb fallen die so errechneten Ionisationsraten auch stets größer aus, als bei Verwendung der adiabatischen Näherung. Versuche, auf die Wechselwirkung zwischen Coulombfeld und Atom zu korrigieren, existieren [3, 11, 41, 54, 44, 45, 62].

### 3.4 Keldysh-Adiabatizitäts-Parameter

Die adiabatische Näherung ist nur für den Fall  $\gamma_K \ll 1$  anwendbar, weil eine adiabatische Zustandsänderung nur dann gegeben ist, wenn die Zeitdauer der Ionisation sehr klein gegenüber der Zeit ist, die das elektrische Feld benötigt, um sich signifikant zu verändern. Bildhaft gesprochen ist das ponderomotrische Potential zu gering, als dass es genügen würde das Elektron über das Ionisationspotential zu heben (siehe Abb. 3.2 b). Daher bezeichnet man  $\gamma_K \ll 1$  als das Tunnelregime. Sobald  $\gamma_K \gg 1$  wird, dominieren die Mehr-Photonen-Prozesse, daher der Name Mehr-Photonen-Regime (siehe Abb. 3.2 a).

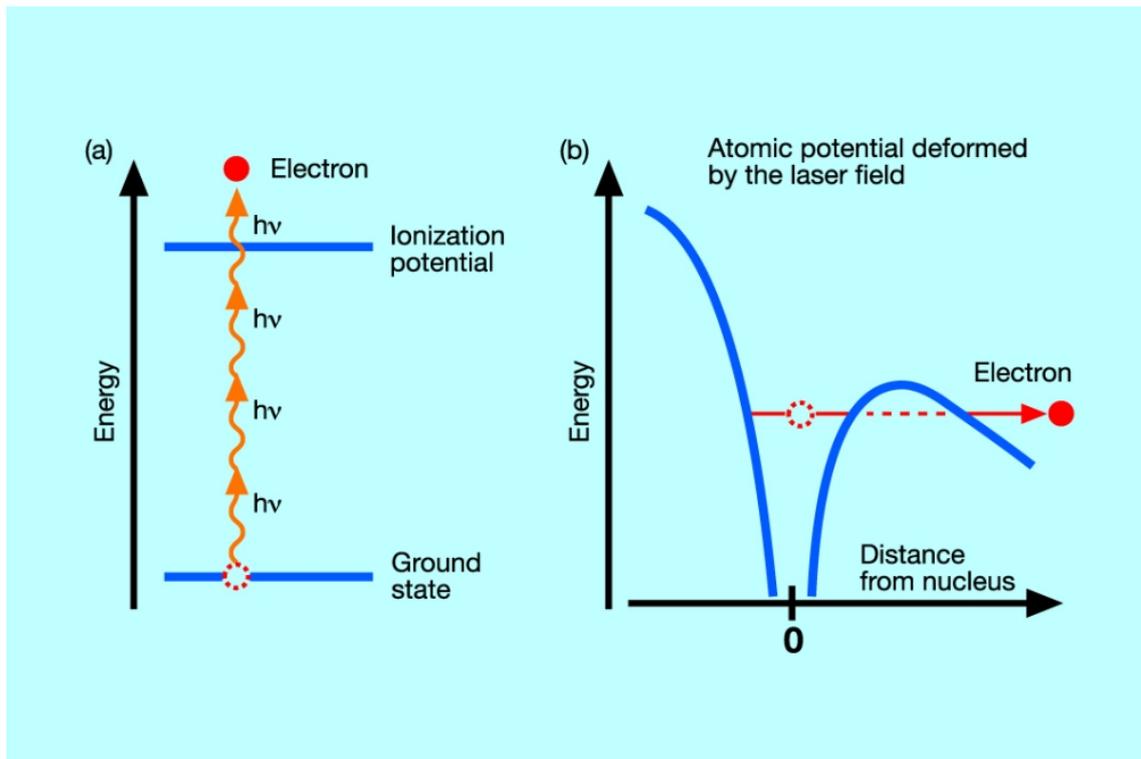


Abbildung 3.2: Anschauliche Darstellung der Ionisationsprozesse im a) Mehrphotonen-Regime und b) Tunnel-Regime. Quelle: [25]

### 3.5 Rekollisions-Ionisation

Im Allgemeinen ist es möglich, dass ein ionisiertes Elektron durch das oszillierende elektrische Laserfeld wieder zurück in Richtung des Ions beschleunigt wird, an welchem es dann elastisch streut. Das semiklassische Rekollisionsmodell von Corkum [13] und Kulander, Schafer, and Krause [36] beschreibt die Ionisation durch starke, niederfrequente Laserfelder in mehreren Schritten (siehe Abb. 3.3). Zuerst wird das

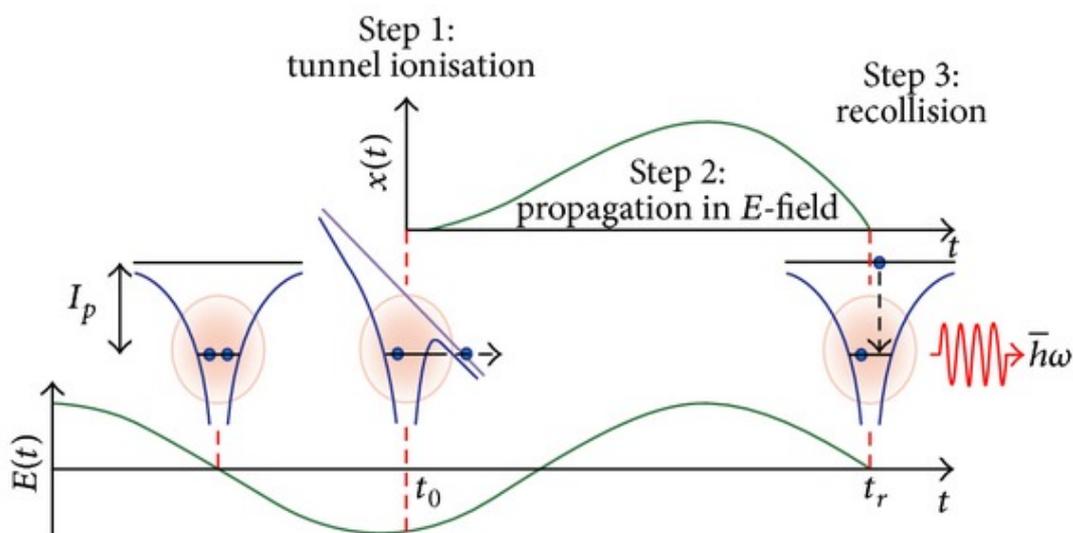


Abbildung 3.3: Anschauliche Skizze zu den drei Schritten des Rekollisionsmodells. Quelle: Ganeev [24]

Elektron durch Tunnelionisation vom Atom entfernt. Im zweiten Schritt wird das quasifreie Elektron vom elektrischen Laserfeld beschleunigt und kann in guter Näherung durch klassische Mechanik beschrieben werden. Zuletzt wird das Elektron durch das Laserfeld zurück zum Ion gelenkt. Dabei kann es zur Ionisation eines weiteren Elektrons oder aber zur Aussendung von Photonen unter Rekombination mit dem Ion kommen. Letzteres erklärt die Entstehung Hoher Harmonischer. Mithilfe des Rekollisionsmodells gelingt es viele Phänomene der Mehr-Photonen-Ionisation zu erklären. So sagt es das Erscheinen von Plateaus bei ATI-Photoelektronenspektren von Edelgasen, wie sie von Paulus et al. [45] und Grasbon et al. [27] gemessen wurden, vorher.

### 3.6 Höhere Harmonische

Bei genügend hohen Laserintensitäten kann beobachtet werden, dass die bestrahlte Materie elektromagnetische Wellen aussendet, deren Frequenzen ungeradzahlige Vielfache der ursprünglichen Laserfrequenz sind.

Sobald ein elektromagnetisches Feld ein Atom erfasst, werden insbesondere dessen Elektronen, wegen ihrer gegenüber dem Kern relativ geringen Masse, in Oszillation versetzt. Damit geht die Induktion eines sich zeitlich ändernden Dipolmoments einher:

$$\vec{d}(t) = \langle \Psi(t) | -e\vec{R} | \Psi(t) \rangle \quad (3.22)$$

Hierbei bezeichnet  $\vec{R}$  die Summe aller Ortsvektoren der Elektronen und  $\Psi(t)$  den atomaren Zustand im Laserfeld. Die Wahrscheinlichkeit eines einzelnen Atoms Photonen der Kreisfrequenz  $\Omega$  zu emittieren ist proportional zu  $|\vec{a}(\Omega)|^2$  mit

$$\vec{a}(\Omega) = \frac{1}{\sqrt{(2\pi)}} \int_{-\infty}^{\infty} e^{-i\Omega t} \frac{d^2}{dt^2} \vec{d}(t) dt \quad (3.23)$$

$\vec{a}(t) = \ddot{\vec{d}}(t)$  bezeichnet hierbei die zweite Zeitableitung des Dipolmoments und  $\vec{a}(\Omega)$  die Fouriertransformation von  $\vec{a}(t)$ .

Agostini et al. [1] zeigten experimentell, dass die Photonenzahl der einzelnen höheren harmonischen Laserfrequenzen erst drastisch mit der harmonischen Ordnung abfällt, mit höher werdender Ordnung ein Plateau erreicht, bis schließlich eine Cutoff-Frequenz erreicht wird, ab welcher keine höheren Harmonischen mehr auftreten. Krause et al. [35] konnten mithilfe nichtstörungstheoretischer Rechnungen die Cutoff-Frequenz über  $\omega_c \simeq (I_P + 3U_P)/\hbar$  abschätzen. Unter Verwendung des Rekollisionsmodells findet man, dass  $\omega_c = (I_P + 3.17U_P)/\hbar$  [13], was sich überaus gut mit den Experimenten von Agostini et al. [1] deckt.

### 3.7 Mehrfache Mehr-Photonen-Ionisation

Um den Prozess der mehrfachen Mehr-Photonen-Ionisation zu verstehen, müssen Korrelationseffekte zwischen Elektronen in Betracht gezogen werden. Byron and Joachain [9] zeigten, dass die Ein-Photon-Doppelionisation des  $1^1\text{S}$ -Heliumgrundzustands nur durch die Wechselwirkung der Elektronen untereinander möglich ist. Walker et al. [62] legen nahe, dass bei der mehrfachen Ionisation zwei grundlegende Regime existieren - das Regime der sequenziellen Doppelionisation und das der nicht-sequenziellen (simultanen) Doppelionisation. Es gibt viele Theorien, die versuchen die experimentellen Beobachtungen der mehrfachen Ionisation zu erklären, z.B. Rekollisionsmodelle [13, 36], Mehrelektronenmodelle [37], die Shake-Off-Theorie [43, 34, 53] und der Two Step-One Mechanismus [34, 53]. Cold target recoil ion momentum spectroscopy, Femtosekundenlaser und Photofragment Imaging sind Methoden, die es erlauben Mehrphotonenprozesse zu untersuchen und 3D-Impulsverteilungen der entstehenden Ionen und Elektronen zu messen.

## 4 Velocity-Map-Imaging

Beim Velocity-Map-Imaging (VMI) Verfahren werden Ionenlinsen verwendet, um geladene Teilchen gleicher Geschwindigkeitsvektoren unabhängig von ihren Entstehungsorten auf gleiche Orte abzubilden. Die frühzeitiger von Chandler and Houston [10] entwickelte Methode des Product Imaging verwendet ein homogenes E-Feld, das die geladenen Partikel auf einen Detektorschirm abbildet. Die 3D-Geschwindigkeitsverteilung wird dabei auf 2 Dimensionen projiziert. Der Nachteil dabei ist, dass die Größe des Entstehungsvolumens der Teilchen maßgeblich über das Bild entscheidet. Die Größe des Entstehungsvolumens wiederum ist durch den Überlapp des Laser- und Atom-/Molekülstrahls bestimmt. Der Effekt der Bildverzerrung aufgrund unterschiedlicher Entstehungsorte wird beim Velocity-Map-Imaging durch Verwendung eines inhomogenen elektrischen Feldes stark reduziert [21]. Aus den erhaltenen zweidimensionalen Bildern kann dann durch geeignete mathematische Transformation die ursprüngliche dreidimensionale Geschwindigkeitsverteilung der geladenen Partikel kurz nach dem Moment der Ionisation rekonstruiert werden (siehe Abschnitt 4.4).

### 4.1 Das Konzept

Abb. 4.1 erläutert anschaulich die Funktionsweise eines VMI-Versuchs. Mit Hilfe eines hochintensiven Laserpulses werden Atome oder Moleküle zur Ionisation oder Dissoziation angeregt. Durch ein elektrisches Feld werden geladene Teilchen (Ionen oder Elektronen) in Richtung eines photosensitiven Schirms abgezogen. Sie treffen schließlich den Schirm und hinterlassen ein kollektives 2D-Abbild. Durch eine geeignete mathematische Transformation, der sogenannten inversen Abel-Transformation, gelingt es die vollständige 3D-Impulsverteilung der 2D-Projektion zu rekonstruieren.

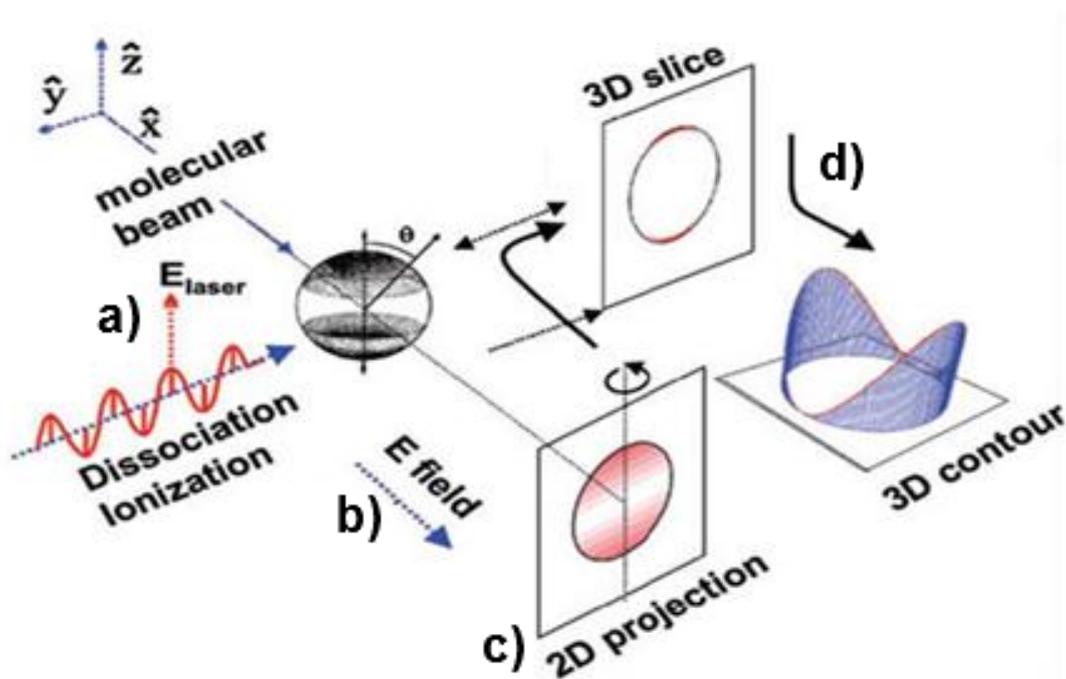


Abbildung 4.1: Ideenskizze eines VMI-Versuchs mitsamt chronologischer Benennung der einzelnen Schritte. a) Ein hochintensiver Laserpuls regt das Target zur Ionisation oder Dissoziation an. b) Mit Hilfe eines elektrischen Feldes werden die entstehenden geladenen Teilchen in Richtung eines photosensitiven Schirms gelenkt. c) Die geladenen Teilchen schlagen auf dem Schirm auf und kreieren ein Projektionsbild. d) Mithilfe der mathematischen Abeltransformation gelingt es die vollständige Impulsverteilung der geladenen Teilchen unmittelbar vor der Projektion zu rekonstruieren. Quelle: [17]

## 4.2 Newton-Sphären

Man stelle sich einen Prozess vor, bei dem ein gewisses elektrisch neutrales Edukt AB in zwei geladene Produkte  $A^+$  und  $B^-$  aufgespalten wird, z.B. durch Photoionisation oder Photodissoziation.



Aus der Definition des Schwerpunktsystems folgt, dass die Summe der Impulse aller an einem Stoßprozess beteiligten Teilchen Null sein muss. Für das vorliegende Zwei-Körper-Problem bedeutet das, dass die Impulse der beiden Produktteilchen betragsmäßig gleich und entgegen gerichtet sind. Wird dieser Stoßprozess viele Male simultan durchgeführt, so dass der Schwerpunkt jedes Prozesses gleich ist und die Zerfallsrichtung nicht festgelegt ist, bilden sich zu einem festen Zeitpunkt pro Produkt je eine Sphäre im Ortsraum aus, die sich mit der Fluggeschwindigkeit des jeweiligen Teilchens mit fortschreitender Zeit vergrößert. Der Mittelpunkt jeder solchen Sphäre bleibt der gemeinsame Systemschwerpunkt. Die so entstehenden Sphären nennt man Newton-Sphäre. Sie zeigen für beide Fragmente das selbe Muster in invertierter Richtung auf (siehe Abb. 4.2). Handelt es sich bei dem Prozess um einen spontanen Zerfallsvorgang, der keine ausgezeichnete Zerfallsrichtung aufweist, so bilden die Newton-Sphären homogene Flächen.

Im Falle der Photoionisation könnte der vorliegende Prozess die folgende Form annehmen:



Weil die Masse des Ions  $A^+$  mehr als 2000 mal größer als die Elektronenmasse ist, besitzt das Elektron eine deutlich größere Geschwindigkeit als das Ion. Die Newton-Sphäre des Ions ist daher stets viel kleiner als die des Elektrons. Hinzu kommt, dass beim Einstrahlen von z.B. linear polarisiertem Licht dem Atom A eine ausgezeichnete Symmetrieachse aufgezwungen wird. Die Photoionisation wird bevorzugt entlang der Polarisationsrichtung ablaufen. Die entstehenden Newton-Sphären weisen keine isotrope Verteilungen mehr auf.

Wir sind bislang von einem Zwei-Körper-Problem im Schwerpunktsystem bzw. ohne anfängliche Geschwindigkeit ausgegangen, bei dem der Stoßort immer gleich ist und es nur einen Zerfallskanal gibt. In der Realität jedoch ist es experimentell nicht möglich das Atom oder Molekül örtlich zu fixieren. Es existieren jedoch Ionenoptiken, die geladene Teilchen mehr oder weniger unabhängig von ihrem Entstehungsort abbilden können. Dazu genügt, wie Eppink and Parker [21] zeigen konnten, bereits eine Anordnung von drei Elektroden mit simpler Geometrie. Unterschiede in der anfänglichen Geschwindigkeit der ursprünglich neutralen Atome oder Moleküle vermag diese Apparatur natürlich nicht zu korrigieren. Deshalb muss die Geschwindigkeitsstreuung experimentell minimiert werden. Stöße mit störenden Fremtteilchen müssen durch Gebrauch einer Ultrahochvakuumkammer vermieden werden.

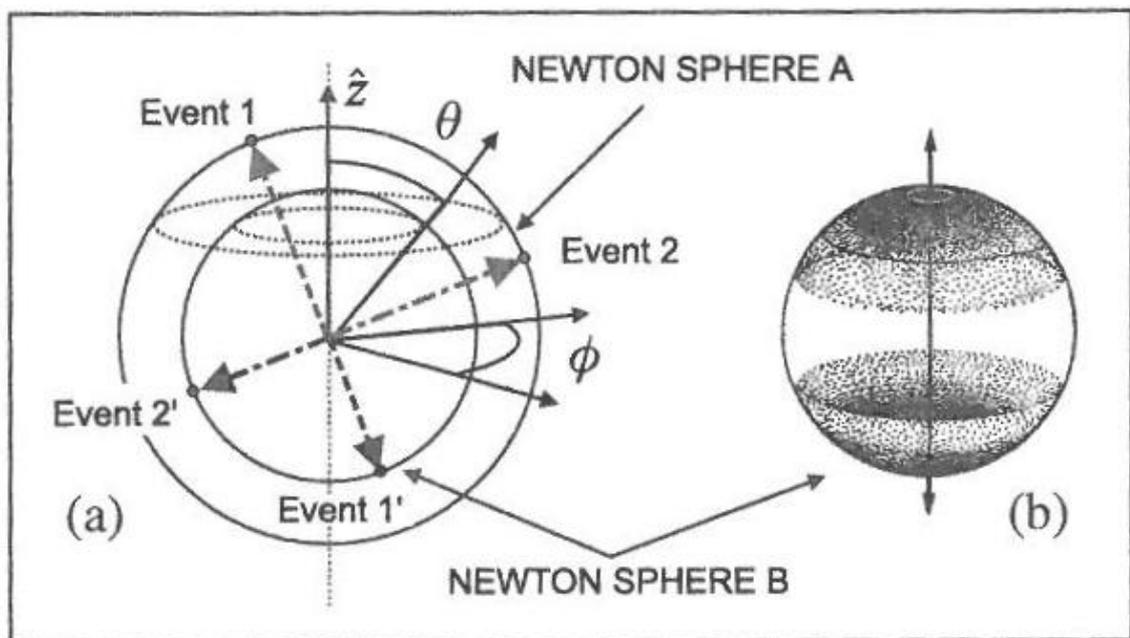


Abbildung 4.2: Schema zum Konzept der Newtonsphären. a) Ein Zerfallsprozess, bei dem zwei Fragmente entstehen, findet hier zweimal in unterschiedlichen Zerfallsrichtungen aber am gleichen Zerfallsort statt. Weil die Massen der beiden Fragmente unterschiedlich groß sind, erhalten die einzelnen Fragmente unterschiedliche Geschwindigkeiten. b) Summen gleichartiger Fragmente aus mehreren Zerfallsprozessen bilden die sogenannten Newtonsphären aus, die sich proportional zu den Geschwindigkeiten der jeweiligen Fragmente ausdehnen. Quelle: Whitaker [63, S. 22]

## 4.3 Ionenoptik

Wie bereits erwähnt, liegt ein großer Vorteil des VMI-Verfahrens darin, dass die Energieauflösung im Vergleich zum bloßen Abzug mit einem homogenen E-Feld (siehe Product-Imaging-Verfahren) deutlich erhöht werden kann. Dazu wird das elektrische Feld einer Einzellinse in modifizierter Art verwendet. Um es zu kreieren, ist eine spezielle Ionenoptik erforderlich. Die einfachste und früheste Variante besteht aus drei zylindrischen Elektrodenplatten (siehe Abb. 4.3), die ihrer Funktion entsprechend Repeller (R), Extractor (E) und Ground (G) genannt werden. Die

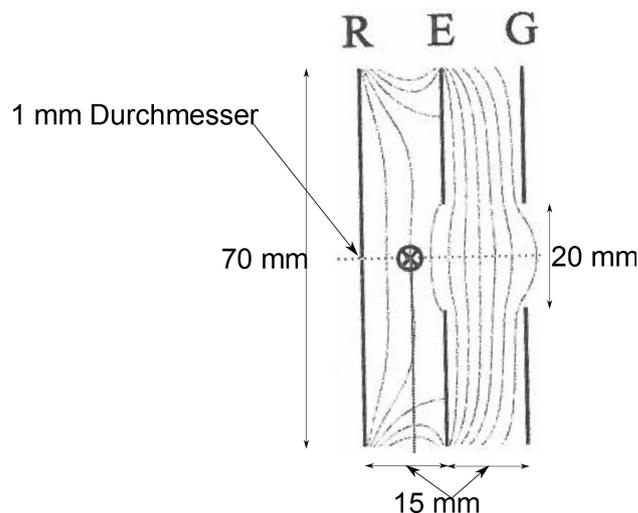


Abbildung 4.3: Ionenoptik des VMI-Verfahrens, wie es von Eppink and Parker [21] in ihren Experimenten realisiert wurde, mit Maßen. Drei Elektroden (**R**epeller, **E**xtractor, **G**round) sorgen für ein elektrisches Feld, dessen Äquipotentiallinien linsenförmig verlaufen. Die Repellerspannung bestimmt hauptsächlich die Größe des 2D-Abbilds auf dem Dektorschirm, während der Quotient aus Repellerspannung zu Extractorspannung maßgeblich die Lage des Fokus bestimmt [21]. Quelle: Whitaker [63, S. 44]

dadurch entstehende elektrostatische Linse ermöglicht es idealerweise Teilchen mit unterschiedlichen Startorten aber gleichen anfänglichen Geschwindigkeitsvektoren auf den selben Schirmpunkt zu projizieren (siehe Abb. 4.4).

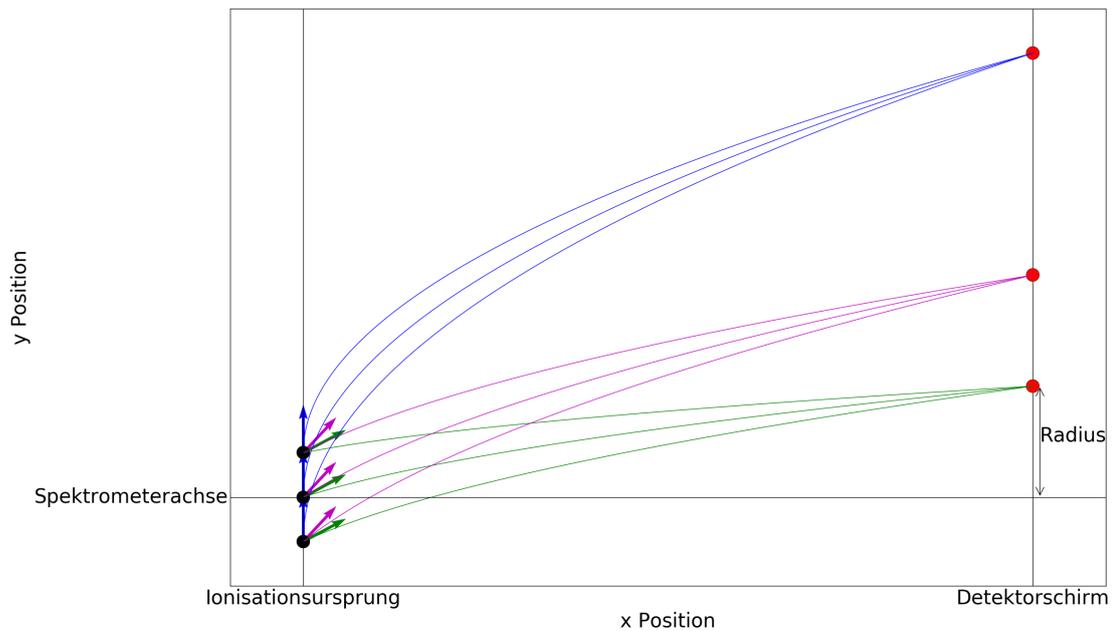
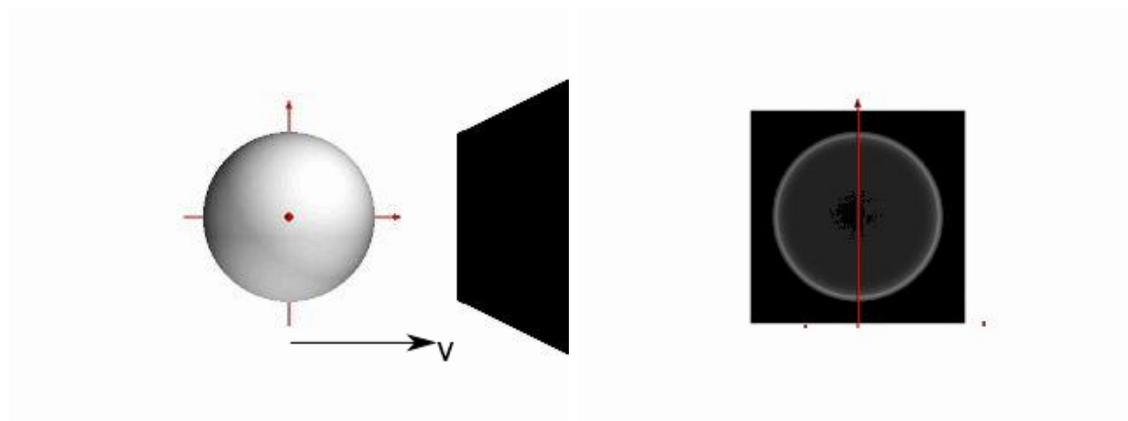


Abbildung 4.4: Schema der Fokussierung durch eine Ionenlinse bei einem VMI Experiment. Dank einer elektrostatischen Linse gelingt es geladene Teilchen, die unterschiedliche Startorte (schwarze Punkte) aber gleiche anfängliche Geschwindigkeitsvektoren (gleichfarbige Pfeile) besitzen, auf die selben Schirmpunkte (rote Punkte) zu projizieren. Der Abstand zwischen Auftreffpunkt und Schirmmitte, in der Abbildung Radius bezeichnet, hängt von der zur Spektrometerachse senkrechten Geschwindigkeitskomponente der Teilchen ab.

## 4.4 Rekonstruktion der 3-D Geschwindigkeitsverteilungen

Im Falle einer dreidimensionalen Verteilung mit ausgezeichneter Zylindersymmetrie vermag die sogenannte Abel-Transformation diese auf eine zweidimensionale Fläche parallel zur Symmetrieachse zu projizieren. Die inverse Abel-Transformation kann die dreidimensionale Verteilung aus der zweidimensionalen Verteilung unter Annahme einer Zylindersymmetrie rekonstruieren (siehe Abb. 4.5).



- (a) Eine zylindersymmetrische 3D-Teilchenverteilung fliegt auf einen Detektorschirm  
 (b) Die ehemalige 3D-Verteilung aus Teilbild a) wird auf den 2D-Schirm projiziert. Die 2D-Verteilung ist die Abeltransformation der 3D-Verteilung aus a)



- (c) Mithilfe der inversen Abeltransformation kann die zylindersymmetrische 3D-Verteilung aus der 2D-Verteilung rekonstruiert werden  
 (d) Schnitt durch die Mitte der rekonstruierten 3D-Verteilung aus c)

Abbildung 4.5: Veranschaulichung der Abeltransformation und ihrer Inversion.  
 Quelle: [28]

Im Folgenden sei  $f(x, y, z)$  die dreidimensionale Verteilung,  $z$  die Symmetrieachse

und  $p(x, z)$  die projizierte zweidimensionale Verteilung. Es gilt:

$$p(x, z) = \int_{-\infty}^{\infty} f(x, y, z) \, dy \quad (4.3)$$

Da wir Zylindersymmetrie voraussetzen, ist es hilfreich in ein zylindrisches Koordinatensystem zu wechseln. Es sei  $r = \sqrt{x^2 + y^2}$ . Die dreidimensionale Verteilung besitzt nur zwei Freiheiten:  $f(x, y, z) = f(r, z)$ . Substitution der Variablen liefert:

$$p(x, z) = 2 \int_x^{\infty} \frac{f(r, z)r}{\sqrt{r^2 - x^2}} \, dr \quad (4.4)$$

Um die  $f(r, z)$  aus  $p(x, z)$  zu rekonstruieren, kann das Faltungstheorem für die Fouriertransformation angewandt werden [63, p. 70] und wir erhalten:

$$f(x, y, z) = \frac{1}{\pi} \int_r^{\infty} \frac{dp(x, z)/dx}{\sqrt{x^2 - r^2}} \, dx \quad (4.5)$$

Es existieren verschiedene Algorithmen, um Gleichung 4.5 zu lösen [19, 61, 40, 65, 7]. Im Allgemeinen bereitet die Singularität bei  $x = r$  Probleme. Überdies tendiert die Ableitung im Integranden laut Whitaker [63, p. 70] zur Verstärkung von Rauschsignalen.

## 4.5 Was kann das Verfahren leisten?

Ein VMI-Spektrometer erlaubt es eine zylindersymmetrische Geschwindigkeitsverteilung geladener Teilchen vollständig zu vermessen. Auf dem Detektorschirm erscheinen ringförmige Strukturen. Teilchen gleicher kinetischer Energien landen im Rahmen der Auflösung des Spektrometers auf den gleichen Ringen. Eppink and Parker [21] konnten mit ihrem Design zeigen, dass der Radius eines Ringes  $R$  proportional zu  $\sqrt{T/(qV_R)}$  verläuft, wobei  $T$  die kinetische Energie,  $q$  die elektrische Ladung und  $V_R$  die Repellerspannung bezeichnen. Wegen dieser einfachen Beziehung zwischen Ringradius und kinetischer Energie ist es möglich die kinetische Energie der Teilchen zu messen, wenn man die Energie-Radius-Abhängigkeit kennt.

### Vorteile

Dank der Tatsache, dass die Teilchen unabhängig von ihrem Entstehungsort abgebildet werden, kann im Allgemeinen eine gute Energieauflösung erreicht werden. Es ist möglich die komplette Winkelverteilung der geladenen Teilchen aufzunehmen. Die Daten sind sehr einfach zu handhaben, weil alle Informationen in nur einem einzigen Bild gespeichert sind. Durch die Abwesenheit von Netzen zum Isolieren verschiedener elektrischer Felder im Spektrometer fallen Beugungs- und Trübungseffekte aufgrund von Raumladungen weg und die Teilchentransmission beträgt praktisch 100%. Durch das Fokussieren der Teilchentrajektorien können prinzipiell größere Volumina zur Untersuchung herangezogen werden, wodurch geringere Teilchendichten zur

Erfassung gleicher Signalstärken nötig sind. Wegen der kollektiven Aufnahme der Daten aller Teilchen benötigt ein VMI-Spektrometer deutlich weniger Zeit für eine Messung als Verfahren, die z.B. Delay-Line-Anoden zur Positionsbestimmung verwenden. Außerdem ist zur Inbetriebnahme eines VMI-Spektrometers keine schnelle Elektronik erforderlich.

### **Nachteile**

Der wohl größte Nachteil des VMI-Verfahrens liegt darin, dass es mit dem einfachen Aufbau von Eppink and Parker [21] nicht möglich ist die Flugzeiten der Teilchen zu erfassen. Um z.B. Ionen anhand ihrer Massen zu selektieren, können prinzipiell Quadrupolfilter eingesetzt werden. Eine deutlich einfachere Variante sieht es vor den Detektor mithilfe eines schnellen Hochspannungspulsers zu pulsen. Das bedeutet, dass die Hochspannungen an MCPs und Phosphorschirm nur innerhalb des Zeitfensters angelegt werden, in dem die zu untersuchenden Ionen den Detektor erreichen. Außer dem schnellen Hochspannungspulser wird jedoch keine weitere aufwändige Elektronik benötigt.



# Teil III

## Experimenteller Aufbau und Methoden



## 5 Optischer Aufbau

Verwendet wurde ein kommerzieller Laseraufbau der Firma *Femtolasers*, wie er in Abb. 5.1 skizziert ist. Er lässt sich in drei Abschnitte untergliedern, den Oszillator, den Verstärker und den Kompressor. Typische Frequenzspektra des Laseraufbaus

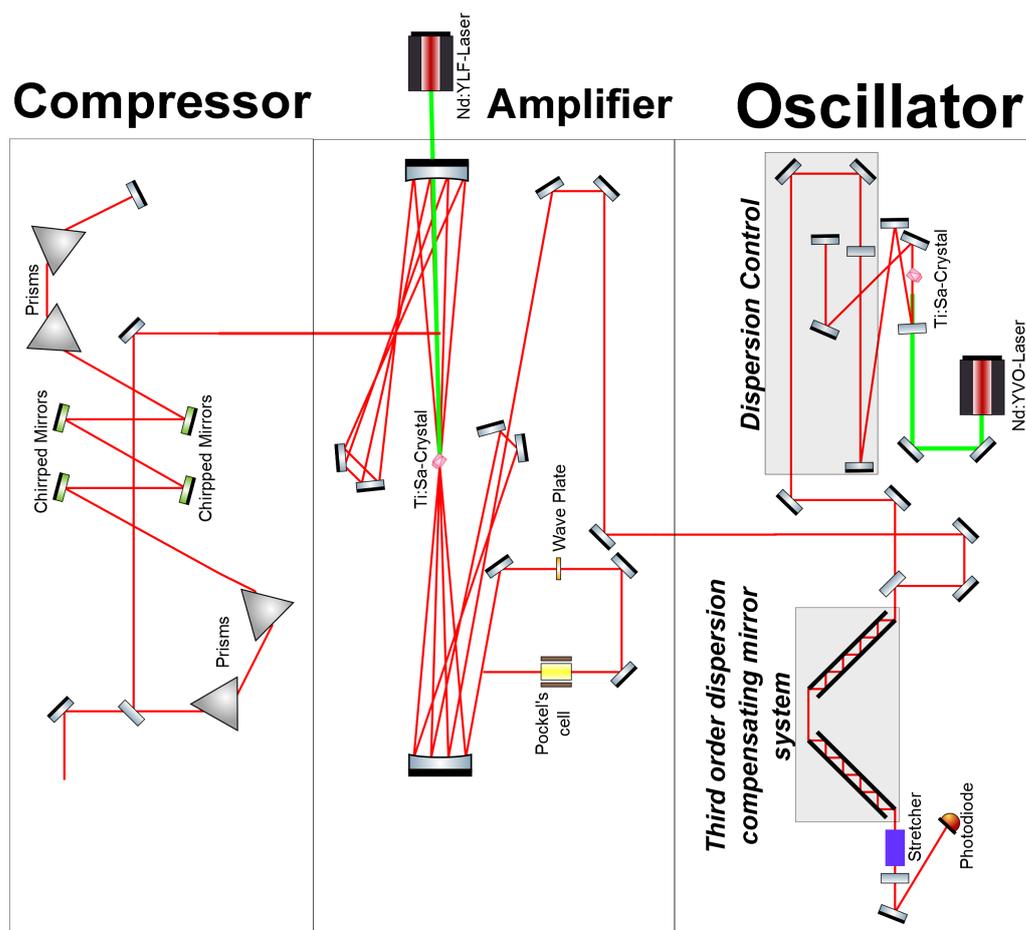


Abbildung 5.1: Das Lasersystem besteht aus drei Modulen. Im Oszillator werden die Laserpulse aus kontinuierlichem Licht mithilfe eines Titan-Saphir-Kristalls erzeugt. Wie der Name sagt, verstärkt der Verstärker die Intensität der Laserpulse unter Zuhilfenahme eines zweiten gepulsten Pumplasers. Im Kompressor kompensieren spezielle Spiegel und Prismen die Dispersion, die die Pulse beim Durchgang durch optische Elemente erfahren.

nach dem Oszillator oder dem Verstärker können Fechner [23, S. 23, Abb. 2.4] ent-

nommen werden.

## 5.1 Titan-Saphir-Oszillator

Ein kommerzieller Neodym-dotierter-Yttrium Orthovanadat(Nd:YVO)-Laser liefert 3 W Licht der Wellenlänge 532 nm (grünes Licht) mit einer Wiederholungsrate von 80 MHz. Die Pulsenergie beträgt etwa 37.5 nJ. Durch mehrmaliges Passieren eines Titan-Saphir-Kristalls, kommt es wegen des optischen Kerr-Lens-Effekts zum Ausbilden von Fourier-begrenzten Laserpulsen mit Dauern, die geringer als 10 fs ausfallen können. Der Laserstrahl wird an mehreren Spiegeln reflektiert, um die Dispersion zu präkompensieren, die der Spiegel beim Durchgang durch Luft und folgende optische Elemente erfährt. Der Strahl passiert einen Einwegspiegel und durchläuft ein Spiegelsystem zur Kompensation der Dispersion in dritter Ordnung. Für die anschließende Verstärkung der noch schwachen Laserpulse müssen diese zeitlich verbreitert werden, da ansonsten die vergrößerte Intensität Schäden am Verstärkungsmedium verursachen könnte. Dazu wird ein Schließlicht wird das Licht von einem Spiegel reflektiert und durchläuft das Spiegelsystem ein weiteres Mal, bis es schließlich die Verstärkerstufe erreicht. Der transmittierte Teil wird von einer Photodiode detektiert.

## 5.2 Verstärker

Die Laserpulse werden durch ein Paar konkaver Spiegel mehrmals durch einen Titan-Saphir(Ti:Sa)-Kristall geleitet. Zusätzlich wird ein Nd:YLF-Pumplaser mit Pulslängen von ca. 300 ns, einer Wellenlänge von 527 nm und einer Leistung von etwa 10 W in den Kristall geleitet. Wie im Laser auch, verursacht der Pumplaser eine Besetzungsinversion. Durch stimulierte Emission werden die einfallenden Photonen des Laserpulses verstärkt. Der erste experimentelle Aufbau, der diese Technik zur Verstärkung gechirpter Pulse verwendet hat, stammt von Strickland and Mourou [58]. Nachdem der Laserstrahl aus dem Oszillator viermal das Verstärkungsmedium durchtreten hat, wird er durch eine Pockelzelle geschickt. Diese arbeitet mit einer Wiederholungsrate von 3 kHz und reduziert die Pulsfrequenz von ehemals 80 MHz drastisch. Das erlaubt es bei geringerer Wiederholungsrate jedem Puls mehr Energie zu geben. Der in seiner Frequenz reduzierte gepulste Laserstrahl passiert weitere fünf Mal den Kristall, bis er schließlich in die Kompressorstufe geleitet wird.

## 5.3 Kompressor

Die Aufgabe des Kompressors ist es die Dispersion, die der Laserstrahl zuvor beim Durchgang diverser optischer Komponenten erfahren hat, zu kompensieren. Dazu wird der Strahl durch zwei Prismen geleitet, danach an vier gechirpten Spiegeln

reflektiert und passiert schließlich nochmal zwei Prismen. Ein Spiegel reflektiert das Licht wieder, sodass der selbe Strahlengang noch einmal durchlaufen wird.



## 6 Vakuumkammer

Bei der Montage des Velocity-Map-Imaging-Spektrometers wurde das Reaktionsmikroskop von Laux [38] verwendet und angepasst. Es besteht aus einer aus Edelstahl gefertigten Hohlkugel, an die 6 Anschweißflansche angebracht sind (siehe Abb. 6.1). Der untere Flansch wird mit zwei Turbopumpen mit einem Saugvermögen von je  $600 \text{ L s}^{-1}$  bestückt. Eine der beiden dient als Dump für den Teilchenstrahl.

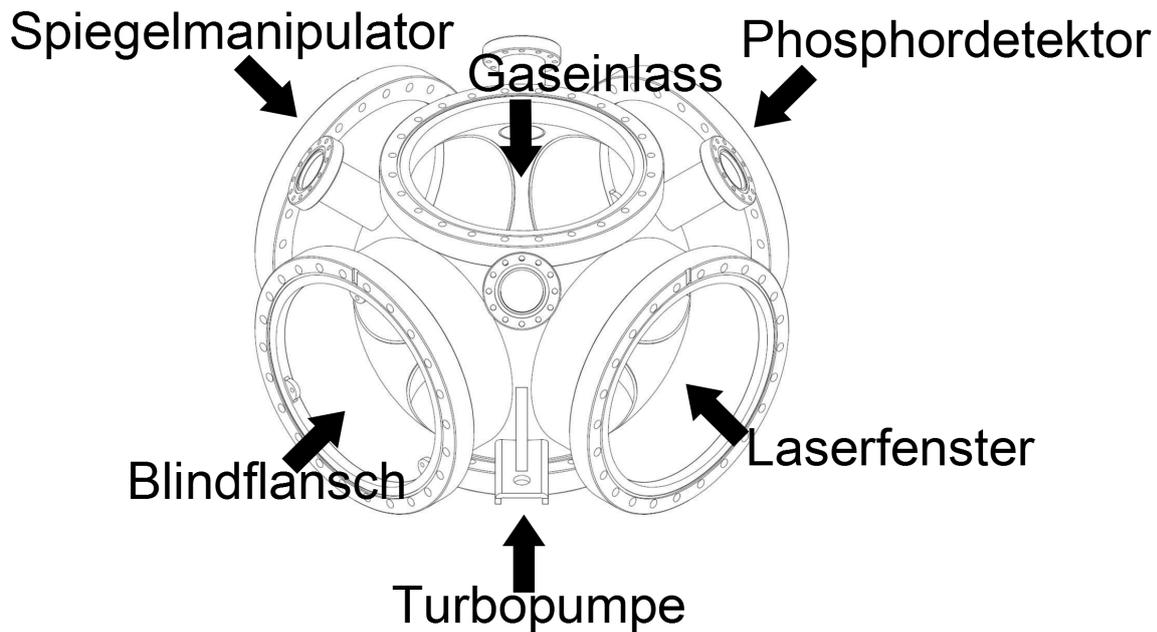


Abbildung 6.1: 3D-Ansicht der Vakuumkammer

### 6.1 Gaseinlass und Überschallgasstrahl

Wie bereits in Abschnitt 4 erwähnt, kann die thermische Geschwindigkeitsverteilung für die Messung mit geladenen Teilchen ein Problem darstellen, sobald nämlich die anfängliche Geschwindigkeit des freien, geladenen Teilchens von vergleichbarer Größe ist wie die Breite der Geschwindigkeitsverteilung der ursprünglichen Atome oder Moleküle. Infolge der Photoionisation erhält das Elektron wegen seiner im Vergleich zum Ion sehr geringen Masse eine deutlich höhere Geschwindigkeit. Deshalb ist die Breite der Geschwindigkeitsverteilungen für die Messung von Ionen um ein Vielfaches bedeutender als für die Messung von Elektronen. Die Geschwindigkeitsverteilung eines Gases ist durch die Maxwell-Boltzmann-Verteilung gegeben.

Betrachtet man die Teilchenbewegung in nur einer Dimension, so ist die Halbwertsbreite der thermischen Maxwell-Boltzmann-Verteilung durch  $\sqrt{2 \ln(2) \frac{k_B T}{m}}$  gegeben.  $m$  bezeichnet hierbei die Masse der Gasteilchen. Bei Raumtemperatur beträgt die Halbwertsbreite von Argon also  $300 \text{ m s}^{-1}$ . Typische Ionengeschwindigkeiten, die bei einer Freisetzung von  $100 \text{ meV}$  an kinetischer Energie im Schwerpunktsystem entstehen, liegen bei etwa  $3 \text{ m s}^{-1}$ . Die entsprechende Elektronengeschwindigkeit beträgt ca.  $187\,000 \text{ m s}^{-1}$ . Diese einfache Abschätzung zeigt deutlich, dass eine schmale Geschwindigkeitsverteilung insbesondere für die Messung an Ionen notwendig ist. Da das VMI Spektrometer prinzipiell zum Messbetrieb für sowohl Elektronen als auch Ionen konzipiert wurde und eine Überschallgasstrahlapparatur bereits in den Experimenten von Laux [38] verbaut wurde, wird diese Technologie der Gasstrahlerzeugung übernommen. Zusätzlich verfügt ein Überschallgasstrahl über die günstige Eigenschaft, dass mithilfe von Skimmern ein geringer Strahldurchmesser erreicht werden kann.

Die genaue Erklärung eines Überschallgasstrahls kann bei Miller [42] nachgelesen werden. Im Folgenden soll nur auf die wichtigen Aspekte und Eigenschaften dieser Technik eingegangen werden. Das Gas entstammt einem Reservoir mit Raumtemperatur. Dieses wird über eine sehr kleine Düse mit einer Vakuumkammer verbunden. Wenn der Quotient der beiden Drücke im Reservoir und der Vakuumkammer genügend groß ( $> 2.1$ , siehe [42]) ist, dann verlässt das Gas das Reservoir mit Schall- bzw. Überschallgeschwindigkeit. Durch die plötzliche Expansion des Gases in die Vakuumkammer, kühlt dieses rasch aus. An den Fronten zwischen den kalten Jetteilchen und den raumwarmen Molekülen in der Vakuumkammer bildet sich eine Schockwelle aus. Die Teilchen vor der Schockwelle besitzen in Jetrichtung eine schmale Geschwindigkeitsverteilung und können mithilfe geeigneter Skimmer extrahiert werden.

Die genaue Beschreibung der Skimmergeometrie, der Vorpumpstufen und der verwendeten Turbopumpen können bei Laux [38, S. 41] nachgelesen werden. Abb. 6.2 fasst die Anordnung der Gasline nochmal zusammen.

Der eingezeichnete Gaseinlass kann mittels einem Manipulator in jede der drei Raumrichtungen verschoben werden.

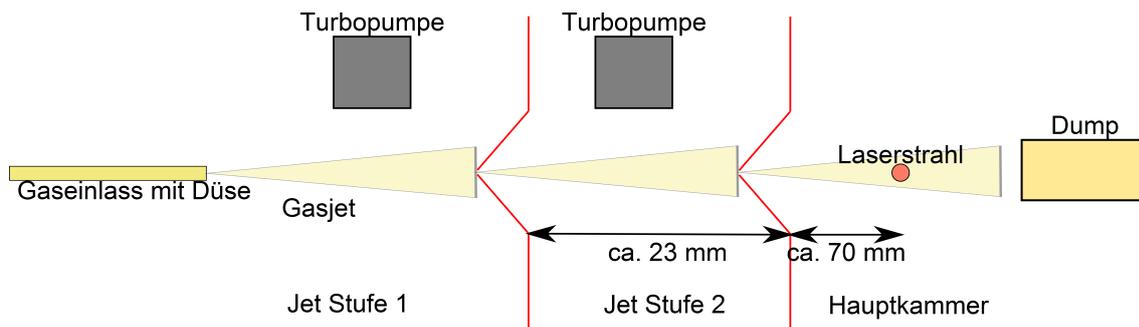


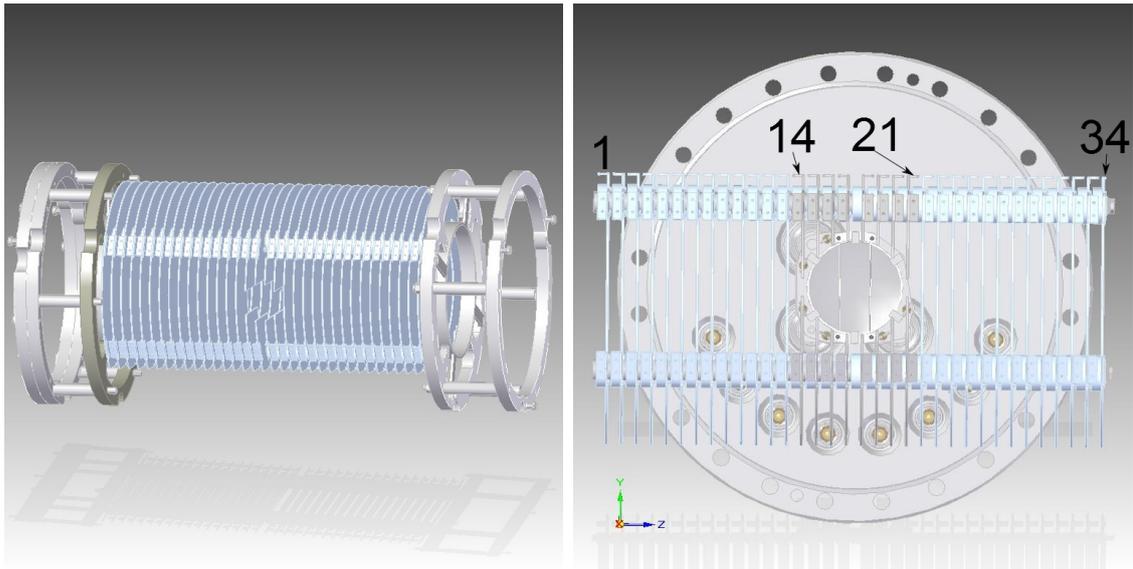
Abbildung 6.2: Skizze des Gaswegs. Das zu untersuchende Gas wird durch eine  $30\ \mu\text{m}$  schmale Düse unter einem Vordruck von ca. 1-10bar in die Vakuumkammer gepresst. Ein erster Skimmer mit einem Durchmesser von  $190\ \mu\text{m}$  lässt nur die zentrale Jetpartie durch. Wegen der endlichen Düsenbreite, treten hinter dem ersten Skimmer Halbschattenbereiche auf, die mithilfe eines zweiten Skimmers ( $400\ \mu\text{m}$ ) vom eigentlichen Jet abgeschnitten werden. Der Jet erreicht die Hauptkammer, wo er vom Laserstrahl getroffen wird. Die Teilchen, die dabei nicht ionisiert wurden und geradewegs weiterfliegen, landen in einem Rohr (Dump), um einen zu hohen Druckanstieg in der Kammer zu vermeiden.

## 6.2 Velocity Map Imaging Spektrometer

Das Spektrometer, bestehend aus insgesamt 34 Annuluselektroden, besitzt eine Gesamtlänge von 404 mm. Die Außendurchmesser und Innendurchmesser jedes Annulus betragen 170 mm und 90 mm. Die Elektroden haben eine Dicke von 1 mm und besitzen einen Abstand von 7 mm (Abstand zweier benachbarter Elektrodenkanten) (siehe Abb. 6.3a). Damit der Laserstrahl das Spektrometer senkrecht zur Spektrometerachse durchdringen und ein fokussierender Spiegel mithilfe des Manipulators (siehe Abschnitt 6.2.2) nahe genug an das Zentrum herangefahren werden kann, ist eine zylinderförmige Aussparung entlang der Verbindungslinie zwischen Manipulator und Quartzfenster (siehe Abb. 6.3b) nötig. Dieses Loch ist so zentriert, dass sein Mittelpunkt auf halber Gesamtlänge und halber Höhe des Elektrodenstacks zu liegen kommt. Der Durchmesser der Aussparung wird durch die Größe des Spiegels bestimmt und beträgt auf der Spiegelseite etwa 60 mm und auf der gegenüberliegenden Seite 30 mm. Das Spektrometer wird entlang der Verbindungslinie zwischen dem Blindflansch und dem Phosphordetektor der Vakuumkammer (siehe Abb. 6.1) so montiert, dass der Mittelpunkt der zylinderförmigen Aussparung mit dem geometrischen Zentrum der Vakuumkammer übereinstimmt.

### 6.2.1 Elektrodenpotentiale

Um das Spektrometer im Velocity Map Imaging Modus betreiben zu können, müssen die an die Elektroden angelegten Potentiale entsprechend gewählt werden. Theore-



(a) Spektrometer

(b) Spektrometer mit eingeschobenem Spiegel und Elektrodennummerierung

Abbildung 6.3: Bilder des Spektrometers

tisch ist es möglich jede Elektrode auf eine von den anderen Elektroden unabhängige Spannung zu legen. Das ist jedoch zum einen teuer und zum anderen unpraktikabel, da für jede Elektrode ein eigener Hochspannungskanal zur Verfügung gestellt werden müsste. Deshalb wurde die Anzahl der unabhängig kontaktierten Elektroden in dieser Arbeit auf drei festgesetzt und die Designidee von Eppink and Parker [21] in das vorliegende Spektrometer implementiert. Jeweils eine der insgesamt 34 Elektroden wird als Repeller, Extraktor bzw. Erde an je ein Hochspannungsgerät angeschlossen. Im Unterschied zu Eppink and Parker [21] handelt es sich bei der Repellerelektrode nicht um eine fast durchgängige Platte. Benachbarte Elektroden werden mit hochohmigen Widerständen verbunden. Sie sorgen dafür, dass die Spannungen der nicht direkt kontaktierten Elektroden zwischen den kontaktierten Elektroden linear interpoliert werden. Abb. 6.4 zeigt, dass die Spannungen der Elektroden mit zunehmender Elektrodennummer größer werden sollen, damit Elektronen in Richtung des Phosphordetektors beschleunigt werden. Positive Ionen fliegen folglich in die entgegengesetzte Richtung.

Die komplette Fokussierung und Optimierung der Velocity Map Bilder müssen über die korrekte Einstellung der Potentiale erfolgen. Dabei ist es wichtig die zu kontaktierenden drei Elektroden auszuwählen und deren Spannungen festzulegen. Die Elektrodenauswahl unterliegt dabei einigen zu erfüllenden Kriterien:

- Die zu kontaktierenden Elektroden müssen durchgängig sein. Die Elektroden mit den Nummern 14-21 scheiden wegen der senkrecht zur Spektrometerachse vorgenommenen Aussparung als mögliche Kontaktierungen aus.
- Die Repellerelektrode muss vor dem Ionisationszentrum des Spektrometers

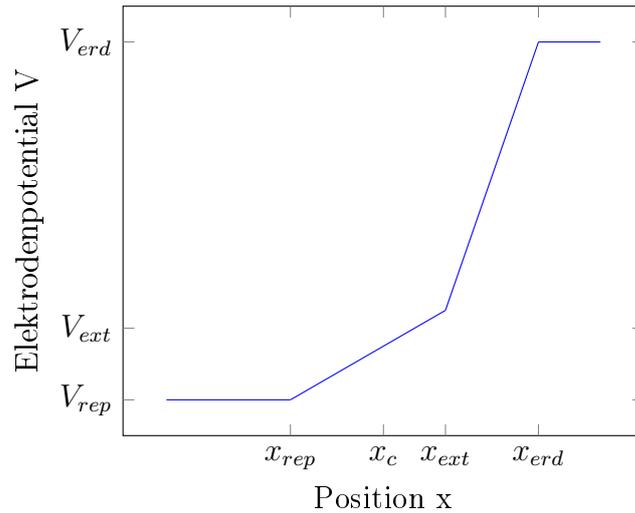


Abbildung 6.4: Schematischer Verlauf der Spannungen der äquidistanten Spektrometerelektroden.  $x_c$  markiert das Zentrum des Spektrometers, in welchem die Ionisation stattfindet.

liegen.

- Die Extraktorelektrode muss hinter dem Ionisationszentrum liegen.
- Die Groundelektrode muss hinter der Extraktorelektrode liegen.

### Optimierung der Elektrodenpotentiale

Das Spektrometer wurde mit der oben beschriebenen rotationssymmetrischen Geometrie ohne die zylinderförmigen Aussparungen in die Simulationssoftware SIMION modelliert (siehe Abb. 6.10a auf Seite 75). Daraufhin wurde ein Benutzerprogramm in der Programmiersprache Lua geschrieben, welches die Spannungsconfiguration der Elektroden optimieren soll. Das Programm erhält eine Startkonfiguration. Mit dieser Startkonfiguration lässt es Elektronen mit definierten Anfangsgeschwindigkeiten fliegen. Dabei haben Elektronen mit dem gleichen anfänglichen Geschwindigkeitsvektor unterschiedliche Anfangspositionen. Sie sind symmetrisch um das Spektrometerzentrum mit einem maximalen Abstand von  $\Delta z = 2 \text{ mm}$  auf der Laserstrahlachse angeordnet (siehe Abb. 6.6a). Die Auftreffpunkte der Elektronen (siehe Abb. 6.5) werden in einer Textdatei gespeichert und ausgewertet. Idealerweise sollte das VMI Spektrometer alle Elektronen einer Klasse, welche durch den anfänglichen Geschwindigkeitsvektor definiert ist, auf den selben Punkt des Detektorschirms fokussieren. In der Realität und der Simulation ist das natürlich nicht der Fall. Anstelle des idealisierten Fokuspunkts bildet sich ein ausgedehnter Kreis auf dem Schirm aus. Für jede Elektronenklasse wird die Position des mittleren Auftreffpunkts  $\overrightarrow{\langle R \rangle} = (\langle y \rangle, \langle z \rangle)$  und das maximale Residuum aller Auftreffpunkte  $\Delta R$  ausgerechnet. Das Residuum  $r_i$  bezeichnet hierbei den Abstand des Auftreffpunkts des  $i$ -ten Elektrons vom mittleren

Auftreffpunkt. Als Ursprung des Koordinatensystems wird der Detektormittelpunkt festgesetzt. Somit beschreibt  $\langle R \rangle = |\overrightarrow{\langle R \rangle}|$  den Abstand des mittleren Auftreffpunkts zur Detektormitte.

$$(\langle y \rangle, \langle z \rangle) = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N (x_n, y_n) \quad (6.1)$$

$$r_i = |(\langle y \rangle, \langle z \rangle) - (x_i, y_i)| \quad (6.2)$$

$$\Delta R = \max_{i \in \{1, \dots, N\}} (r_i) \quad (6.3)$$

$\Delta R$  gibt Aufschluss über die theoretisch mögliche Auflösung des Velocity Map Imaging Experiments gemäß der SIMION Simulation. Der Quotient aus maximaler Abweichung und mittlerem Radius  $\frac{\Delta R}{\langle R \rangle}$  gibt die relative Auflösung wieder.

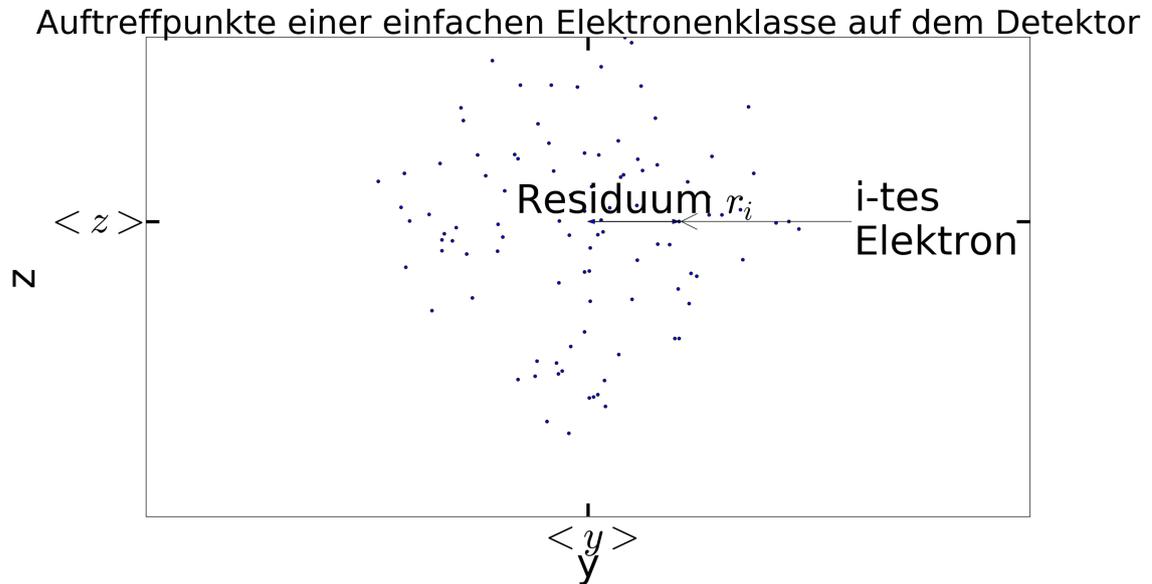


Abbildung 6.5: Skizze eines Detektorbildes infolge der Trajektorien simulation durch SIMION mit einer anfänglichen Verteilung, bei der alle Elektronen den gleichen anfänglichen Geschwindigkeitsvektor aber unterschiedliche Startpositionen besitzen. Jeder Punkt entspricht dem Auftreffen eines Elektrons auf dem Detektor.

Die gesamte Prozedur wird für weitere Spannungskonfigurationen, die von einem eigens programmierten Algorithmus iterativ generiert werden, wiederholt. Als Ergebnis wird die Spannungskonfiguration, deren maximaler Quotient  $\frac{\Delta R}{\langle R \rangle}$  über alle Elektronenklassen am geringsten ist, ausgegeben.

## Simulative Charakterisierung des VMIs

Zur simulativen Charakterisierung des VMIs werden die Elektronentrajektorien, wie im Abschnitt „Optimierung der Elektrodenpotentiale“ auch, mithilfe von SIMION simuliert. Dabei lässt sich jedes Elektron wieder einer Geschwindigkeitsgruppe zuordnen. Diesmal jedoch bildet jede Gruppe eine doppelkegelförmige Geschwindigkeitsverteilung aus (siehe Abb. 6.6b). Jede Elektronenklasse wird durch die kinetische Energie ihrer Elektronen und den Halböffnungswinkel ihrer Verteilung charakterisiert. Alle Elektronen sind auf der optischen Achse des fokussierenden Spiegels (siehe Abschnitt 6.2.2) äquidistant in einem Bereich, der  $\Delta z = 2 \text{ mm}$  um das Spektrometerzentrum umfasst, positioniert. Diese Linienanordnung ist eine gute erste Annäherung an die tatsächlichen Ionisationsorte im Experiment, weil bei einem fokussierten, gaußförmigen Laserstrahl die Fokusbreite in radialer Richtung deutlich kleiner als die entlang der Strahlachse ist (siehe Abschnitt 2.4). Idealerweise sollte nach der Idee eines perfekten VMIs jede Elektronenklasse mit einheitlicher Energie, deren Geschwindigkeitsverteilung die Form eines Doppelkegels hat, in Form eines perfekten Rings mit unendlich kleiner Breite abgebildet werden. In der Realität trifft das natürlich nicht zu. Die Auftreffpunkte der Elektronen (siehe Abb. 6.7) werden in einer Textdatei gespeichert und ausgewertet. Dabei wird für jede Elektronenklasse der mittlere Abstand des Auftreffpunkts zur Detektormitte, im Folgenden mittlerer Radius  $\langle R_{DK} \rangle$  genannt, und die maximale Abweichung aller Auftreffpunkte vom mittleren Radius  $\Delta R_{DK}$  ausgerechnet.

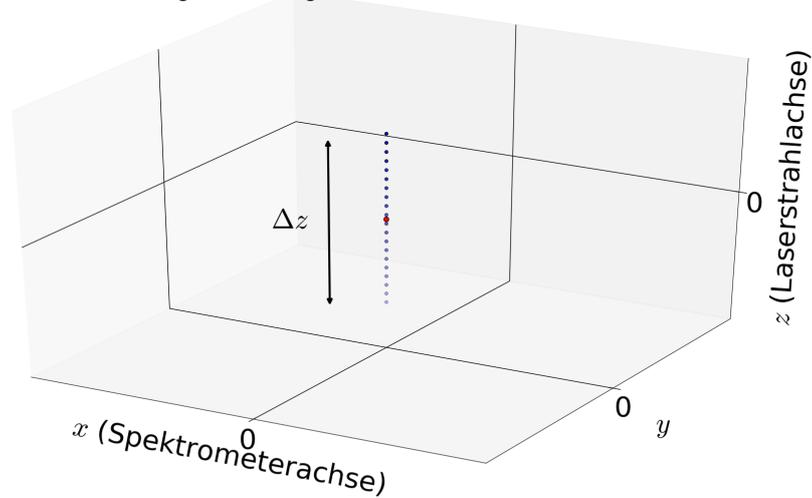
$$\langle R_{DK} \rangle = \frac{1}{N} \sum_{n=1}^N R_i \quad (6.4)$$

$$\Delta R_{DK} = \max_{i \in \{1, \dots, N\}} (|R_i - \langle R_{DK} \rangle|) \quad (6.5)$$

$\Delta R_{DK}$  gibt Aufschluss über die theoretisch mögliche Auflösung des Velocity Map Imaging Experiments gemäß der SIMION Simulation. Der Quotient aus maximaler Abweichung und mittlerem Radius  $\frac{\Delta R_{DK}}{\langle R_{DK} \rangle}$  gibt die relative Auflösung wieder.

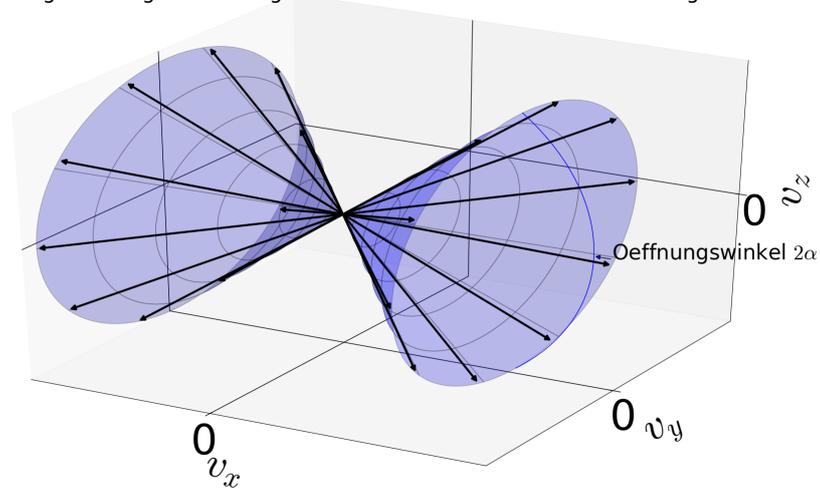
Diese Charakterisierung wurde sowohl für das rotationssymmetrische Spektrometer (siehe Abb. 6.10a auf Seite 75) als auch für das Spektrometer mit Aussparung (siehe Abb. 6.10b auf Seite 75) angefertigt. Die entsprechenden Ergebnisse werden in Abschnitt 8 des Ergebnisteils präsentiert.

Linienförmige Verteilung einer Elektronenklasse im Ortsraum



- (a) Im Ortsraum sind die Elektronen (blau) in Form einer äquidistanten Linienverteilung entlang der Laserstrahlachse ( $z$ -Achse) symmetrisch um den Ursprung (rot) angeordnet. Die Größe  $\Delta z$  beschreibt den größtmöglichen Abstand zwischen zwei Elektronen einer Klasse und charakterisiert damit die örtliche Ausdehnung der Verteilung.

Doppelkegelförmige Verteilung einer Elektronenklasse im Geschwindigkeitsraum



- (b) Die Geschwindigkeitsvektoren der Elektronen einer Klasse sind uniform auf der Fläche des Doppelkegels mit festgesetztem Halböffnungswinkel  $\alpha$  und definierter kinetischer Energie  $E_{kin}$  verteilt.

Abbildung 6.6: Skizzen der anfänglichen Geschwindigkeits- und Ortsverteilungen einer Elektronenklasse, wie sie zur simulativen Charakterisierung des VMI-Spektrometers verwendet werden.

## Auftreffpunkte einer doppelkegelfoermigen Elektronenklasse auf dem Detektor

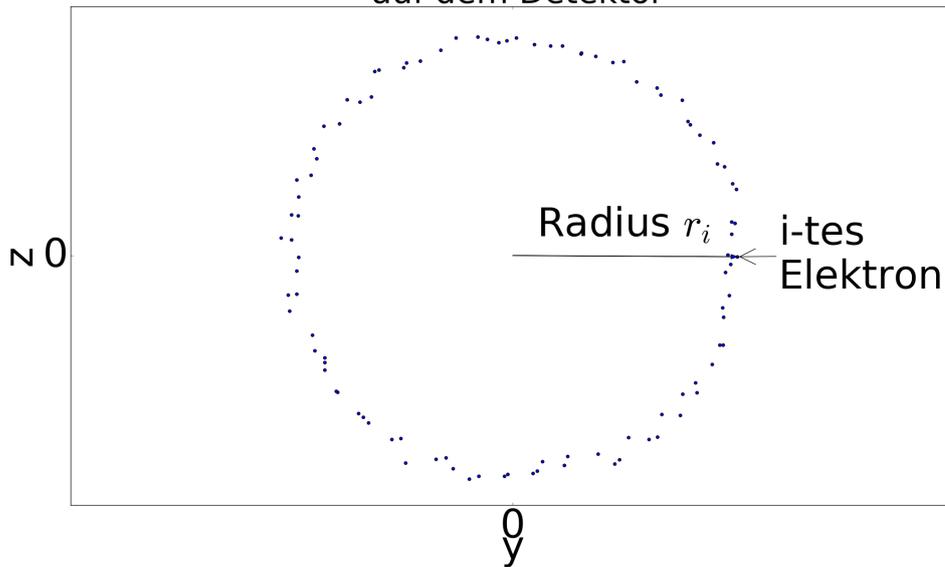


Abbildung 6.7: Skizze eines Detektorbildes infolge der Trajektorien simulation durch SIMION mit einer anfänglichen Elektronenverteilung, wie in Abb. 6.6 skizziert. Jeder Punkt entspricht dem Auftreffen eines Elektrons auf dem Detektor.

### Dimensionierung des Spannungsteilers

Um die simulativ ermittelten Spannungen an den einzelnen Elektrodenblenden anlegen zu können, wird ein Spannungsteiler gemäß der Skizze in Abb. 6.8 aufgebaut. Die beiden Spannungen  $U_1$  und  $U_2$  werden von zwei *NHQ204M*-Modulen der Firma *iseg* bereit gestellt. Im Folgenden wird mit ausschließlich positiven Spannungen  $U_1, U_2 > 0$  gerechnet. Dabei gelte stets  $U_1 > U_2$ . Die Hochspannungsnetzteile liefern gerätebedingt maximal 4 kV und 3 mA. Sie verfügen über eine interne Spannungsstabilisierung, die nur dann ihre gewünschte Funktion erfüllt, wenn kein Strom in das Gerät hinein fließt. Damit dieser Fall nicht eintritt, kann parallel zur Spannungsquelle  $U_1$  ein im Vergleich zu  $R_{tot,2}$  niederohmiger Widerstand  $R_0$  geschaltet werden. Er sorgt dafür, dass der Großteil des Stroms  $I_1$  aus der Spannungsquelle  $U_1$  am Hochspannungsnetzteil  $U_2$  durch den Widerstand  $R_0$  in die Erde fließt.

Die Widerstände können nicht beliebig gewählt werden. Sie unterliegen folgenden Rahmenbedingungen:

- Der Lastwiderstand  $R_0$  muss deutlich geringer sein als  $R_{tot,1}$ , damit die Spannungsstabilisierung der Hochspannungsnetzteile gewährleistet ist.
- Da alle 33 Widerstände mit Widerstandswerten  $R_1$  und  $R_2$  innerhalb der Vakuumkammer platziert werden, ist der Abtransport der Wärmeleistung des Widerstands durch Wärmekonvektion erheblich eingeschränkt bzw. vernach-

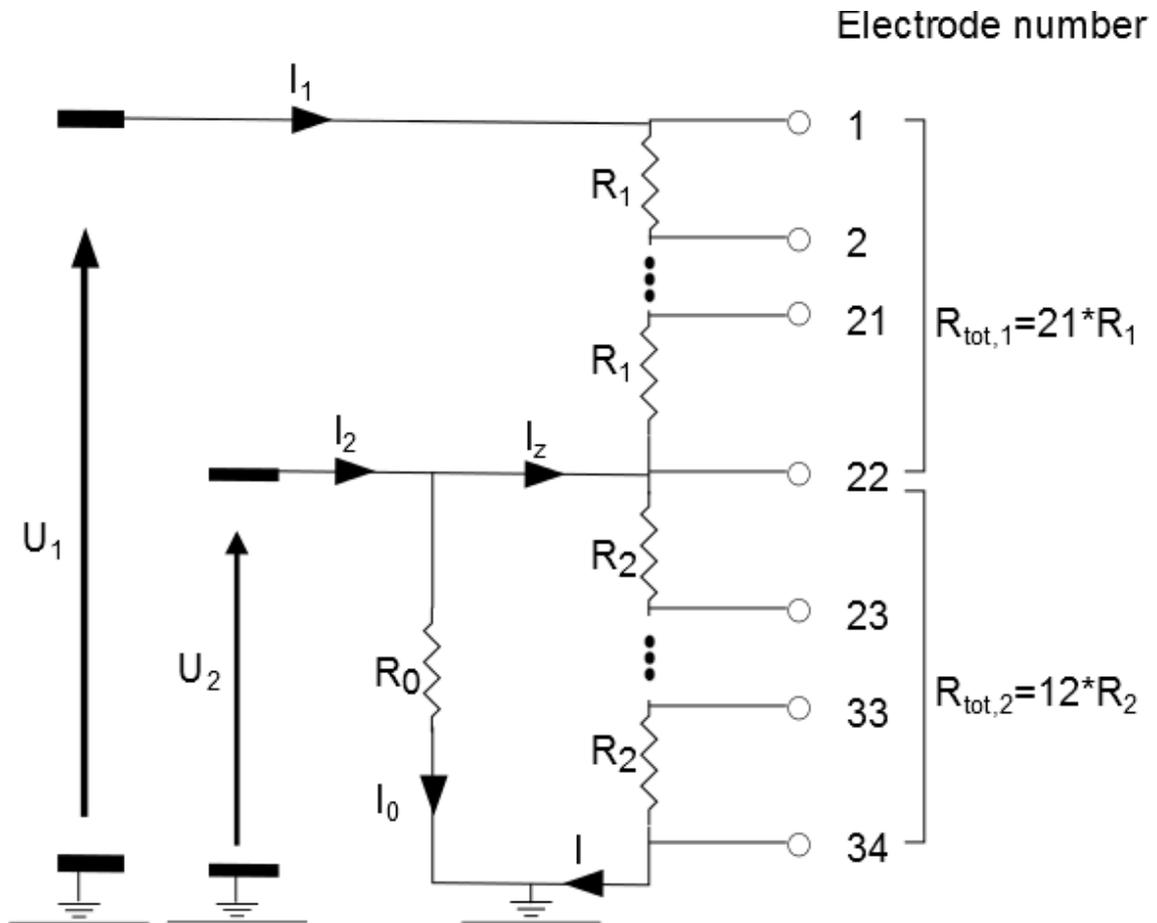


Abbildung 6.8: Schaltungsplan des Spannungsteilers. Eine Kette aus 21 Widerständen  $R_1$  und eine Kette aus 12 Widerständen  $R_2$  werden in Reihe geschaltet. Über alle 33 Widerstände fällt insgesamt die Spannung  $U_2$  ab, welche von einem Hochspannungsnetzteil bereit gestellt wird. Über die 12 Widerstände  $R_2$  fällt die Spannung  $U_2$  ab, die ebenfalls über ein Hochspannungsnetzteil bereit gestellt wird. Eine parallel zu  $U_2$  geschaltete Last  $R_0$  verhindert bei Bedarf einen Stromrückfluss in die Spannungsquelle  $U_2$ .

lässigbar. Es ist daher darauf zu achten die beim Betrieb der Widerstände entstehende Wärmeleistung möglichst klein zu halten. Aus Erfahrungen mit der Inbetriebnahme von Reaktionsmikroskopen ist bekannt, dass Wärmeleistungen bis 10 mW vertretbar sind.

- Es ist wünschenswert die beiden Widerstandswerte  $R_1$  und  $R_2$  gleich zu wählen, damit man das Spektrometer nicht nur als VMI, sondern auch ohne viel Aufwand als Reaktionsmikroskop betreiben kann.

Aus den Kirchhoff'schen Regeln folgen 5 grundlegende Gleichungen:

$$U_1 = U_2 + R_{tot,1}I_1 \quad (6.6)$$

$$U_2 = R_0I_0 \quad (6.7)$$

$$U_2 = R_{tot,2}I \quad (6.8)$$

$$I = I_1 + I_z \quad (6.9)$$

$$I_z = I_2 - I_0 \quad (6.10)$$

Durch geeignetes Einsetzen und Umformen der Gleichungen gelangt man zu folgenden Ausdrücken für die Ströme:

$$I_0 = \frac{U_2}{R_0} \quad (6.11)$$

$$I_1 = \frac{U_1 - U_2}{R_{tot,1}} = \frac{\Delta}{R_{tot,1}} \text{ mit } \Delta = U_1 - U_2 \quad (6.12)$$

$$I_2 = U_2 \left( \frac{1}{R_{tot,1}} + \frac{1}{R_{tot,2}} + \frac{1}{R_0} \right) - \frac{U_1}{R_{tot,1}} \quad (6.13)$$

$$I = \frac{U_2}{R_{tot,2}} \quad (6.14)$$

Da gemäß Voraussetzung  $U_1 > U_2$  ist, bleibt  $I_1$  immer größer Null. Problematisch wird die Spannungsstabilisierung nur für das Hochspannungsnetzteil  $U_2$ . Hier wird der Strom  $I_2$  negativ, falls

$$U_2 < U_1 \frac{1}{R_{tot,1} \left( \frac{1}{R_{tot,1}} + \frac{1}{R_{tot,2}} + \frac{1}{R_0} \right)} \quad (6.15)$$

Wird  $R_0$  also so gewählt, dass

$$\frac{1}{R_0} \geq \frac{1}{R_{tot,1}} \left( \frac{U_1}{U_2} - 1 \right) - \frac{1}{R_{tot,2}} \quad (6.16)$$

dann wird  $I_2$  nicht negativ. Anders ausgedrückt kann man sagen: Wenn  $R_0$  gegen  $\infty$  geht (was gleichbedeutend damit ist, dass  $R_0$  aus der Schaltung entfernt wird), dann darf  $U_2$  nur so gewählt werden, dass gilt

$$\frac{U_1}{U_2} \leq 1 + \frac{R_{tot,1}}{R_{tot,2}} \quad (6.17)$$

Es seien  $P_{tot,1}$  und  $P_{tot,2}$  die Summen aller elektrischen Leistungen, die von den 21 Widerständen  $R_1$  bzw. 12 Widerständen  $R_2$  erzeugt werden. Für die Schaltung aus Abb. 6.8 bedeutet das:

$$P_{tot,1} = \Delta \cdot I_1 = \frac{\Delta^2}{R_{tot,1}} \quad (6.18)$$

$$P_{tot,2} = U_2 I = \frac{U_2^2}{R_{tot,2}} \quad (6.19)$$

Seien  $P_{tot,1,max}$  und  $P_{tot,2,max}$  die beiden Leistungswerte, die wir für  $P_{tot,1}$  bzw.  $P_{tot,2}$  zulassen. Außerdem seien  $U_{2,max}$  und  $\Delta_{max}$  die beiden Maximalwerte, die  $U_2$  und  $\Delta$  während des Betriebs der Schaltung einnehmen können. Dann müssen  $R_{tot,1}$  und  $R_{tot,2}$  so gewählt werden, dass gilt:

$$R_{tot,1} \geq \frac{\Delta_{max}^2}{P_{tot,1,max}} \quad (6.20)$$

$$R_{tot,2} \geq \frac{U_{2,max}^2}{P_{tot,2,max}} \quad (6.21)$$

Wie bereits erwähnt, können die Hochspannungsnetzteile maximal  $U_{1,max} = 4 \text{ kV}$  liefern. Für die maximale Leistung pro Widerstand wird, wie oben beschrieben,  $10 \text{ mW}$  angesetzt. Damit ergibt sich:

$$P_{tot,1,max} = 21 \cdot 10 \text{ mW} \quad (6.22)$$

$$P_{tot,2,max} = 12 \cdot 10 \text{ mW} \quad (6.23)$$

Mithilfe dieser Werte lassen sich schließlich die beiden Widerstände  $R_{tot,1}$  und  $R_{tot,2}$  ausrechnen.

$$R_{tot,1} \geq 76.2 \text{ M}\Omega \quad \Rightarrow \quad R_1 \geq 3.629 \text{ M}\Omega \quad (6.24)$$

$$R_{tot,2} \geq 85.4 \text{ M}\Omega \quad \Rightarrow \quad R_2 \geq 7.112 \text{ M}\Omega \quad (6.25)$$

Es liegen keinerlei Erfahrungswerte für den Betrieb des Spektrometers mit derart hohen Widerstandswerten und Spannungen vor. Es besteht im Allgemeinen die Gefahr, dass die Widerstandskette so hochohmig ist, dass die Keramikrohre, die die einzelnen Elektrodenbleche elektrisch gegeneinander isolieren, relevante Leckströme führen. Das würde die Potentiale an den Elektroden beeinflussen. Eventuelle Verunreinigungen in Form von z.B. Hautfett und anderen organischen Substanzen erhöhen diese Gefahr drastisch. Aus diesem Grund wurde trotz Bedenken beim Abtransport der Wärmeleistung entschieden, dass für  $R_1$  und  $R_2$   $2.2 \text{ M}\Omega$ -Metalloxidwiderstände verwendet werden. Gemäß den Gleichungen 6.20, 6.21, 6.22 und 6.23 ergeben sich für die maximalen Spannungswerte  $U_{2,max} = 1.78 \text{ kV}$  und  $\Delta_{max} = 3.11 \text{ kV}$ . Um eventuelle Schäden an den Festwiderständen zu vermeiden, wird empfohlen, diese Spannungswerte niemals zu überschreiten.

Aus den Simulationsergebnissen in Abschnitt 8 ist bekannt, dass  $U_{2,max} = 0.5 \cdot U_{1,max}$  eine untere Grenze für  $U_2$  darstellt und für die Experimente genügen würde.

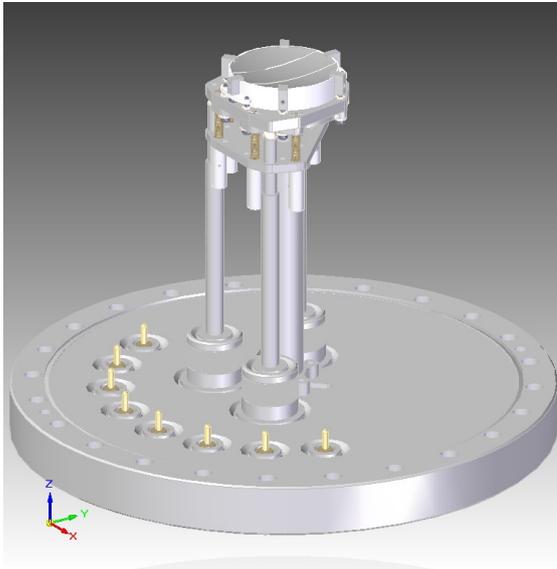
Unter der Voraussetzung, dass bei der Inbetriebnahme des Spektrometers stets  $U_1 > 0.5 \cdot U_2$  gilt, wird kein Lastwiderstand  $R_0$  in der Schaltung benötigt. Damit muss laut Gleichung 6.17  $U_2 \geq \frac{U_1}{2.75} \approx 0.37 \cdot U_1$  gelten.

## 6.2.2 Fokussierender Spiegel

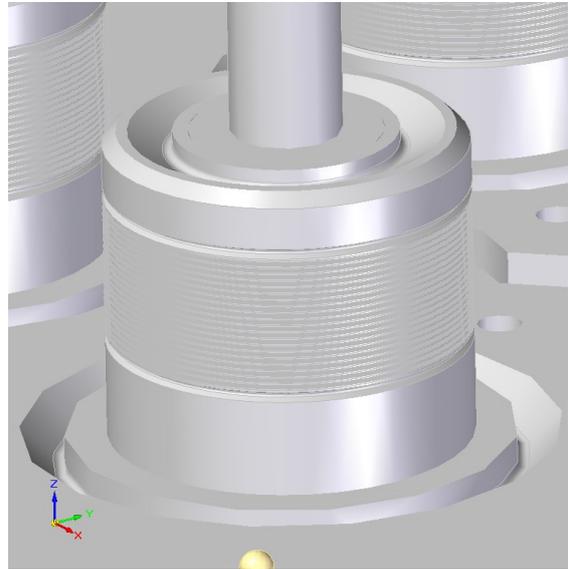
Gleichung 2.35 aus Abschnitt 2.4 lehrt uns, dass zum Erreichen hoher Intensitäten Linsen oder Spiegel mit möglichst kleinen Brennweiten wünschenswert sind. Dies spielt eine umso größere Rolle, wenn der verwendete Lichtstrahl eine relativ geringe Intensität besitzt. Die naheliegendste Idee besteht darin eine Linse in der Vakuumkammer möglichst nah am Spektrometerzentrum zu platzieren. Allerdings ist dabei nicht klar, ob und in welcher Weise das elektrostatische Feld des Spektrometers durch das Aufladen der Linse während der Ionisationsprozesse verändert wird. Hinzu kommt, dass bei gewöhnlichen, asphärischen Linsen chromatische und sphärische Aberrationen auftreten. Deshalb wird stattdessen ein sphärischer Goldspiegel, der mit einer bis  $600^\circ\text{C}$  hitzebeständigen Schutzschicht überzogen ist, verwendet. Der Hersteller des Spiegels wollte unter Berufung auf das Vorliegen eines Geschäftsgeheimnis keine Informationen über das genaue Schutzmaterial preisgeben. Aus eigenen Messungen geht hervor, dass die Schutzschicht einen elektrischen Widerstand größer als  $60\text{ M}\Omega$  besitzt. Raumladungseffekte sind insofern nicht auszuschließen. Geeigneter wäre im Prinzip die Verwendung eines parabolischen Spiegels. Diese werden jedoch nur mit großen Durchmessern oder bei kleinen Durchmessern im off-axis-Design angeboten, weshalb sie für die benötigten Zwecke nicht in Frage kommen. Damit der Spiegel manuell auf Potential gesetzt werden kann, wird die elektrisch leitende Goldschicht durch mechanisches Einschneiden mit einem Glasschneider in 3 Elektrodensegmente unterteilt (siehe Abb. 6.9c).

Der segmentierte Spiegel wird in einen speziell angefertigten Spiegelmanipulator (siehe Abb. 6.9a) über elektrisch leitende Klammern eingespannt (siehe Abb. 6.9c). Dieser ist in ein CF-200 Flansch (siehe Abb. 6.9d) montiert und besitzt drei balggedichtete lineare Schiebedurchführungen (siehe Abb. 6.9b), mit deren Hilfe der Spiegel in jede mögliche Neigungsstellung gebracht werden kann. Die Bälge besitzen jeweils einen Hub von  $\pm 5\text{ mm}$ , sodass der Brennpunkt des Laserstrahls um  $\pm 5\text{ mm}$  um das Spektrometerzentrum verschoben werden kann. Acht elektrische Sicherheits-Hochspannungs-Durchführungen ermöglichen es den Spiegel von außerhalb der Vakuumkammer an Hochspannungen bis maximal  $5\text{ kV}$  anzulegen.

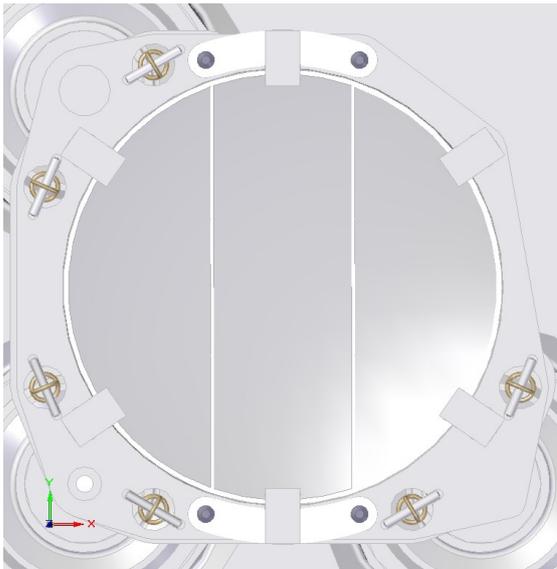
Um eine geeignete Spiegelkonfiguration für die Spiegelsegmente zu finden, wird der segmentierte Spiegel zusammen mit der Spektrometergeometrie in SIMION erstellt. Ziel ist es den relativen Fehler  $F_{rel}$  (siehe Gleichung 6.26), der durch die Aussparungen und den segmentierten Spiegel verursacht wird, durch geeignete Wahl der Segmentvorspannungen zu minimieren. Dabei ist  $\vec{x}$  der jeweilige Ortspunkt,  $\vec{E}_{ist}$  das elektrische Feld der tatsächlichen Spektrometergeometrie mit segmentiertem Spiegel und kreisförmigen Elektrodenaussparungen (siehe Abb. 6.10b) und  $\vec{E}_r$  das elektrische Feld der idealisierten rotationssymmetrischen Spektrometergeometrie (siehe Abb. 6.10a).



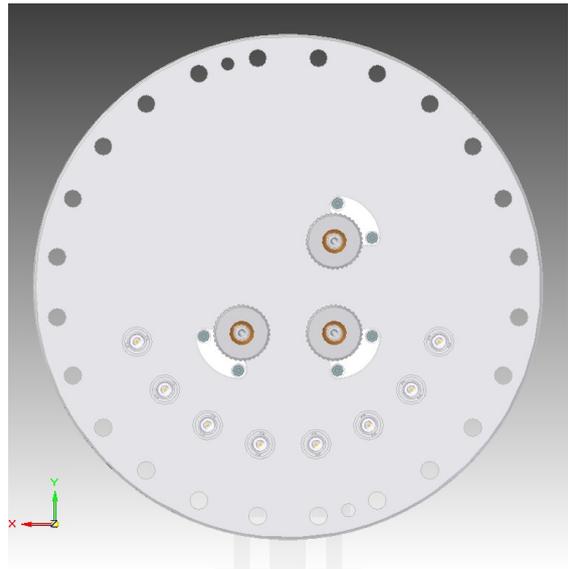
(a) Komplettansicht



(b) Membranbalg

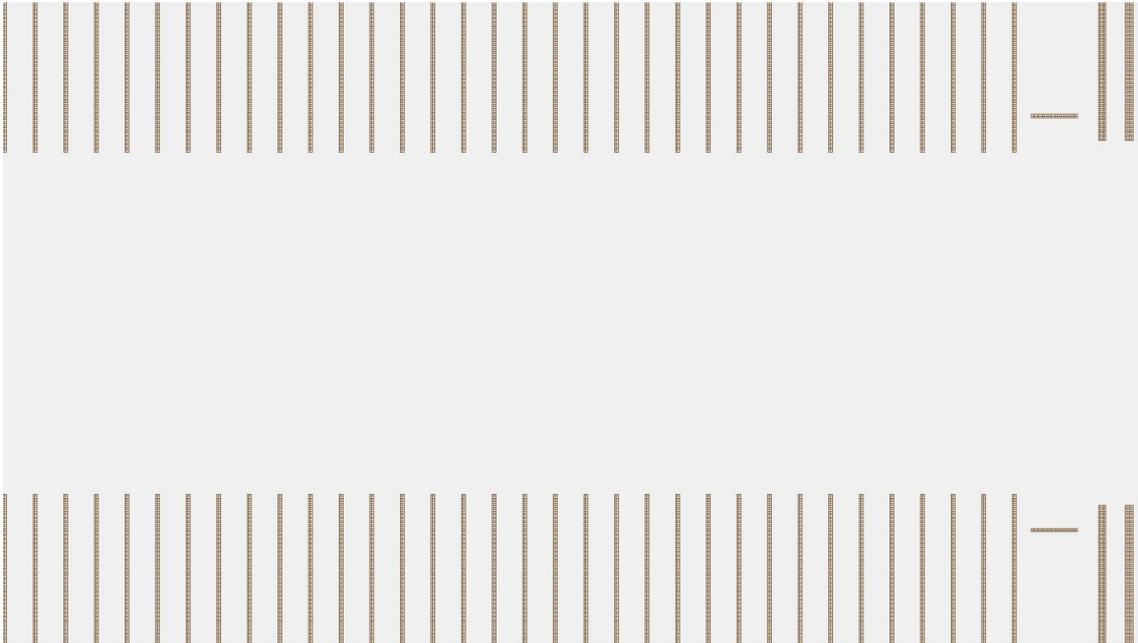


(c) Lagerung der Trägerplatte

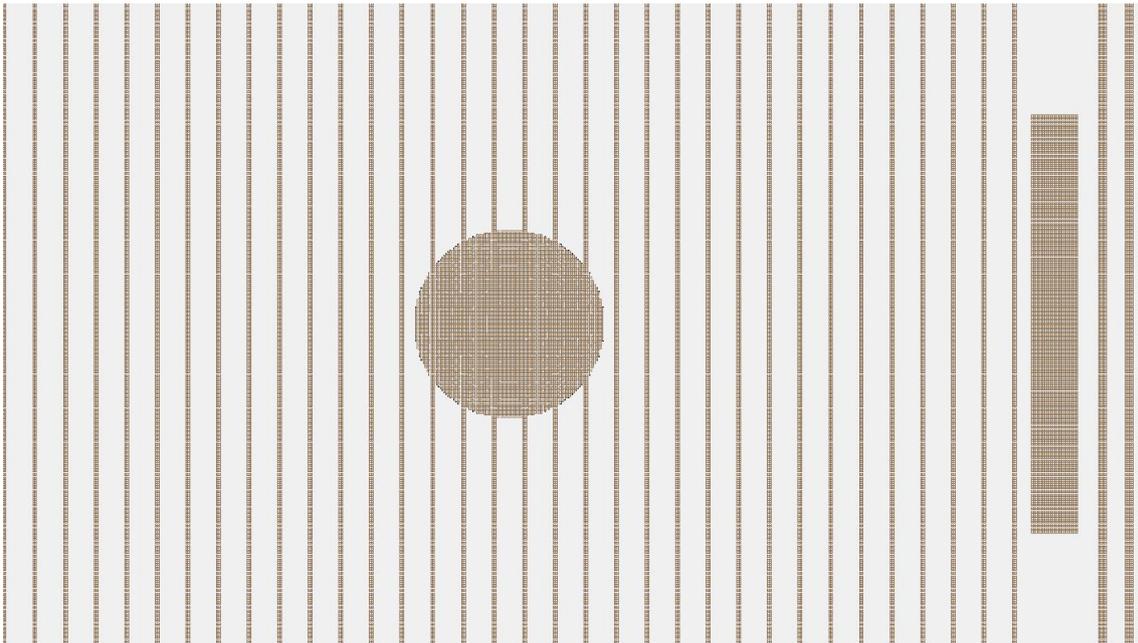


(d) CF-200 Flansch mit SHV-Durchführungen

Abbildung 6.9: Konstruktionsbilder des Spiegelmanipulators



(a) rotationssymmetrisch, Querschnittansicht



(b) mit Aussparung der mittleren Elektroden entlang der optischen Achse des Spiegels, Draufsicht wie in Abb. 6.3b

Abbildung 6.10: Ansichten der in SIMION erzeugten Spektrometergeometrien

$$F_{rel}(\vec{x}) = \frac{|\vec{E}_{ist}(\vec{x}) - \vec{E}_r(\vec{x})|}{|\vec{E}_r(\vec{x})|} \quad (6.26)$$

Sind keine äußeren Ladungen vorhanden, so gilt für das Potential  $\Phi(\vec{x})$  die Laplace-Gleichung.

$$\Delta\Phi(\vec{x}) = 0 \quad (6.27)$$

Für ein elektrostatisches Problem mit bestimmten Randbedingungen sei die Lösung der Laplace-Gleichung  $\Phi_1$ . Für andere Randbedingungen sei die Lösung  $\Phi_2$ . Dank der Linearität des Laplace-Operators  $\Delta$ , ist jede Linearkombination  $\Phi_3 = a\Phi_1 + b\Phi_2$  wieder eine Lösung der Laplace-Gleichung.

Entsprechend lässt sich das Potential des gesamten Aufbaus aus den Potentialen des Spektrometers  $\Phi_{spec}$  und der 3 Spiegelsegmente  $\Phi_i$  mit  $i = 1, 2, 3$  unter Berücksichtigung aller gelten Randbedingungen linear kombinieren.

$$\Phi_{tot} = \Phi_{spec} + \sum_{i=1}^3 \Phi_i \quad (6.28)$$

SIMION errechnet das Potential einer Geometrie, indem es zunächst das Potential jeder Elektrode auf  $1 \times 10^4$  V setzt. Die Laplace-Gleichung wird unter Berücksichtigung der Randbedingungen für jede Elektrode einzeln mittels einer Finite-Element-Methode errechnet. Um die Superposition der elektrischen Felder der einzelnen Elektroden zu erhalten, werden zunächst die Elektrodenpunkte auf den Wert 0 V gesetzt. Danach werden die einzelnen, gemäß der gewünschten Spannungen  $U_i$  skalierten Elektrodenpotentiale  $\Phi_i = \frac{U_i}{1 \times 10^4 \text{ V}}$  addiert. Für das elektrische Feld gilt dann:

$$\vec{E}_{ist} = -\text{grad}(\Phi_{tot}) \quad (6.29)$$

$$= -\text{grad}(\Phi_{spec}) + \sum_{i=1}^3 -\text{grad}(\Phi_i) \quad (6.30)$$

$$= \vec{E}_{spec} + \sum_{i=1}^4 \frac{U_i}{1 \times 10^4 \text{ V}} \vec{E}_i \quad (6.31)$$

Hierbei bezeichnet  $\vec{E}_i$  das elektrische Feld, das vom i-ten Spiegelsegment unter Berücksichtigung der Randbedingungen verursacht wird. Schließlich müssen noch die Elektrodenpunkte auf ihre gewünschten Vorspannungen gesetzt werden. Die elektrischen Felder  $\vec{E}_{spec}$ ,  $E_{soll}$  und  $\vec{E}_i$  mit  $i = 1, 2, 3$  können aus SIMION exportiert oder ausgelesen werden. Ziel ist es nun durch Variation der Vorfaktoren  $\frac{U_i}{1 \times 10^4 \text{ V}}$  numerisch jene Konfiguration  $(U_1, U_2, U_3)$  zu finden, für die das Maximum des relativen Fehlers (siehe Gleichung 6.26) am geringsten wird. Dazu wurde das Python-Modul *scipy.optimize* verwendet. Die numerische Optimierung erfolgte mittels des Nelder-Mead-Algorithmus. Dabei wurde nicht das gesamte Spektrometervolumen zur Berechnung herangezogen, sondern nur ein ca.  $70 \times 20 \times 2 \text{ mm}^3$  großes Volumen unmittelbar vor dem Spiegel. Die Ergebnisse werden in Abschnitt 9 präsentiert.

## 6.3 Detektor, Signalverstärkung und Datenerfassung

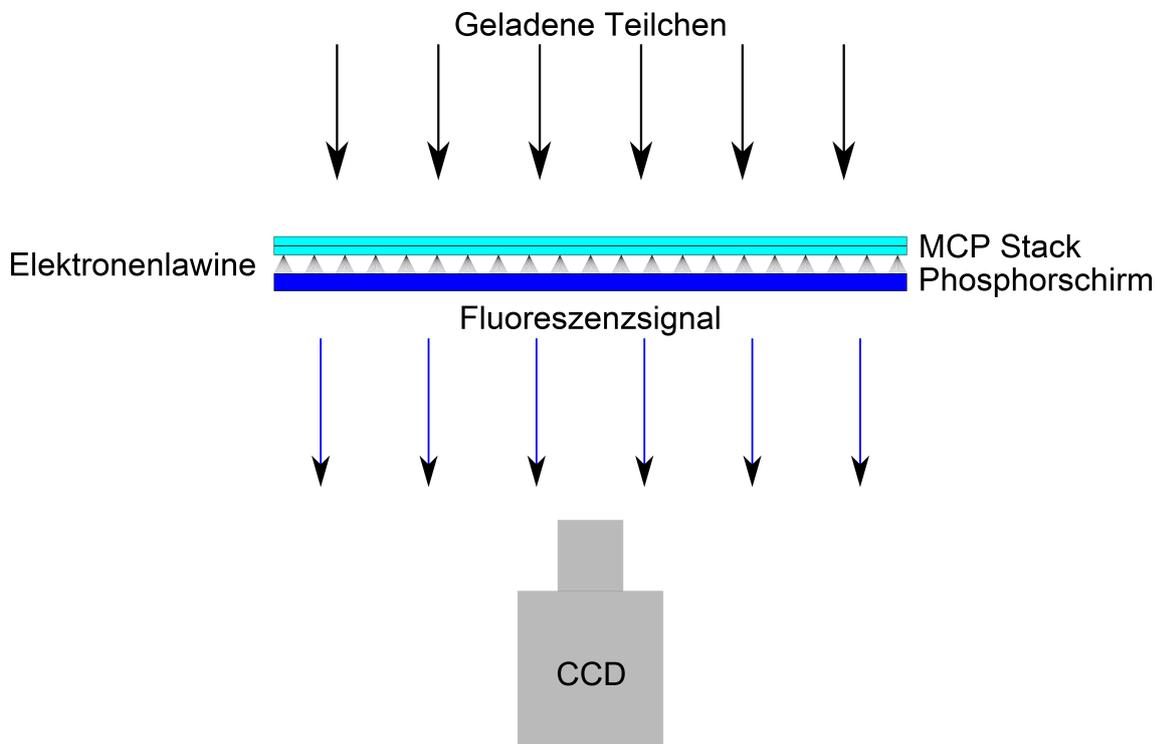


Abbildung 6.11: Schema des Aufbaus und der Funktionsweise des Detektors

Bevor die Elektronen wirklich erfasst werden, werden sie vervielfacht. Dazu werden Sekundärelektronenverstärker, sogenannte Mikrokanalplatten (engl. micro channel plate, MCP) verwendet. Abb. 6.12 zeigt den Aufbau einer solchen Platte. Gefertigt wird sie aus einem Glassubstrat, welches von Kanälen mit einem Durchmesser von  $25\ \mu\text{m}$  durchsetzt ist. Die Innenwände der Mikroröhren sind mit einem Halbleitermaterial beschichtet. Jeder Kanal ist leicht gegen die Achse der Platte gekippt. Das garantiert, dass einfallende Elektronen auf der Kanalinnenseite aufschlagen. Über die Dicke der Platte wird eine hohe Spannung angelegt. Wenn nun z.B. ein Elektron auf die Kanalinnenseite auftrifft, verursacht dies die Herauslösung von Sekundärelektronen. Diese werden entlang des elektrischen Potentialgradienten beschleunigt und lösen weitere Elektronen aus der Halbleiterschicht. Es baut sich eine Elektronenlawine auf.

In dem vorliegenden Aufbau wurde ein Stapel von zwei aufeinander gelegten Mikrokanalplatten der Firma Photonis verwendet, die relativ zueinander um  $180^\circ$  verdreht werden. Diese sogenannte Chevron-Konfiguration erhöht zum einen die Elektronenverstärkung und vermindert zum anderen den Rückstoß von Ionen aus dem Halbleitermaterial infolge des Aufpralls einer Elektronenwolke [57, 55, 22]. Tabelle 6.1 listet die Eigenschaften der Mikrokanalplatten auf.

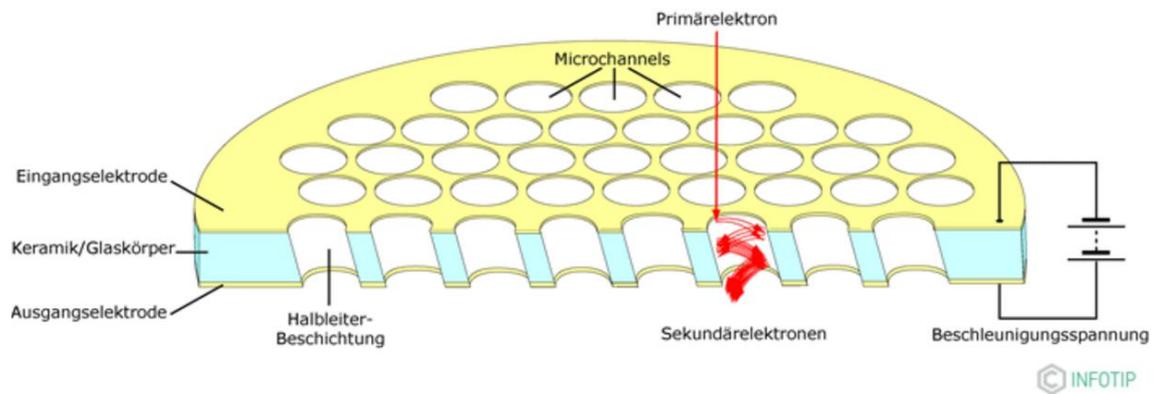


Abbildung 6.12: Schematischer Aufbau einer Mikrokanalplatte. Quelle: [31]

Physikalische Eigenschaft	Eigen- schaft	Spezifikation	Bemerkung
Durchmesser		120 mm	Minimum
Zentrum-Zentrum- Abstand		32 $\mu\text{m}$	Nominal
Porendurchmesser		25 $\mu\text{m}$	Nominal
Neigungswinkel der Kanäle	der	8°	
Lochdurchsatz - Flächen- anteil		45 %	Nur 45 % der Elektro- nen lösen Sekundärelek- tronen aus.
Elektronenverstärkung bei 2400 V		$4 \times 10^6$	Minimum
Dunkelzählrate		$5 \text{ s}^{-1} \text{ cm}^{-2}$	

Tabelle 6.1: Spezifikationen der verwendeten Mikrokanalplatten

Die Elektronwolken treffen auf einen nachgeschalteten P46-Phosphorschirm der Firma *proxivision* (siehe Abb. 6.13). Dabei kommt es am Ort des Aufschlags zur Fluoreszenz der angeregten Phosphoratome. Photonen werden ausgesendet, die mit-

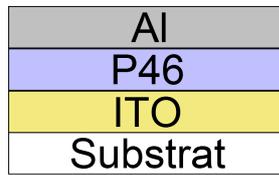


Abbildung 6.13: Schichtweiser Aufbau des Phosphorschirms. Eine reflektierende Aluminium-Schicht (Al) dient zur Filterung von eventuellem Hintergrundlicht. Die Phosphorschicht (P46) wird durch einfallende Elektronen angeregt. Bei der Relaxation der angeregten Atome kommt es zur Fluoreszenz von Licht. Die ITO-Schicht dient der Ableitung der auftreffenden Elektronen, um elektrostatische Aufladungseffekte des Glassubstrats zu verhindern.

hilfe einer CCD-Kamera des Typs Coolsnap K4 der Firma Photometrics detektiert werden können. Abb. 6.14 zeigt die frequenzabhängige Quanteneffizienz der CCD-Kamera, wie sie vom Hersteller angegeben wird. Die Wahl der Schirmbeschichtung fällt auf P46, weil das von ihr emittierte Grünlicht mit einer Wellenlänge von 530 nm von der CCD-Kamera besonders gut detektiert werden kann. Die verwendete Ka-

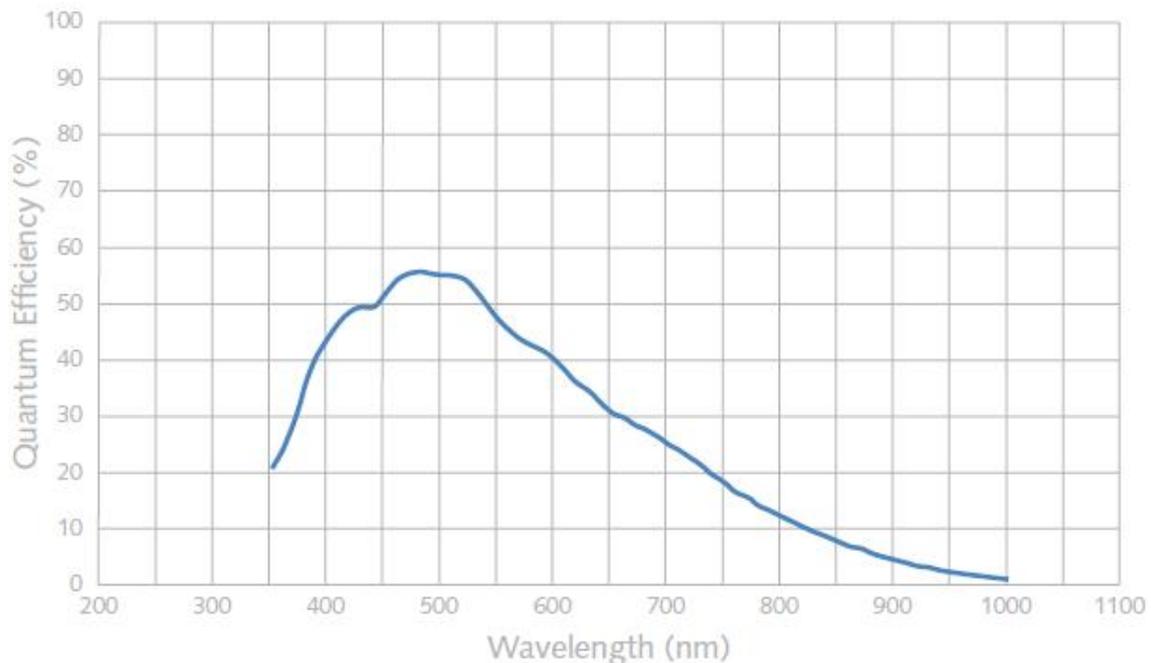


Abbildung 6.14: Quanteneffizienz der CCD-Kamera. Quelle: [49]

mera verfügt über die Möglichkeit benachbarte Pixel zu Blöcken zusammenzufassen

(„Binning“), um somit ein insgesamt stärkeres Signal zu erzielen. Das Signal-Rausch-Verhältnis wird bei statistisch verteiltem Rauschen dadurch vergrößert. Allerdings nimmt natürlich die Bildauflösung dadurch ab. Je nachdem aus wie vielen einzelnen Pixeln ein Block besteht und wieviel Prozent der CCD-Sensoren zur Aufnahme verwendet werden, können Bildraten von 3-12 Bilder pro Sekunde erreicht werden. Die CCD-Kamera verfügt über ein Objektiv mit einer Brennweite von 50 mm. Gemäß der Gleichung

$$g = f \left( 1 + \frac{G}{B} \right) \quad (6.32)$$

welche sich aus der Linsengleichung und dem Strahlensatz ergibt, hängt die Gegenstandsweite  $g$  von der Gegenstandsgröße  $G$  und der Bildgröße  $B$  ab. Der CCD-Chip misst  $B \approx 15$  mm und der aktive Durchmesser des Phosphorschirms beträgt  $G \approx 125$  mm. Damit der Abbildungsmaßstab  $\frac{B}{G}$  möglichst groß ausfällt, muss  $g \approx 467$  mm eingestellt werden. Die Kamera wurde mittels massiver 80x80mm ITEM-Alu-Profilen mit der Gegenstandsweite  $g$  am Trägergerüst der Vakuumkammer fixiert.

Zu diagnostischen Zwecken werden die MCPs und der Phosphorschirm jeweils an eine eigene Koppelbox angeschlossen. Die entsprechende Schaltung dieser Koppelbox kann in Abb. 6.15 eingesehen werden. Der  $V_{out}$ -Ausgang kann nun über einen Verstärker an ein Oszilloskop oder einen Computer mit geeigneter Auslesehaware angeschlossen werden. Wird ein elektrisches Lasersignal als Trigger verwendet, so ist es möglich ein Flugzeitspektrum aufzunehmen, welches Aufschluss über das Masse-zu-Ladung-Verhältnis der detektierten Ionen geben kann.

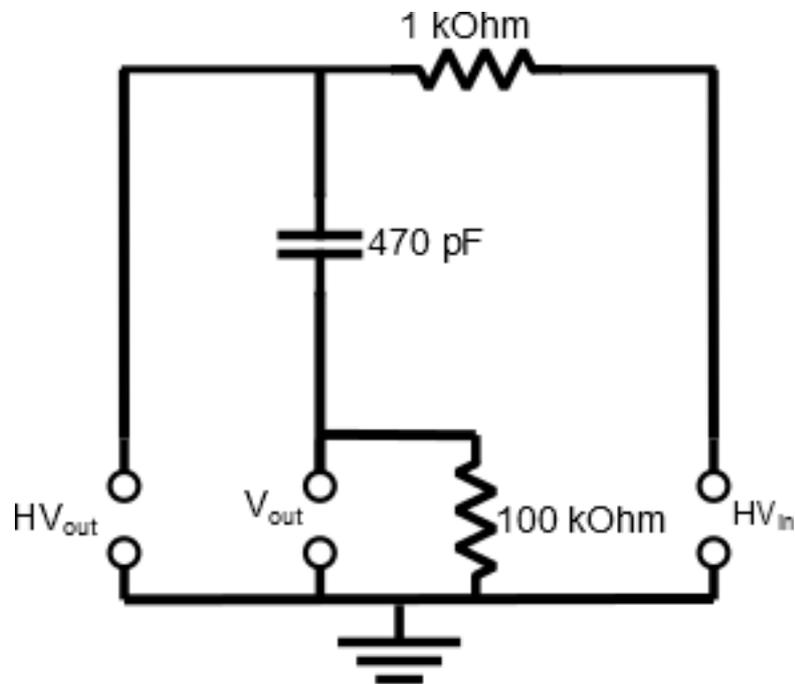


Abbildung 6.15: Schaltung der Koppelbox. Es wird eine Hochspannung  $HV_{in}$  angelegt. Am Ausgang  $HV_{out}$  kann die eingehende Hochspannung wieder abgegriffen werden, insofern der Eingangswiderstand des Geräts, das an  $HV_{out}$  anliegt, viel größer als  $1\text{ k}\Omega$  ist oder kein Strom zwischen  $HV_{in}$  und  $HV_{out}$  fließt. Im vorliegenden Fall werden hier die MCPs und der Phosphorschirm angeschlossen. Dank des Kondensators werden DC-Ströme gesperrt und nur die kleinen AC-Ströme, die durch Elektronenemission der MCPs bei der Detektion von Ionen oder Elektronen entstehen, passieren den Kondensator. An  $V_{out}$  können diese AC-Signale schließlich ausgelesen werden. Der parallel geschaltete  $100\text{ k}\Omega$ -Widerstand soll das Aufladen des  $V_{out}$ -Ausgangs verhindern.

## 6.4 Kompensationsspulen

Da Photoelektronen untersucht werden, ist es wichtig sich über den Einfluss des Erdmagnetfeldes auf die Flugbahn der Elektronen klar zu sein. Der sogenannte Lamorradius gibt den Radius der Kreisbahn an, auf der sich ein Elektron in einem homogenen Magnetfeld bewegt. Er berechnet sich wie folgt:

$$r_L = \frac{mv_{\perp}}{|q|B} = \frac{\sqrt{2mE_{kin}}}{|q|B} \quad (6.33)$$

Dabei ist  $v_{\perp}$  die Geschwindigkeitskomponente senkrecht zum Magnetfeld,  $q$  die Ladung des Teilchens und  $B$  die Magnetfeldstärke. Die Magnetfeldstärke der Erde kann im Größenbereich von  $25 \mu\text{T}$  bis  $70 \mu\text{T}$  variieren [52]. Abb. 6.16 zeigt, wie sich der Lamorradius bei unterschiedlichen Magnetfeldstärken in Abhängigkeit von der kinetischen Energie eines Elektrons verhält. Der Lamorradius veranschaulicht, wie stark

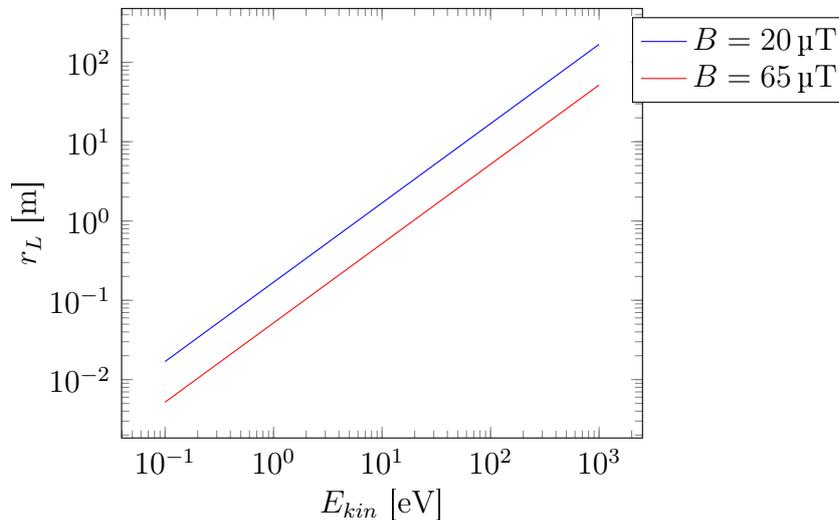


Abbildung 6.16: Lamorradius des Elektrons bei unterschiedlich starken Magnetfeldern.

ein geladenes Teilchen unter dem Einfluss eines Magnetfeldes pro Streckenintervall von seiner geradlinigen Bewegung abweicht. Ein langsames Elektron erfährt eine stärkere Bahnkrümmung als ein schnelles bei gleicher zurückgelegter Wegstrecke. Im VMI Spektrometer werden die Elektronen in Richtung des Detektors beschleunigt. Die Änderung der Trajektorien ist am Beginn der Beschleunigung am größten und nimmt mit größer werdender Geschwindigkeit der Elektronen ab. Entscheidend für den Einfluss des Magnetfeldes auf die Bewegung des Elektrons ist also der Punkt des Spektrometerzentrums und dessen nähere Umgebung.

Weil mehrere Elektronen ganz unterschiedliche Anfangsgeschwindigkeiten nach der Photoionisation haben können, wirkt sich das Magnetfeld auch vollkommen unterschiedlich auf die einzelnen Elektronentrajektorien aus. Welche Elektronenbahnen

nun stark und welche weniger stark abgelenkt wurden, lässt sich anhand des Detektorbildes nicht nachvollziehen. Das Bild würde letztendlich verfälscht und könnte nicht wieder rekonstruiert werden. Abb. 6.16 zeigt deutlich, dass 1 eV-Elektronen im Extremfall einen Lamorradius von ca. 5 cm besitzen können. Eine derart starke Ablenkung der Elektronen würde ein aussagekräftiges VMI-Experiment mit Elektronen absolut unmöglich machen. Um das zu vermeiden, wird das Erdmagnetfeld mithilfe von drei quadratischen Spulenpaaren kompensiert. Jede Spule besitzt eine Kantenlänge von etwa 1 m und einer Windungszahl von 20. Den stromführenden Leiter bildet ein Kupferdraht mit 1.5 mm Durchmesser. Der Spulenrahmen wurde aus Alu-U-Profilen gefertigt, die mit Hilfe von Edelstahlstuhlwinkeln miteinander befestigt wurden (siehe Abb. 6.17). Leider stellte sich heraus, dass die Edelstahlwinkel

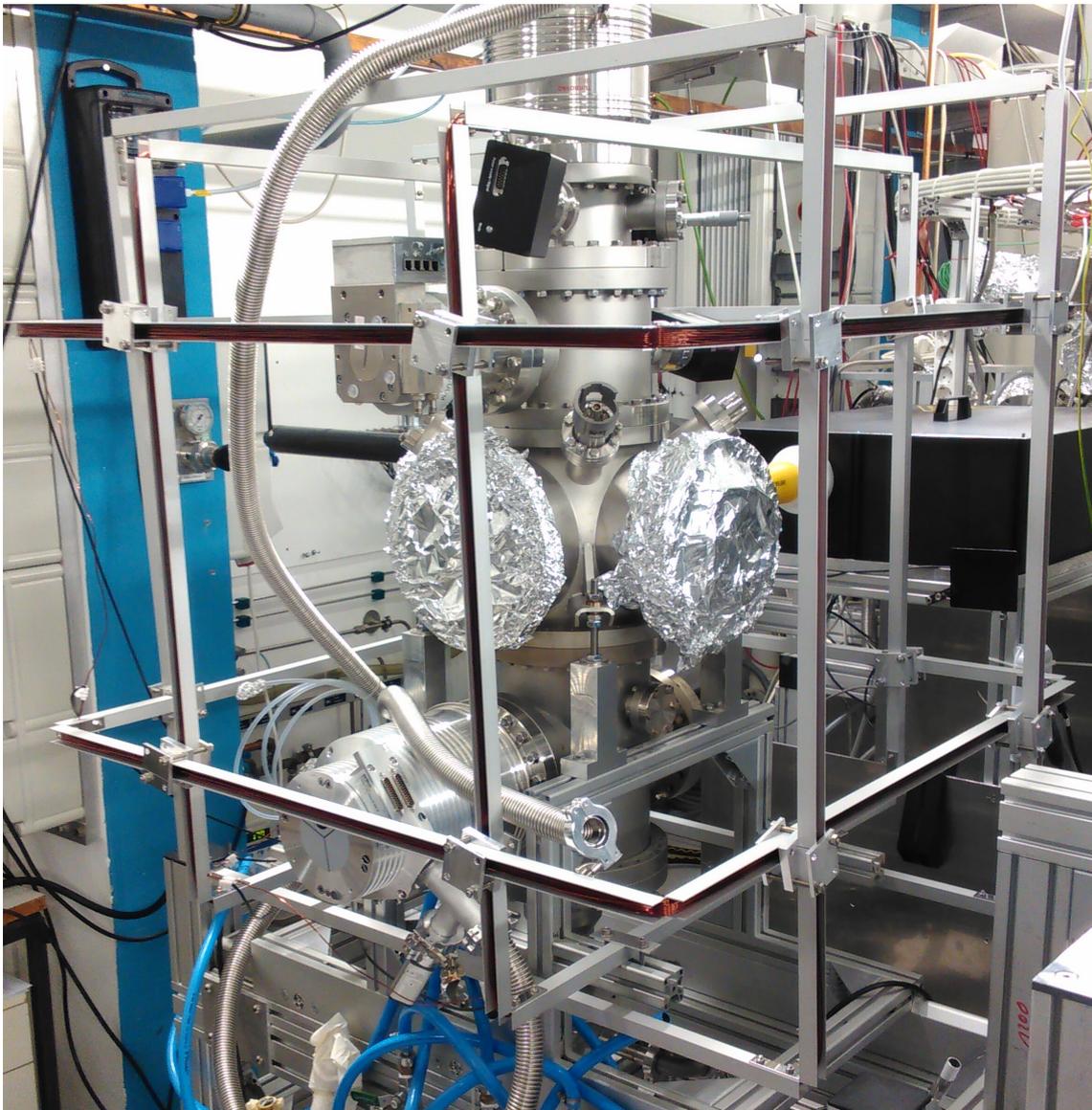


Abbildung 6.17: Bild des verwendeten Spulenkäfigs

nicht, wie vom Anbieter deklariert, antimagnetisch sind. Die verwendeten Zylinderschrauben sind hingegen aus antimagnetischem A2-Material. Das magnetische Feld eines quadratischen Spulenpaars auf der Verbindungslinie zwischen den beiden Spulenmittelpunkten kann aus der Superposition der Magnetfelder von 8 endlich langen, geraden Leitern berechnet werden. Eine Taylorentwicklung um das Zentrum des Spulenpaars und Nullsetzen des Koeffizienten der ersten nichtverschwindenden Ordnung liefert einen Ausdruck für die Distanz zwischen den beiden Spulen, die nötig ist, um ein möglichst homogenes Feld um den Mittelpunkt der Verbindungslinie zu erreichen. Man findet, dass die Distanz optimaler Weise  $h = 0.5445a$  betragen soll [2].  $a$  bezeichnet hierbei die Kantenlänge des Spulenquadrats. Abbildung 6.18 zeigt das Magnetfeld entlang der Symmetrieachse des Spulenpaars. Um abschätzen

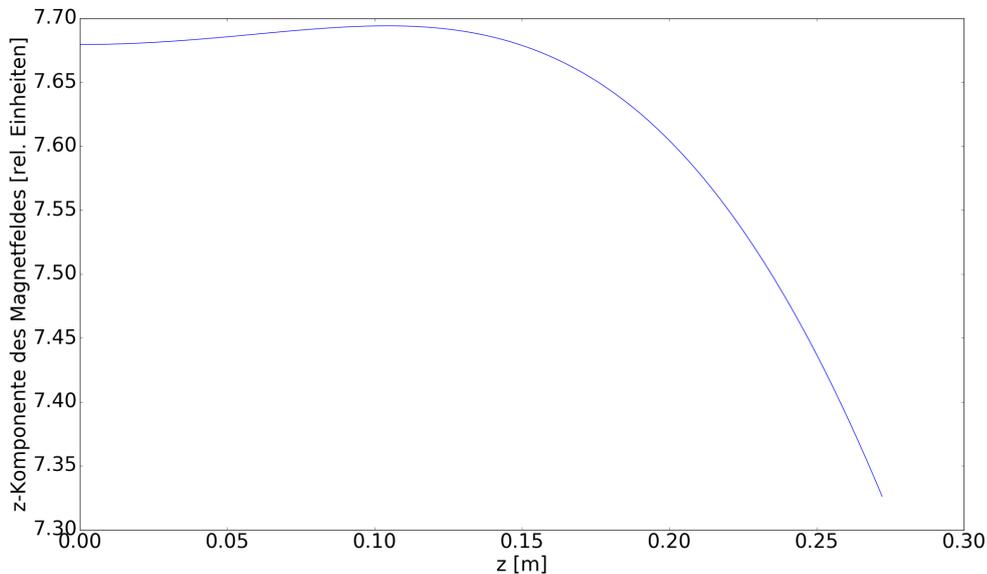


Abbildung 6.18: z-Komponente des Magnetfeldes eines rechteckigen Spulenpaars auf der Verbindungslinie zwischen den beiden Mittelpunkten der Spulenquadrate.

zu können, um wieviel das Magnetfeld im relevanten Experimentiervolumen vom Magnetfeld im Mittelpunkt des Spulenpaars abweicht, wurde der relative Fehler simuliert (siehe Abschnitt 10).

Um das Magnetfeld im Innern der Vakuumkammer zu optimieren, wurde für zwei der drei Spulenpaare ein Alu-Führungsrohr horizontal zum Erdboden durch zwei gegenüberliegende Flanschöffnungen geführt und so fixiert, dass die Rohrmitte mit einer Genauigkeit von  $\pm 1$  mm das Spektrometerzentrum durchläuft. Durch das so platzierte Rohr konnte eine Hallsonde nahezu lückenlos geführt werden. Die einzelnen Magnetfeldkomponenten wurden mithilfe eines genullten Magnetometers gemessen. Zuerst wurden die Magnetfeldkomponenten entlang der beiden horizontalen Raumrichtungen mithilfe einer axialen Hallsonde gemessen und durch Einstellen der

Stromstärke im entsprechenden Spulenpaar solange optimiert, bis die beiden Magnetfeldkomponenten gemäß des verwendeten Magnetometers Null betragen. Zum Schluss wurde für die Magnetfeldkomponente entlang der vertikalen Raumrichtung eine transversale Hallsonde verwendet, die entlang einer der horizontalen Raumrichtungen in die Vakuumkammer geführt wurde, da die beiden Turbopumpen ober- und unterhalb der Vakuumkammer nicht abgebaut werden konnten. Die Sonde wurde solange im Alu-Führungsrohr gedreht, bis die Messfläche der Sonde möglichst senkrecht zur vertikalen Raumrichtung ausgerichtet war. Daraufhin wurde die Stromstärke im entsprechenden Spulenpaar solange variiert, bis die gemessene Magnetfeldkomponente Null betrug. Dem verwendeten Magnetometer kann werkseitig eine Genauigkeit von mindestens 30 mT zugesichert werden.



## 7 Numerische Rekonstruktion des Velocity-Maps – BASEX-Algorithmus

Die numerische Rekonstruktion erfolgt mithilfe des python-Packets *PyAbel* von Hicks et al. [29]. Dieses ermöglicht (inverse) Abeltransformationen nach der Basis-Set-Expansion(BASEX)-Methode zu berechnen. Weil für die Auswertung der im Laufe des Experiments anfallenden Daten nur mithilfe der inversen Abeltransformation rekonstruiert wird, beschränken wir uns im Folgenden auf die Behandlung derselbigen. Die folgende Darlegung der BASEX-Methode folgt Whitaker [63, Abschnitt 3.6].

In Abschnitt 4.4 wurde erklärt, wie eine zylindersymmetrische 3D-Verteilung mathematisch auf eine 2D-Fläche projiziert (siehe Gleichung 4.4) und von dieser Projektion wieder die ursprüngliche 3D-Verteilung rekonstruiert werden kann (siehe Gleichung 4.5). Die 2D-Projektion  $p(x, z)$  wird von einer CCD-Kamera erfasst.

Für ein Pixelarray, bestehend aus  $N_x \times N_z$  Pixeln, errechnet sich der Wert der 2D-Verteilung im Pixelpunkt  $(x_i, z_j)$  zu

$$p_{i,j} = 2 \int h(x - x_i, z - z_j) \left[ \int_{|x|}^{\infty} \frac{f(r, z)r}{\sqrt{r^2 - x^2}} dr \right] dx dy \quad (7.1)$$

Dabei bezeichnet  $h(x, z)$  die Instrumentenfunktion. Sie berücksichtigt im Allgemeinen die Antwort jedes einzelnen Pixels auf das detektierte Signal und den Effekt des Binnings. Der Lösungsansatz für die numerische Rekonstruktion lautet nun  $f(r, z)$  in einer geeigneten Basis von Funktionen  $f_k(r, z)$  mit  $k = 0, \dots, K - 1$  auszudrücken. Die entsprechende Basis für die Projektion  $p_{i,j}(x, z)$  lautet  $\{G_k\}$  mit

$$G_{kij} = 2 \int h(x - x_i, z - z_j) \left[ \int_{|x|}^{\infty} \frac{f_k(r, z)r}{\sqrt{r^2 - x^2}} dr \right] dx dy \quad (7.2)$$

Die Basis  $\{G_k\}$  muss dabei so gewählt werden, dass es möglich ist  $p_{i,j}$  aus einer Linearkombination der Basiselemente zu rekonstruieren:

$$p_{i,j} = \sum_0^{K-1} C_k G_{kij} \quad (7.3)$$

Könnte eine solche Basis  $f_k(r, z)$  gefunden werden, dann lässt sich  $f(r, z)$  durch Linearkombination mit den gleichen Koeffizienten  $C_k$  wie in Gleichung 7.3 ausdrücken:

$$f(r, z) = \sum_0^{K-1} C_k f_k(r, z) \quad (7.4)$$

Die geeigneten Koeffizienten  $C_k$  können mithilfe der Tikhonov-Regularisierungsmethode gefunden werden:

$$\mathbf{C} = \mathbf{p}\mathbf{G}^T(\mathbf{G}\mathbf{G}^T + q^2\mathbf{1})^{-1} \quad (7.5)$$

Hierbei bezeichnet  $\mathbf{1}$  die Einheitsmatrix,  $q$  einen Regularisierungsparameter,  $\mathbf{p}$  die Matrix mit Einträgen  $p_{i,j}$  aus Gleichung 7.1,  $\mathbf{G}$  die Matrix mit Einträgen  $G_{kij}$  aus Gleichung 7.2 und  $\vec{\mathbf{C}} = (C_0, \dots, C_{K-1})$  den Koeffizientenvektor. Theoretisch könnte man nach geeigneter Wahl der Basis  $f_k(r, z)$  mithilfe von Gleichungen 7.3, 7.4 und 7.5 die Rekonstruktion von  $f(r, z)$  vollführen. Dabei sollte  $K$  etwa der Anzahl an Pixeln entsprechen. Es ist jedoch möglich das Problem weiter zu vereinfachen und die Zahl der Basisfunktionen zu reduzieren, indem die beiden unabhängigen Variablen  $r, z$  wie folgt voneinander separiert werden:

$$f(r, z) = \sum_{k=0}^{K_x-1} \sum_{m=0}^{K_z-1} C_{km} \rho_k(r) \zeta_m(z) \quad (7.6)$$

$$p_{i,j} = \sum_{k=0}^{K_x-1} \sum_{m=0}^{K_z-1} C_{km} X_{ki} Z_{mj} \quad (7.7)$$

$$X_{ki} = 2 \int h_x(x - x_i) \left[ \int_{|x|}^{\infty} \frac{\rho_k(r)r}{\sqrt{r^2 - x^2}} dr \right] dx \quad (7.8)$$

$$Z_{mj} = \int h_z(z - z_j) \zeta_m(z) dz \quad (7.9)$$

Die Anzahl an Basisfunktionen beträgt jetzt  $K_x \times K_z$ . Der Koeffizientenvektor kann über

$$\vec{\mathbf{C}} = \mathbf{A}\mathbf{p}\mathbf{B} \quad (7.10)$$

$$\mathbf{A} = (\mathbf{X}\mathbf{X}^T + q_1^2\mathbf{1})^{-1}\mathbf{X} \quad (7.11)$$

$$\mathbf{B} = \mathbf{Z}^T(\mathbf{Z}\mathbf{Z}^T + q_2^2\mathbf{1})^{-1} \quad (7.12)$$

bestimmt werden. Die Matrizen  $\mathbf{A}$  und  $\mathbf{B}$  sind unabhängig von  $\mathbf{p}$  und müssen daher nur einmal berechnet werden. Mithilfe von schneller Matrixmultiplikation kann  $\vec{\mathbf{C}}$  schließlich errechnet werden.

Das Besondere des BASEX-Algorithmus ist die Wahl geeigneter Basisfunktionen. Neben der Bedingung, dass sie jede mögliche 2D-Projektion durch Linearkombination erzeugen können, muss es mit ihrer Hilfe möglich sein die Integrale in den Gleichungen 7.8 und 7.9 analytisch zu lösen. Die Funktionen

$$\rho_k(r) = \left( \frac{e}{k^2} \left( \frac{r}{\sigma} \right)^2 \right)^{2k} e^{-\left( \frac{r}{\sigma} \right)^2} \quad (7.13)$$

mit  $k = 0, \dots, K_x - 1$ ,  $K_x \leq (N_x + 1)/2$  und einem Parameter  $\sigma$ , der etwa der Größenordnung des Pixelabstands entspricht, genügen diesen Bedingungen. Für die

Basisfunktionen in z-Richtung werden die selben wie in radialer Richtung verwendet:  $\zeta_m(z) = \rho_m(z)$  mit  $m = 0, \dots, K_z - 1$ ,  $K_z \leq (N_z - 1)/2$ . Unter der Annahme, dass  $h_x(x) = h_z(x) = \delta(x)$  folgt mit den Gleichungen 7.8 und 7.9:

$$X_{ki} = 2\sigma\rho_k(x_i) \left[ 1 + \sum_{l=1}^{k^2} \left(\frac{x_i}{\sigma}\right)^{-2l} \prod_{m=1}^l \frac{(k^2 + 1 - m)(m - \frac{1}{2})}{m} \right] \quad (7.14)$$

$$Z_{mj} = \zeta_m(z_j) \quad (7.15)$$

Aus der rekonstruierten 3D-Verteilung kann die Geschwindigkeitsverteilung  $P(r)$  über

$$P(r) = \frac{1}{\max(P(r))} \int_0^\pi f(r, \vartheta) v \sin(\vartheta) d\vartheta \quad (7.16)$$

mit  $z = r \cos(\vartheta)$  berechnet werden.



# Teil IV

## Ergebnisse



## 8 VMI-Simulation und Charakterisierung des VMI Spektrometers

Für die in Abschnitt 6.2.1 erläuterte Simulation des VMI Spektrometers wurden insgesamt  $4 \times 4 \times 4 = 64$  verschiedene Geschwindigkeitsklassen verwendet. Die Klassen enthalten die kinetischen Energien 2.5, 5, 7.5, 10 eV, die azimuthalen Winkel 45, 90, 235, 180° und die Auslenkwinkel 22.5, 45, 77.5, 90° (siehe Abb. 8.1). Jede

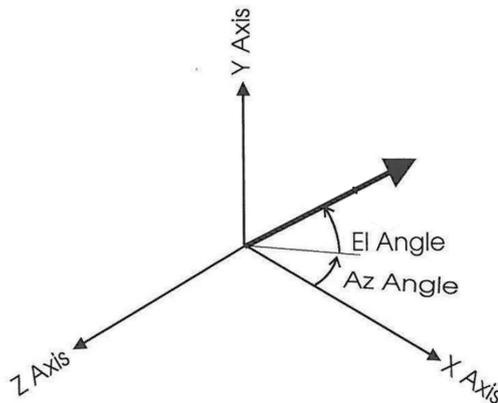


Abbildung 8.1: Winkelerorientierungen in der Simulationssoftware SIMION. Die x-Achse symbolisiert die Spektrometerachse, der einfallende Laserstrahl propagiert entlang der negativen z-Achse, wird vom Spiegel fokussiert und besitzt seinen schärfsten Fokus optimaler Weise im Spektrometerzentrum, dem Ursprung des Koordinatensystems. Der Gasjet propagiert entlang der negativen y-Achse. Quelle: [56, S. 8-3]

Geschwindigkeitsklasse ist dabei von 2 Elektronen vertreten, deren beide Ionisationsursprünge sich auf der Laserstrahlachse in einem Abstand von 2 mm zueinander symmetrisch um das Spektrometerzentrum befinden (siehe Abschnitt 6.2.1).

Das Programm gibt die in Abbildung 6.4 deklarierten Größen zurück, für die optimale VMI-Eigenschaften erzielt werden können. Die Repellerspannung wird auf  $-1000$  V, die Erdspannung auf  $0$  V festgesetzt. Es werden alle möglichen Kombinationen an Repeller-Extraktor-Erd-Elektrodenkombinationen programmatisch ausgetestet. Dabei werden pro Elektrodenkombination 11 verschiedene Extraktorspannungen, die äquidistant im Bereich von einschließlich  $-1000$  V bis einschließlich  $0$  V ausgewählt wurden, eingestellt. Die vom Simulationsprogramm gefundene optimale Spektrometerkonfiguration ist in Tabelle 8.1 dargestellt. Der maximale Variationskoeffizient, der mit dieser optimalen Spannungskonfiguration und den genannten Geschwindigkeitsklassen erreicht wird, beträgt  $\frac{\Delta R}{R} = 0.0009$ . Im Allgemeinen ist es

	Elektrodennummer	Potential [V]
Repeller	1	-1000
Extraktor	22	-723
Erde	34	0

Tabelle 8.1: Durch das Simulationsprogramm gefundene optimale Spannungskonfiguration zum Spektrometerbetrieb im VMI-Modus

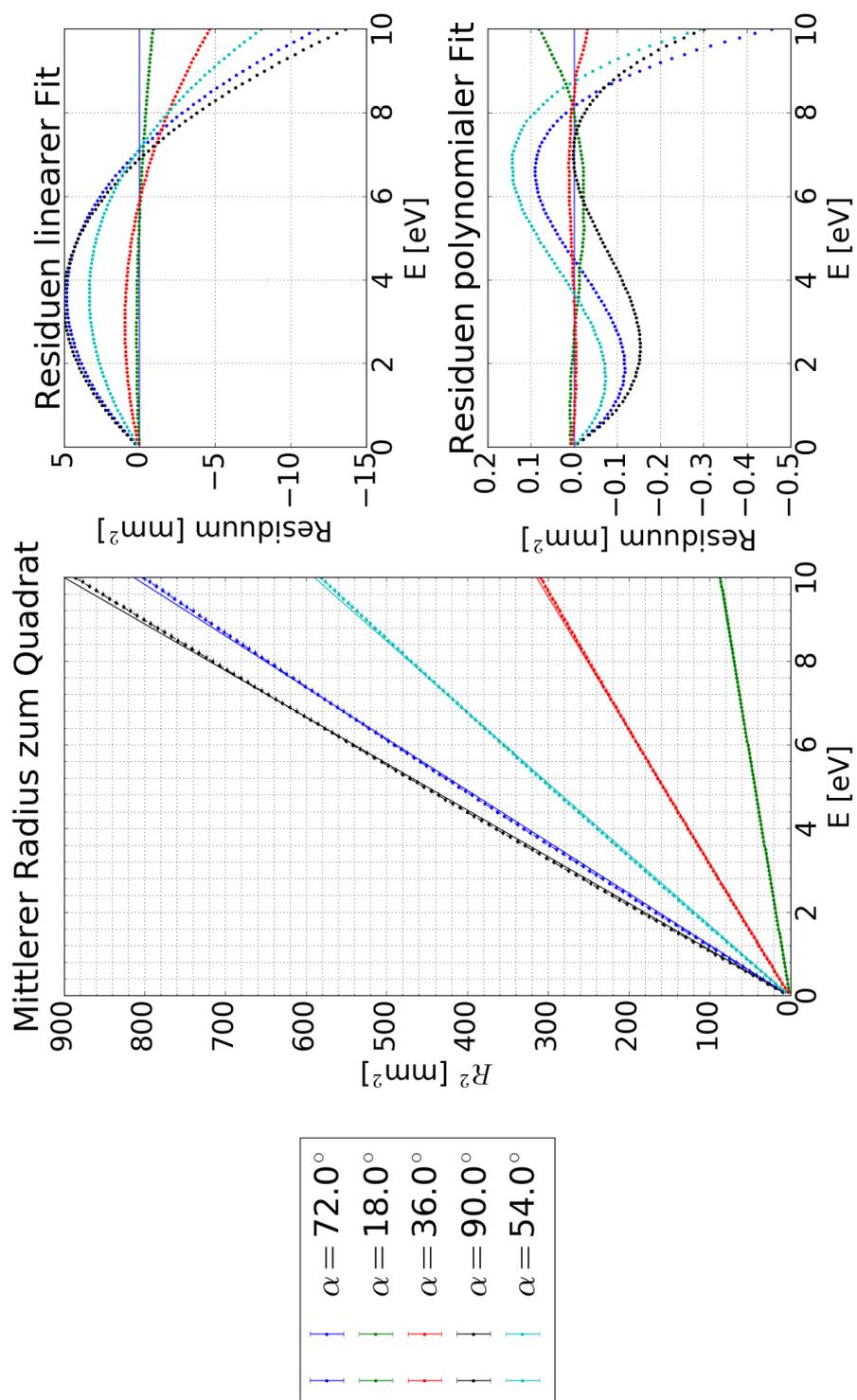
natürlich möglich den Flug von mehr als nur 2 Elektronen pro Geschwindigkeitsklasse zu simulieren. Wenn die Anfangsorte der Elektronen alle, wie beschrieben, auf einer Linie senkrecht zur Spektrometerachse liegen, wird diese Linie durch Abbildungsfehler später wieder in länglicher Form mit viel kleinerem Ausmaß auf dem Phosphorschirm auftreten. Die Ausdehnung auf dem Phosphorschirm ist unabhängig von der Anzahl der Elektronen pro Geschwindigkeitsklasse, weil nur der anfängliche maximale Abstand zweier Elektronen innerhalb der Linienverteilung über den Abbildungsfehler in der Simulation entscheidet.

Anschließend wurde das VMI Spektrometer mit der optimalen Spannungskonfiguration charakterisiert. Dazu wurden örtlich linienförmige Elektronenverteilungen mit doppelkegelförmigen Geschwindigkeitsverteilungen, unterschiedlichen kinetischen Energien und Öffnungswinkeln erstellt und deren Trajektorien simuliert (siehe Abschnitt 6.2.1).

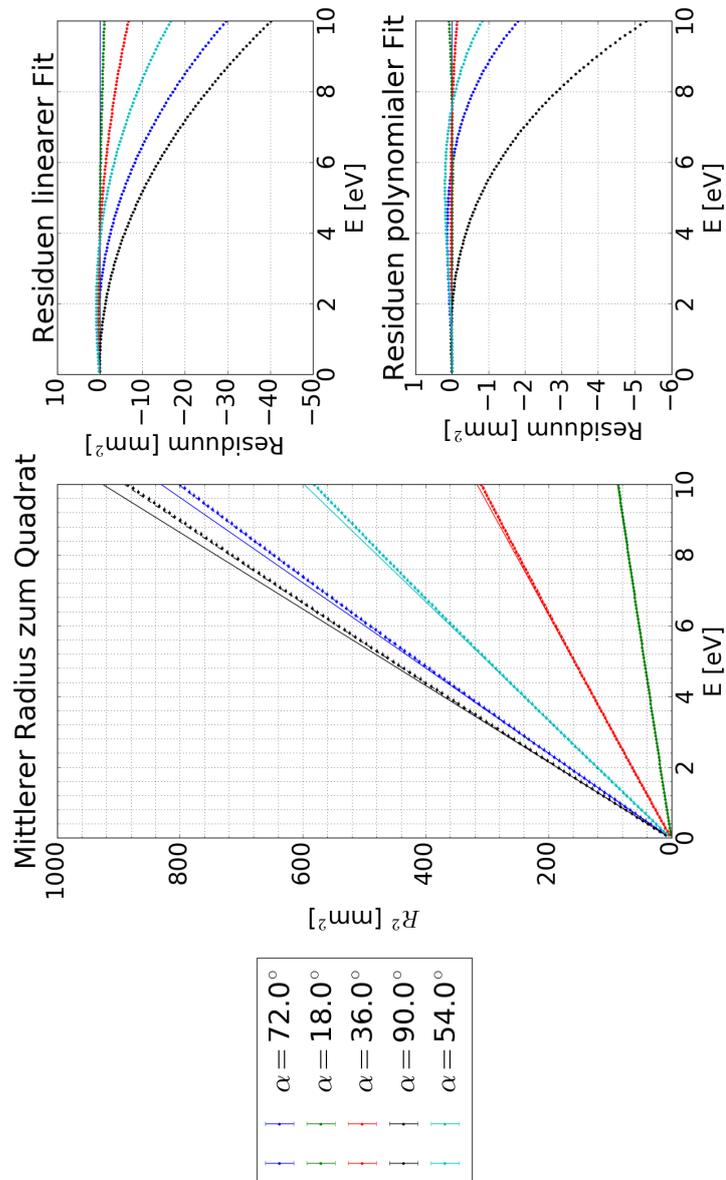
Abb. 8.2a zeigt die Energieabhängigkeit der Abbildungsringe bei unterschiedlichen Öffnungswinkeln. Es ist deutlich erkennbar, dass die Erhöhung der kinetischen Energie wie zu erwarten mit einem größeren Ringradius einhergeht. Elektronen mit großen kinetischen Energien können einfach größere Potentialbarrieren überwinden und daher während ihrer Flugzeit mehr Abstand zur Spektrometerachse gewinnen als niederenergetische Elektronen.

Im Falle eines homogenen Abzugsfeldes müssen die Trajektorien parabelförmig verlaufen. Eppink and Parker [21] konnten in ihrem VMI-Design zeigen, dass der Ringradius proportional zu  $\sqrt{T/(qV_R)}$  ist. Dabei ist  $T$  die kinetische Energie der Teilchen,  $q$  deren elektrische Ladung und  $V_R$  das Repellerpotential. Im vorliegenden Design kann die Wurzelabhängigkeit des Radius von der kinetischen Energie der Elektronen für alle Halböffnungswinkel über den gesamten Bereich von 0-10 eV bestätigt werden. Es ist allerdings anzumerken, dass für größer werdende Elektronenenergien die Abweichung von einer reinen Wurzelabhängigkeit bei allen Halböffnungswinkeln immer stärker wird. Der polynomiale Fit zweiten Grades vermag dies zu korrigieren. Ein Blick auf die Residuen beider Fits zeigt deutlich, dass es sich hierbei um einen systematischen Fitfehler handeln muss. Die Daten legen nahe, dass die Wurzelabhängigkeit nur für solche Trajektorien gut erfüllt ist, die nahe der Spektrometerachse bzw. fern ab der Ringelektroden verlaufen.

In den Abb. 8.3a und 8.3b ist die Abhängigkeit des mittleren Radius vom Halböffnungswinkel der Elektronenverteilung dargestellt. Gefittet wurde eine Sinusfunktion  $A \cdot \sin(\alpha)$ . Bei einem Kegel beträgt der Quotient aus Radius zu Mantellinie



(a) Rotationssymmetrisches Spektrometer



(b) Spektrometer mit Aussparung und optimierten Spiegelsegmentspannungen (siehe Abschnitt 9)

Abbildung 8.2: Quadrat des mittleren Radius der simulierten Bildringe bei unterschiedlichen Öffnungswinkeln der doppelkegelförmigen Geschwindigkeitsverteilung in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Elektronen. Der Fehlerbalken gibt an, in welchem Bereich alle Elektronen um den Ringradius herum streuen. Gefittet wurden eine lineare und polynomiale Kurve zweiten Grades mithilfe der Least-Squares-Methode.

genau  $\sin(\alpha)$ . Deshalb ist auch in der Projektion der Elektronen eine solche Sinus-Abhängigkeit zu erwarten.

Nimmt man die Wurzelabhängigkeit aus Abb. 8.2 und die Sinus-Abhängigkeit aus Abb. 8.3 zusammen, so folgt, dass jede beliebige rotationssymmetrische Impulsverteilung von Elektronen mit einer Symmetrieachse, die parallel zum Projektionschirm liegt, durch das elektrische Feld des Spektrometers lediglich skaliert wird und seine ursprüngliche Form beibehält.

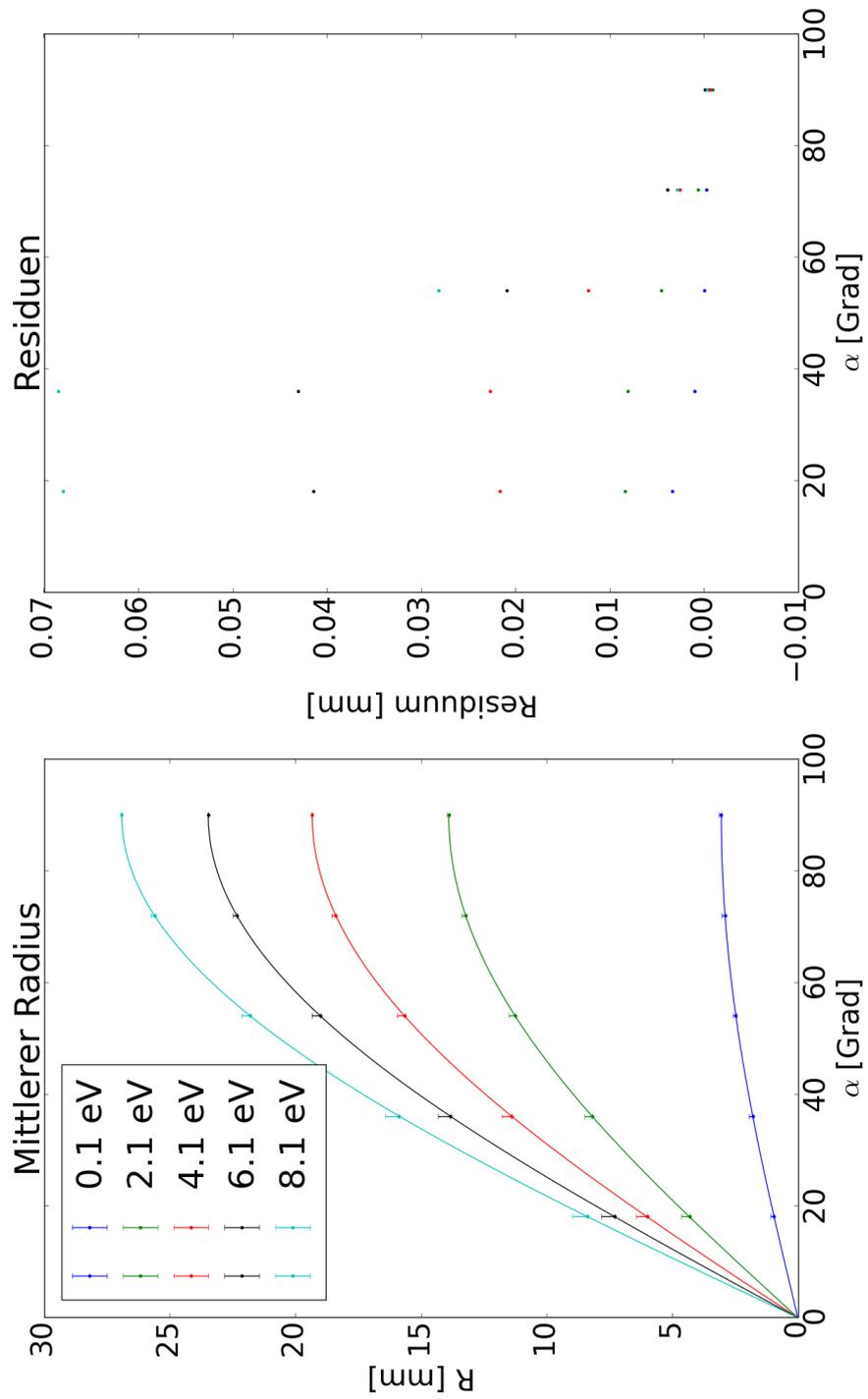
Da das Repellerpotential im Experiment nicht festgesetzt, sondern experimentell optimiert wird, ist es notwendig den Einfluss des Repellerpotentials auf die Energieabhängigkeit zu studieren (siehe Abb. 8.4). Die Grafik zeigt deutlich, dass der Plot für kleiner werdende Repellerpotentiale viel stärker vom linearen Fit abweicht. In Einklang mit der Deutung aus Abb. 8.2 gilt auch hier: Je näher die Elektronen den Elektroden kommen, desto stärker weicht das Quadrat des mittleren Radius von einer linearen Abhängigkeit ab.

Wird auf eine streng lineare Abhängigkeit des Quadrats des mittleren Radius von der Elektronenenergie Wert gelegt, so sollte nach Möglichkeit eine hohe Repeller-Spannung gewählt und/oder ausschließlich hinreichend niederenergetische Elektronen untersucht werden.

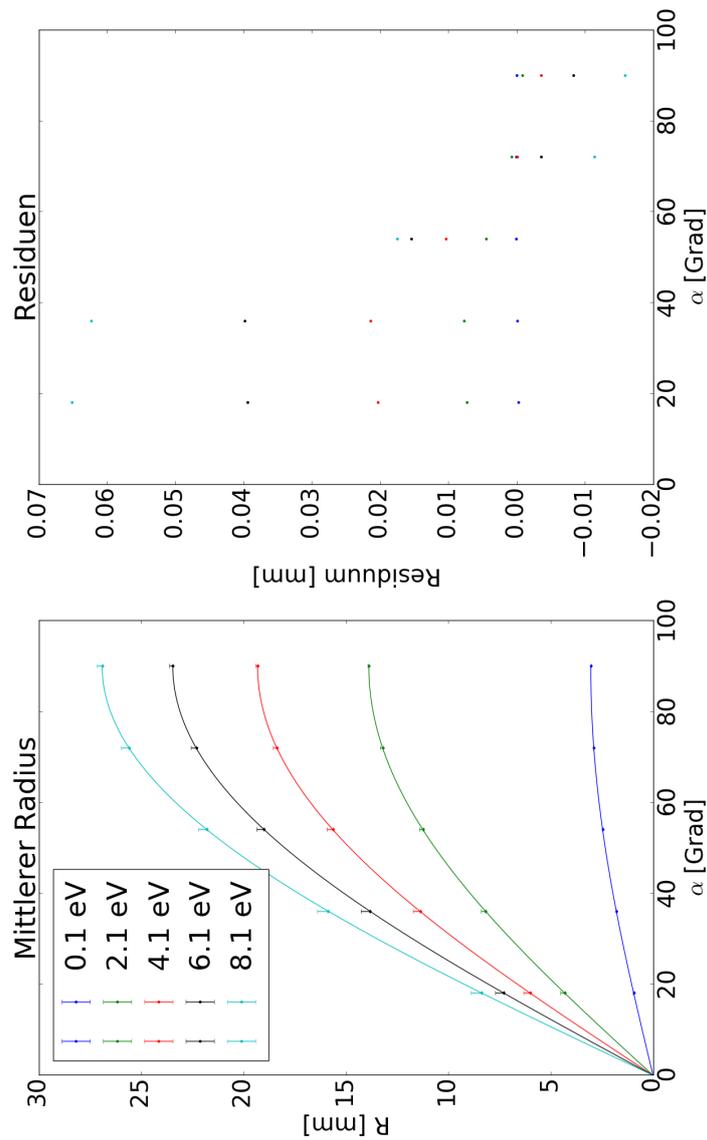
Abb. 8.2b zeigt, dass der in die Vakuumkammer platzierte Spiegel und die zylinderförmige Aussparung für den Laserstrahl durchaus einen Effekt auf die Elektronentrajektorien besitzen. Es wird deutlich, dass die lineare Beziehung zwischen dem Quadrat des mittleren Radius und der Energie stärker abweicht als für den rotationssymmetrischen Fall. Selbiges gilt für die Fits mit polynomialer Korrektur.

Abb. 8.5 zeigt den Quotienten aus Ringbreite und mittleren Ringradius, auch Variationskoeffizient genannt. Dieser definiert die Auflösung des VMI-Spektrometers in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Elektronen. Es wird deutlich, dass jene Elektronen, deren anfänglicher Geschwindigkeitsvektor senkrecht auf der Spektrometerachse steht die, im Vergleich zu anderen Halböffnungswinkeln, über alle Energien im Bereich von 0-10 eV betrachtet, beste Auflösung besitzen. Beim Vergleich der beiden Grafiken aus Abb. 8.5 fallen viele Unterschiede auf. Zum Einen divergiert die relative Auflösung für alle Halböffnungswinkel im rotationssymmetrischen Fall für  $E \rightarrow 0$  eV gegen  $\infty$ . Das hängt damit zusammen, dass der mittlere Radius  $R$  für kleine Elektronenenergien gegen Null geht, während die maximale Abweichung  $\Delta R$  wegen der nicht-idealen VMI-Eigenschaften endlich bleibt. Der Quotient  $\frac{\Delta R}{R}$ , der die relative Auflösung definiert, divergiert schließlich. Überaus interessant ist die Tatsache, dass die relative Auflösung des Spektrometers mit Aussparung in Abb. 8.5b im Rahmen der untersuchten Energien nicht divergiert.

Insgesamt ist anzumerken, dass die relative Auflösung für das Spektrometer mit Aussparung im Bereich von 0-10 eV generell niedriger ausfällt als für den rotationssymmetrischen Fall. Abb. 8.5b legt allerdings nahe, dass die relative Auflösung für Energien größer als 10 eV deutlich stärker ansteigt als dies in Abb. 8.5a der Fall ist.



(a) Rotationssymmetrisches Spektrometer



(b) Spektrometer mit Aussparung und optimierten Spiegelsegmentspannungen (siehe Abschnitt 9)

Abbildung 8.3: Mittlerer Radius der simulierten Bildringe bei unterschiedlichen kinetischen Energien in Abhängigkeit vom Halböffnungswinkel  $\alpha$  der doppelkegelförmigen Elektronenverteilung. Der Fehlerbalken gibt an, in welchem Bereich alle Elektronen um den Ringradius herum streuen. Gefittet wurde eine einfache Sinusfunktion  $A \cdot \sin(\alpha)$  mithilfe der Least-Squares-Methode.

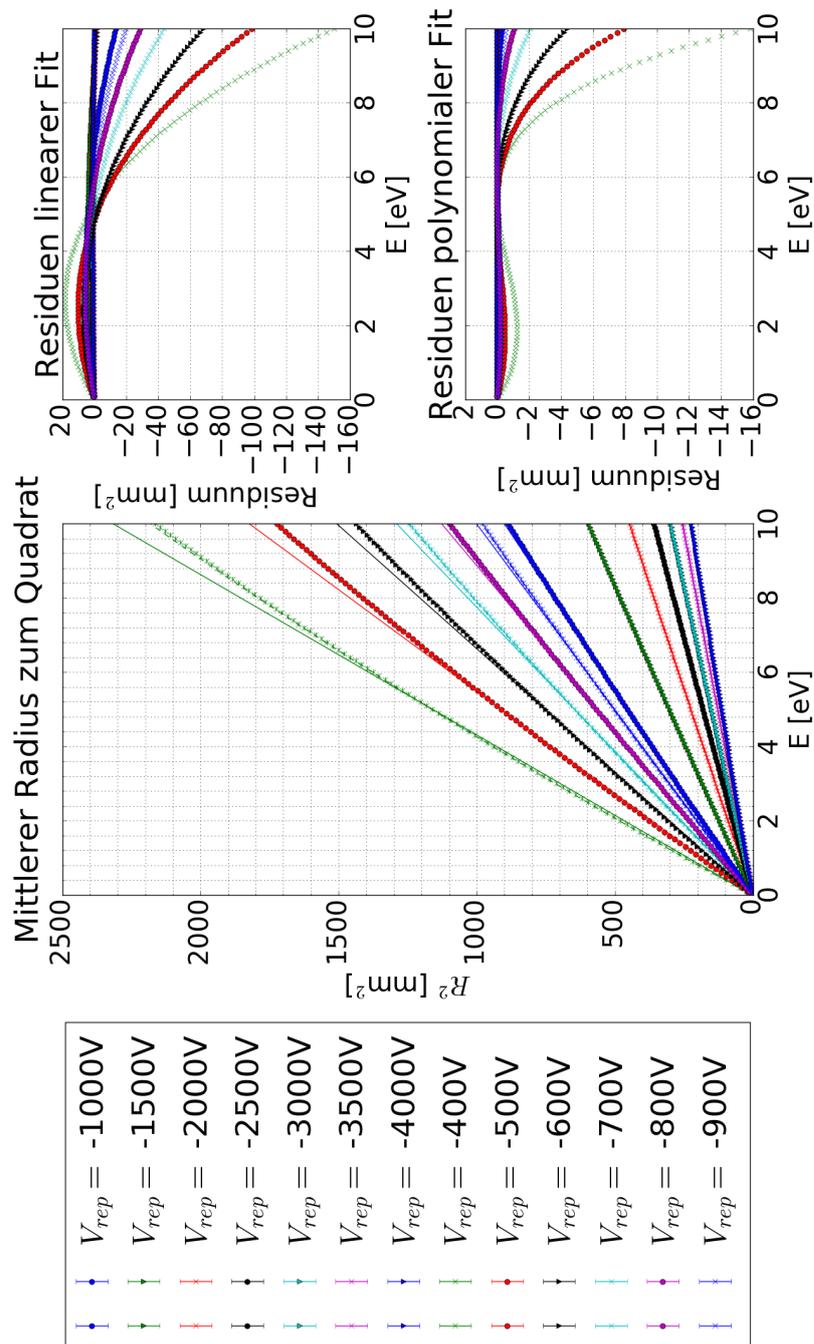
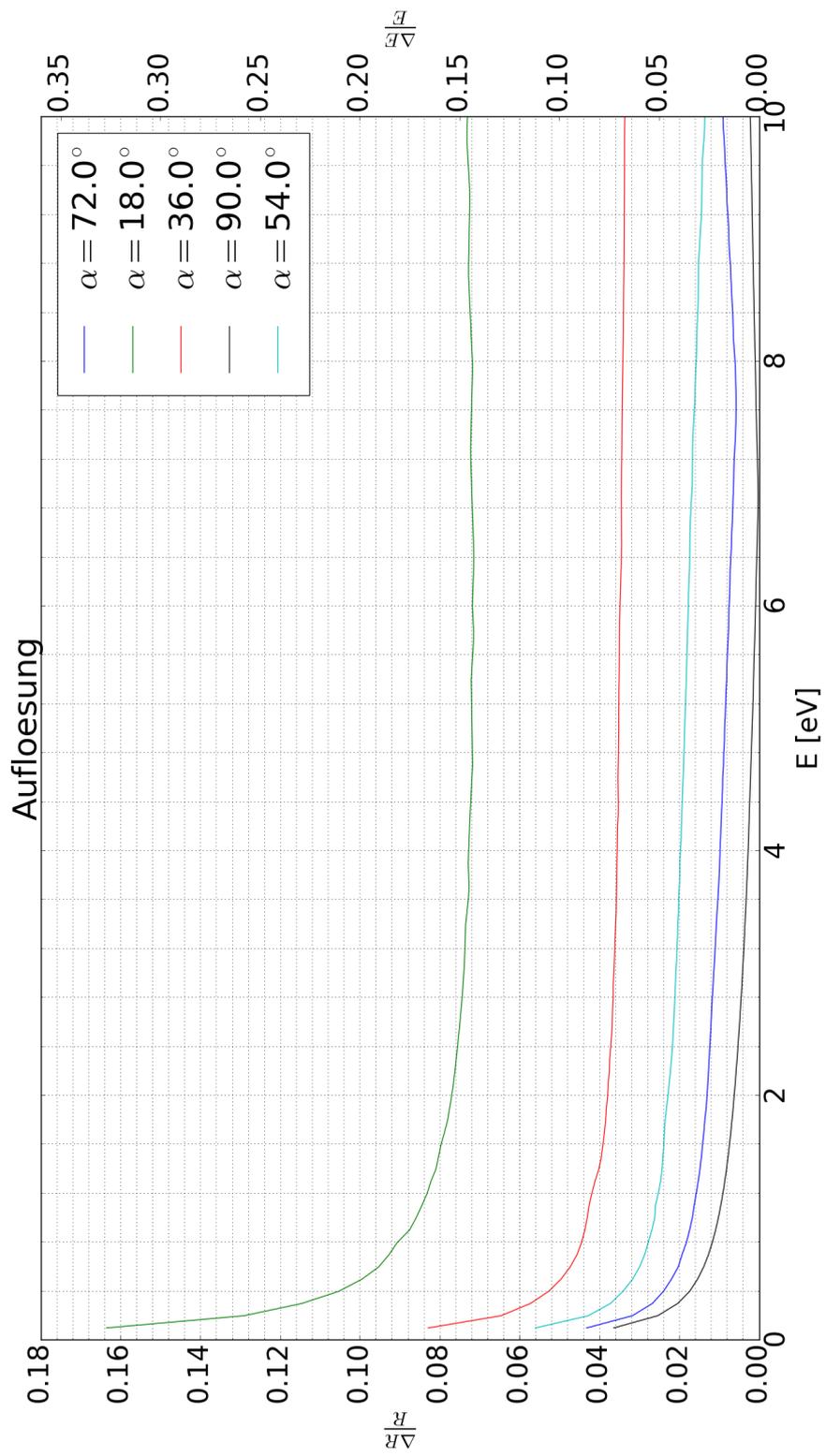
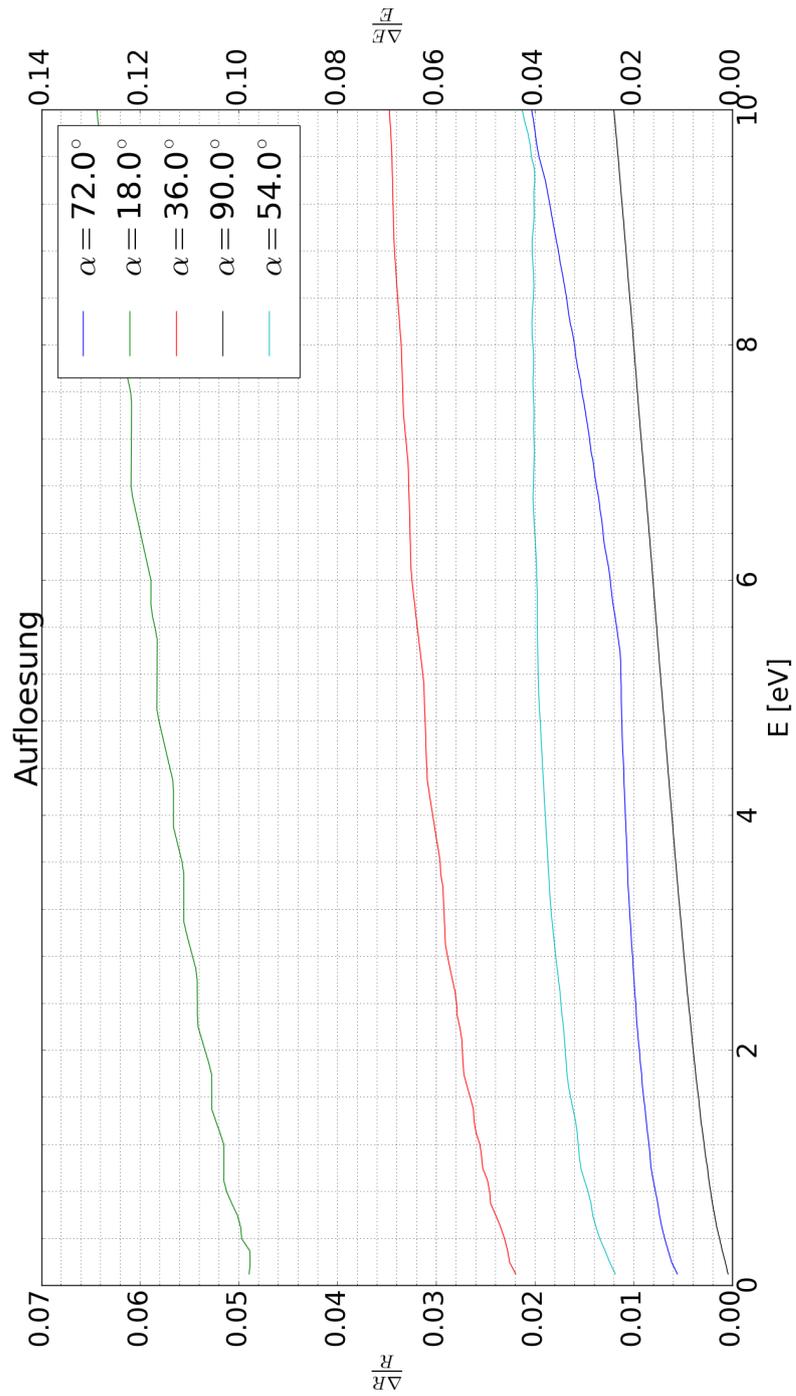


Abbildung 8.4: Quadrat des mittleren Radius der simulierten Bildringe bei einem Öffnungswinkel von  $90^\circ$  in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Elektronen bei verschiedenen Repellerspannungen für das rotationssymmetrische Spektrometer. Die Fitprozedur ist die selbe wie die in Abb. 8.2



(a) Rotationssymmetrisches Spektrometer



(b) Spektrometer mit Aussparung und optimierten Spiegelsegmentspannungen (siehe Abschnitt 9)

Abbildung 8.5: Variationskoeffizient der simulierten Bildringe bei unterschiedlichen Öffnungswinkeln der doppelkegelförmigen Geschwindigkeitsverteilung in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Elektronen. Die Kalibrierung der  $\frac{\Delta E}{E}$ -Achse basiert jeweils auf den linearen Fits.

## 9 Optimierung der Spiegelsegmentspannungen

Ausgehend von den Spannungswerten aus Tabelle 8.1 wurden die Spiegelsegmentspannungen simuliert, bei denen die Abweichung von den idealen VMI Eigenschaften gemäß Abschnitt 6.2.2 am geringsten sind. Tabelle 9.1 gibt das endgültige Ergebnis wieder.

Elektrode	Potential [V]
Spiegelelektrode 1	-811
Spiegelelektrode 2	-785
Spiegelelektrode 3	-755

Tabelle 9.1: Durch das Simulationsprogramm gefundene optimale Spiegelsegmentspannungskonfiguration für die Spektrometerpotentiale aus Tabelle 8.1

Abb. 9.1 zeigt die gefundenen Abweichungen der realen von der idealen Spektrometergeometrie, wie in Abschnitt 6.2.2 erklärt. Hierbei ist anzumerken, dass die im Experiment geerdete Vakuumkammer nicht in die Simulation mit einbezogen wurde. Im relevanten Spektrometervolumen, welches  $40 \times 40 \times 40 \text{ mm}^3$  um das Ionisationszentrum umfasst, beträgt der relative Fehler in beiden Grafiken nicht mehr als 1%. Es fällt deutlich auf, dass die Unterschiede auf die Änderung des elektrischen Abzugsfeldes zwischen der optimierten und der gemittelten Konfiguration mit bloßem Auge gar nicht zu erkennen sind. Insbesondere im relevanten Spektrometervolumen um das Ionisationszentrum herum sind die relativen Fehler augenscheinlich gleich. Gemäß diesen Daten sollte es also prinzipiell keinen bedeutsamen Unterschied machen, ob nun die optimierte oder gemittelte Spannungskonfiguration für den Spiegel verwendet wird. Aus Gründen der Bedienungsfreundlichkeit ist es wünschenswert sich für die gemittelte Spannungskonfiguration zu entscheiden. Um die halbe Spannung zwischen zwei Elektroden abzugreifen, kann ein einfacher Spannungsteiler bestehend aus zwei gleichen Widerständen verwendet werden. Da sich die Verdrahtung mehrerer Widerstände an einer Schraube am verwendeten Spektrometer allerdings als praktisch sehr schwierig und instabil herausstellt, werden zur Kontaktierung des Spiegels individuelle Netzteile verwendet.

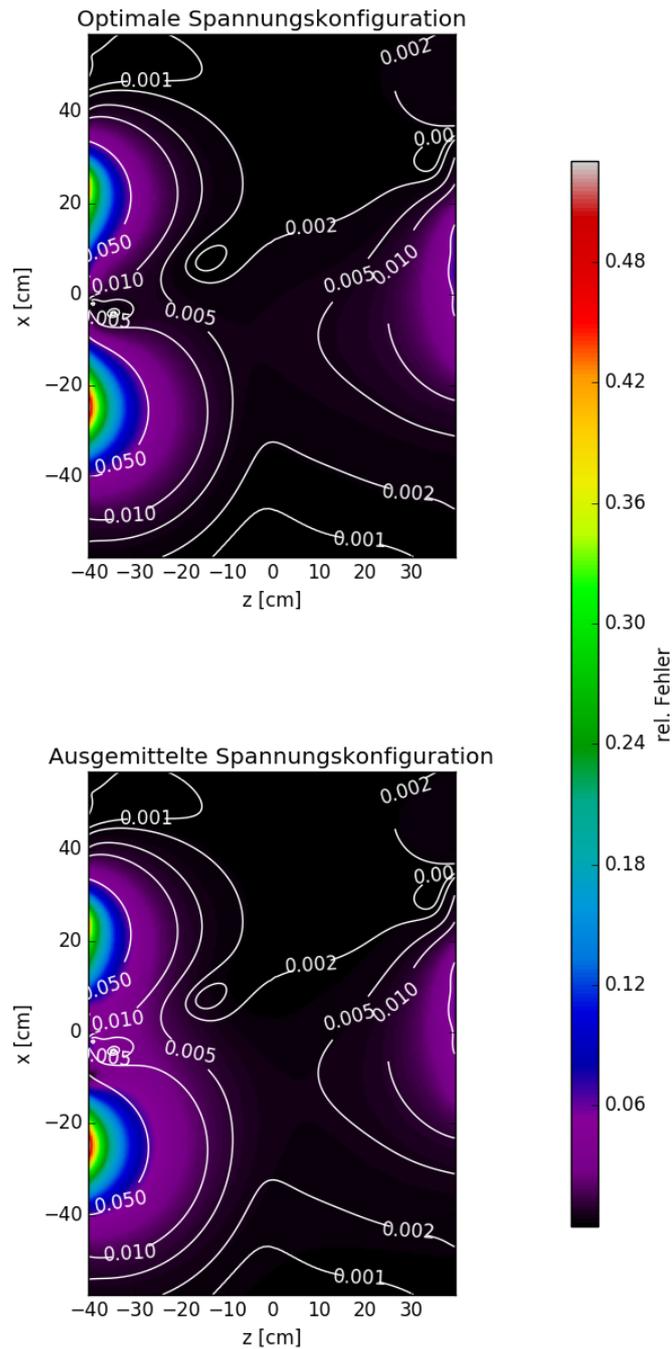


Abbildung 9.1: Relativer Fehler des elektrischen Felds des Spektrometers infolge der Aussparungen in den Ringelektroden und dem segmentierten Spiegel. Oben wurde die numerisch ermittelte Spannungskonfiguration der Spiegelsegmente, unten jeweils die zwischen den zwei benachbarten Ringelektroden gemittelte Spannung als Segmentspannung verwendet. Der Schnitt zeigt die Ebene, die durch die Spektrometerachse und die optische Laserachse aufgespannt wird, und beinhaltet das Ionisationszentrum im Punkt  $(0,0)$ . Der Einfluss des Spiegels auf das elektrische Feld kann gut an der B-förmigen Struktur links in beiden Bildern erkannt werden.

# 10 Feldhomogenität der Kompensationsspulen

Um die Feldhomogenität eines rechteckigen Spulenpaares zu untersuchen, wird die relative Abweichung des Magnetfeldes vom Magnetfeld im Ionisationszentrum  $(0, 0, 0)$  geplottet. Es sei  $\vec{B}(\vec{x})$  der Magnetfeldvektor am Ort  $\vec{x}$  und  $\vec{B}_0$  der Magnetfeldvektor im Mittelpunkt des Spulenpaares. Geplottet wird der relative Fehler

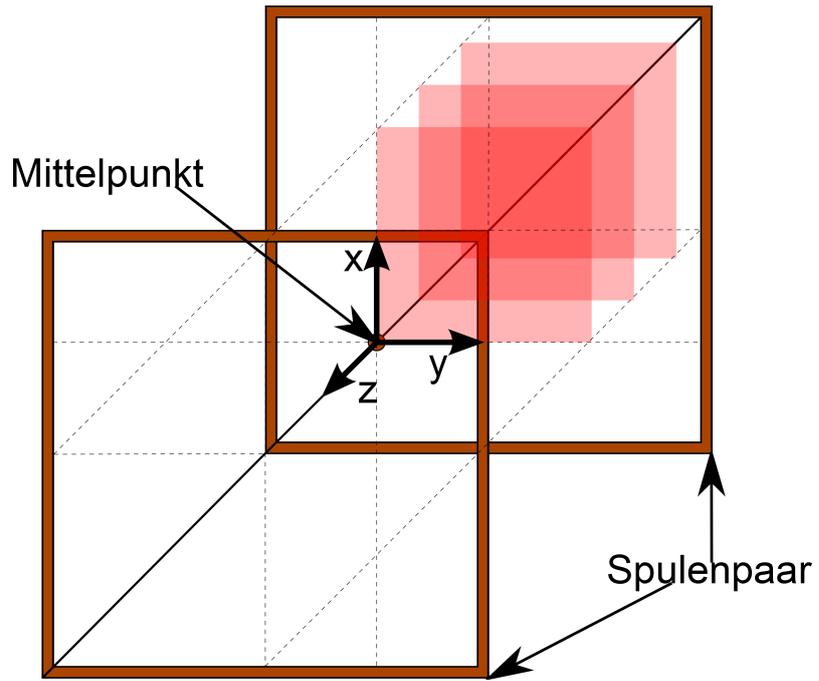
$$F_{rel}(\vec{x}) = \frac{|\vec{B}(\vec{x}) - \vec{B}_0|}{|\vec{B}_0|} \quad (10.1)$$

Die folgenden Abbildungen zeigen alle den gemäß Abschnitt 6.4 und Gleichung 10.1 simulierten relativen Fehler in unterschiedlichen Schnittebenen.

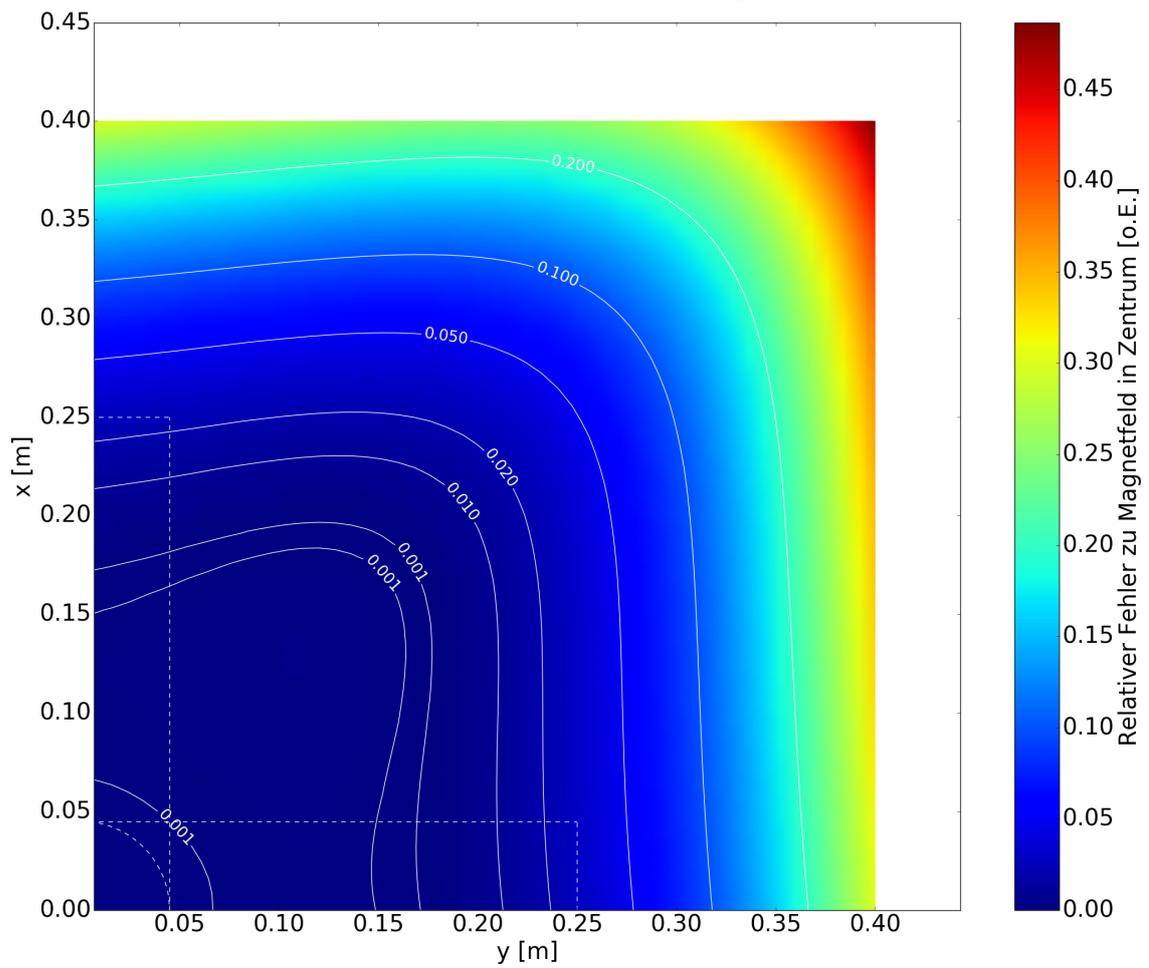
Die Plots aus Abb. 10.1 zeigen deutlich, dass innerhalb eines 160 mmx160 mmx160 mm-Volumens mit dem Spektrometerzentrum im Mittelpunkt der relative Fehler jedes Spulenpaares nicht größer als 1% ausfällt (siehe Abb. 10.1b und 10.1c). Der größtmögliche relative Fehler, der innerhalb des gesamten Spektrometervolumens pro Spulenpaar zu erwarten ist, beträgt etwa 15% (siehe Abb. 10.1d).

Da hier eine ideale Spule mit unendlich dünnen Leitern und einer optimal quadratischen Geometrie verwendet wurde, können die gezeigten Plots natürlich nur eine annähernde Idee des realen Magnetfeldes liefern.

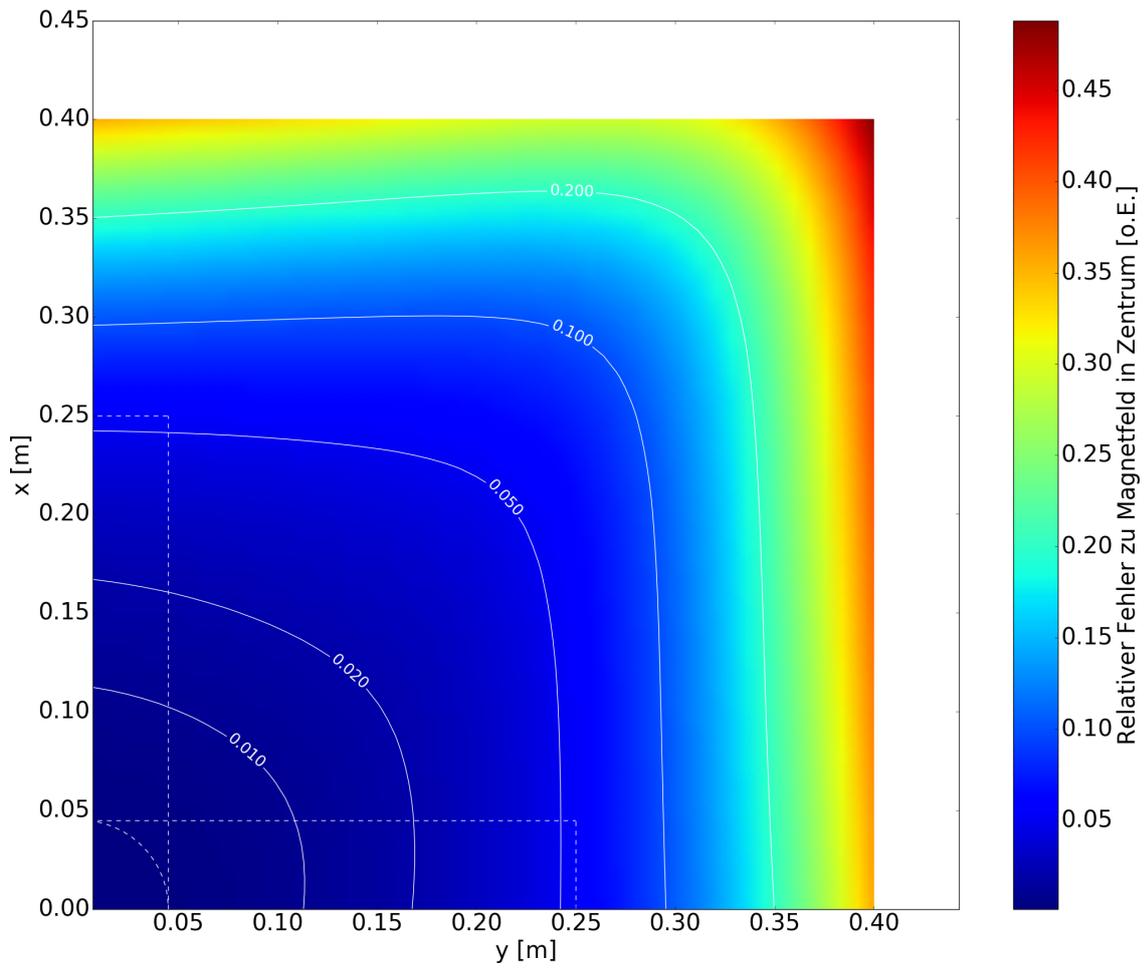
Wie in Abschnitt 6.4 bereits erwähnt, bestehen die Rahmenwinkel aus magnetischem Edelstahl. Prinzipiell können diese Komponenten das Magnetfeld der Spulen beeinträchtigen. Die Auswechslung dieser Bauteile wird dringend empfohlen.



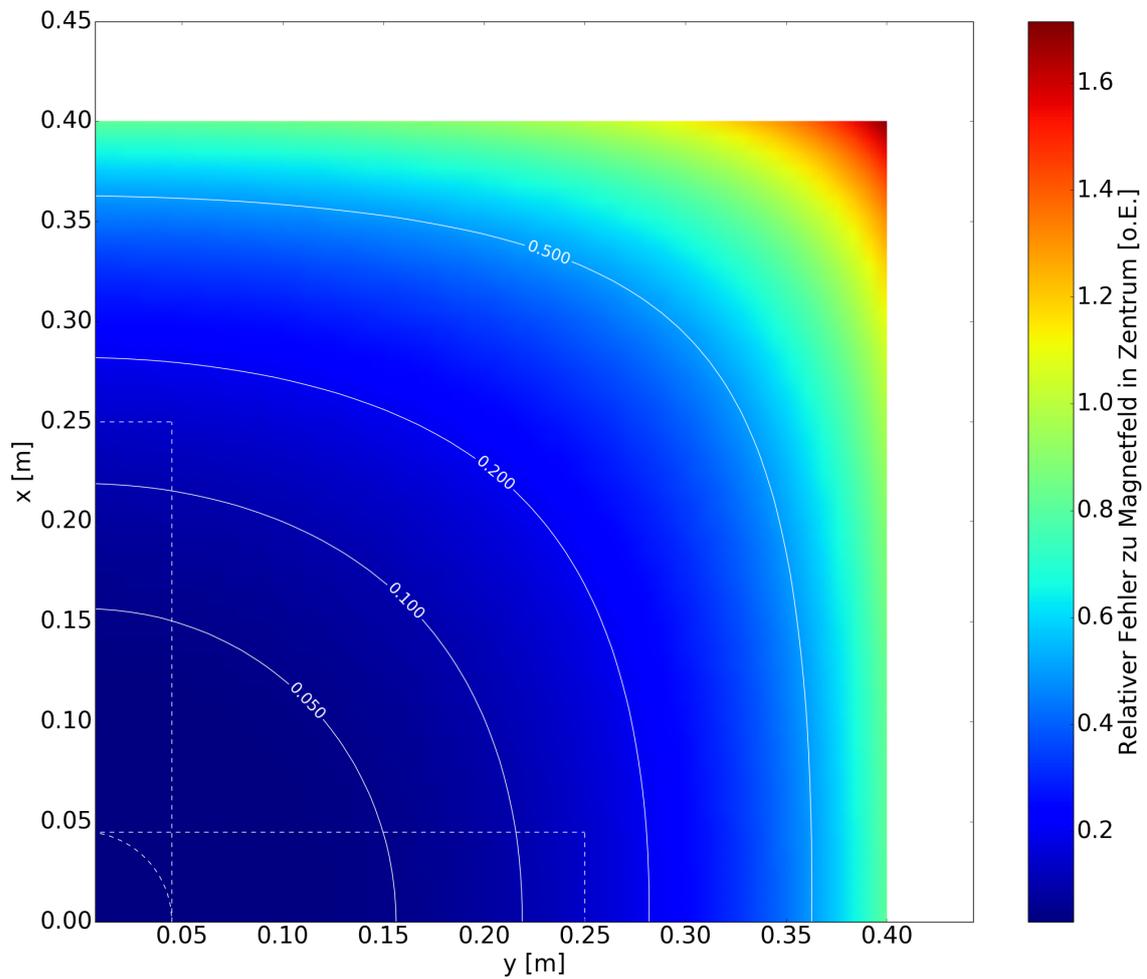
(a) Skizze zur Orientierung



(b)  $z=0.0$  m (Mittelpunkt)



(c)  $z=80$  mm



(d)  $z=250$  mm

Abbildung 10.1: Inhomogenität des Magnetfeldes eines quadratischen Spulenpaares mit optimalem Abstand. Gezeigt sind Ebenen, die parallel zu den Spulenquadraten stehen. Wegen der Symmetrie des Problems wird jeweils nur ein Quadrant der Flächen (rot) veranschaulicht. Die weiß gestrichelten Linien spiegeln die Maße des Kammervolumens wieder, das von den geladenen Teilchen während des Experiments durchflogen werden kann. Da insgesamt drei Spulenpaare im Experiment verwendet werden, werden auch alle drei relativen Ausrichtungen der Spektrometerkammer zum Spulenpaar veranschaulicht.

# 11 Erster Test

## 11.1 Justierung des Gasjets

Da die Vakuumkammer mitsamt Gaseinlass, Skimmern, Messzellen und Turbopumpen etwa 2-3 Jahre lang unbenutzt brach lag und bewegt wurde, musste der Gasjet neu justiert werden. Ziel ist es dabei, während Gas in die Kammer strömt, den Druck im Dump zu maximieren und den Druck in der Hauptkammer möglichst konstant zu halten. Tabelle 11.1 zeigt die Druckwerte nach der Justierung. Man sieht

Bereich	vor Gaseinlass		während Gaseinlass	
	Druck [mbar]	Pumpleistung [W]	Druck [mbar]	Pumpleistung [W]
Jetstufe 1	$5.7 \times 10^{-9}$	4	$2.0 \times 10^{-4}$	11
Jetstufe 2	–	15	–	18
Hauptkammer	$2.84 \times 10^{-8}$	9	$4.24 \times 10^{-9}$	9
Dump	$1.56 \times 10^{-10}$	15	$1.2 \times 10^{-10}$	15

Tabelle 11.1: Optimale Druckwerte nach Justierung des Gasjets ohne vorheriges Ausheizen. Für die Jetstufe 2 konnten keine Drücke gemessen werden, weil die entsprechende Messzelle während des Betriebs kaputt ging.

deutlich, dass der Druck in der ersten Jetstufe zwar um mehr als 5 Zehnerpotenzen ansteigt. Der Druck im Dump und in der Hauptkammer hingegen fallen sogar etwas. Das spricht dafür, dass kein Gasjet durch die Hauptkammer gelangt. Außerdem sind diese Ergebnisse nach einem Zeitraum von etwa 2-3 Tagen so nicht mehr reproduzierbar, obwohl die Position des Gaseinlasses nicht verändert wurde. Daher wurde entschieden den Gaseinlass auszubauen, um zu überprüfen, ob die Gasdüse und der erste Skimmer intakt sind.

Nach Ausbau des Gaseinlasses und dem Wechseln der Düse stellten sich folgende Druckwerte dar (siehe 11.2). Man erkennt einen deutlichen Druckanstieg im Dump um ca. den Faktor 4 und einen geringen Anstieg in der Hauptkammer. Das deutet darauf hin, dass Gas in der Kammer gestreut wird und nicht geradewegs in den Dump fliegt. Der Druckanstieg im Dump ist für einen Kammerwert von ca.  $5 \times 10^{-8}$  mbar deutlich schlechter als bei vergleichbaren Apparaturen. Es wäre zu erwarten, dass der Dumpdruck größer ist als der Kammerdruck. Womöglich sind Gasdüse, die beiden Skimmer und das Dumprohr nicht optimal zueinander ausgerichtet. Die im Vergleich zu Tabelle 11.1 erhöhten Druckwerte vor Einlass des Gas lassen sich durch unterschiedlich lange Abspumpdauern erklären. Mit bloßem Auge konnten am ersten Skimmer keine sichtbaren Schäden erkannt werden.

Bereich	Druck [mbar] vor Gaseinlass	Druck [mbar] während Gaseinlass
Jetstufe 1	$9.2 \times 10^{-8}$	$1.0 \times 10^{-3}$
Jetstufe 2	–	–
Hauptkammer	$4.79 \times 10^{-8}$	$5.17 \times 10^{-8}$
Dump	$4.7 \times 10^{-10}$	$2 \times 10^{-9}$

Tabelle 11.2: Optimale Druckwerte nach Wechseln der Düse und wiederholter Justierung des Gasjets ohne vorheriges Ausheizen

## 11.2 Erste Inbetriebnahme mit Argon

### 11.2.1 Ionen-Bildgebung

Um die korrekte Funktionsweise des gesamten experimentellen Aufbaus zu überprüfen, wurden die Spannungen an dem Spektrometer, dem Spiegel und dem Detektor, wie in Abbildung 11.1 gezeigt, eingestellt. Damit nicht die Gefahr besteht die verwendeten Spektrometerwiderstände zu zerstören, fällt über alle 34 Elektroden eine Gesamtspannung von 1 kV ab. Für das so entstehende homogene elektrische Feld wurden, wie in Abschnitt 6.2.2 beschrieben, die optimalen Spiegelsegmentspannungen simuliert und angelegt. Die Ergebnisse sind in Tabelle 11.3 dargestellt. Dank der

Spiegelsegment	Spannung [kV]
1	0,571
2	0.508
3	0.426

Tabelle 11.3: Ergebnisse aus der simulativen Optimierung der Spiegelsegmentspannungen für eine Spektrometerspannung von 1 kV

Linearität der Laplace-Gleichung und dem linearen Potentialverlauf an den Spektrometerelektroden, lassen sich aus den Werten von Tabelle 11.3 die optimalen Spiegelsegmentspannungen für jede beliebige Spektrometerspannung einfach errechnen. Sie sind direkt proportional zur Spektrometerspannung.

Diese Spannungsconfiguration erlaubt es nun Ionen, die durch den Laserfokus im Innern der Vakuumkammer erzeugt werden, auf den Detektor abziehen. Zwischen den beiden MCPs liegt eine Spannung von 2 kV an. Der Phosphorschirm wird auf 5 kV gesetzt. Das Time-of-Flight-Spektrum wurde, wie in Abschnitt 6.3 erläutert, aufgenommen. Abb. 11.2 zeigt das Flugzeitspektrum mit und ohne Argonjet. Es sei  $t = c \cdot \sqrt{m/q} + d$  die Abhängigkeit zwischen der Flugzeit  $t$  und dem Masse-zu-Ladungs-Verhältnis  $m/q$ . Die Fehler  $\Delta m/q$  errechnen sich aus den Fehlern der Kalibrierung und den Fehlern der Peak-Fit-Prozedur zu

$$\Delta m/q = \sqrt{\left(\frac{\sigma}{c}\right)^2 + \left(\frac{\Delta d}{c}\right)^2 + \left(\frac{t-d}{c^2} \Delta c\right)^2} \quad (11.1)$$

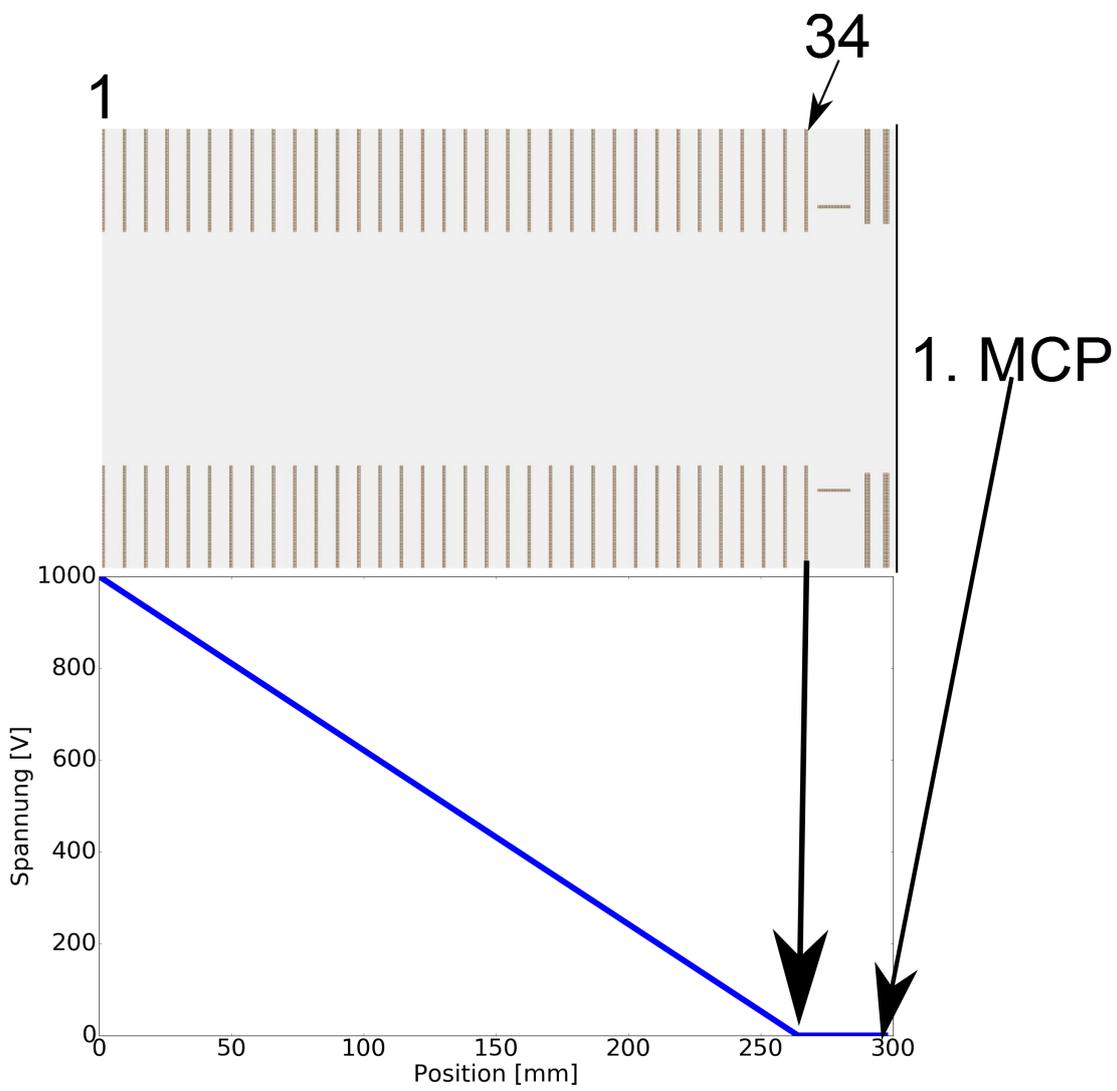
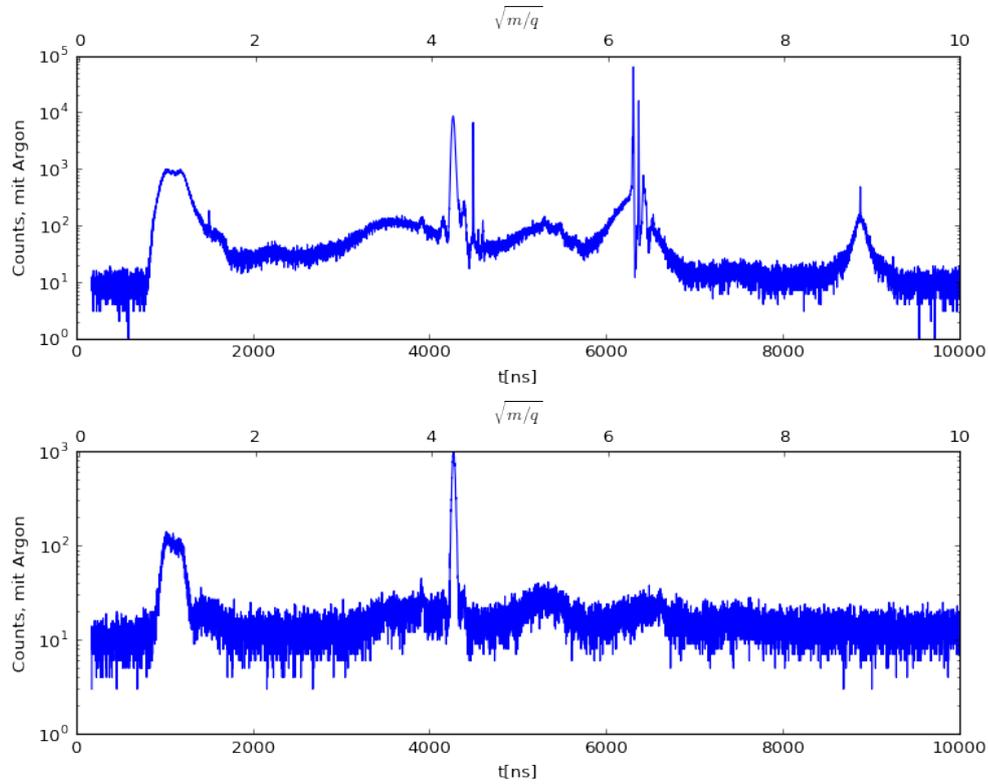


Abbildung 11.1: Linearer Potentialverlauf am Spektrometer



Peak Zentrum $t_0$ [ns]	$\sigma$ [ns]	$m/q$ [u/e]	$\Delta m/q$ [u/e]	Beschreibung
1038,5	7,7	1	0,2	$H^+$
1508	1,1	2,2	1,1	$H_2^+$
4267,4	15,7	18	0,14	$H_2O$
4494,1	1,5	20	4,4	$Ar^{2+}$
6305,9	2,4	39,6	7,6	$Ar^+$
8872,8	5,3	78,6	13,8	$Ar_2^+$

Abbildung 11.2: Flugzeitspektrum mit und ohne Argon-Gasjet. Die Kalibrierung der  $\sqrt{m/q}$ -Achse wurde anhand des  $H^+$ - (1039 ns) und  $H_2O^+$ -Signals (4267 ns) aus dem Spektrum mit Argonjet vorgenommen. Zur Bestimmung der Peakpositionen wurden Normalverteilungen angefitet. Man findet:  $t[ns] = (996,41 \pm 79,03) \cdot \sqrt{m[u]/q[e]} + (38,18 \pm 329,17)$

Für die  $H^+$ - und  $H_2O^+$ -Peaks entfallen die Fehler der Kalibrierung natürlich, da diese beiden Signale eben zur Kalibrierung verwendet wurden.

In Abb. 11.2 werden hinter den  $Ar^{2+}$ - und  $Ar^+$ -Peaks Strukturen deutlich, die keiner Ionensorte zugeschrieben werden können. Vermutlich handelt es sich hierbei um Störsignale, die von der Elektronik herrühren und mit den  $Ar^{2+}$ - und  $Ar^+$ -Signalen zusammenhängen.

In den Flugzeitspektren mit und ohne Argonjet beträgt die Anzahl der Hintergrundereignisse konstant ca.  $1 \times 10^1$ . Die Binbreite der Spektren beträgt 1 ns. Über das komplette Flugzeitspektrum von 0 bis  $1 \times 10^4$  ns fallen also ca.  $1 \times 10^5$  Hintergrundereignisse an. Das eigentlich interessante  $Ar^+$ -Signal liefert hingegen weniger als  $1 \times 10^4$  Ereignisse. Insgesamt werden also deutlich mehr Hintergrundereignisse als  $Ar^+$ -Signale registriert.

Um zu überprüfen, ob es sich bei dem detektierten Argonpeak tatsächlich um den Gasjet und nicht bloß um gestreutes Restgas handelt, wurde der Laserfokus mithilfe des Spiegelmanipulators verschoben. Es zeigt sich, dass der Hintergrund erhalten bleibt und der Argonpeak verschwindet.

Abb. 11.3 zeigt das von Argon verursachte Fluoreszenzsignal auf dem Phosphorschirm. Es fällt auf, dass der Laser eine Menge Streulicht produziert, welches an den Seiten des Detektors hindurch dringt. Die starken, rotgefärbten Lichtflecken entstehen durch Reflexion von Licht, das durch die Abdeckung hindurch dringt. Die Links-Rechts-Zentrierung des Argonsignals ist zufriedenstellend. Die Unten-Oben-Zentrierung kann mithilfe des Spiegelmanipulators erreicht werden.

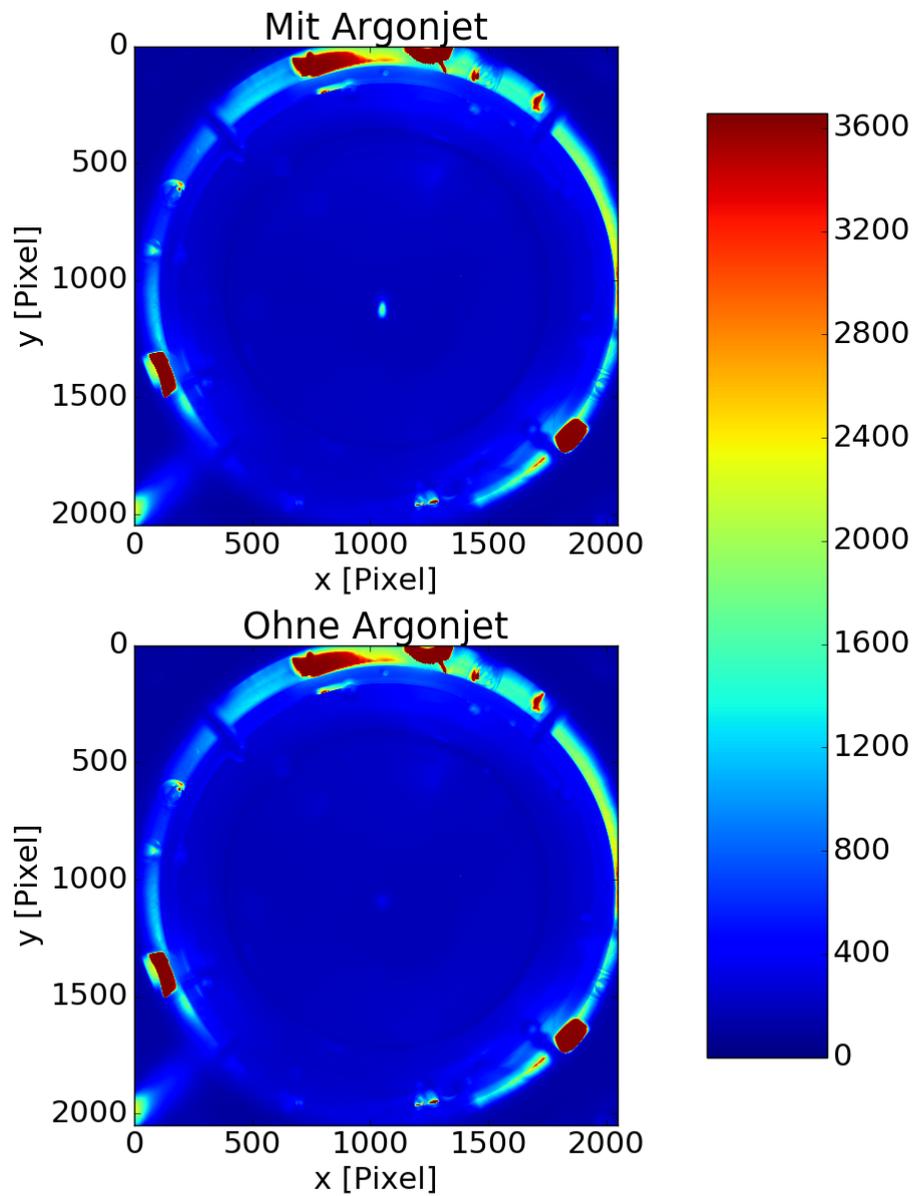


Abbildung 11.3: Fluoreszenzsignal der auf dem Phosphorschirm detektierten Ionen mit und ohne Argonjet. Argon-Vordruck: 5 bar, Integrationszeit: 10 s

## 11.2.2 Elektronen-Velocity-Map-Imaging

Der Potentialverlauf am Spektrometer und den Spiegelsegmenten wurde, gemäß der Ergebnisse aus der simulativen Optimierung der Elektrodenpotentiale (Abschnitt 8) und der Spiegelsegmentspannungen (Abschnitt 9), eingestellt. Abb. 11.4 zeigt die Originalaufnahme der Ionisation von Argon in der VMI-Spektrometerkonfiguration. In der Mitte des Detektors ist ein vertikal ausgedehntes Restgassignal zu sehen. Das deutliche Signal auf der rechten Hälfte des Detektors lässt sich durch Ändern der Spannung des mittleren Spiegelsegments stark in seiner Position beeinflussen. Vermutlich stammt das Störsignal von Elektronen, die durch den Laser aus der Spiegel- oder Spektrometeroberfläche herausgeschlagen werden. Bei einer Spannung von  $-762\text{ V}$  am mittleren Spiegelsegment verschwindet es. Diese Konfiguration wurde für alle weiteren Messungen beibehalten.

Abb. 11.5 zeigt das originale Bild der detektierten Elektronen mit eingeschaltetem Argonjet. Wie in Abb. 11.4 auch, kann eine klare Asymmetrie entlang der  $y$ -Achse erkannt werden. Die Ursache hierfür kann mit großer Sicherheit dem Phosphorschirm bzw. dessen Kontaktierung mithilfe der beiden Ringhalter zugeschrieben werden. Die Asymmetrie auf den ersten aufgenommenen Bildern war deutlich schlechter als hier in Abb. 11.5 präsentiert. Erst durch erneutes Nacharbeiten der Ringhalter konnte eine Verbesserung der Asymmetrie erzielt werden.

Das aufgenommene Bild zeigt keinerlei Strukturen, die auf ATI-Peaks schließen lassen. Auch vom Restgassignal werden keine markanten Merkmale sichtbar. Variieren der Repeller- und Spiegelsegmentspannungen ändert daran nichts. Wie schon aus Abb. 11.2 klar wurde, übersteigt die Zahl der Hintergrundereignisse das eigentliche Argonsignal um etwa das 10-fache. Unter diesen Bedingungen ist eine gute Bildgebung ausgeschlossen.

Das linke Bild in Abb. 11.6 geht aus Abb. 11.5 hervor, indem es manuell zentriert und gedreht wurde. Dann wurde die Verteilung in 4 gleich große Quadranten aufgeteilt. Jeder Quadrant des linken Bilds in Abb. 11.6 zeigt nun die Summe der 4 ursprünglichen Quadranten. Das mittlere Bild zeigt die gemäß Abschnitt 7 rekonstruierte Verteilung (inverse Abeltransformation) und das rechte Bild zeigt die Rücktransformation. Auch durch Anwenden der inversen Abeltransformation können keine Strukturen aufgelöst werden.

Daher ist als Nächstes die Ursache des starken Hintergrunds ausfindig zu machen. Generell ist es möglich durch Verwendung kürzerer Wellenlängen die ATI-Peaks weiter voneinander zu separieren und dadurch auf dem Phosphorschirm besser sichtbar werden zu lassen. Das erfordert allerdings die Erzeugung höherer Harmonischer. Ansonsten kann der störende Einfluss des Restgas durch Ausheizen der Kammer gewissermaßen reduziert werden.

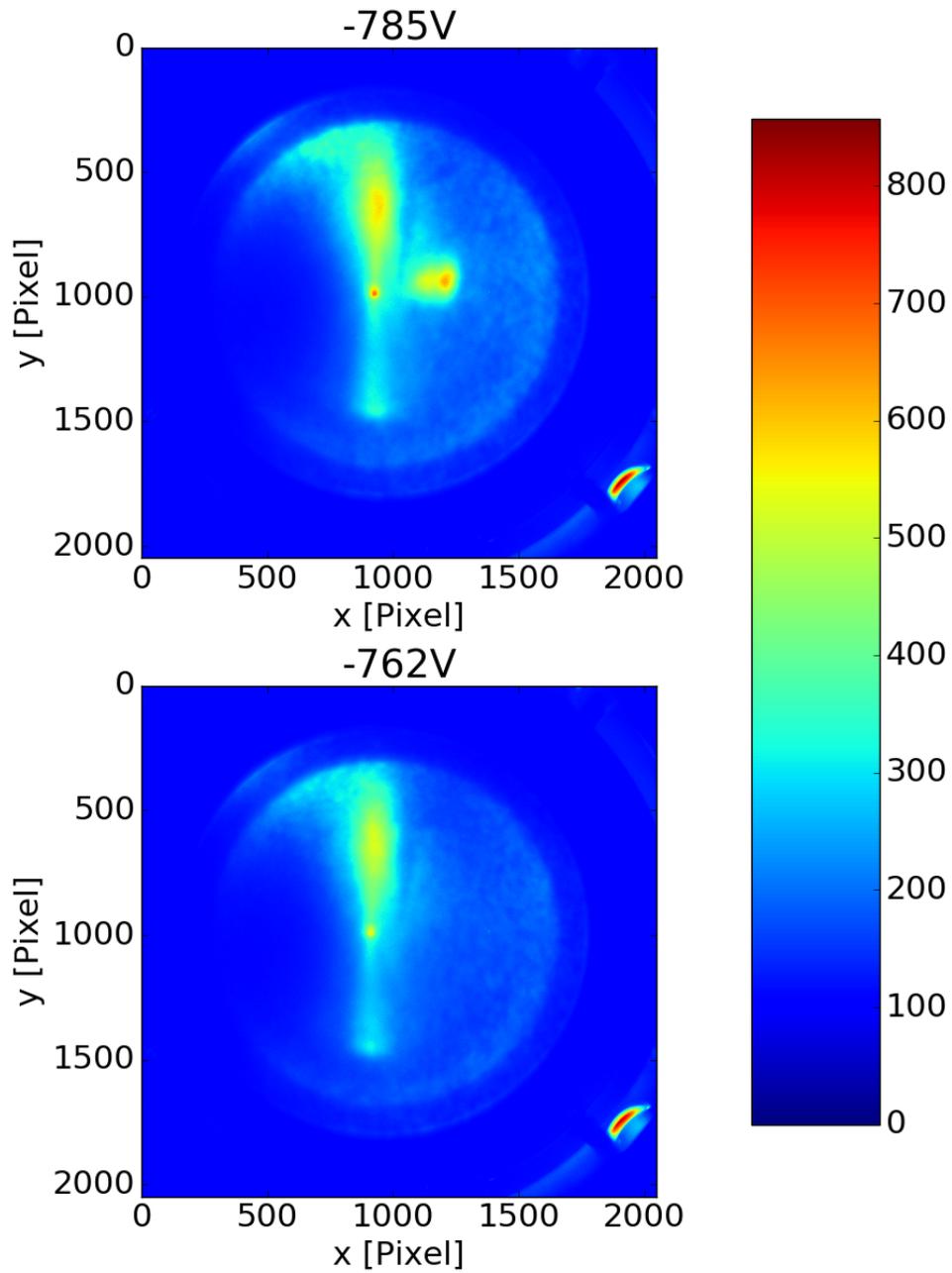


Abbildung 11.4: Fluoreszenzsignal der auf dem Phosphorschirm detektierten Elektronen ohne Argonjet bei verschiedenen Spannungen des mittleren Spiegelsegments. Die Integrationszeit beträgt 0.5 s

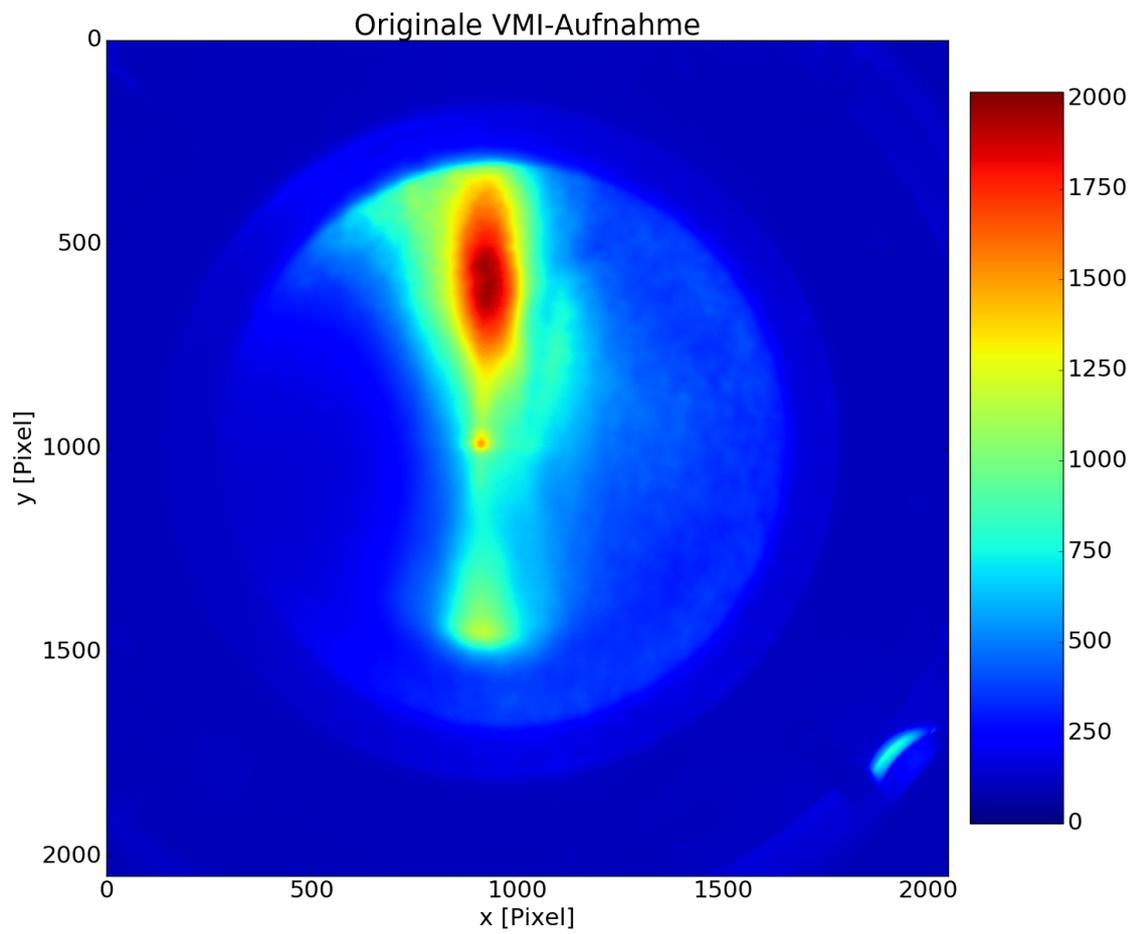


Abbildung 11.5: Fluoreszenzsignal der auf dem Phosphorschirm detektierten Elektronen mit Argonjet. Integrationszeit: 0.5s

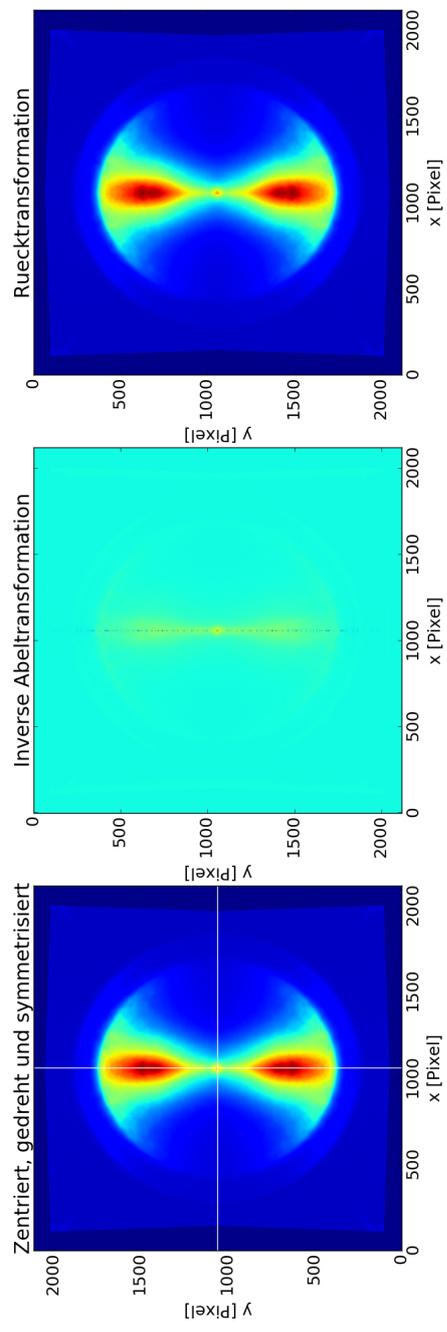


Abbildung 11.6: Links: Verteilung aus 11.5 zentriert, gedreht und symmetrisiert, Mitte: Anwendung des BASEX-Algorithmus (siehe Abschnitt 7), Rechts: Rücktransformation

## Teil V

# Zusammenfassung und Ausblick



Es wurde ein SIMION-Programm programmiert, das für beliebige Spektrometergeometrien eine optimierte Spannungskonfiguration findet, sodass Velocity Map Imaging möglich wird. Das ermöglicht es eine für VMI-Experimente gute Startkonfiguration der Elektrodenspannungen zu finden, die dann anhand der erhaltenen CCD-Bilder weiter experimentell optimiert werden kann. Das Programm zeigt explizit, dass es möglich ist, ein ReMi-Spektrometer ohne eine herkömmliche, fast durchgängige Repellerelektrode (wie im Design von Eppink and Parker [21] verwendet) als VMI-Apparat zu betreiben.

Das nächste Ziel ist es das Problem der fehlenden Bildstrukturen zu beheben. Dazu soll zunächst die Anzahl der Hintergrundereignisse reduziert werden. Wichtig ist, dass der Phosphorschirm keine Störsignale liefert. Solche können beispielsweise durch Leckströme und elektrische Überschläge entstehen. Außerdem kann durch Ausheizen der Vakuumkammer über 100 °C das Wassersignal reduziert werden. Um die zum Sichtbarmachen der ATI-Peaks notwendige Auflösung zu reduzieren, können kürzere Wellenlängen verwendet werden, die zuvor aus höheren Harmonischen der ursprünglichen Laserpulse erzeugt werden.

Es ist möglich neben den Elektronen auch die in entgegengesetzte Richtung fliegenden Ionen zu detektieren. Dazu kann ein zweiter MCP-Detektor mit nachgeschalteter Anode verwendet werden. Das befähigt den Experimentator Ionenflugzeiten zu messen und aus ihnen Informationen über deren Masse und elektrische Ladung zu gewinnen.

Die Nutzung des VMI-Spektrometers zur Messung von Ionen-Impulsverteilungen ist nicht ohne weitere Modifizierungen möglich. Da Ionen eine etwa 2000-fach höhere Masse und damit deutlich geringere Anfangsgeschwindigkeit nach vorangegangener Photoionisation als Elektronen besitzen, benötigen sie viel mehr Zeit, um sich von der Spektrometerachse zu entfernen. Die Verlängerung der Flugstrecke durch Einfügen einer Driftzone macht die bestehende Apparatur möglicherweise auch zum VMI-Spektrometer für Ionen tauglich. Diese Modifizierung des bestehenden Aufbaus muss zunächst noch simuliert und schließlich experimentell getestet werden.

Wie in Abschnitt 4.5 bereits erwähnt, kann der Detektor durch schnelle Elektronik gepulst werden. Dadurch werden nur die Signale, die den Detektor innerhalb eines kleinen Zeitfensters erreichen, registriert. Dies erlaubt verschieden schwere Ionen getrennt voneinander zu untersuchen. Eine solche Massenselektion kann leicht implementiert werden. Anhand der vorliegenden Druckmesswerte während dem Einlass von Gas kann momentan noch keine feste Aussage über die Qualität des Gasjets getroffen werden. Dazu muss die Kammer zunächst ausgeheizt werden, um das Druckniveau in der Vakuumkammer auf einen geringeren Ausgangswert abzusenken.

Während der Experimente fiel auf, dass der Hauptkammerdruck beim Einlass von Gas leicht ansteigt. Das bedeutet, dass Gas in der Hauptkammer gestreut wird und nicht den Dump erreicht. Es kann sein, dass Gasdüse, die beiden Skimmer und das Dumprohr keine optimale geradlinige Flugbahn für die Gasteilchen bieten. Nach eingehenderer Untersuchung der Druckentwicklung in der Vakuumkammer im ausgeheizten Zustand, erhoffen wir uns genauere Aussagen über den Gasstrahl treffen zu können.



# Teil VI

## Anhang



# A Atomare Einheiten

Größe	Symbol	Einheitendefinition	SI-Einheiten-Äquivalent
Masse	$m_e$	$m_e$	$9.109\,383\,56 \times 10^{-31} \text{ kg}$
Ladung	$e$	$e$	$1.602\,176\,62 \times 10^{-19} \text{ C}$
Geschwindigkeit	$v_0$	$\alpha c$	$2.187\,691\,263\,3 \times 10^6 \text{ m s}^{-1}$
Impuls		$m_e v_0$	
Energie	$E_h$	$\alpha^2 m_e c^2$	$4.359\,744\,17 \times 10^{-18} \text{ J}$
Länge	$a_0$	$\hbar / (m_e c \alpha)$	$5.291\,772\,109\,2 \times 10^{-11} \text{ m}$
Zeit	$\hbar / E_h$		$2.418\,884\,326\,505 \times 10^{-17} \text{ s}$
Drehimpuls		$\hbar$	$1.054\,571\,726 \times 10^{-34} \text{ J s}$
Elektrisches Potential		$E_h / e$	

Tabelle A.1: Wichtige atomare Einheiten



# B Verzeichnisse

## B.1 Abbildungsverzeichnis

1.1	Grundlegender Aufbau eines Lasers. Quelle: Demtröder [16, S. 271]	19
1.2	Nettoverstärkung $G$ eines offenen Resonators. Die schwarze Kurve beschreibt das spektrale Verstärkungsprofil des aktiven Mediums. Nur jene Frequenzen, für die die Verstärkung durch das aktive Medium größer ist als die auftretenden Verluste, werden schließlich amplifiziert. Die Resonatorgeometrie ist hier so gewählt, dass nur die Fundamentalmoden mit $m = n = 0$ verstärkt werden. Daher beträgt der freie Spektralbereich hier $\Delta\nu = \frac{c}{2d}$ . Quelle: Demtröder [16, S. 281]	21
2.1	Kohärente Interferenz von mehreren monochromatischen, ebenen Wellen.	25
2.2	Anschauliche Erklärung der Kerr-Lens-Modenkopplung. Das nicht-lineare Kerr-Medium fokussiert nur sehr starke Intensitäten. Durch Einbringen einer Apertur, werden die modengekoppelten Laserpulse fokussiert und vom CW-Hintergrund getrennt.	26
2.3	Anschauliche Erklärung der Selbstphasenmodulation	27
2.4	Zeitliche Pulsentwicklung bei unterschiedlichen Frequenzabhängigkeiten der Phase $\varphi(\omega)$ .	28
2.5	Grundlegender Aufbau eines Prismakompressors. Quelle: [64]	29
2.6	Skizze zur Erklärung des Prinzips eines gechirpten Spiegels. Quelle: [60]	30
2.7	Schema eines Gaußstrahls mit Strahlradius $\omega(z)$ . Quelle: [12]	31
2.8	Intensitätsverteilung in der Fokuseumgebung eines sphärischen Spiegels für $\lambda = 500 \text{ nm}$ , $f = 50 \text{ mm}$ und $\omega_0 = 0.5 \text{ cm}$	34
3.1	Energiespektren der Photoelektronen von Xenon bei einer Wellenlänge von $1064 \text{ nm}$ und Laserintensität von a) $2.2 \times 10^{12} \text{ W cm}^{-2}$ und b) $1.1 \times 10^{13} \text{ W cm}^{-2}$ . Quelle: Petite et al. [48]	39
3.2	Anschauliche Darstellung der Ionisationsprozesse im a) Mehrphotonen-Regime und b) Tunnel-Regime. Quelle: [25]	42
3.3	Anschauliche Skizze zu den drei Schritten des Rekollisionsmodells. Quelle: Ganeev [24]	43

4.1	Ideenskizze eines VMI-Versuchs mitsamt chronologischer Benennung der einzelnen Schritte. a) Ein hochintensiver Laserpuls regt das Target zur Ionisation oder Dissoziation an. b) Mit Hilfe eines elektrischen Feldes werden die entstehenden geladenen Teilchen in Richtung eines photosensitiven Schirms gelenkt. c) Die geladenen Teilchen schlagen auf dem Schirm auf und kreieren ein Projektionsbild. d) Mithilfe der mathematischen Abeltransformation gelingt es die vollständige Impulsverteilung der geladenen Teilchen unmittelbar vor der Projektion zu rekonstruieren. Quelle: [17] . . . . .	46
4.2	Schema zum Konzept der Newtonsphären. a) Ein Zerfallsprozess, bei dem zwei Fragmente entstehen, findet hier zweimal in unterschiedlichen Zerfallsrichtungen aber am gleichen Zerfallsort statt. Weil die Massen der beiden Fragmente unterschiedlich groß sind, erhalten die einzelnen Fragmente unterschiedliche Geschwindigkeiten. b) Summen gleichartiger Fragmente aus mehreren Zerfallsprozessen bilden die sogenannten Newtonsphären aus, die sich proportional zu den Geschwindigkeiten der jeweiligen Fragmente ausdehnen. Quelle: Whitaker [63, S. 22] . . . . .	48
4.3	Ionenoptik des VMI-Verfahrens, wie es von Eppink and Parker [21] in ihren Experimenten realisiert wurde, mit Maßen. Drei Elektroden ( <b>R</b> epeller, <b>E</b> xtractor, <b>G</b> round) sorgen für ein elektrisches Feld, dessen Äquipotentiallinien linsenförmig verlaufen. Die Repellerspannung bestimmt hauptsächlich die Größe des 2D-Abbilds auf dem Dektorschirm, während der Quotient aus Repellerspannung zu Extractorspannung maßgeblich die Lage des Fokus bestimmt [21]. Quelle: Whitaker [63, S. 44] . . . . .	49
4.4	Schema der Fokussierung durch eine Ionenlinse bei einem VMI Experiment. Dank einer elektrostatischen Linse gelingt es geladene Teilchen, die unterschiedliche Startorte (schwarze Punkte) aber gleiche anfängliche Geschwindigkeitsvektoren (gleichfarbige Pfeile) besitzen, auf die selben Schirmpunkte (rote Punkte) zu projizieren. Der Abstand zwischen Auftreffpunkt und Schirmmitte, in der Abbildung Radius bezeichnet, hängt von der zur Spektrometerachse senkrechten Geschwindigkeitskomponente der Teilchen ab. . . . .	50
4.5	Veranschaulichung der Abeltransformation und ihrer Inversion. Quelle: [28] . . . . .	51
5.1	Das Lasersystem besteht aus drei Modulen. Im Oszillator werden die Laserpulse aus kontinuierlichem Licht mithilfe eines Titan-Saphir-Kristalls erzeugt. Wie der Name sagt, verstärkt der Verstärker die Intensität der Laserpulse unter Zuhilfenahme eines zweiten gepulsten Pumplasers. Im Kompressor kompensieren spezielle Spiegel und Prismen die Dispersion, die die Pulse beim Durchgang durch optische Elemente erfahren. . . . .	57

6.1	3D-Ansicht der Vakuumkammer . . . . .	61
6.2	Skizze des Gaswegs. Das zu untersuchende Gas wird durch eine $30\ \mu\text{m}$ schmale Düse unter einem Vordruck von ca. 1-10bar in die Vakuumkammer gepresst. Ein erster Skimmer mit einem Durchmesser von $190\ \mu\text{m}$ lässt nur die zentrale Jetpartie durch. Wegen der endlichen Düsenbreite, treten hinter dem ersten Skimmer Halbschattenbereiche auf, die mithilfe eines zweiten Skimmers ( $400\ \mu\text{m}$ ) vom eigentlichen Jet abgeschnitten werden. Der Jet erreicht die Hauptkammer, wo er vom Laserstrahl getroffen wird. Die Teilchen, die dabei nicht ionisiert wurden und geradewegs weiterfliegen, landen in einem Rohr (Dump), um einen zu hohen Druckanstieg in der Kammer zu vermeiden. . . . .	63
6.3	Bilder des Spektrometers . . . . .	64
6.4	Schematischer Verlauf der Spannungen der äquidistanten Spektrometerelektroden. $x_c$ markiert das Zentrum des Spektrometers, in welchem die Ionisation stattfindet. . . . .	65
6.5	Skizze eines Detektorbildes infolge der Trajektorien simulation durch SIMION mit einer anfänglichen Verteilung, bei der alle Elektronen den gleichen anfänglichen Geschwindigkeitsvektor aber unterschiedliche Startpositionen besitzen. Jeder Punkt entspricht dem Auftreffen eines Elektrons auf dem Detektor. . . . .	66
6.6	Skizzen der anfänglichen Geschwindigkeits- und Ortsverteilungen einer Elektronenklasse, wie sie zur simulativen Charakterisierung des VMI-Spektrometers verwendet werden. . . . .	68
6.7	Skizze eines Detektorbildes infolge der Trajektorien simulation durch SIMION mit einer anfänglichen Elektronenverteilung, wie in Abb. 6.6 skizziert. Jeder Punkt entspricht dem Auftreffen eines Elektrons auf dem Detektor. . . . .	69
6.8	Schaltungsplan des Spannungsteilers. Eine Kette aus 21 Widerständen $R_1$ und eine Kette aus 12 Widerständen $R_2$ werden in Reihe geschaltet. Über alle 33 Widerstände fällt insgesamt die Spannung $U_2$ ab, welche von einem Hochspannungsnetzteil bereit gestellt wird. Über die 12 Widerstände $R_2$ fällt die Spannung $U_2$ ab, die ebenfalls über ein Hochspannungsnetzteil bereit gestellt wird. Eine parallel zu $U_2$ geschaltete Last $R_0$ verhindert bei Bedarf einen Stromrückfluss in die Spannungsquelle $U_2$ . . . . .	70
6.9	Konstruktionsbilder des Spiegelmanipulators . . . . .	74
6.10	Ansichten der in SIMION erzeugten Spektrometergeometrien . . . . .	75
6.11	Schema des Aufbaus und der Funktionsweise des Detektors . . . . .	77
6.12	Schematischer Aufbau einer Mikrokanalplatte. Quelle: [31] . . . . .	78

6.13	Schichtweiser Aufbau des Phosphorschirms. Eine reflektierende Aluminium-Schicht (Al) dient zur Filterung von eventuellem Hintergrundlicht. Die Phosphorschicht (P46) wird durch einfallende Elektronen angeregt. Bei der Relaxation der angeregten Atome kommt es zur Fluoreszenz von Licht. Die ITO-Schicht dient der Ableitung der auftreffenden Elektronen, um elektrostatische Aufladungseffekte des Glassubstrats zu verhindern. . . . .	79
6.14	Quanteneffizienz der CCD-Kamera. Quelle: [49] . . . . .	79
6.15	Schaltung der Koppelbox. Es wird eine Hochspannung $HV_{in}$ angelegt. Am Ausgang $HV_{out}$ kann die eingehende Hochspannung wieder abgegriffen werden, insofern der Eingangswiderstand des Geräts, das an $HV_{out}$ anliegt, viel größer als $1\text{ k}\Omega$ ist oder kein Strom zwischen $HV_{in}$ und $HV_{out}$ fließt. Im vorliegenden Fall werden hier die MCPs und der Phosphorschirm angeschlossen. Dank des Kondensators werden DC-Ströme gesperrt und nur die kleinen AC-Ströme, die durch Elektronenemission der MCPs bei der Detektion von Ionen oder Elektronen entstehen, passieren den Kondensator. An $V_{out}$ können diese AC-Signale schließlich ausgelesen werden. Der parallel geschaltete $100\text{ k}\Omega$ -Widerstand soll das Aufladen des $V_{out}$ -Ausgangs verhindern. . . . .	81
6.16	Lamorradius des Elektrons bei unterschiedlich starken Magnetfeldern.	82
6.17	Bild des verwendeten Spulenkäfigs . . . . .	83
6.18	z-Komponente des Magnetfeldes eines rechteckigen Spulenpaares auf der Verbindungslinie zwischen den beiden Mittelpunkten der Spulenquadrate. . . . .	84
8.1	Winkelorientierungen in der Simulationssoftware SIMION. Die x-Achse symbolisiert die Spektrometerachse, der einfallende Laserstrahl propagiert entlang der negativen z-Achse, wird vom Spiegel fokussiert und besitzt seinen schärfsten Fokus optimaler Weise im Spektrometerzentrum, dem Ursprung des Koordinatensystems. Der Gasjet propagiert entlang der negativen y-Achse. Quelle: [56, S. 8-3] . . . . .	93
8.2	Quadrat des mittleren Radius der simulierten Bildringe bei unterschiedlichen Öffnungswinkeln der doppelkegelförmigen Geschwindigkeitsverteilung in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Elektronen. Der Fehlerbalken gibt an, in welchem Bereich alle Elektronen um den Ringradius herum streuen. Gefittet wurden eine lineare und polynomiale Kurve zweiten Grades mithilfe der Least-Squares-Methode.	96
8.3	Mittlerer Radius der simulierten Bildringe bei unterschiedlichen kinetischen Energien in Abhängigkeit vom Halböffnungswinkel $\alpha$ der doppelkegelförmigen Elektronenverteilung. Der Fehlerbalken gibt an, in welchem Bereich alle Elektronen um den Ringradius herum streuen. Gefittet wurde eine einfache Sinusfunktion $A \cdot \sin(\alpha)$ mithilfe der Least-Squares-Methode. . . . .	99

8.4	Quadrat des mittleren Radius der simulierten Bildringe bei einem Öffnungswinkel von $90^\circ$ in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Elektronen bei verschiedenen Repellerspannungen für das rotationssymmetrische Spektrometer. Die Fitprozedur ist die selbe wie die in Abb. 8.2 . . . . .	100
8.5	Variationskoeffizient der simulierten Bildringe bei unterschiedlichen Öffnungswinkeln der doppelkegelförmigen Geschwindigkeitsverteilung in Abhängigkeit von der kinetischen Energie der Elektronen. Die Kalibrierung der $\frac{\Delta E}{E}$ -Achse basiert jeweils auf den linearen Fits. . . . .	102
9.1	Relativer Fehler des elektrischen Felds des Spektrometers infolge der Aussparungen in den Ringelektroden und dem segmentierten Spiegel. Oben wurde die numerisch ermittelte Spannungskonfiguration der Spiegelsegmente, unten jeweils die zwischen den zwei benachbarten Ringelektroden gemittelte Spannung als Segmentspannung verwendet. Der Schnitt zeigt die Ebene, die durch die Spektrometerachse und die optische Laserachse aufgespannt wird, und beinhaltet das Ionisationszentrum im Punkt (0,0). Der Einfluss des Spiegels auf das elektrische Feld kann gut an der B-förmigen Struktur links in beiden Bildern erkannt werden. . . . .	104
10.1	Inhomogenität des Magnetfeldes eines quadratischen Spulenpaares mit optimalem Abstand. Gezeigt sind Ebenen, die parallel zu den Spulenquadraten stehen. Wegen der Symmetrie des Problems wird jeweils nur ein Quadrant der Flächen (rot) veranschaulicht. Die weiß gestrichelten Linien spiegeln die Maße des Kammervolumens wieder, das von den geladenen Teilchen während des Experiments durchflogen werden kann. Da insgesamt drei Spulenpaare im Experiment verwendet werden, werden auch alle drei relativen Ausrichtungen der Spektrometerkammer zum Spulenpaar veranschaulicht. . . . .	108
11.1	Linearer Potentialverlauf am Spektrometer . . . . .	111
11.2	Flugzeitspektrum mit und ohne Argon-Gasjet. Die Kalibrierung der $\sqrt{m/q}$ -Achse wurde anhand des $H^+$ - (1039 ns) und $H_2O^+$ -Signals (4267 ns) aus dem Spektrum mit Argonjet vorgenommen. Zur Bestimmung der Peakpositionen wurden Normalverteilungen angefitet. Man findet: $t[ns] = (996, 41 \pm 79, 03) \cdot \sqrt{m[u]/q[e]} + (38, 18 \pm 329, 17)$	112
11.3	Fluoreszenzsignal der auf dem Phosphorschirm detektierten Ionen mit und ohne Argonjet. Argon-Vordruck: 5 bar, Integrationszeit: 10s . . .	114
11.4	Fluoreszenzsignal der auf dem Phosphorschirm detektierten Elektronen ohne Argonjet bei verschiedenen Spannungen des mittleren Spiegelsegments. Die Integrationszeit beträgt 0.5s . . . . .	116
11.5	Fluoreszenzsignal der auf dem Phosphorschirm detektierten Elektronen mit Argonjet. Integrationszeit: 0.5s . . . . .	117

11.6	Links: Verteilung aus 11.5 zentriert, gedreht und symmetrisiert, Mitte: Anwendung des BASEX-Algorithmus (siehe Abschnitt 7), Rechts: Rücktransformation . . . . .	118
------	---	-----

## B.2 Tabellenverzeichnis

6.1	Spezifikationen der verwendeten Mikrokanalplatten . . . . .	78
8.1	Durch das Simulationsprogramm gefundene optimale Spannungskonfiguration zum Spektrometerbetrieb im VMI-Modus . . . . .	94
9.1	Durch das Simulationsprogramm gefundene optimale Spiegelsegmentspannungskonfiguration für die Spektrometerpotentiale aus Tabelle 8.1103	
11.1	Optimale Druckwerte nach Justierung des Gasjets ohne vorheriges Ausheizen. Für die Jetstufe 2 konnten keine Drücke gemessen werden, weil die entsprechende Messzelle während des Betriebs kaputt ging. . . . .	109
11.2	Optimale Druckwerte nach Wechseln der Düse und wiederholter Justierung des Gasjets ohne vorheriges Ausheizen . . . . .	110
11.3	Ergebnisse aus der simulativen Optimierung der Spiegelsegmentspannungen für eine Spektrometerspannung von 1 kV . . . . .	110
A.1	Wichtige atomare Einheiten . . . . .	125

## C Literaturverzeichnis

- [1] 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: 1127–1130, Apr 1979. doi: 10.1103/PhysRevLett.42.1127. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.42.1127>.
- [2] A. F. R. Alvarez, E. Franco-Mejía, and C. R. Pinedo-Jaramillo. Study and analysis of magnetic field homogeneity of square and circular helmholtz coil pairs: A taylor series approximation. In *Andean Region International Conference (ANDESCON), 2012 VI*, pages 77–80, Nov 2012. doi: 10.1109/Andescon.2012.27.
- [3] 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.*, 63:2212–2215, Nov 1989. doi: 10.1103/PhysRevLett.63.2212. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.63.2212>.
- [4] H. Barry Bebb. Quantitative theory of the two-photon ionization of the alkali atoms. *Phys. Rev.*, 149:25–32, Sep 1966. doi: 10.1103/PhysRev.149.25. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.149.25>.
- [5] H. Barry Bebb. Theory of three-photon ionization of the alkali atoms. *Phys. Rev.*, 153:23–28, Jan 1967. doi: 10.1103/PhysRev.153.23. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.153.23>.
- [6] H. Barry Bebb and Albert Gold. Multiphoton ionization of hydrogen and rare-gas atoms. *Phys. Rev.*, 143:1–24, Mar 1966. doi: 10.1103/PhysRev.143.1. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.143.1>.
- [7] C. Bordas, F. Paulig, H. Helm, and D. L. Huestis. Photoelectron imaging spectrometry: Principle and inversion method. *Review of Scientific Instruments*, 67(6), 1996.
- [8] G. D. Boyd and H. Kogelnik. Generalized confocal resonator theory. *Bell System Technical Journal*, 41(4):1347–1369, 1962. ISSN 1538-7305. doi: 10.1002/j.1538-7305.1962.tb03281.x. URL <http://dx.doi.org/10.1002/j.1538-7305.1962.tb03281.x>.
- [9] F. W. Byron and Charles J. Joachain. Multiple ionization processes in helium. *Phys. Rev.*, 164:1–9, Dec 1967. doi: 10.1103/PhysRev.164.1. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRev.164.1>.

- [10] David W. Chandler and Paul L. Houston. Two-dimensional imaging of state-selected photodissociation products detected by multiphoton ionization. *The Journal of Chemical Physics*, 87(2):1445–1447, 1987. doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.453276>. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/jcp/87/2/10.1063/1.453276>.
- [11] S. L. Chin, P. Lavigne, and W. Xiong. Creation of multiple charges (up to xe6+) from xe atoms by an intense co2 laser. *J. Opt. Soc. Am. B*, 4(5):853–855, May 1987. doi: 10.1364/JOSAB.4.000853. URL <http://josab.osa.org/abstract.cfm?URI=josab-4-5-853>.
- [12] Wikimedia Commons. Gaussian beam with german description. URL [https://de.wikipedia.org/wiki/Datei:Gaussian\\_beam\\_with\\_german\\_description.svg](https://de.wikipedia.org/wiki/Datei:Gaussian_beam_with_german_description.svg).
- [13] P. B. Corkum. Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 71:1994–1997, Sep 1993. doi: 10.1103/PhysRevLett.71.1994. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.71.1994>.
- [14] Michèle Crance. Multiphoton stripping of atoms. *Physics Reports*, 144(3):118 – 185, 1987. ISSN 0370-1573. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/S0370-1573\(87\)80003-0](http://dx.doi.org/10.1016/S0370-1573(87)80003-0). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/S0370157387800030>.
- [15] E. K. Damon and R. G. Tomlinson. Observation of ionization of gases by a ruby laser. *Appl. Opt.*, 2(5):546–547, May 1963. doi: 10.1364/AO.2.000546. URL <http://ao.osa.org/abstract.cfm?URI=ao-2-5-546>.
- [16] Wolfgang Demtröder. *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 2010. ISBN 978-3-642-03911-9. doi: 10.1007/978-3-642-03911-9\_8. URL <http://link.springer.com/book/10.1007/978-3-642-03911-9>.
- [17] Istituto di Metodologie Inorganiche e dei Plasmi. Dynamics at nano scale – the project. URL <http://dyna.imip.cnr.it/project.html>.
- [18] P. A. M. Dirac. The quantum theory of the emission and absorption of radiation. *Proceedings of the Royal Society of London A: Mathematical, Physical and Engineering Sciences*, 114(767):243–265, 1927. ISSN 0950-1207. doi: 10.1098/rspa.1927.0039. URL <http://rspa.royalsocietypublishing.org/content/114/767/243>.
- [19] Vladimir Dribinski, Alexei Ossadtchi, Vladimir A. Mandelshtam, and Hanna Reisler. Reconstruction of abel-transformable images: The gaussian basis-set expansion abel transform method. *Review of Scientific Instruments*, 73(7), 2002.

- [20] RP Photonics Encyclopedia. Gaussian beams. URL [https://www.rp-photonics.com/gaussian\\_beams.html](https://www.rp-photonics.com/gaussian_beams.html).
- [21] André T. J. B. Eppink and David H. Parker. Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: Application in photoelectron and photofragment ion imaging of molecular oxygen. *Review of Scientific Instruments*, 68(9):3477–3484, 1997. doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1148310>. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/68/9/10.1063/1.1148310>.
- [22] D. S. Evans. Low energy charged-particle detection using the continuous-channel electron multiplier. *Review of Scientific Instruments*, 36(3):375–382, 1965. doi: <http://dx.doi.org/10.1063/1.1719576>. URL <http://scitation.aip.org/content/aip/journal/rsi/36/3/10.1063/1.1719576>.
- [23] Lutz Fechner. High resolution experiments on strong-field ionization of atoms and molecules: test of tunneling theory, the role of doubly excited states, and channel-selective electron spectra.
- [24] RA Ganeev. Strong field-induced frequency conversion of laser radiation in plasma plumes: Recent achievements. *The Scientific World Journal*, 2013, 2013.
- [25] Helmholtz Gemeinschaft. Multiphoton ionization – new opportunities at flash. URL [http://wof-cluster.desy.de/sites/site\\_photonscience/content/e58/e186104/e186825/e186879/index\\_print\\_eng.html](http://wof-cluster.desy.de/sites/site_photonscience/content/e58/e186104/e186825/e186879/index_print_eng.html).
- [26] Y Gontier and M Trahin. Energetic electron generation by multiphoton absorption. *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 13(22):4383, 1980. URL <http://stacks.iop.org/0022-3700/13/i=22/a=012>.
- [27] F. Grasbon, G. G. Paulus, H. Walther, P. Villoresi, G. Sansone, S. Stagira, M. Nisoli, and S. De Silvestri. Above-threshold ionization at the few-cycle limit. *Phys. Rev. Lett.*, 91:173003, Oct 2003. doi: [10.1103/PhysRevLett.91.173003](https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.91.173003). URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.91.173003>.
- [28] Richard Mabbs Research Group. Data extraction from images. URL <https://pages.wustl.edu/mabbsgroup/data-extraction-images>.
- [29] Daniel D. Hickstein, Roman Yurchak, Dhruvajyoti Das, Chung-You Shih, and Stephen T. Gibson. Pyabel (v0.7): A python package for abel transforms, 2016. URL <https://doi.org/10.5281/zenodo.47423>.
- [30] C. Hirlimann. *Femtosecond Laser Pulses: Principles and Experiments*, chapter Pulsed Optics, pages 25–56. Springer New York, New York, NY, 2005. ISBN 978-0-387-26674-9. doi: [10.1007/0-387-26674-7\\_2](https://doi.org/10.1007/0-387-26674-7_2). URL [http://dx.doi.org/10.1007/0-387-26674-7\\_2](http://dx.doi.org/10.1007/0-387-26674-7_2).
- [31] Infotip. Bildsensoren. URL <http://kompendium.infotip.de/bildsensoren.html>.

- [32] C. J. Joachain, N. J. Kylstra, and R. M. Potvliege. *Atoms in Intense Laser Fields*. Cambridge University Press, 2011. ISBN 9780511993459. URL <http://dx.doi.org/10.1017/CB09780511993459.002>. Cambridge Books Online.
- [33] U. Keller. Ultrafast solid-state laser oscillators: a success story for the last 20 years with no end in sight. *Applied Physics B*, 100(1):15–28, 2010. ISSN 1432-0649. doi: 10.1007/s00340-010-4045-3. URL <http://dx.doi.org/10.1007/s00340-010-4045-3>.
- [34] Anatoli Kheifets. On different mechanisms of the two-electron atomic photoionization. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 34(8):L247, 2001. URL <http://stacks.iop.org/0953-4075/34/i=8/a=102>.
- [35] Jeffrey L. Krause, Kenneth J. Schafer, and Kenneth C. Kulander. High-order harmonic generation from atoms and ions in the high intensity regime. *Phys. Rev. Lett.*, 68:3535–3538, Jun 1992. doi: 10.1103/PhysRevLett.68.3535. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.68.3535>.
- [36] K. C. Kulander, K. J. Schafer, and J. L. Krause. *Super-Intense Laser-Atom Physics*, chapter Dynamics of Short-Pulse Excitation, Ionization and Harmonic Conversion, pages 95–110. Springer US, Boston, MA, 1993. ISBN 978-1-4615-7963-2. doi: 10.1007/978-1-4615-7963-2\_10. URL [http://dx.doi.org/10.1007/978-1-4615-7963-2\\_10](http://dx.doi.org/10.1007/978-1-4615-7963-2_10).
- [37] G. Lagmago Kamta and Anthony F. Starace. Multielectron system in an ultrashort, intense laser field: A nonperturbative, time-dependent two-active-electron approach. *Phys. Rev. A*, 65:053418, May 2002. doi: 10.1103/PhysRevA.65.053418. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.65.053418>.
- [38] Martin Laux. Construction and characterization of a new reaction microscope, Juli 2011.
- [39] A L’Huillier, L A Lompre, G Mainfray, and C Manus. Multiply charged ions induced by multiphoton absorption processes in rare-gas atoms at  $1.064\mu\text{m}$ . *Journal of Physics B: Atomic and Molecular Physics*, 16(8):1363, 1983. URL <http://stacks.iop.org/0022-3700/16/i=8/a=012>.
- [40] Sergei Manzhos, Hans-Peter Looock, Bernard L. G. Bakker, and David H. Parker. Photodissociation of hydrogen iodide in the a-band region 273–288 nm. *The Journal of Chemical Physics*, 117(20), 2002.
- [41] Eric Mevel, Pierre Breger, Rusty Trainham, Guillaume Petite, Pierre Agostini, Arnold Migus, Jean-Paul Chambaret, and Andre Antonetti. Atoms in strong optical fields: Evolution from multiphoton to tunnel ionization. *Phys. Rev. Lett.*, 70:406–409, Jan 1993. doi: 10.1103/PhysRevLett.70.406. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.70.406>.

- [42] D. R. Miller. *Atomic and Molecular Beam Methods*. Number Bd. 1 in Atomic and Molecular Beam Methods. Oxford University Press, 1988. ISBN 9780195042801. URL <https://books.google.de/books?id=uEeyQgAACAAJ>.
- [43] T Pattard, T Schneider, and J M Rost. On the role of shake-off in single-photon double ionization. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, 36(12):L189, 2003. URL <http://stacks.iop.org/0953-4075/36/i=12/a=101>.
- [44] G. G. Paulus, W. Nicklich, and H. Walther. Investigation of above-threshold ionization with femtosecond pulses: Connection between plateau and angular distribution of the photoelectrons. *EPL (Europhysics Letters)*, 27(4):267, 1994. URL <http://stacks.iop.org/0295-5075/27/i=4/a=003>.
- [45] G. G. Paulus, W. Nicklich, Huale Xu, P. Lambropoulos, and H. Walther. Plateau in above threshold ionization spectra. *Phys. Rev. Lett.*, 72:2851–2854, May 1994. doi: 10.1103/PhysRevLett.72.2851. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.72.2851>.
- [46] AM Perelomov and VS Popov. Ionization of atoms in an alternating electrical field. ill. *Soviet Physics JETP*, 25(2), 1967.
- [47] AM Perelomov, VS Popov, and MV Terent'ev. Ionization of atoms in an alternating electric field. *Sov. Phys. JETP*, 23(5):924–934, 1966.
- [48] 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>.
- [49] Photometrics. *CoolSNAP K4 Monochrome Datasheet*. URL <http://www.photometrics.com/products/datasheets/k4.pdf>.
- [50] APS Physics. Hercules laser beam. URL <https://www.aps.org/about/physics-images/archive/hercules.cfm>.
- [51] Jan Posthumus. *Molecules and clusters in intense laser fields*. Cambridge University Press, 2009.
- [52] Helmholtzzentrum Potsdam. Häufig gestellte fragen zum thema erdmagnetismus. URL <http://www.gfz-potsdam.de/magservice/faq>.
- [53] James A. R. Samson. Proportionality of electron-impact ionization to double photoionization. *Phys. Rev. Lett.*, 65:2861–2864, Dec 1990. doi: 10.1103/PhysRevLett.65.2861. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.65.2861>.

- [54] K. J. Schafer, Baorui Yang, L. F. DiMauro, and K. C. Kulander. Above threshold ionization beyond the high harmonic cutoff. *Phys. Rev. Lett.*, 70:1599–1602, Mar 1993. doi: 10.1103/PhysRevLett.70.1599. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.70.1599>.
- [55] K.C. Schmidt and C.F. Hendee. Continuous channel electron multiplier operated in the pulse saturated mode. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, 13(3):100–111, June 1966. ISSN 0018-9499. doi: 10.1109/TNS.1966.4324085.
- [56] *SIMION Version 8.0/8.1 User Manual*. Scientific Instrument Services, Inc.
- [57] T.A. Somer and P.W. Graves. Spiraltron matrices as windowless photon detectors for soft x-ray and extreme uv. *Nuclear Science, IEEE Transactions on*, 16(1):376–380, Feb 1969. ISSN 0018-9499. doi: 10.1109/TNS.1969.4325131.
- [58] Donna Strickland and Gerard Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Optics Communications*, 56(3):219 – 221, 1985. ISSN 0030-4018. doi: [http://dx.doi.org/10.1016/0030-4018\(85\)90120-8](http://dx.doi.org/10.1016/0030-4018(85)90120-8). URL <http://www.sciencedirect.com/science/article/pii/0030401885901208>.
- [59] Orazio Svelto. *Principles of Lasers*. Springer US, Boston, MA, 2010. ISBN 978-1-4419-1302-9. doi: 10.1007/978-1-4419-1302-9\_2. URL <http://link.springer.com/book/10.1007%2F978-1-4419-1302-9>.
- [60] LTD. TOKAI OPTICAL CO. Product information. URL <http://www.tokaioptical.com/en/product.php>.
- [61] Marc J. J. Vrakking. An iterative procedure for the inversion of two-dimensional ion/photoelectron imaging experiments. *Review of Scientific Instruments*, 72(11), 2001.
- [62] B. Walker, B. Sheehy, L. F. DiMauro, P. Agostini, K. J. Schafer, and K. C. Kulander. Precision measurement of strong field double ionization of helium. *Phys. Rev. Lett.*, 73:1227–1230, Aug 1994. doi: 10.1103/PhysRevLett.73.1227. URL <http://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevLett.73.1227>.
- [63] Benjamin J. Whitaker. *Imaging in Molecular Dynamics*. Cambridge University Press, 2003. ISBN 9780511535437. URL <http://dx.doi.org/10.1017/CB09780511535437>. Cambridge Books Online.
- [64] Wikipedia. Prism compressor — Wikipedia, the free encyclopedia. <http://en.wikipedia.org/w/index.php?title=Prism%20compressor&oldid=673645980>, 2016. [Online; accessed 08-January-2016].
- [65] J. Winterhalter, D. Maier, J. Honerkamp, V. Schyja, and H. Helm. Imaging of charged atomic reaction products: Inversion by a two-dimensional regularization method. *The Journal of Chemical Physics*, 110(23), 1999.

## D CD

Auf dieser CD befinden sich folgende Inhalte:

- Diese Masterarbeit
- Das Programm *VMI* zur Simulation, Optimierung und Charakterisierung von Velocity-Map-Imaging-Spektrometern
- Das Programm *MirOpt* zur Optimierung der Spiegelsegmentspannungen



Erklärung:

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

Heidelberg, den

.....