

Fakultät für Physik und Astronomie

Ruprecht-Karls-Universität Heidelberg

Diplomarbeit
im Studiengang Physik
vorgelegt von

Moritz Kurka
aus Mannheim

November 2007

Zwei- und Drei-Photonen Doppelionisation von Helium und Neon am Freie-Elektronen-Laser in Hamburg

Die Diplomarbeit wurde von Moritz Kurka ausgeführt am
Max-Planck-Institut für Kernphysik in Heidelberg
unter der Betreuung von

Herrn Priv.-Doz. Dr. Robert Moshhammer

sowie von

Herrn Prof. Dr. Joachim Ullrich

Zusammenfassung

Es wurden mit Hilfe eines Reaktionsmikroskops differentielle Messungen zur Zwei- und Drei-Photonen Doppelionisation am **F**reien-Elektronen **L**aser in **H**amburg (FLASH) durchgeführt. Dabei konnte sowohl der direkte als auch der sequentielle Mechanismus der Doppelionisation untersucht werden. Auf Grund der speziellen Zeitstruktur der Pulsfolge des FLASH musste dabei ein neuartiges Datenaufnahmesystem basierend auf der schnellen Digitalisierung von Analogsignalen verwendet werden. Dadurch konnten bei der Untersuchung des sequentiellen Prozesses erstmals bei einer Zwei-Photonen Doppelionisation alle drei entstehenden Teilchen in Koinzidenz detektiert werden und so detaillierte Informationen über den Ablauf der Reaktion sowie den Einfluss der Elektron-Elektron Korrelation gesammelt werden.

Abstract

Few-photon double ionization of helium and neon was investigated differentially at the free-electron **l**aser at **H**amburg (FLASH) with a reaction microscope. Both sequential and direct mechanism of few-photon double ionization were investigated. The specific temporal structure of the FLASH pulse sequence required the use of a new data acquisition system based on the digitization of analog signals. For the sequential few-photon double ionization the detection of all three emitted particles became possible for the first time. Thus one was able to gain detailed information about the reaction mechanisms and in particular identify the role of the electron-electron correlation.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	9
2	Theorie	13
2.1	Rechenverfahren und Wirkungsquerschnitte	13
2.1.1	Lowest Order Perturbation Theory (LOPT)	13
2.1.2	Direkte Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung	16
2.2	Auftretende Prozesse und Wahl der Photonenenergie	19
2.2.1	Helium	19
2.2.2	Neon	22
2.3	Intensitätsabhängigkeit, Elektronenenergiespektrum und Winkelverteilungen	23
3	Experiment	29
3.1	Der Freie-Elektronen-Laser FLASH	29
3.1.1	Elektronenkanone und Linearbeschleuniger	29
3.1.2	Undulator	30
3.1.3	Der SASE Mechanismus	30
3.2	Das Reaktionsmikroskop	33
3.2.1	Aufbau und Funktionsweise	33
3.2.2	Berechnung der Impulse	37
3.2.3	Auflösung und Akzeptanz	41
4	Datenaufnahme und Analyse	45
4.1	Datenaufnahme	46
4.1.1	Digitalisierung der analogen Signale	47
4.1.2	Datenspeicherung	48
4.2	Datenanalyse	48
4.2.1	Identifikation der Signale und Bestimmung der Zeitpunkte	48
4.2.2	Vergleich der Identifikationsalgorithmen	53
5	Ergebnisse	59
5.1	Direkte Zwei-Photonen Doppelionisation	59
5.1.1	Neon bei 38,8 eV	60
5.1.2	Helium bei 43,5 eV	64
5.2	Sequentielle Zwei-Photonen Doppelionisation	65
5.2.1	Neon bei 43,5 eV	65
6	Zusammenfassung und Ausblick	71

Inhaltsverzeichnis

Literaturverzeichnis

73

1 Einleitung

Elementare Reaktionen in der Physik, der Chemie und der Biologie, beruhen häufig auf dynamischen Prozessen geladener Teilchen, die sich selbst über große Entfernungen aufgrund der Coulomb-Kräfte gegenseitig beeinflussen. Beispiele dafür sind die Wechselwirkungen eines einzelnen Atoms mit geladenen Teilchen oder elektromagnetischer Strahlung, der Zusammenschluss von mehreren Atomen zu einem Molekül oder die Faltung eines Proteins, um nur einige zu nennen. In all diesen Fällen, die eine quantenmechanische Beschreibung erfordern, ist die Coulomb-Wechselwirkung die treibende Kraft und meist sind mehr als zwei Teilchen beteiligt. Die theoretische Behandlung erweist sich fast immer als äußerst schwierig, denn selbst in der klassischen Mechanik sind Systeme mit drei oder mehr Teilchen im Allgemeinen nicht mehr analytisch lösbar; es müssen Näherungen gemacht werden. Dies gilt insbesondere für quantenmechanische Probleme. Wie gut diese Näherungen dabei die Realität beschreiben kann letztendlich nur im Experiment geklärt werden. Ein prominentes Beispiel für solch ein quantenmechanisches Drei-Teilchen-System ist das Heliumatom, dessen Struktur zwar mit sehr hoher Genauigkeit berechnet werden kann, aber doch nur mit Hilfe raffinierter Näherungsmethoden. Um ein Vielfaches schwieriger ist die Beschreibung von Anregungs- und Ionisationsprozessen an denen beide Elektronen beteiligt sind, also z.B. die vollständige d.h. doppelte Ionisation eines He-Atoms durch einen Stoß mit geladenen Teilchen oder Photonen. In dieser Arbeit werden Photonen induzierte Ionisationsprozesse in Atomen behandelt und insbesondere solche an denen ein oder wenige Photonen beteiligt sind. Ein Ionisationsereignis kann man sich als eine Folge von zwei dynamischen Prozessen vorstellen. Zunächst absorbiert das Atom ein oder mehrere Photonen wodurch Energie auf die Elektronen übertragen wird und im Anschluss bewegen sich bei einer Doppelionisation zwei Elektronen von ihrem Mutter-Ion weg. Aus einem gebundenen System entstehen drei freie geladene Teilchen, die miteinander wechselwirken. Bei der theoretischen Beschreibung muss freilich der gesamte Vorgang konsistent behandelt werden, und dennoch kann man, abhängig vom verwendeten theoretischen Modell, Einblicke darüber gewinnen wie zum Einen der Übergang von einem gebundenen System ins Kontinuum vonstatten geht und zum Anderen welchen Einfluss die gegenseitige Wechselwirkung auf die Bewegung der Teilchen hat. Hierbei spielt neben der Coulomb-Wechselwirkung auch die Ununterscheidbarkeit der beiden Elektronen eine wichtige Rolle. Für Experimente zur Doppelionisation von Atomen standen in der Vergangenheit im Wesentlichen zwei sehr verschiedene Typen von Strahlungsquellen zur Verfügung. Auf der einen Seite Synchrotronquellen mit Photonenenergien im Röntgenbereich, also ausreichend energetisch um eine Doppelionisation durch Absorption von einem Photon auszulösen, und auf der anderen Seite das intensive Licht von Kurzpuls-Lasern mit Wellenlängen im Infraroten, also bei Photonenenergien die deutlich kleiner sind als die Ionisationsschwelle von Atomen. Hier geschieht die Doppelionisation durch gleichzeitige Absorption einer sehr großen Anzahl von Photonen (bis zu 50 im Fall von He). So unterschiedlich wie die Anzahl der benötigten Photonen, so unterschiedlich sind auch die einer Doppelionisation zugrunde liegenden Mechanismen. Bei

der Ein-Photon Doppelionisation ist die Elektron-Elektron Korrelation entscheidend. Ohne sie gäbe es keine Doppelionisation denn die Photonenenergie wird nur auf eines der beiden Elektronen übertragen [1]. Im Multiphotonen Regime spielt die Elektronenkorrelation nur bei kleinen und mittleren Lichtintensitäten eine wichtige Rolle, bei hohen ist sie gänzlich unbedeutend [2]. Während jedoch die Ein-Photon Doppelionisation im Gültigkeitsbereich der Dipol-Näherung als weitestgehend verstanden gilt [1], so widersetzt sich die Multi-Photon Doppelionisation bis heute einer umfassenden theoretischen Beschreibung (siehe z.B. [3]).

Durch den Bau und die Inbetriebnahme des **Freien-Elektronen Lasers in Hamburg (FLASH)** sowie durch die Fortschritte bei der Erzeugung intensiver Lichtpulse im VUV-Bereich mittels höherer Harmonischer ist es in jüngster Vergangenheit möglich geworden die Photo-Doppelionisation in einem weiteren Energiebereich zu studieren, nämlich bei Photonenenergien die zwischen den beiden zuvor genannten liegen, also knapp unterhalb der Ionisationsschwelle. Hierbei ist man von theoretischer Seite vor allem an der Doppelionisation von He durch gleichzeitige Absorption von zwei (oder einigen wenigen) Photonen interessiert. Durch ihr Studium erhofft man sich auch die theoretische Beschreibung der Multi-Photon Doppelionisation verbessern zu können, denn die Komplexität des Problems wird durch die Reduktion der Anzahl der beteiligten Photonen auf zwei erheblich verringert. Des Weiteren ermöglicht ein Vergleich mit der Ein-Photon Doppelionisation den Einfluss und die Bedeutung der Elektron-Elektron Korrelation bei sich verändernden Rahmenbedingungen zu studieren. Genau in diesem Punkt unterscheiden sich die vielfältigen bereits veröffentlichten theoretischen Modelle weshalb eine Klärung durch das Experiment erforderlich ist. Darüber hinaus ist im Hinblick auf die geplanten Anwendungen des FLASH im Bereich der Chemie und Biologie (siehe z.B. [4]) das Studium von Mehr-Photonen Ionisationsprozessen von grundlegendem Interesse, denn ohne ein Verständnis dieser elementaren nicht-linearen Prozesse bei der Wechselwirkung von sehr intensivem Licht mit Materie wird jede Interpretation von komplexeren Reaktionen sehr erschwert oder gar unmöglich. In den letzten Jahren wurden daher bereits mehrere Experimente zur Zwei-Photon-Doppelionisation durchgeführt [5, 6, 7]. Dabei wurden vor allem totale Wirkungsquerschnitte vermessen um anhand dieser Ergebnisse erste Rückschlüsse auf mögliche Mechanismen zu ziehen. Um jedoch einen tieferen Einblick in die Dynamik zu gewinnen ist die Untersuchung differentieller Wirkungsquerschnitte erforderlich. Daher wurde mit dem in dieser Arbeit beschriebenen Experiment das Ziel verfolgt die Zwei-Photon-Doppelionisation erstmalig kinematisch vollständig zu vermessen. Dazu ist der koinzidente, Energie- und Winkel aufgelöste Nachweis der entstehenden geladenen Teilchen erforderlich. Dies wird erreicht durch den Einsatz eines Reaktionsmikroskops, dessen Vielseitigkeit bereits in einer großen Zahl von Anwendungen unter Beweis gestellt wurde [8]. Durch die spezielle Zeitstruktur der Pulsfolge am FLASH, der bis zu 30 Pulse mit einem Zeitabstand von nur wenigen Mikrosekunden und einer Wiederholrate von 5 Hz liefert, kommt es bei diesem Experiment zu Komplikationen bei der Datenaufnahme, die den Einsatz eines neuartigen Datenaufnahmesystems erforderlich machen. Die Implementierung eines Aufnahmesystems basierend auf einer schnellen Digitalisierung der Analogsignale sowie die Auswertung und Interpretation der Ergebnisse bilden den Schwerpunkt der hier vorliegenden Arbeit. Der Aufbau dieser Arbeit gliedert sich daher wie folgt: Im ersten Kapitel wird ein Überblick über die theoretischen Modelle und die aus ihnen abgeleiteten Vorhersagen für den Prozess der Zwei-Photon-Doppelionisation gegeben. Im zweiten Kapitel erfolgt eine Beschreibung des FLASH sowie des experimentellen Aufbaus, wobei detailliert auf die Funktionsweise des Reaktionsmikroskops eingegangen wird. Daran anknüpfend

wird im dritten Kapitel zunächst die Notwendigkeit des neuartigen Datenaufnahmesystem erläutert, welches anschließend eingehend charakterisiert wird. Im vierten Kapitel erfolgt schließlich die Diskussion der erzielten Ergebnisse, gefolgt von einem Ausblick auf zukünftige Messungen im letzten Kapitel.

2 Theorie

Seit den ersten theoretischen Untersuchungen zur Zwei-Photon-Doppelionisation Ende der neunziger Jahre, sind eine Vielzahl weiterer Veröffentlichungen zu diesem Thema erschienen (unter anderem [9, 10, 11, 12, 13]). Da es sich bei der Doppelionisation von Helium um ein Drei-Körper-Problem handelt, welches analytisch nicht exakt lösbar ist, kommen bei der theoretischen Beschreibung unterschiedliche Näherungsmethoden zum Einsatz, wie z.B. die störungstheoretische Behandlung [9] oder die direkte numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung [11, 13]. Die einzelnen Verfahren unterscheiden sich dabei sowohl hinsichtlich der Implementierung der Wechselwirkung des Atoms mit dem Feld, sowie den jeweils zur Darstellung des Systems verwendeten Anfangs-, Zwischen- und Endzuständen. Grundsätzlich hat dabei die Korrelation der Elektronen im Endzustand, unabhängig vom eingesetzten Verfahren, einen großen Einfluß auf die errechneten Wirkungsquerschnitte [11].

Im folgenden Abschnitt sollen exemplarisch zunächst zwei Vertreter der zahlreichen theoretischen Ansätze vorgestellt werden, um anschließend die damit berechneten Wirkungsquerschnitte mit weiteren Rechnungen zu vergleichen. Anschließend werden die verschiedenen Ablaufmechanismen der Zwei-Photonen Doppelionisation vorgestellt und charakterisiert. Mit Hilfe der partiellen Wirkungsquerschnitte für die verschiedenen Ablaufmechanismen ergeben sich Bedingungen für Intensität und Photonenenergie, unter denen ein Experiment zur individuellen Untersuchung dieser Mechanismen durchgeführt werden sollte. Weiterhin werden theoretische Vorhersagen vorgestellt, die über die partiellen Wirkungsquerschnitte hinausgehen. Hierzu gehören die Intensitätsabhängigkeit der auftretenden Prozesse, das Energiespektrum der beiden emittierten Elektronen, sowie deren Winkelverteilungen.

2.1 Rechenverfahren und Wirkungsquerschnitte

2.1.1 Lowest Order Perturbation Theory (LOPT)

Der grundlegende Gedanke einer störungstheoretischen Rechnung ist die Aufteilung des Hamiltonoperators in zwei Teile: einen ungestörten Teil H_0 , für den eine analytische oder eine hinreichend genaue numerische Lösung der Schrödingergleichung existiert, sowie einer zeitabhängigen Störung $H'(t)$, die in einer zu definierenden Art klein gegenüber H_0 sein soll. In unserem Fall ist das ungestörte System das Heliumatom, welches durch folgenden feldfreien Zwei-Teilchen Hamiltonoperator (in atomaren Einheiten) beschrieben wird:

$$H_0 = -\frac{\Delta_1}{2} - \frac{\Delta_2}{2} - \frac{Z}{|\vec{r}_1|} - \frac{Z}{|\vec{r}_2|} + \frac{1}{|\vec{r}_1 - \vec{r}_2|}, \quad (2.1)$$

wobei Δ_i der Laplaceoperator des i -ten Elektrons ist, Z die Kernladung, und \vec{r}_1, \vec{r}_2 die Ortskoordinaten der beiden Elektronen sind. Die Störung $H'(t)$ ist durch die Wechselwirkung der beiden

2.1 Rechenverfahren und Wirkungsquerschnitte

Elektronen mit dem äußeren Strahlungsfeld gegeben, die in Längeneichung folgerndemaßen beschrieben wird:

$$H'(t) = \vec{E}(t) \cdot \vec{r}_1 + \vec{E}(t) \cdot \vec{r}_2, \quad (2.2)$$

mit dem zeitabhängigen elektrischen Feld $\vec{E}(t)$. Die dabei getroffene Wahl der Eichung beeinflusst das Ergebnis nicht, da eine Darstellung der Störung in einer anderen Eichung lediglich die Zahlenwerte der Energien, nicht aber deren Differenzen oder andere physikalische Größen wie etwa die Übergangswahrscheinlichkeit zwischen zwei Zuständen ändert¹.

Da die Lösungen des ungestörten Systems Eigenfunktionen des hermiteschen Operators H_0 sind, kann man aus ihnen eine vollständige Basis des zugehörigen Zustandsraumes konstruieren, nach welcher sich ein beliebiger Zustand $|\psi(t)\rangle$ des Gesamtsystems entwickeln läßt. In zeitabhängiger Notation ergibt sich:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_n c_n(t) e^{-i\omega_n t} |n^{(0)}\rangle, \quad (2.3)$$

mit zu bestimmenden Entwicklungskoeffizienten $c_n(t)$, einer zeit- und energieabhängigen Phase $e^{-i\omega_n t}$ und den Eigenfunktionen $|n^{(0)}\rangle$ sowie den Energieeigenwerten $E_n = \hbar\omega_n$ des ungestörten Systems.

Um nun die Wahrscheinlichkeit zu berechnen, dass ein sich zum Zeitpunkt t_0 im Zustand $|\psi(t_0)\rangle$ befindliches System zu einem späteren Zeitpunkt in einem Eigenzustand $e^{i\omega_f t} |f^{(0)}\rangle$ des ungestörten Systems befindet setzt man Gleichung (2.3) in die zeitabhängige Schrödingergleichung ein und projiziert auf den Endzustand $e^{i\omega_f t} |f^{(0)}\rangle$.

$$i \frac{\partial}{\partial t} c_f(t) = \sum_n c_n(t) e^{-i(\omega_f - \omega_n)t} \langle f^{(0)} | H'(t) | n^{(0)} \rangle, \quad (2.4)$$

wobei c_f der zum Zustand $|f^{(0)}\rangle$ gehörige Entwicklungskoeffizient ist. Die so erhaltene Gleichung löst man durch Integration über die Zeit. Da der Integrand von der gesuchten Funktion selbst abhängt geht man dabei iterativ vor und ersetzt bei jedem Iterationsschritt den im Integral stehenden Entwicklungskoeffizienten $c_n(t')$ durch das Ergebnis des vorherigen Schrittes.

$$\begin{aligned} c_f(t) &= c_f(t_0) + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt' \sum_n \langle f^{(0)} | H'(t') | n^{(0)} \rangle e^{-i\omega_{fn}t'} c_n(t') \\ &= c_f(t_0) + \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t dt' \sum_n \langle f^{(0)} | H'(t') | n^{(0)} \rangle e^{-i\omega_{fn}t'} c_n(t_0) \\ &\quad + \frac{1}{(i\hbar)^2} \int_{t_0}^t dt' \sum_n \langle f^{(0)} | H'(t') | n^{(0)} \rangle e^{-i\omega_{fn}t'} \\ &\quad \times \int_{t_0}^{t'} dt'' \sum_l \langle n^{(0)} | H'(t'') | l^{(0)} \rangle e^{-i\omega_{nl}t''} c_l(t'') \\ &= \dots \end{aligned} \quad (2.5)$$

¹Es sei angemerkt, dass dies nur gilt, falls die Konstruktion der Zustände, zwischen denen der Übergang stattfindet mit dem selben Hamiltonoperator erfolgt.

Hierbei wurde $\omega_f - \omega_n$ durch ω_{fn} ersetzt. Der nächste Iterationsschritt würde dementsprechend in der Ersetzung von $c_l(t'') = c_l(0) + \dots$ bestehen. Die Glieder, die sich durch diese sukzessive Iteration ergebenden Reihe, unterteilt man nach Anzahl der enthaltenen Übergangsmatrixelemente in Ordnungen. Das Glied n -ter Ordnung wird dabei als der Teil der Übergangsamplitude interpretiert, der durch n -fache Wechselwirkung der Störung mit dem ungestörten System hervorgerufen wird. In unserem Fall entspricht die Wechselwirkung mit der Störung dem Austausch eines Photons. Das Glied nullter Ordnung entspricht also dem Fall, dass kein Photon ausgetauscht wurde und somit die Übergangsamplitude nullter Ordnung gerade gleich dem Entwicklungskoeffizient $c_f(t_0)$ des Zustandes $|f^{(0)}\rangle$ in der Entwicklung des Ausgangszustandes $|\psi(t_0)\rangle$ ist. Dementsprechend beschreibt das Glied erster Ordnung Übergänge vom Ausgangszustand in den Endzustand $|f^{(0)}\rangle$, bei denen ein Photon ausgetauscht wurde. Die Summation in (2.5) über die Basiszustände $|n^{(0)}\rangle$ ist durch die Entwicklung des Ausgangszustandes (siehe Gleichung (2.3)) in diesen Zuständen bedingt.

Ab dem Glied zweiter Ordnung treten Zwischenzustände auf. Beim Glied zweiter Ordnung heißt das, dass die Zustände $|n^{(0)}\rangle$ zum Zeitpunkt t' in der vorletzten Zeile von Gleichung (2.5) sind zu einem vorigen Zeitpunkt t'' durch einen Übergang aus einem Zustand $|l^{(0)}\rangle$ besetzt worden. Da hier Ionisationsprozesse untersucht werden sollen, also Prozesse bei denen sich im Endzustand mindestens ein Elektron im Kontinuum des bindenden Kernpotentials befindet, und für den Gesamtprozess Energieerhaltung gilt, ist abhängig von der Photonenenergie eine Mindestzahl an Photonen für den Übergang aus dem gebundenen Ausgangszustand in den Endzustand nötig. Glieder, deren Ordnung niedriger als diese Mindestzahl ist, verschwinden auf Grund der Energieerhaltung. Für den hier untersuchten Fall der Zwei-Photonen Doppelionisation ist somit der zweite Term die niedrigste nicht-verschwindende Ordnung. Bricht man die Entwicklung der Übergangsamplitude nach diesem Glied ab, so ergibt sich durch Betragsquadratbildung und zeitliche Integration die Übergangswahrscheinlichkeit pro Photon:

$$|c_f(t \rightarrow \infty)|^2 = \sum_f \left| \sum_n \frac{\langle f^{(0)} | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | n^{(0)} \rangle \langle n^{(0)} | \vec{\epsilon} \cdot \vec{r} | \psi(t_0) \rangle}{E_{\psi(t_0)} - E_n + \omega} \right|^2, \quad (2.6)$$

wobei sich aus dem zeitabhängigen Teil der Störung und den Phasen der Zustände durch die Integration die Verstimmung $E_{\psi(t_0)} - E_n + \omega$ ergibt. Diese verschwindet, falls die Grundzustandsenergie $E_{\psi(t_0)}$ plus der Energie eines Photons mit der Eigenenergie eines Zwischenzustands $|n^{(0)}\rangle$ übereinstimmt. Für Photonenenergien, auf die das zutrifft, wächst die Übergangswahrscheinlichkeit um mehrere Größenordnungen.

Das zur Herleitung des Ausdrucks (2.6) verwendete Strahlungsfeld wurde bisher nur dahingehend als von der Zeit abhängig angenommen, dass es auf Grund seiner, durch die Photonenenergie gegebenen Frequenz ω , mit einer konstanten Amplitude oszilliert. Bedingt durch die Voraussetzungen, die an die Zeitauflösung des Experiments und an die Intensität des Strahlungsfelds gestellt werden benutzt man gepulste Strahlungsquellen, wodurch auch die Amplitude des Strahlungsfelds zeitabhängig ist. Da aber typische Pulslängen im Bereich von 10 fs, die charakteristische Zeitskala, auf der Elektronenbewegungen im Heliumatom ablaufen jedoch im Bereich von 100 as liegen, kann die Amplitude des Feldes als konstant angenommen werden. Dem selben Argument folgend, verschiebt man die oberen Grenzen, der Zeitintegrationen aus (2.5), die zur Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeit nötig sind, ins Unendliche.

2.1 Rechenverfahren und Wirkungsquerschnitte

Die in Gleichung (2.6) erfolgende Summation über alle Zwischenzustände $|n^{(0)}\rangle$ wird in Rechnungen auf diejenigen Zwischenzustände beschränkt, die je nach gewünschter Genauigkeit der Übergangswahrscheinlichkeit, noch eine relevante Veränderung hervorrufen. Durch die Auswahlregeln in Dipolnäherung lässt sich auch die Anzahl der möglichen Endzustände $|f^{(0)}\rangle$ und damit die zweite Summation in (2.6) beschränken. Geht man z.B. vom Grundzustand eines Heliumatoms durch Absorption zweier linear polarisierter Photonen in einen Endzustand über, so kann dieser nur den Gesamtdrehimpuls 0 oder 2, sowie eine Gesamtmagnetquantenzahl $M = 0$ haben.

Der generalisierte Wirkungsquerschnitt für einen Zwei-Photonen-Übergang ergibt sich aus der Übergangswahrscheinlichkeit durch [14]:

$$\sigma_2^{2+} = \frac{|c_f(t \rightarrow \infty)|^2 \cdot \omega^2}{I^2 \cdot \tau}, \quad (2.7)$$

wobei ω die Photonenenergie in eV, I die Intensität in W/cm^2 und τ die Pulslänge in Sekunden bezeichnen. Die Einheit des generalisierten Wirkungsquerschnitts eines n -Photonenprozesses ist $\text{cm}^{2n} \text{s}^{n-1}$.

Die zu Anfang geforderte Kleinheit der Störung H' gegenüber dem Hamiltonoperator H_0 des ungestörten Systems führt zu einer Einschränkung der Gültigkeit von störungstheoretischen Rechnungen auf einen Intensitätsbereich der Amplitude des Pulses kleiner $10^{16} \text{W}/\text{cm}^2$ [15].

Ein allgemeines Problem bei der Berechnung von Wirkungsquerschnitten bei Ionisationsprozessen ist die Wahl der Zwischen- und Endzustände. In diesen befindet sich nämlich entweder eines oder beide Elektronen im Kontinuum, für dessen exakte Beschreibung eine unendliche Anzahl an Zuständen benötigt würde. Da dies numerisch nicht handhabbar ist konstruiert man in einem begrenzten Raum eine Basis aus sogenannten Multichannel-Zuständen [9]. Durch die Einschränkung auf einen endlichen Raumabschnitt bei der Konstruktion dieser Zustände zerfällt das Kontinuum in eine endliche Zahl diskreter Zustände, so dass in Gleichung (2.6) über Zwischen- und Endzustände summiert statt integriert werden kann.

2.1.2 Direkte Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung

Eine alternative Methode zur störungstheoretischen Berechnung der Wirkungsquerschnitte basiert auf der direkten Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung. Sie soll hier kurz skizziert werden. Für eine ausführliche Beschreibung sei z.B. auf [16] verwiesen.

Der erste Schritt einer solchen Rechnung besteht in der Aufstellung des Anfangszustandes, den man als antisymmetrisiertes Produkt von Ein-Elektron-Wellenfunktionen darstellt. Um den numerischen Aufwand der späteren Rechnungen zu verringern, schränkt man dabei den Radialteil auf ein endliches Raumgebiet ein und verwendet stückweise definierte Polynome, sogenannte *B-Splines*. Dies führt wie bei den Multichannel-Zuständen dazu, dass das Kontinuum durch endlich viele diskrete Zustände dargestellt werden kann. Der Winkelanteil wird von Kugelflächenfunktionen dargestellt, die zu einem Gesamtdrehimpuls L und einer gesamten magnetischen Quantenzahl M gekoppelt sind. Für zwei Teilchen lässt sich der Grundzustand mit den so erhaltenen Funktionen folgendermaßen entwickeln:

$$|\psi^{L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\rangle = \hat{A} \sum_{i,j,l_1,l_2} c_{i,j}^{L,M} \frac{B_i(|\vec{r}_1|)}{|\vec{r}_1|} \frac{B_j(|\vec{r}_2|)}{|\vec{r}_2|} Y_{l_1,l_2}^{L,M}(\Omega_1, \Omega_2). \quad (2.8)$$

Zu jedem Produkt aus Ein-Teilchenfunktionen gehört dabei ein Entwicklungskoeffizient $c_{i,j}^{L,M}$, dessen Indizes aus den Hauptquantenzahlen der beiden *B-Spline* Funktionen B_i und B_j , sowie dem Gesamtdrehimpuls und der magnetischen Quantenzahl der gekoppelten Kugelflächenfunktionen $Y_{l_1,l_2}^{L,M}$ besteht. Dabei ist die Antisymmetrisierung des Gesamtzustandes mit \hat{A} angedeutet. Die Bestimmung der Entwicklungskoeffizienten erfolgt durch direkte Diagonalisierung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung, wobei der Feld-freie Hamiltonoperator aus Gleichung (2.1) verwendet wird.

Die so gewonnenen Zustände setzt man in die zeitabhängige Schrödingergleichung ein und löst die gekoppelten Differentialgleichungen numerisch.

$$i \frac{\partial}{\partial t} \sum_{L,M} |\psi^{L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)\rangle = (H_0 + H'(t)) \sum_{L,M} |\psi^{L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t)\rangle \quad (2.9)$$

Dabei kommen verschiedene Algorithmen zum Einsatz, für deren Beschreibung auf [11, 16] verwiesen wird.

Im Anschluß an die zeitliche Propagation werden die erhaltenen Zustände auf Endzustände $|f_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2)\rangle$ projiziert, die von den Impulsen k_1 und k_2 der beiden Elektronen abhängig sind und die so konstruiert wurden, dass sie zwei Teilchen im Kontinuum beschreiben. Hierbei wurde von einer Reaktion aus dem Grundzustand des Heliumatoms, sowie linearer Polarisaton des Strahlungsfeldes ausgegangen, wodurch die magnetischen Quantenzahlen M für alle am Übergang beteiligten Zustände Null sind und vernachlässigt werden können. Durch Betragsquadratbildung der sich durch die Projektion ergebenden Übergangsamplitude ergibt sich die Übergangswahrscheinlichkeit in die jeweiligen Kontinuumszustände:

$$P^L(k_1 l_1 k_2 l_2) = |\langle f_{k_1 l_1 k_2 l_2}^L(\vec{r}_1, \vec{r}_2) | \psi^{L,M}(\vec{r}_1, \vec{r}_2, t = \tau) \rangle|^2. \quad (2.10)$$

Je nach Wahl des zur Konstruktion der Kontinuumszustände verwendeten Hamiltonoperators sind die Elektronen im Endzustand mehr oder weniger korreliert. Wählt man z.B. im einfachsten Fall den Hamiltonoperator des Wasserstoffatoms und benutzt Produkte aus dessen Eigenfunktionen als Kontinuumszustand, so hat man keinerlei Korrelation im Endzustand.

Die Population in doppelt-ionisierten Zuständen ergibt sich aus der Summation über alle k_1, k_2 mit $E_{k_1, l_1}, E_{k_2, l_2} > 0$. Diese Summation vereinfacht sich wie bei der störungstheoretischen Behandlung erheblich, wenn man die Auswahlregeln in Dipolnäherung benutzt und von einem neutralen Heliumatom im Grundzustand ausgeht. Dann kommen für die Endzustände nämlich nur Terme mit $L = 0, 2$ in Frage. Letztendlich ergibt sich der Wirkungsquerschnitt für die Zwei-Photonen Doppelionisation aus der Übergangswahrscheinlichkeit mit Hilfe der folgenden Formel:

$$\sigma_2^{2+} = \left(\frac{\omega}{I}\right)^2 \cdot \frac{1}{\tau} \sum_{L=0,2} \sum_{l_1 l_2} \sum_{k_1 k_2} P^L(k_1 l_1 k_2 l_2), \quad (2.11)$$

mit gleicher Notation wie in Gleichung (2.7).

Neben den hier vorgestellten Methoden zur Berechnung der Wirkungsquerschnitte finden sich in der Literatur zur Zwei-Photonen Doppelionisation noch zahlreiche andere Verfahren, für deren Beschreibung z.B. auf [10, 12, 17] verwiesen sei.

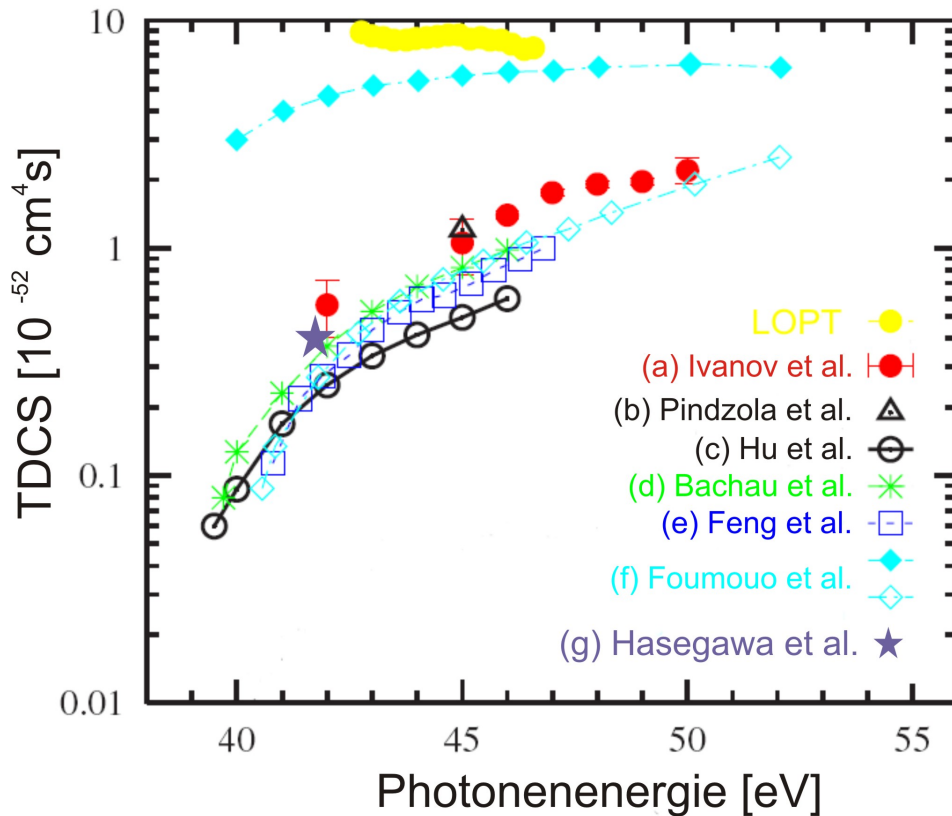


Abbildung 2.1: Partieller Wirkungsquerschnitt (TDCS) für die direkte Zwei-Photonen Doppelionisation von Helium. Gelb dargestellt ist das Ergebnis einer LOPT-Rechnung die aus [9] entnommen wurde. Die anderen Ergebnisse stammen aus: (a) [18], (b) [19], (c) [13], (d) [14], (e) [17], (f) [12], wobei sich die beiden Rechnungen durch das Maß an implementierter Korrelation im Endzustand unterscheiden. Gefüllte Rauten: mit Korrelation; ungefüllte Rauten: ohne Korrelation. (g) ist ein experimentell ermittelter Wert aus [20]. (Quelle [18] geändert).

In Abbildung (2.1) ist zum Vergleich der verschiedenen Methoden der mit ihnen berechnete partielle Wirkungsquerschnitt für den einen der beiden im nächsten Abschnitt vorgestellten Ablaufmechanismen der Zwei-Photonen Doppelionisation, dem direkten Prozess, dargestellt. Dabei fällt auf, dass der Großteil der Rechnungen Wirkungsquerschnitte liefert, die über den gesamten Photonenenergiebereich etwa eine Größenordnung kleiner sind, als der mit der LOPT errechnete aus [9]. Die Autoren dieser LOPT-Rechnung führen dies in einer neueren Untersuchung [11]², in der sie mit einem nicht-störungstheoretischen Ansatz auf ähnliche Werte wie mit dem perturbativen Ansatz kommen, auf das geringere Maß an implementierter Korrelation im Endzustand in den anderen Rechnungen zurück. Dabei stützen sie sich auch auf die Ergebnisse von Fomouo *et al.* [12] (hellblaue Kurven in Abbildung (2.1)), die eine deutliche Verkleinerung des

²Die hier erhaltenen Werte sind nicht in Abbildung (2.1) enthalten, haben aber nahezu denselben Verlauf wie die dargestellten LOPT-Ergebnisse.

Wirkungsquerschnitts bei Vernachlässigung der Endzustandskorrelation aufzeigen.

Der einzige zur Zeit verfügbare experimentelle Wert für den Wirkungsquerschnitt der direkten Zwei-Photonen Doppelionisation von Helium stammt von Hasegawa *et al.* [20]. Er liegt bei $0,4 \cdot 10^{-52} \text{ cm}^4\text{s}$ und wurde bei einer Photonenenergie von 41,85 eV und einer Intensität von $7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ mit höheren Harmonischen eines Titan-Saphir-Lasers bestimmt. Er ist ebenfalls in Abbildung (2.1) eingezeichnet und liegt im Bereich der Rechnungen, welche zu deutlich kleineren Ergebnissen als die LOPT-Rechnung kommen. Allerdings wurden bei der Ermittlung des experimentellen Wertes eine Reihe von Näherungen gemacht, so dass die Autoren selbst ihr Ergebnis nur als Abschätzung einstufen und keine Angaben zur Größe des Fehlers machen [20].

2.2 Auftretende Prozesse und Wahl der Photonenenergie

Bei der Zwei-Photonen Doppelionisation unterscheidet man zwei verschiedene Ablaufmechanismen. Zum Einen die schrittweise Ionisation zunächst des neutralen Atoms und anschließend des einfach geladenen Ions, wobei zwischen den beiden Ionisationsprozessen soviel Zeit verstreicht, dass sich die Wellenfunktion des zurückbleibenden Systems an das veränderte Kernpotential anpasst. Diesen Mechanismus bezeichnet man als sequentiell. Zum Anderen die gleichzeitige Emission beider Elektronen in einem Ionisationsschritt, was als direkter Mechanismus bezeichnet wird.

Während der sequentielle Mechanismus bereits aus der Multi-Photonen Doppelionisation bekannt ist und hierbei eingehend untersucht wurde, ist der direkte Mechanismus noch weitestgehend unerforscht. Zu den noch offenen Fragen gehört hierbei z.B. wie die beiden Photonen absorbiert werden, d.h. ob jeweils ein Elektron ein Photon absorbiert oder stattdessen eines der Elektronen beide Photonen absorbiert es anschließend zu einer Elektron-Elektron Wechselwirkung kommt. Daher werden im folgenden Abschnitt vor allem Möglichkeiten aufgezeigt die es ermöglichen den direkten Prozess bei Helium sowie bei Neon zu studieren.

2.2.1 Helium

Um die beiden Doppelionisationsmechanismen getrennt untersuchen zu können wählt man die Bedingungen so, dass die Ionisationsrate des einen der beiden Mechanismen deutlich größer als die des Anderen ist. Mit der Ionisationsrate ist hier die Übergangswahrscheinlichkeit pro Teilchen und Zeit gemeint. Die dabei grundlegende Überlegung basiert auf der Näherung der von einem n -Photonen-Prozess erzeugten Ionisationsrate [21]:

$$\Gamma^{(n)} = \sigma_n \left(\frac{I}{\omega} \right)^n . \quad (2.12)$$

Hierbei steht σ_n für den jeweilige partiellen n -Photonen Wirkungsquerschnitt der beiden Mechanismen. Betrachtet man nun das Termschema von Helium in Abbildung 2.2 so stellt man fest, dass bei einer Photonenenergie zwischen 40 und 54 eV der direkte Doppelionisationsprozess über die Absorption von zwei Photonen abläuft, während für den sequentiellen Prozess drei Photonen benötigt werden. Dies wird dadurch möglich, dass die überschüssige Energie aus dem ersten Ionisationsschritt des sequentiellen Prozesses, dem freiwerdenden Elektron als kinetische

2.2 Auftretende Prozesse und Wahl der Photonenenergie

Energie zufällt, und der zweite Ionisationsschritt aus dem Grundzustand des einfach geladenen Heliumions erfolgt. Ist dessen Ionisationspotential größer ist als die zur Verfügung stehende Photonenenergie, ist es möglich einen Energiebereich zu finden, in dem sich die Anzahl der benötigten Photonen für den direkten und den sequentiellen Mechanismus unterscheidet.

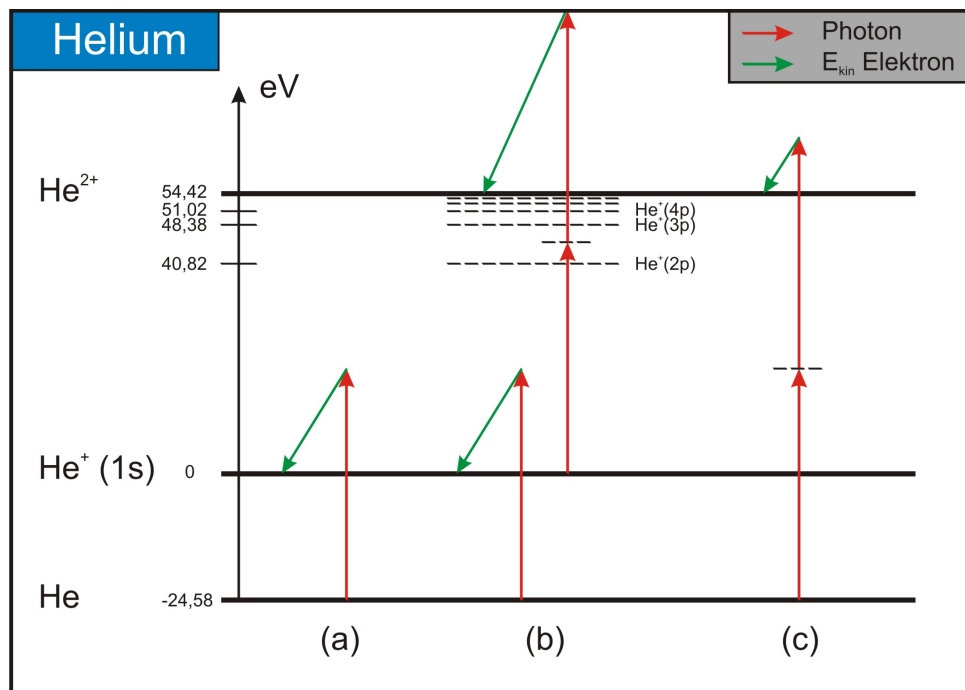


Abbildung 2.2: Termschema von Helium mit schematischer Darstellung der wichtigsten ablaufenden Prozesse (a) Einfachionisation, (b) sequentielle Doppelionisation und (c) direkte Doppelionisation (Werte entnommen aus [22]). Die roten Pfeile stehen für Photonen einer Energie von 45 eV. Die durchgezogenen horizontalen Linien stellen die Grundzustände der verschiedenen Ladungszustände dar. Die längeren gestrichelten Linien stehen für angeregte Zustände des einfach-geladenen Ions, die Kürzeren für virtuelle Zwischenzustände. Die Länge der grünen Pfeile symbolisiert die kinetische Energie des/der freiwerdenden Elektronen. Ihre Pfeilspitze deutet auf den Zustand, in dem das Ion nach Entfernung des Elektrons zurückbleibt.

Betrachtet man in diesem Energiebereich den Wirkungsquerschnitt für den zweiten Ionisationsschritt genauer (siehe Abbildung (2.3)) so erkennt man mehrere Maxima, die durch Resonanzen (Eigenzustände) des einfach geladenen Ions verursacht werden. Diese lassen sich im störungstheoretischen Bild durch das Verschwinden der Verstimmung in der Übergangswahrscheinlichkeit bei den mit Resonanzen übereinstimmenden Photonenenergien erklären (siehe Gleichung (2.6)). Führt daher die Absorption von n Photonen in die Nähe eines Eigenzustands des Systems, kommt es bedingt durch das Verschwinden der Verstimmung zu einer Vergrößerung des Wirkungsquerschnitts des Gesamtprozesses um mehrere Größenordnungen. Um daher den Einfluss des sequentiellen Drei-Photonen Prozesses bei der Untersuchung der direkten Zwei-Photonen Doppelionisation zu minimieren, wählt man in einem Experiment eine Photonenenergie von

45 eV, die exakt zwischen den beiden am weitesten getrennten Maxima im Wirkungsquerschnitt des sequentiellen Prozesses liegt.

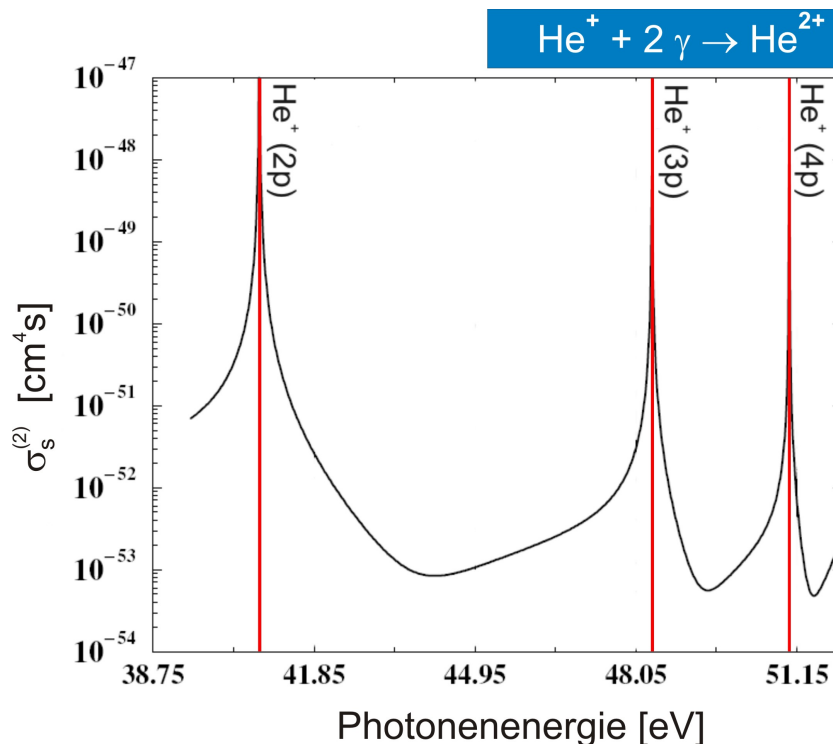


Abbildung 2.3: Berechneter Wirkungsquerschnitt für den zweiten Ionisationsschritt der sequentiellen Drei-Photonen Doppelionisation aus dem Grundzustand des einfach geladenen Heliumions. Bei denen durch vertikale rote Linien gekennzeichneten Photonenergien erfolgt die Zwei-Photonen Ionisation resonant über einen Zwischenzustand, wodurch der Wirkungsquerschnitt um mehrere Größenordnungen ansteigt. (Quelle [23] verändert).

Um nun die Ionisationsraten von He^{2+} -Ionen durch die beiden Mechanismen bei einer bestimmten Photonenergie bestimmen zu können, stellt man mit Hilfe von (2.12) gekoppelte Ratengleichungen auf.

$$\begin{aligned}
 \dot{N}_0 &= -\Gamma^{(1)}N_0 - \Gamma_d^{(2)}N_0 = -\sigma^{(1)}(I(t)/\omega)^1 N_0 - \sigma_d^{(2)}(I(t)/\omega)^2 N_0, \\
 \dot{N}_1 &= \Gamma^{(1)}N_0 - \Gamma_s^{(2)}N_1 = +\sigma^{(1)}(I(t)/\omega)^1 N_0 - \sigma_s^{(2)}(I(t)/\omega)^2 N_1, \\
 \dot{N}_2 &= \dot{N}_d + \dot{N}_s = +\sigma_d^{(2)}(I(t)/\omega)^2 N_0 + \sigma_s^{(2)}(I(t)/\omega)^2 N_1.
 \end{aligned} \tag{2.13}$$

Hierbei bezeichnet N_0 die Anzahl der im Reaktionsvolumen vorhandenen neutralen Atome. Dementsprechend sind N_1 und N_2 die Anzahl der in diesem Volumen zu einer Zeit t vorhandenen einfach und doppelt geladenen Ionen. Die verschiedenen partiellen Wirkungsquerschnitte für den sequentiellen und den direkten Zwei-Photonen-Prozess sind hierbei mit $\sigma_s^{(2)}$ und $\sigma_d^{(2)}$

2.2 Auftretende Prozesse und Wahl der Photonenenergie

bezeichnet. $\sigma^{(1)}$ ist entsprechend der Wirkungsquerschnitt für die Ein-Photon Ionisation des neutralen Atoms in den einfach geladenen Zustand. Außerdem wurde in die Ionisationsraten für die Intensität ein gaußförmiger Puls $I(t) = I_0 e^{-(t/\tau)^2}$ eingesetzt. Hierbei stehen I_0 und τ für dessen Amplitude bzw. Halbwertsbreite.

Eine numerische Lösung dieser Ratengleichungen wurde in [23] für zwei verschiedene Pulslängen von 10 und 30 fs und einer Photonenenergie von 45 eV durchgeführt. Die sich ergebenden Ionisationsraten in Abhängigkeit der Amplitude des Pulses sind in Abbildung (2.4) dargestellt. Es wird deutlich, dass in dem vom FLASH derzeit erreichbaren Bereich um Spitzenintensitäten von 10^{13} W/cm^2 und einer Pulslänge von ca. 25 fs, die Ionisationsrate aus dem direkten Prozess diejenige aus dem Sequentiellen um ca. 2 Größenordnungen übersteigt.

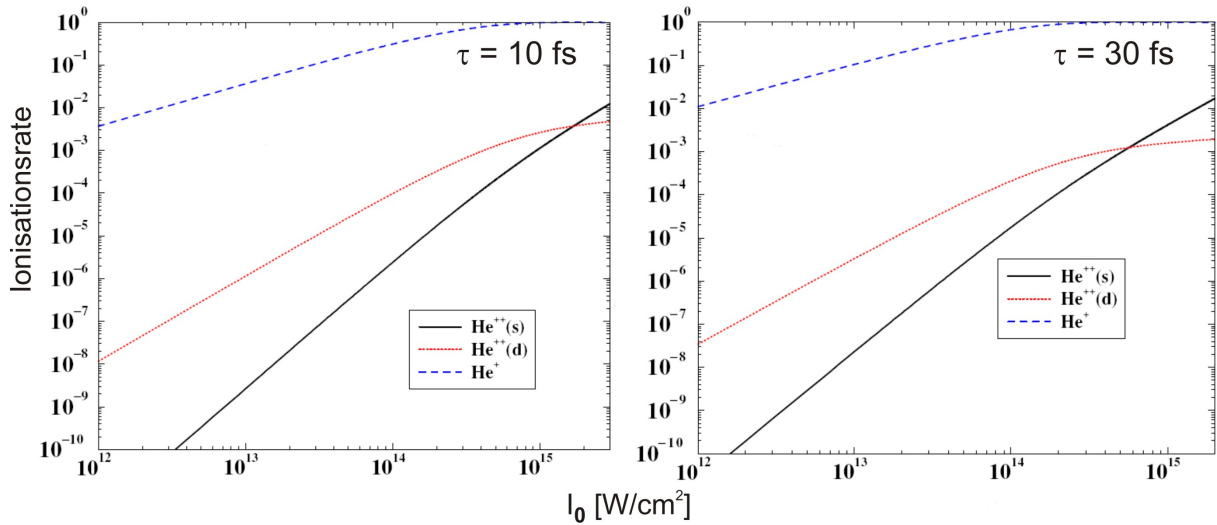


Abbildung 2.4: Ionisationsraten der, durch einen gaußförmigen Laserpuls erzeugten He^+ und He^{2+} Ionen in Abhängigkeit der Amplitude des Pulses normiert auf den maximalen Wert an He^+ -Ionen. Der bei der Berechnung verwendete Laserpuls hatte eine Photonenenergie von 44,95 eV bei einer Halbwertsbreite von 10 bzw. 30 fs. Für den Wirkungsquerschnitt des direkten Prozesses wurde ein gemittelter Wert aus verschiedenen Berechnungen eingesetzt. Details sowie die Werte der restlichen verwendeten Wirkungsquerschnitte finden sich in [23] woraus auch das Bild entnommen wurde.

2.2.2 Neon

Bei Neon sind die Ionisationspotentiale kleiner als bei Helium, nämlich 21,56 eV für das neutrale Atom und 40,96 eV für das einfach-geladene Ion [22]. Bei einer Photonenenergie von 45 eV ist daher auch der sequentielle Prozess über die Absorption von zwei Photonen möglich. Dies führt dazu, dass der partielle Wirkungsquerschnitt des sequentiellen Prozesses deutlich größer ist als der des direkten Prozesses ist. Beide Prozesse verlaufen zwar über die Absorption von insgesamt zwei Photonen, der Produktquerschnitt der beiden Ein-Photon-Prozesse beim sequentiellen Ablauf ist jedoch deutlich größer ist als der Wirkungsquerschnitt des Zwei-Photonen-Prozesses beim direkten Ablauf der Doppelsonionisation.

Zur Untersuchung des direkten Prozesses bei Neon wurde daher im Experiment eine Photonenenergie von 38,8 eV gewählt. Um einen Vergleich mit dem sequentiellen Prozess möglich zu machen, wurde zusätzlich eine Messung bei 45 eV durchgeführt. Eine Gegenüberstellung der verschiedenen Situationen bei den beiden Photonenenergien ist im Termschema in Abbildung (2.5) dargestellt.

Ein zusätzliches Problem bei der Untersuchung des direkten Prozesses bei Neon stellen die zahlreichen angeregten Zustände des einfach-geladenen Ions dar. Sie liegen sehr dicht beieinander, so dass bei einer Schwankung der Photonenenergie von ca. $0,4 \text{ eV}^3$ der Anteil des sequentiellen Prozesses deutlich schwerer zu unterdrücken ist als bei Helium.

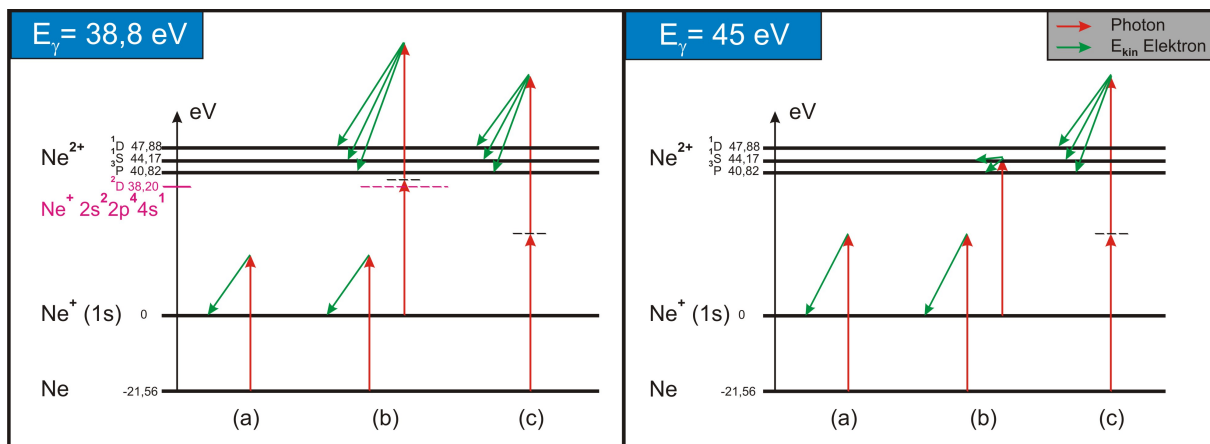


Abbildung 2.5: Termschema von Neon mit schematischer Darstellung der wichtigsten ablaufenden Prozesse (a) Einfachionisation, (b) sequentielle Doppelionisation und (c) direkte Doppelionisation bei Photonenenergien von 38,8 eV (links) und 45 eV (rechts). Die Linie bei 38,2 eV auf der linken Seite stellt einen angeregten Zustand des einfach geladenen Ions dar, welcher möglicherweise zu einer Erhöhung des sequentiellen Anteils bei der Ionisationsrate doppelt geladener Ionen führt. Die Bedeutung der übrigen Linien entspricht der aus Abb. 2.2 (Werte entnommen aus [22]).

2.3 Intensitätsabhängigkeit, Elektronenenergiespektrum und Winkelverteilungen

Intensitätsabhängigkeit

Um in einem Experiment das Verhältnis zwischen direkter und sequentieller Doppelionisation von Helium zu bestimmen, nutzt man die unterschiedlichen Intensitätsabhängigkeiten der beiden Prozesse. Für Photonenenergien zwischen 40 und 54 eV verläuft der sequentielle Prozeß über Absorption dreier Photonen, wodurch gemäß Gleichung (2.12) die durch ihn bedingte Ionisationsrate proportional zu I^3 ist, während die Ionisationsrate durch den direkten Prozeß bei diesen Photonenenergien proportional zu I^2 ist. Hierbei ist jedoch darauf zu achten, dass bei

³Dieser Wert wurde aus [24] entnommen.

der Einfachionisation keine Sättigung auftritt, da dann die sequentielle Doppelionisation unabhängig vom ersten Ionisationsschritt wird und somit keine kubische sondern eine quadratische Intensitätsabhängigkeit aufweist.

Elektronenenergiespektrum

Das Elektronenenergiespektrum bei der Zwei-Photon Doppelionisation ergibt sich durch Bildung des einfach differentiellen Wirkungsquerschnitts aus Formel (2.11):

$$\frac{d\sigma_2^{2+}}{dE_1} = \left(\frac{\omega}{I}\right)^2 \cdot \frac{1}{\tau} \sum_{L=0,2} \sum_{l_1 l_2} \sum_{k_1 k_2} P^L(k_1 l_1 k_2 l_2) \cdot \delta\left(k_2 - \sqrt{2(E - E_1)}\right), \quad (2.14)$$

wobei die Summation über den Impuls k_2 durch die Energierhaltungsbedingung $E = E_1 + \frac{k_2^2}{2}$ eingeschränkt wurde. Ein entsprechender Ausdruck lässt sich für die Drei- und Mehrphotonenionisation angeben.

Vergleicht man für Helium die so erhaltenen Elektronenenergiespektren für Photonenenergien unter und oberhalb der Ionisationsschwelle des einfach geladenen Ions von 54 eV (Abbildung 2.6), so weisen diese deutliche Unterschiede auf. Für den Fall der Dominanz des sequentiellen Prozesses, bei Photonenenergien oberhalb der Ionisationsschwelle, ergeben sich im Elektronenenergiespektrum zwei scharfe Maxima an den Stellen, die durch die Differenz aus Photonenenergie und Ionisationspotential des neutralen Heliumatoms und des einfach geladenen Heliumions, also den beiden Ionisationsschritten, gegeben sind. Der bei dieser Photonenenergie noch vorhandene Teil an direkter Doppelionisation bildet einen nahezu gleichmäßigen Untergrund, der in der Mitte minimal, zu den Extremwerten der Elektronenenergie hin ansteigt.

Bei Photonenenergien unterhalb der Ionisationsschwelle dominiert der direkte Anteil. Er weist den gleichen flachen Verlauf wie zuvor auf, erstreckt sich jedoch über einen anderen Energiebereich. Der flache Verlauf entspricht einer gleichmäßigen Aufteilung der kinetischen Energie auf die beiden Kontinuumselektronen. Der, durch Absorption von drei Photonen entstehende sequentielle Untergrund liegt energetisch vom direkten Anteil getrennt. Er erscheint wieder an den Stellen, die sich aus der Differenz von Ionisationspotential und Photonenenergie des jeweiligen Ionisationsschritts ergeben.

Darüber hinaus gibt es einige theoretische Vorhersagen bezüglich der Abhängigkeit des einfach differentiellen Wirkungsquerschnitts von der Photonenenergie und der Pulslänge. Diese sollen hier kurz skizziert werden.

Für die direkte Doppelionisation wird bei einer Annäherung der Photonenenergie an die Ionisationsschwelle des einfach geladenen Ions eine zunehmend asymmetrische Energieaufteilung der Elektronen vorhergesagt [13, 26]. Verantwortlich gemacht wird dafür wahlweise ein deutlicher Anstieg des sequentiellen Prozesses kurz unterhalb der Schwelle [26], oder die Absorption beider Photonen durch eines der beiden zu ionisierenden Elektronen, welches anschließend in einem Stoßprozess das zweite Elektron aus dem Potentialtopf „herauskickt“ [13]. Hierbei sei noch angemerkt, dass in [26] der prognostizierte Übergang ab einer Photonenenergie von 49 eV einsetzt, während sich in [13] der Prozess kontinuierlich über den Energiebereich hinzieht, in dem die direkte die sequentielle Doppelionisation überwiegt. Dies ist in Abbildung 2.7 dargestellt, in der für Photonenenergien von 40-46 eV die Energie eines der beiden Elektronen in Abhängigkeit des

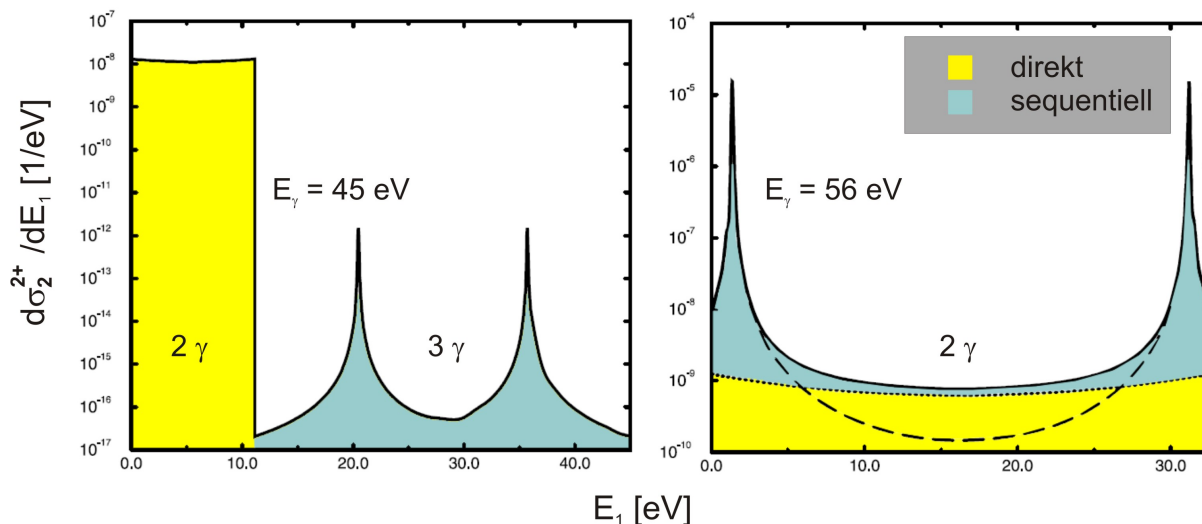


Abbildung 2.6: Elektronenenergiespektren bei dominanter direkter (links) / sequentieller (rechts) Doppelionisation (Quelle [25] geändert). Die Berechnung erfolgte mit einer Pulslänge von 50 fs und einer Intensität von 10^{11} W/cm^2 . Der verwendete Wirkungsquerschnitt entstammt einer LOPT-Rechnung. Die durchgezogene Linie im rechten Bild stellt die Summe aus direktem (gepunktet) und sequentiell (gestrichelt) Anteil dar.

Emissionswinkels des anderen Elektrons bei festgehaltenem Winkel des ersten aufgetragen wurde. Für die genaue Definition des dazu benötigten dreifach-differentiellen Wirkungsquerschnitts sowie der dabei auftretenden Winkel sei auf den nächsten Abschnitt verwiesen.

Für „kleine“ Pulslängen wird eine Korrelation der beiden bei der sequentiellen Doppelionisation emittierten Elektronen vorhergesagt [16]. Dies führt zu einem Energieaustausch zwischen den beiden Elektronen, wodurch die getrennten Maxima in der Elektronenenergieverteilung verschmieren. Um die Größenordnung der Pulslänge abzuschätzen, bei der ein solches Verhalten bei Helium zu erwarten ist, betrachtet man die beiden Elektronen als unabhängige Teilchen in einem Kernpotential mit $Z = 2$. Damit schätzt man die Gesamtbindungsenergie zu $E_{\text{Ges}} = 2 \cdot Z^2 \cdot E_{\text{Rydberg}} = 108,8 \text{ eV}$ ab. Die Differenz dieser Energie zur tatsächlichen Bindungsenergie der beiden Elektronen von $79,0 \text{ eV}$ lässt sich als Korrelationsenergie der beiden Elektronen im Grundzustand interpretieren. Mit der Heisenberg'schen Unschärferelation lässt sich damit die Größenordnung der zeitlichen Korrelation zu ca. 22 as abschätzen, was allerdings mit heutigen Verfahren experimentell nicht zugänglich ist.

Winkelverteilungen

Durch Erweiterung des im vorigen Abschnitt benutzten einfach-differentiellen Wirkungsquerschnitts bezüglich der Raumwinkel der beiden Kontinuumselektronen ergibt sich der dreifach-

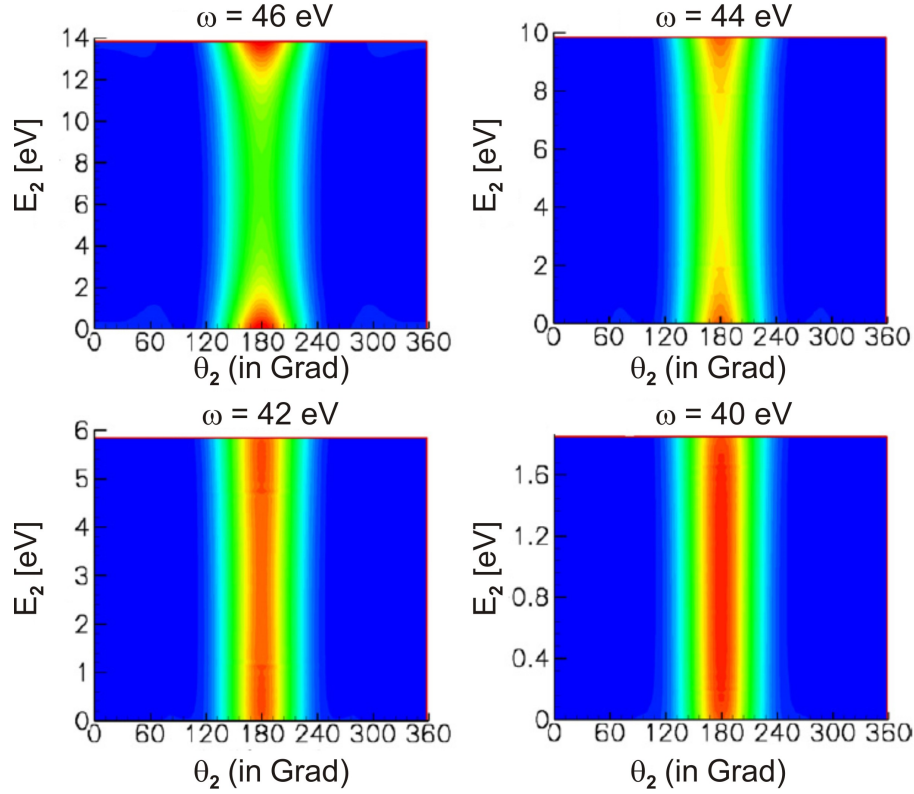


Abbildung 2.7: Dreidimensionale Darstellung des dreifach-differentiellen Wirkungsquerschnitts für verschiedene Photonenenergien, bei einem festen Polarwinkel des „ersten“ Elektrons von 0° . Die Projektion auf die y-Achse, die die Energie des zweiten Elektrons darstellt, ergibt einen einfach differentiiellen Wirkungsquerschnitt. Dieser zeigt mit steigender Photonenenergie eine immer ungleichere Aufteilung der Energie zwischen den beiden Kontinuumselektronen (Quelle [13]).

differentielle Wirkungsquerschnitt (TDCS):

$$\frac{d\sigma_2^{2+}}{dE_1 d\Omega_1 d\Omega_2} = \left(\frac{\omega}{I}\right)^2 \cdot \frac{1}{\tau} \sum_{k_1 k_2} \cdot \delta\left(k_2 - \sqrt{2(E - E_1)}\right) \times \left| \sum_{L=0,2} \sum_{l_1 l_2} (-i)^{l_1+l_2} \exp(i(\sigma_{l_1} + \sigma_{l_2})) P^L(k_1 l_1 k_2 l_2) Y_{l_1, l_2}^{L, M} \right|^2. \quad (2.15)$$

Hierbei wurde der Radialteil der beiden Elektronen durch Coulombfunktionen dargestellt, die z.B. in [27] definiert sind. σ_{l_1} und σ_{l_2} sind dementsprechend die zugehörigen Coulombphasen. Der Winkelanteil $Y_{l_1, l_2}^{L, M}$ wird wie zuvor durch gekoppelte Kugelflächenfunktionen beschrieben. Mit Hilfe dieses Ausdrucks lassen sich die Emissionswahrscheinlichkeiten der beiden Elektronen in Abhängigkeit ihrer Winkel untereinander und zur Polarisationsachse auftragen. Dies ermöglicht einen tieferen Einblick in die bei der Doppelionisation ablaufenden Prozesse, insbesondere was den Einfluß der gegenseitigen Abstoßung der beiden Elektronen angeht.

Um den Ausdruck (2.15) auswerten zu können, geht man meist von einer koplanaren Geometrie aus, d.h. von verschwindenden Azimutalwinkeln der beiden Elektronen $\phi_1 = \phi_2 = 0$. Für die direk-

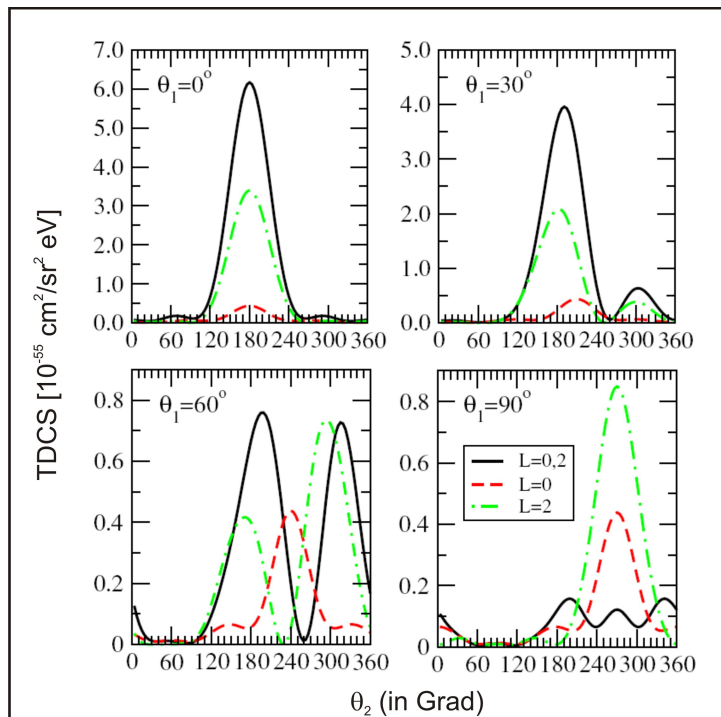


Abbildung 2.8: Dreifach-differentielle Wirkungsquerschnitte der direkten Zwei-Photonen Doppelionisation von Helium für verschiedene feste Polarwinkel des „ersten“ Elektrons in Abhängigkeit des Polarwinkels des zweiten Elektrons (Quelle [13] geändert). Die Energie ist gleichmäßig auf beide Elektronen verteilt. Bei der Berechnung wurde eine Photonenenergie von 42 eV, eine Pulslänge von 10 Laserzyklen und eine Intensität von $5 \cdot 10^{14} \text{W/cm}^2$ verwendet.

te Zwei-Photonen Doppelionisation von Helium ist eine so gewonnene Winkelverteilung für den Fall gleichmäßiger Aufteilung der Energie auf die beiden Elektronen in Abbildung 2.8 dargestellt. Dabei wurde jeweils der Polarwinkel θ_1 des „ersten“ Elektrons festgehalten und der Querschnitt für die Emission des „zweiten“ Elektrons in Abhängigkeit von dessen Polarwinkel θ_2 aufgetragen. Die Definitionsachse des Polarwinkels ist hierbei die Polarisationsachse des Strahlungsfeldes, das als linear polarisiert angenommen wird.

Die so erhalten Winkelverteilungen weisen eine maximale Emissionwahrscheinlichkeit für antiparallele Emission der beiden Elektronen entlang der Polarisationsachse auf. Dies stellt einen deutlichen Unterschied zur Ein-Photon Doppelionisation dar, bei der eine Polarwinkeldifferenz von 180° bei gleicher Energie der beiden Elektronen durch die $^1P^0$ Symmetrie des Endzustands verboten ist [1]. Da aber im vorliegenden Fall der Endzustand aus einer Mischung aus $^1S^e$ und $^1D^e$ Zuständen besteht, ist diese Einschränkung nicht mehr gegeben, so dass die gegenseitige Abstoßung der beiden Elektronen die Form der Winkelverteilung dominiert. Da der Endzustand durch kohärente Addition zweier Zustände entsteht, kommt es in den Winkelverteilungen zu Interferenzen. Um dies zu veranschaulichen, betrachtet man die Amplituden, die von Endzuständen mit $L = 0$ und $L = 2$ herrühren (in Abb. 2.8 rot bzw. grün dargestellt), getrennt voneinander.

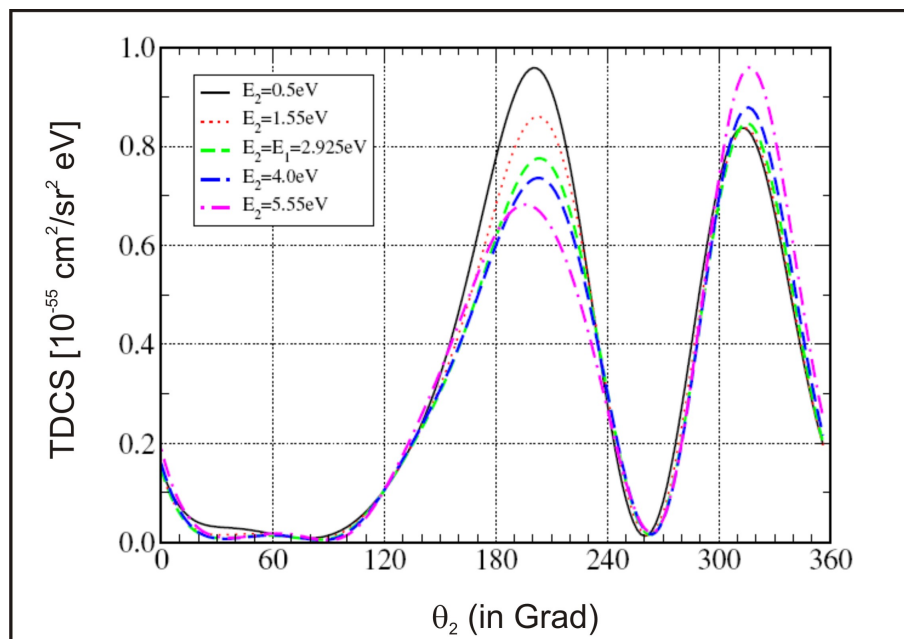


Abbildung 2.9: Dreifach differentieller Wirkungsquerschnitt wie in Abb. 2.8 bei einem Polarwinkel des „ersten“ Elektrons von 60° für verschiedene Aufteilungen der Energie zwischen den beiden Elektronen (Quelle [13] geändert).

Hierbei wird deutlich, dass das Minimum bei ca. 270° in der Winkelverteilung für $\theta_1 = 60^\circ$ durch destruktive Interferenz der beiden zu verschiedenen L-Werten gehörigen Amplituden entsteht. Bei asymmetrischer Energieaufteilung verändert sich lediglich die Höhe der Maxima in der Winkelverteilung, nicht aber deren grundsätzliche Form, was in Abbildung 2.9 aufgezeigt ist.

3 Experiment

Die genaue Untersuchung der im vorigen Kapitel aufgeführten Ionisationsmechanismen stellt im Rahmen eines Experiments hohe Anforderungen. Das Studium nichtlinearer Effekte, wie z.B. Zwei-Photonen-Prozesse erfordert große Spitzenintensitäten im Bereich von 10^{13} W/cm². Solche Intensitäten bieten derzeit nur optische Kurzpuls-Laser und Freie-Elektronen-Laser, wie der FLASH, der im ersten Abschnitt dieses Kapitels beschrieben wird. Um einen tieferen Einblick in die bei der Doppelionisation ablaufenden Mechanismen zu erhalten, sind winkelaufgelöste Messungen erforderlich. Idealerweise misst man dabei alle drei entstehenden Teilchen in Koinzidenz und gewinnt so ein Höchstmaß an Information. Diesem Gedanken folgend wurde bei dem hier vorgestellten Experiment ein Reaktionsmikroskop zur Messung verwendet, dessen Aufbau und Funktionsweise im zweiten Abschnitt dieses Kapitels erläutert werden.

3.1 Der Freie-Elektronen-Laser FLASH

Der **Freie-Elektronen-Laser** in **Hamburg** FLASH dient der Erzeugung hoch brillanter Strahlung im XUV-Bereich (20-200 eV Photonenenergie). Dieser besteht im wesentlichen aus 3 Teilen: einer gepulsten Elektronenquelle, einem Linearbeschleuniger und einer Undulatorstrecke. Als verstärkendes Medium dient ein relativistisches Elektronenpaket, das im Undulator transversal zu seiner Flugrichtung sinusförmig ausgelenkt wird. Im Unterschied zu Synchrotronquellen, bei denen auch Undulatoren zur Strahlungserzeugung eingesetzt werden, kann es beim FEL auf Grund der kleinen Emittanz¹ des Teilchenstrahls und des längeren Undulators (30 m) im Verlauf der Undulatorstrecke zu einer Wechselwirkung mit dem Strahlungsfeld kommen, die zu einer räumlichen Modulation des Elektronenpakets führt, und die einzelnen Elektronen kohärente Strahlung emittieren lässt.

3.1.1 Elektronenkanone und Linearbeschleuniger

Die benötigten Elektronenpakete werden in der Elektronenkanone mit Hilfe eines gepulsten Lasers erzeugt, der auf eine Cs₂Te - Photokathode gerichtet ist. Der ganze Aufbau befindet sich in einer supraleitenden Radiofrequenz (RF) - Kavität, die mit Feldstärken von ca. 40 MV/m die erzeugten Elektronen innerhalb kürzester Zeit auf relativistische Energien beschleunigt, und so verhindert, dass die gegenseitige Abstoßung zu einer Verbreiterung des Elektronenpakets führt².

Der sich anschließende Linearbeschleuniger besteht aus fünf 12 m langen Beschleunigungsmodulen, die jeweils wiederum aus 8 supraleitenden RF-Kavitäten aufgebaut sind und das Elektronen-

¹Emittanz - von den Strahlteilchen eingenommenes Phasenraumvolumen; Maß für die räumliche Ausdehnung des Strahls

²Bei relativistischen Energien erzeugen die parallelen Ströme anziehende magnetische Kräfte, die der gegenseitigen Abstoßung entgegenwirken.

3.1 Der Freie-Elektronen-Laser FLASH

paket auf bis zu 1 GeV weiter beschleunigen. Durch geeignete Wahl der Phase der Hochfrequenz-Spannung an den Resonatoren in Bezug zum Elektronenpaket lässt sich die Energieunschärfe der Elektronen weiter verringern. Zusätzlich befinden sich zwischen den Beschleunigungsmodulen Anordnungen zur Kompression der Elektronenpakete bzw. zur Steuerung der Dispersion.

Eine ausführliche Beschreibung der Elektronenkanone sowie des Linearbeschleunigers und der zugehörigen Elemente zur Strahloptik findet sich in [28].

3.1.2 Undulator

Ein Undulator ist eine lange periodische Anordnung kurzer Dipolmagnete alternierender Polarität (siehe Abbildung 3.1). Diese Anordnung führt bei einem durchlaufenden Elektron zu transversalen Oszillationen mit einer von der Undulatorperiode λ_u abhängigen Frequenz. Beachtet man die durch die relativistische Bewegung verursachte Längenkontraktion der Undulatorperiode und die relativistische Dopplerverschiebung, so erhält man für die Wellenlänge der emittierten Strahlung (Herleitung siehe [29]):

$$\lambda = \frac{\lambda_u}{2\gamma^2} \left(1 + \frac{K^2}{2} \right), \quad (3.1)$$

mit dem Lorentzfaktor γ und dem unter anderem vom Abstand der magnetischen Pole abhängigen Undulatorparameter K .

Da ein FEL seine besonderen Strahlungseigenschaften aus dem Energieaustausch des Strahlungsfeldes mit dem relativistischen Elektronenpaket bezieht, versucht man diesen zu maximieren. Dies führt einerseits zur Forderung nach einer möglichst großen Wechselwirkungszone zwischen Strahl und Feld, also möglichst paralleler Flugrichtung. Andererseits ist der Energieübertrag proportional zum Skalarprodukt zwischen dem Geschwindigkeitsvektor der Elektronen und dem Feldvektor des Strahlungsfeldes:

$$\frac{dE_e}{dt} = -e \vec{v}_e \cdot \vec{E} \quad (3.2)$$

Der Energieübertrag ist also nur für die transversale Komponente der Elektronengeschwindigkeit v_e nichtverschwindend. Da die Elektronen massebehaftete Teilchen sind und sich durch den vom Undulator aufgezwungenen Slalom nicht geradlinig bewegen, kommt es zu einer Phasenverschiebung zwischen ihnen und dem Strahlungsfeld. Die Phasenverschiebung pro Periode bezeichnet man dabei als Schlupf. Entspricht dieser Schlupf gerade einem Vielfachen der Undulatorperiode bleibt die Phase zwischen Transversalgeschwindigkeit des Elektronenpakets und Strahlungsfeld an den Stellen maximalen Energieübertrags konstant und der Energieaustausch wird optimal³. Als Phasenbedingung für optimalen Energietransfer vom Elektronenpaket zum Strahlungsfeld ergibt sich wieder Gleichung (3.1) (siehe [29]).

3.1.3 Der SASE Mechanismus

Die Gleichheit zwischen der intrinsischen Wellenlänge der Undulatorstrahlung und der Wellenlänge bei der der Energietransfer optimal wird, bildet die physikalische Grundlage für den

³Genau genommen ist der Energieübertrag in diesem Fall Null, da genausoviele Teilchen Energie gewinnen wie abgeben. Daher wählt man eine Wellenlänge die knapp überhalb der durch Gleichung (3.1) gegebenen Resonanzbedingung liegt. Effekte zweiter Ordnung sorgen dann für einen Energietransfer zum Strahlungsfeld.

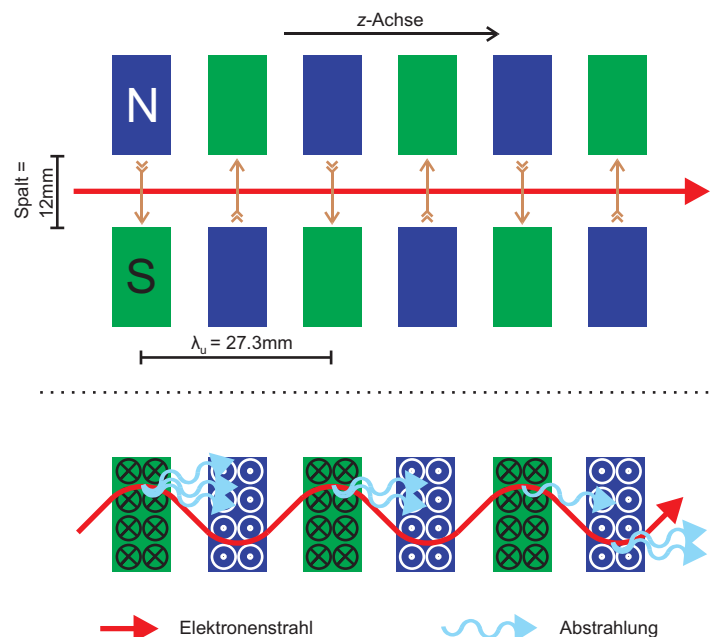


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung eines Teilabschnitts der insgesamt 30m langen FLASH-Undulatorstrecke in Seitenansicht (oben) und Aufsicht (unten). Die Amplitude der Transversalschwingung liegt in der Größenordnung von einigen Mikrometern (Quelle: [30]).

SASE⁴-Mechanismus. Dieser geht auf Arbeiten von J. Madey [31] zurück und beschreibt die Selbstverstärkung spontan erzeugter Strahlung in einem Undulator. Durch seinen Einsatz werden sogenannte Single-Pass FELs möglich deren Konzept zwei wesentliche Probleme bei der Konstruktion früherer FELs umgeht. Zum einen das Fehlen von Spiegeln ausreichend hoher Reflektivität im XUV-Bereich, was den Aufbau eines Resonators erschwert oder gar nicht möglich macht, und zum anderen das Fehlen geeigneter Lichtquellen deren Photonen als Keim für ein zu verstärkendes Strahlungsfeld dienen könnten⁵. Stattdessen wird die im ersten Teil der Undulatorstrecke die durch Rauschen verursachte spontane Emission als Keim verwendet, wobei man ausnutzt, dass nur solche Wellenlängen verstärkt werden, die in der Nähe der intrinsischen Wellenlänge der Undulatorstrahlung liegen. Das so entstandene Feld moduliert im weiteren Verlauf der Undulatorstrecke das Elektronenpaket in longitudinaler Richtung (siehe Abb. 3.2), da jene Elektronen die Energie an das Feld abgeben weiter ausgelenkt werden, als diejenigen, die Energie gewinnen. Dadurch sammeln sich die Elektronen in der Nähe der Punkte im Elektronenpaket, an denen der Energieübertrag aus Gleichung (3.2) maximal ist. Diese Dichtemodulation in longitudinaler Richtung führt zu einer Verstärkung des Feldes, da die Strahlungsfelder der einzelnen Elektronen nicht mehr wie im Falle einer gleichmäßigen räumlichen Verteilung paarweise destruktiv interferieren. Durch das Anwachsen des Feldes wiederum kommt es zu einer stärkeren Komprimierung der Elektronen an den Punkten maximalen Energieübertrags, wobei

⁴SASE - self-amplified spontaneous emission

⁵Hier könnte man inzwischen höhere Harmonische von Lasern benutzen, bei deren Erzeugung in den letzten Jahren große Fortschritte gemacht wurden [32].

3.1 Der Freie-Elektronen-Laser FLASH

man die entstehenden Teilabschnitte des Elektronenpakets als Mikropakete bezeichnet. Dieser sich dadurch selbst verstärkende Effekt führt zu einem exponentiellen Anwachsen der Intensität bis eine Sättigung eintritt [33].

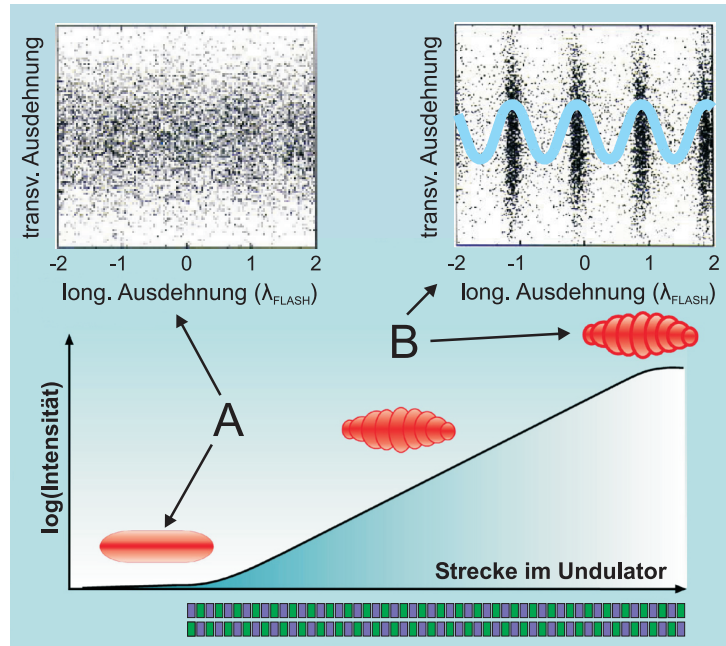


Abbildung 3.2: Ausbildung der räumlichen Modulation in Abhängigkeit der Undulatorstrecke. Das in Punkt A noch homogene Elektronenpaket erreicht im Sättigungspunkt B, der hier aus rein ästhetischen Gründen auf das Ende des Undulators fällt, seine maximale räumliche Modulation. Die Anzahl der tatsächlichen Ladungsmaxima beträgt typischerweise mehrere Tausend. (Quelle: [30])

Unterschreitet die Ausdehnung der einzelnen Mikropakete die Wellenlänge der emittierten Strahlung, so wirken sie nach außen wie ein einzelnes strahlendes Teilchen vielfacher Ladung. In der Formel für die abgestrahlte Leistung tritt, auf Grund dieser räumlich kohärenten Abstrahlung, die Anzahl der Elektronen eines Mikropakets N_e als zusätzlicher Faktor auf,

$$P_\gamma(N_e) \propto N_e e^2 \gamma^4 \dot{v}_t^2 \longrightarrow P_\gamma(N_e) \propto (N_e e)^2 \gamma^4 \dot{v}_t^2 = N_e^2 e^2 \gamma^4 \dot{v}_t^2, \quad (3.3)$$

wobei \dot{v}_t für die vom Undulator verursachte transversale Geschwindigkeit der Elektronen steht. Ein wichtiger Parameter ist in diesem Zusammenhang die Verstärkungslänge L_G des Undulators, also die Strecke, auf der die Intensität um den Faktor e ansteigt:

$$L_G = \frac{\lambda_u}{2\sqrt{3}\pi\rho}, \quad (3.4)$$

mit dem FEL-Parameter $\rho \propto \frac{n_e^{1/3}}{\gamma}$, der unter Anderem wieder von der Teilchendichte des Elektronenpakets n_e und dem Lorentzfaktor abhängig ist. Um also eine möglichst kurze Verstärkungslänge und damit Undulatorlänge bei gegebener Teilchenenergie zu erreichen, benötigt man

große Teilchen- bzw. Stromdichten in der Größenordnung von mehreren 1000 A. Gleichzeitig muß der Überlapp zwischen Strahlungsfeld und Elektronenpaket auch für hohe Teilchenenergien und große Undulatorlängen ausreichend gut sein, d.h. die Emittanz des Strahls darf nicht zu groß werden, da ansonsten der Energieübertrag nicht mehr ausreichend gegeben ist. Zusätzlich muß, um Sättigung erreichen zu können, die Energieverteilung des Teilchenstrahls sehr schmal sein, im Bereich von 0,01% [4]. Diese Voraussetzungen (Herleitung siehe [33]) sind für Wellenlängen im XUV-Bereich momentan nur mit einem Linearbeschleuniger zu erfüllen.

3.2 Das Reaktionsmikroskop

Reaktionsmikroskope wurden entwickelt, um die Impulsbestandteile der bei atomaren und molekularen Fragmentationen auftretenden geladenen Teilchen kinematisch vollständig zu vermessen. Das bedeutet, sie ermöglichen den Nachweis aller an der Reaktion beteiligten Teilchen bei gleichzeitiger Messung aller Impulsbestandteile. Dies wird realisiert durch Kombination eines Rückstoßionen-Spektrometers und eines Elektronenspektrometers. Das Spektrum der untersuchten Prozesse reicht von Ionen- oder Elektronenstößen mit verschiedenen Targets, über Elektroneneinfangreaktionen bei Ion-Atom-Stößen bis hin zu Photon-induzierten Ionisationsprozessen. Als Target dienen üblicherweise Atome, Moleküle oder Cluster aus Überschall-Gasjets⁶, die durch Wechselwirkung mit dem gepulsten Projektilstrahl ionisiert werden und deren Fragmente anschließend nachgewiesen werden. Durch die geschickte Kombination elektrischer und magnetischer Felder wird eine Raumwinkelakzeptanz von nahezu 4π sowohl für Ionen, als auch für Elektronen erreicht. Dies macht sie zu einem vielseitigen und vielfach verwendeten Instrument in der Atomphysik [8].

3.2.1 Aufbau und Funktionsweise

Gastarget

Da bei typischen Reaktionen die zu messenden Impulse der erzeugten Ionen in der Größenordnung von einer atomaren Einheit liegen, und damit die Energien im meV-Bereich, die mittlere kinetische Energie von Gasen bei Raumtemperatur aber bei ca. 40 meV liegt, ist ein kaltes Target Grundvoraussetzung für die Durchführbarkeit von Rückstoßionen-Impulsspektroskopie. Außerdem sollte die Ausdehnung der Wechselwirkungszone möglichst gering sein, da die vom Extraktionsfeld aufgenommene kinetische Energie abhängig vom Startpunkt ist. Dies führt zur Verwendung von Überschall-Gasjets, deren Funktionsweise hier nur skizziert werden soll. Für eine ausführliche Darstellung sei auf die Spezialliteratur [35] verwiesen. Die auf diese Weise erreichbaren Targettemperaturen liegen im Bereich von einem Kelvin oder weniger. Die Kühlung des Targetgases erfolgt durch die Umwandlung thermischer Energie in gerichtete Bewegung bei der adiabatischen Expansion eines Gases durch eine Düse, wobei Druckunterschiede vor und hinter der Düse von sechs Größenordnungen und mehr typisch sind. Da die Expansion adiabatisch erfolgt, ist per Definition die Entropie erhalten und damit auch die Zustandsdichte. Daher führt die Abnahme der räumlichen Dichte zu einer Erhöhung der Dichte im Impulsraum also einer Ab-

⁶Es werden aber auch z.B. Magneto-Optical-Traps (MOT) [34] als Target verwendet.

3.2 Das Reaktionsmikroskop

nahme der Temperatur. Da die thermische Energie in gerichtete Bewegung in Expansionsrichtung fließt, entsteht darüberhinaus ein Teilchenstrahl geringer Divergenz.

Die erreichbare Abkühlung hängt von dem Produkt aus Vordruck und Düsendurchmesser sowie der Temperatur des Gases vor der Expansion ab. Durch mehrere Skimmer und Blenden wird die Breite der Impulsverteilung in transversaler Richtung weiter verringert. Eine weitere wichtige experimentelle Größe, die Targetdichte, bestimmt sich durch die Druckdifferenz vor und nach der Düse.

Eine Besonderheit des bei diesem Experiment verwendeten Aufbaus ist die große Anzahl an differentiellen Pumpstufen; sechs an der Zahl, zwischen Jet-Düse und Hauptkammer. Sie ermöglichen es trotz eines Vordrucks von bis zu 18 bar ein Vakuum im Bereich von 10^{-12} mbar in der Hauptkammer zu halten. Dieses extreme Vakuum ist erforderlich, um den Untergrund durch die Ionisierung des Restgases möglichst gering zu halten.

Spektrometer

Aufbau und Funktionsweise des Spektrometers sind in Abbildung 3.3 dargestellt. In der Mitte des Spektrometers, im Kreuzungspunkt von Gasjet und Projektilstrahl, entstehen bei Reaktionen geladene Fragmente, deren Impulse Informationen über die abgelaufene Reaktion enthalten. Entlang der Spektrometerachse erzeugen koaxial angeordnete Metallringe, die über eine Widerstandskette verbunden sind, ein homogenes elektrisches Feld, das die erzeugten Fragmente entsprechend ihrer Ladung auf einen der beiden zweidimensional ortsauflösenden Detektoren beschleunigt. Mit Hilfe des Auftreffortes sowie der Flugzeit vom Wechselwirkungspunkt zum Detektor lassen sich die drei Impulskomponenten eines Fragments berechnen (Details siehe Abschnitt 3.2.2). Für die Bestimmung der Flugzeit benötigt man ein Triggersignal, das in eindeutiger Weise mit dem Wechselwirkungszeitpunkt zusammenhängt. Im beschriebenen Experiment wird dieses von einem Faraday-Cup erzeugt, welcher in Strahlrichtung hinter dem Spektrometer sitzt und die einzelnen Pulse des FLASH in Spannungssignale verwandelt.

Bei den Ionen ermöglicht die Abhängigkeit der Flugzeit vom Ladungs-zu-Masse Verhältnis zusätzlich eine Trennung der Ionensorten. Voraussetzung dafür ist, dass sich die Flugzeit verschiedener Ionen signifikant unterscheidet. Dies ist gleichbedeutend mit der normalerweise sehr gut erfüllten Bedingung, dass die kinetische Energie, die das Ion im Extraktionsfeld des Spektrometers aufgenommen hat, wesentlich größer ist, als die Energie, die im eigentlichen Reaktionsprozess übertragen wurde. Ferner vergrößert das angelegte elektrische Feld die Raumwinkelakzeptanz, die außer von der anliegenden Extraktionsspannung, bei Ionen vor allem von der Größe des Detektors abhängt.

Bei Elektronen ergäbe ein elektrisches Feld alleine nur eine „sehr geringe“ Raumwinkelakzeptanz ergeben, es sei denn man würde die Extraktionsspannung stark erhöhen, was jedoch zu Lasten der Impulsauflösung der Ionen gehen würde (siehe Abschnitt 3.2.3). Daher überlagert man dem elektrischen Feld ein von zwei Helmholtzspulen außerhalb der Vakuumkammer erzeugtes schwaches Magnetfeld (Größenordnung 10 Gauß), welches die Elektronen auf eine Spiralbahn zwingt, womit man sicherstellt, dass möglichst alle erzeugten Elektronen auf dem Detektor landen. Die Ionen werden auf Grund ihrer größeren Masse von dem Magnetfeld nur sehr schwach beeinflusst. Um den Einfluß der räumlichen Ausdehnung der Wechselwirkungszone auf die Impulsauflösung zu verringern, folgt auf die Beschleunigungsstrecke normalerweise (siehe z.B. [36]) eine feldfreie

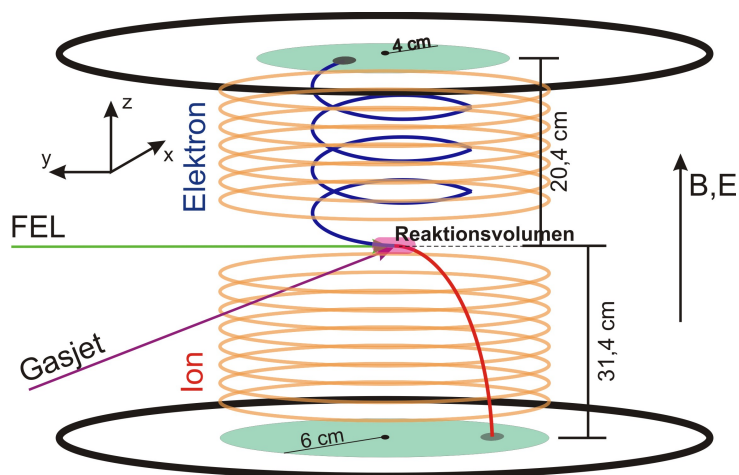


Abbildung 3.3: Schematischer Aufbau eines Reaktionsmikroskops. Die Helmholtzspulen und die Metallringe des Spektrometers sind durch schwarze sowie orangene Ellipsen angedeutet. Das Reaktionsvolumen besitzt durch den kleinen Fokus des FEL-Strahls von $30 \mu\text{m}$ nur in y -Richtung eine relevante Ausdehnung, die durch die Breite des Jets von ca. 1 mm gegeben ist.

Driftregion, deren Länge durch eine Zeitfokussierungsbedingung [37] festgelegt ist. Bedingt durch den kleinen Fokus des FEL-Lichts ist die Wechselwirkungszone jedoch so klein, dass beim vorliegenden Experiment auf eine solche Strecke verzichtet werden konnte.

Detektoren

Um sowohl die Flugzeit, als auch den Auftreffort eines vom Spektrometer kommenden, geladenen Teilchens zu bestimmen, wird dieses vom Detektor zunächst mit Hilfe eines Microchannelplates (MCP) verstärkt. Ein MCP besteht aus einer ca. 1 mm dicken Glasplatte durch die parallel angeordnete Kapillaren von jeweils $10\text{-}100 \mu\text{m}$ Durchmesser führen. Seine Vorder- und Rückseite ist mit einer niederohmigen Substanz beschichtet, so dass zwei Äquipotentialflächen entstehen, zwischen denen eine Hochspannung im kV-Bereich angelegt wird. Die Primärteilchen lösen in der Kapillare Sekundärelektronen aus, die durch diese Spannung beschleunigt werden. Die am Ende der Kapillare austretende Elektronenwolke ist räumlich und zeitlich begrenzt.

Da die in der Kapillare beschleunigten Elektronen nicht nur Sekundärelektronen auslösen, sondern auch Restgasteilchen ionisieren können, welche dann auf Grund ihrer positiven Ladung in die andere Richtung beschleunigt werden, verlaufen die einzelnen Kapillaren leicht verkippt gegenüber der Flächennormalen durch die Glasplatte. Die entlang der Flächennormalen beschleunigten Ionen treffen dadurch schon nach kurzer Beschleunigungsstrecke auf eine Kapillarwand, so dass sie weder weitere Ionen erzeugen, noch das Channelplate in Richtung des Spektrometers verlassen. Aus dem Zeitpunkt des durch die Verstärkung der Elektronen verursachten Spannungsabfalls am Channelplate t_{MCP} , lässt sich zusammen mit dem Triggersignal t_{Trigger} (siehe voriger Abschnitt), die Flugzeit t_{ToF} des ursprünglichen Teilchens bestimmen:

$$t_{\text{ToF}} = t_{\text{MCP}} - t_{\text{Trigger}}. \quad (3.5)$$

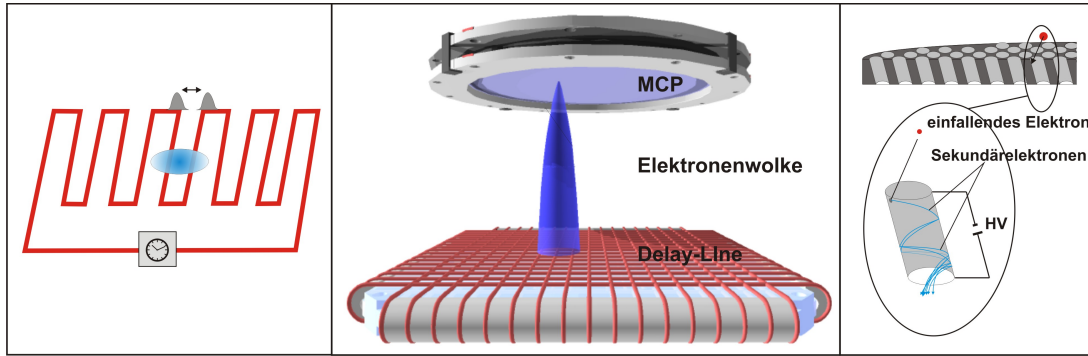


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Funktionsweise eines Detektors. (rechts) Verstärkung eines einfallenden Teilchens in einer Kapillare des Channelplates. Die entstehende Elektronenwolke löst in der Delay-Line Anode einen Spannungspuls aus (Mitte) [38], der zu den beiden Drahtenden wandert wo er jeweils ausgelesen wird (links). Durch den Vergleich der Ankunftszeiten ergibt sich die gewünschte Ortsinformation.

Um den Auftreffort des ursprünglichen Teilchens auf dem Channelplate zu bestimmen, ermittelt man den Austrittsort der Elektronenwolke an der Rückseite des Channelplates. Dies geschieht mit Hilfe einer Delay-Line Anode, welche im wesentlichen aus langen Drähten besteht, die um eine Keramikhalterung gewickelt sind. In diesen Drähten wird durch die vorbeifliegende Elektronenwolke ein Spannungssignal ausgelöst, welches vom Entstehungspunkt aus zu den Endpunkten des Drahtes läuft, wo es jeweils ausgelesen wird. Pro Richtung sind dabei jeweils zwei Drähte so parallel gewickelt, dass die einzelnen Drähte sich nicht kontaktieren. Zwischen den beiden Drähten jeder Richtung liegt eine kleine Spannung an, so dass nur einer der beiden Drähte, die Elektronen aufammelt. Der zweite Draht jeder Richtung dient als Referenz, der durch Bildung des Differenzsignals eine Unterdrückung des intrinsischen Rauschens der Spannungsmessung ermöglicht.

Da die Ausbreitungsgeschwindigkeit der Signale innerhalb eines Drahtes konstant ist lässt sich aus der Differenz der Ankunftszeiten der beiden Signale an den Drahtenden die Koordinate des Auftrefforts der Elektronenwolke berechnen:

$$x \propto (t_{x1} - t_{MCP}) - (t_{x2} - t_{MCP}). \quad (3.6)$$

Dabei bezeichnen t_{x1} und t_{x2} die beiden Ankunftszeiten des Spannungssignals an den beiden Enden des Drahtes der x-Richtung, wobei die Berechnung in y-Richtung entsprechend erfolgt. Die Umrechnung der Koordinate von einer Zeit- in eine Ortsskala erfolgt mit Hilfe eines konstanten Faktors, der sich aus der Größe des Detektors und der Gesamtzeit ergibt, die ein Signal benötigt, um von einem Ende des Drahtes einer Richtung zum anderen zu gelangen.

Die Bestimmung der Flugzeit sowie des Ortes eines detektierten Teilchens ist problemlos möglich, solange der zeitliche Abstand zwischen zwei auf dem Detektor auftreffenden Teilchen größer als die Laufzeit der Signale in den Delay-Line Drähten ist. Unterschreitet der Abstand diese Grenze können zwei Dinge eintreten. Erstens können die Delay-Line Signale verschiedener Teilchen an den beiden Drahtenden in unterschiedlicher Reihenfolge ankommen. Zweitens können zwei

Signale verschiedener Teilchen so nahe beieinander liegen, dass sie vom Datenaufnahmesystem nicht mehr getrennt werden können. Um trotzdem die tatsächliche Flugzeit und den richtigen Ort eines Teilchens berechnen zu können, müssen daher zunächst die fünf zusammengehörigen Signale eines Teilchens (ein MCP- und vier Delay-Line-Signale) gefunden werden. Dazu nutzt man aus, dass für den Delay-Line Draht jeder Richtung die Summe der Laufzeiten der Signale zu den beiden Drahtenden für alle detektierten Teilchen einen festen Wert hat. In x-Richtung lässt sich dies folgendermaßen ausdrücken:

$$t_{\text{xsum}} = (t_{x1} - t_{\text{MCP}}) + (t_{x2} - t_{\text{MCP}}) = \text{const.} \quad (3.7)$$

Ausgehend von einem MCP-Signal lassen sich daher die zugehörigen Delay-Line Signale durch Überprüfung der Zeitsumme zu einem Teilchen zuordnen. Da man bei diesem Zuordnungsprozess verhindern will, dass es zu falschen Zuordnungen kommt, verwendet man jedes Signal nur einmal. Können daher die Signale zweier Teilchen nicht mehr voneinander getrennt werden, lassen sich nur für eines der beiden alle notwendigen Signale zur Impulsberechnung finden. Das andere Teilchen geht verloren.

3.2.2 Berechnung der Impulse

Neben der gemessenen Ortsinformation und der Flugzeit benötigt man zur Rekonstruktion des Impulses des jeweiligen Teilchens nur noch die genauen Maße des Spektrometers, die am Spektrometer angelegte Spannung und für die Elektronen die Stärke des Magnetfeldes. Die zur Bestimmung der Impulskomponenten benötigten Formeln für ein Spektrometer ohne Driftstrecke sollen in diesem Abschnitt vorgestellt werden. Sie sind unterteilt in Formeln für Ionen und Elektronen, sowie Impulse in Flugzeitrichtung (longitudinal) und senkrecht dazu (transversal). Für ein Spektrometer mit Driftstrecke sei auf [36] verwiesen.

Ionen longitudinal

Ein im Wechselwirkungspunkt entstehendes Ion erhalte durch die Reaktion einen Impuls in Flugzeitrichtung p_{\parallel} und damit eine Energie $E_{\parallel} = p_{\parallel}^2/2m$. Das in Flugzeitrichtung anliegende elektrische Feld führt zu einer Beschleunigung in longitudinaler Richtung, welche bei der Wahl des Koordinatensystems wie in Abb. 3.3 auf die z-Richtung fällt.

$$\ddot{z} = \frac{qU}{ma}, \quad (3.8)$$

wobei a für die Länge der Beschleunigungsstrecke und U für das zwischen Wechselwirkungspunkt und Endpunkt der Beschleunigungsstrecke anliegende Potential stehen. Integriert man zweimal über die Zeit und setzt für den sich ergebenden Ort $z(t)$ den Endpunkt der Beschleunigungsstrecke ein, so ergibt sich für die Flugzeit, eines Ions vom Wechselwirkungspunkt zum Detektor:

$$t_{+/-}(E_{\parallel}) = f \cdot \sqrt{M} \cdot \frac{2a}{\sqrt{E_{\parallel} + qU} \pm \sqrt{E_{\parallel}}} \quad \text{mit } f = 719,9 \frac{\text{ns}}{\text{cm}} \sqrt{\frac{\text{eV}}{\text{amu}}}, \quad (3.9)$$

wobei das „+“-Zeichen für Ionen steht die sich nach der ursprünglichen Reaktion auf den Detektor zubewegen und das „-“ entsprechend für Ionen die sich vom Detektor wegbewegen. Der

3.2 Das Reaktionsmikroskop

konstante Faktor f entsteht durch die Transformation der Einheiten, wobei diese so gewählt sind, dass die Masse M des Ions in atomaren Masseneinheiten ($1 \text{ amu} = \frac{1}{12} C^{12}$) einzusetzen ist. Dementsprechend sind die Energien E_{\parallel} und qU in eV und die Beschleunigungsstrecke a in cm angegeben.

Da in guter Näherung gilt, dass die aus dem Feld aufgenommene Energie qU deutlich größer als die ursprüngliche Energie E_{\parallel} ist, lässt sich die Flugzeit um $E_{\parallel} = 0$ entwickeln. Dadurch kann man die Zeitdifferenz zu Ionen mit $E_{\parallel} = 0$ folgendermaßen annähern:

$$\Delta t = t(E_{\parallel}) - t(E_{\parallel} = 0) \approx \left[\frac{dt(E_{\parallel})}{dE_{\parallel}} \cdot \frac{dE_{\parallel}}{dp_{\parallel}} \right]_{p_{\parallel}=0} \cdot p_{\parallel} \quad (3.10)$$

Mit Hilfe von Gleichung (3.9) ergibt sich für den longitudinalen Impuls in atomaren Einheiten [8]:

$$p_{\parallel} = \left(8,04 \cdot 10^{-3} \frac{\text{a.u.} \cdot \text{cm}}{\text{eV} \cdot \text{ns}} \right) \cdot \frac{qU}{a} \cdot \Delta t. \quad (3.11)$$

Anhand dieser Gleichung wird der Vorteil der vorherigen Entwicklung deutlich. Für die Berechnung des Longitudinalimpulses p_{\parallel} wird nur die Zeitdifferenz relativ zu Ionen mit Longitudinalimpuls $p_{\parallel} = 0$ benötigt, die leicht aus dem Mittelwert der zeitlichen Verteilung für die jeweilige Ionensorte ermittelt werden kann (siehe Abb. 3.5). Die geringe Genauigkeit der absoluten Zeitmessung, bedingt durch nicht genau bekannte Laufzeiten der Signale und ihrer Verzögerung in elektronischen Bauteilen, mindert daher nicht die erreichbare Auflösung.

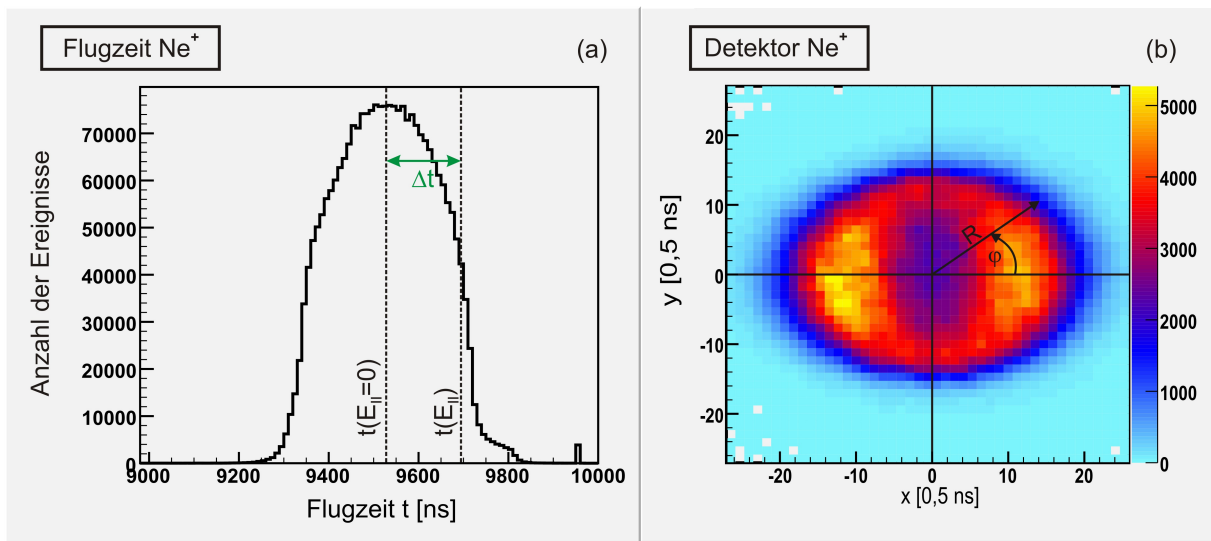


Abbildung 3.5: (a) Flugzeitspektrum der Ne^+ -Ionen. Dargestellt ist die Ermittlung der Zeitdifferenz Δt , die zur Bestimmung des Impulses in Flugzeitrichtung benötigt wird. Die auf der Flugzeitachse aufgetragene Zeit entspricht dabei nicht der totalen Flugzeit des Teilchens, sondern dem Abstand zum nächstgelegenen Signal eines Mikropaketes (siehe Kapitel 4). Die totale Flugzeit ergibt sich durch Addition eines Vielfachens des Abstandes zweier Mikropakete. (b) Ortspektrum von Ne^+ -Ionen, wobei sich die eingezeichneten Größen R und φ auf die Berechnung der Impulse beziehen.

Ionen transversal

In Transversalrichtung findet keinerlei Beschleunigung statt. Daher hängt der in dieser Richtung zurückgelegte Weg bezüglich des Wechselwirkungspunktes allein von der ursprünglichen Energie in transversaler Richtung E_{\perp} und der Flugzeit zum Detektor ab. Das Bild des Wechselwirkungspunktes fällt aus Symmetriegründen mit dem Schwerpunkt der Verteilung auf dem Detektor zusammen. Für den Abstand R zum Schwerpunkt der Verteilung in der Detektorebene ergibt sich also:

$$R = \frac{1}{f} \cdot \frac{\sqrt{E_{\perp}}}{M} \cdot t(E_{\parallel}). \quad (3.12)$$

Setzt man in diesen Ausdruck für die absolute Flugzeit die aus Gleichung (3.9) ermittelte mittlere Flugzeit $t(E_{\parallel} = 0)$ ein, so erhält man für den Impuls in Transversalrichtung:

$$p_{\perp} = \left(11,6 \frac{\text{a.u.}}{\text{amu eV}}\right) \cdot \frac{R}{2a} \cdot \sqrt{qU \cdot M}. \quad (3.13)$$

Die Ersetzung von $t(E_{\parallel})$ durch die mittlere Flugzeit folgt dem selben Argument bezüglich des Verhältnisses der vom Feld aufgenommenen und der in der Reaktion übertragenen Energie wie im vorherigen Abschnitt.

Zusätzlich lässt sich durch die Messung der beiden unabhängigen Ortskoordinaten des Detektors der Azimutalwinkel φ in der Detektorebene bestimmen. Mit Hilfe dieses Winkels und dem Betrag des Impulses p_{\perp} lässt sich der Impuls in der Detektorebene in Polarkoordinaten darstellen.

Elektronen transversal

Auf Grund ihrer kleineren Masse werden Elektronen durch das magnetische Feld B wesentlich stärker abgelenkt als Ionen. Das in longitudinaler Richtung anliegende Magnetfeld zwingt sie auf Zyklotronbahnen mit der Frequenz $\omega_c = eB/m$ in der transversalen Ebene. Die Berechnung der Impulskomponenten erfolgt wieder in Polarkoordinaten (p_{\perp}, φ) .

Ausgehend vom Wechselwirkungspunkt starten die Elektronen ihre Zyklotronbewegung mit dem zu bestimmenden Anfangsimpuls p_{\perp} . Dieser bestimmt den Radius r der Zyklotronbahn:

$$r = \frac{p_{\perp}}{eB}. \quad (3.14)$$

Da dieser experimentell nicht zugänglich ist, muß er indirekt über den Abstand R zwischen Auftreffort des Elektrons auf dem Detektor und dem Bild des Wechselwirkungspunktes bestimmt werden, wobei das Bild des Wechselwirkungspunktes im Allgemeinen auf Grund von Symmetrieüberlegungen wieder mit dem Schwerpunkt des Detektorbildes zusammenfällt. Der Auftreffort ist abhängig von dem während der Flugzeit t durchlaufenen Rotationswinkel:

$$\alpha = \omega_c t = \frac{eB}{m} t. \quad (3.15)$$

Mit Hilfe der aus der Geometrie bekannten Formel für die Länge einer Kreissehne [39] (hier R genannt) in Abhängigkeit vom Radius r und dem Mittelpunktswinkel α ergibt sich:

$$\left| \sin\left(\frac{\alpha}{2}\right) \right| = \frac{R}{2r} \quad \Rightarrow \quad r = \frac{R}{2 \left| \sin\left(\frac{\omega_c t}{2}\right) \right|}. \quad (3.16)$$

3.2 Das Reaktionsmikroskop

Was schließlich durch Einsetzen der Gleichungen (3.14) und (3.15) den ursprünglichen transversalen Impuls in atomaren Einheiten ergibt:

$$p_{\perp} = \left(8,04 \cdot 10^{-3} \frac{\text{a.u.}}{\text{mm Gauß}} \right) \frac{R B}{2 \left| \sin \left(\frac{\omega_c t}{2} \right) \right|}. \quad (3.17)$$

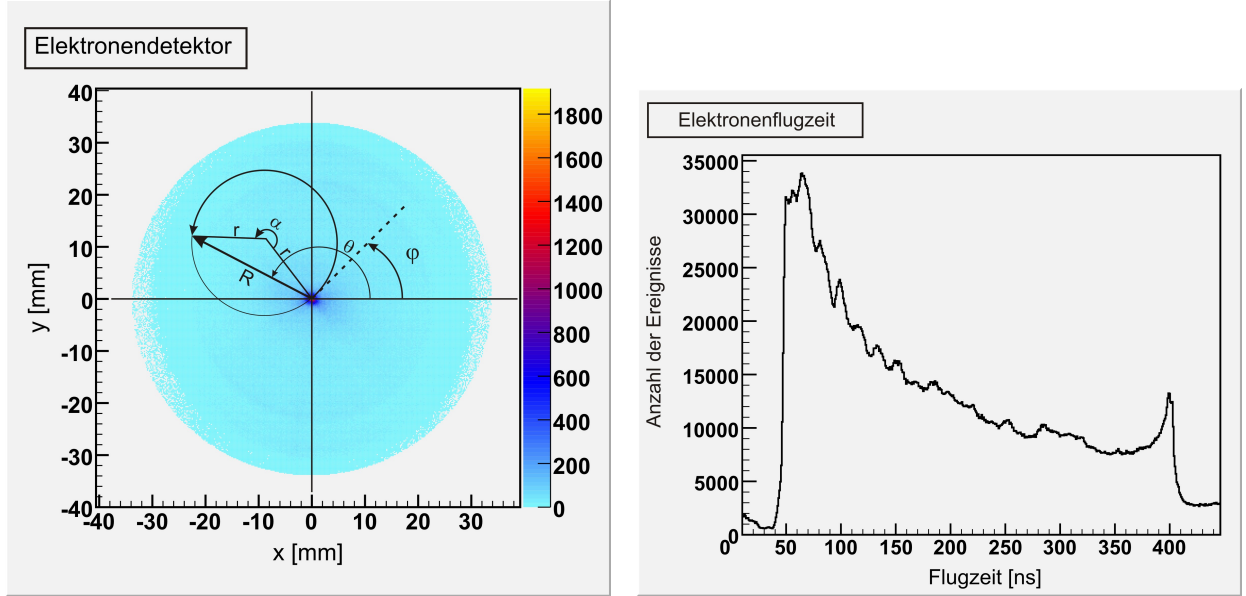


Abbildung 3.6: Ortspektrum und Flugzeit der bei der Photoionisation (Photonenenergie 44 eV) von Neon entstehenden Elektronen. Die im Ortspektrum eingezeichneten Größen beziehen sich auf die Impulsberechnung (siehe Text).

Um neben dem Betrag des Transversalimpulses auch seine Richtung zu erhalten, benötigt man noch den ursprünglichen Emissionswinkel φ zu einer beliebigen Bezugsachse in der Detektorebene. Dazu ermittelt man den Winkel θ , der von der Position R des Teilchens auf dem Detektor und der Bezugsachse eingeschlossen wird (siehe Abb. 3.6). Ausgehend von diesem Winkel dreht man um den insgesamt in der Flugzeit t zurückgelegten Drehwinkel α zurück und erhält somit:

$$\varphi = \theta \pm \alpha = \arctan \left(\frac{y}{x} \right) \pm \frac{\omega_c t}{2}, \quad (3.18)$$

wobei das Vorzeichen des Winkels α durch den vom Magnetfeld vorgegebenen Drehsinn in der Detektorebene bestimmt ist. Als Bezugsachse für den Winkel θ wurde hierbei die x-Achse des Detektors gewählt.

Es gilt zu beachten, dass Elektronen deren Flugzeiten einem ganzzahligen Vielfachen der Zyklotronperiode $2\pi/\omega_c$ entsprechen, unabhängig von ihrem Anfangsimpuls in das Bild des Wechselwirkungspunktes auf dem Detektor abgebildet werden. Für diese Elektronen geht jedwede transversale Impulsaufösung verloren.

Sowohl für den Betrag als auch den Winkel des Impulses benötigt man die absolute Flugzeit des Elektrons. Deren Bestimmung wird durch die Periodizität der Elektronenbewegung möglich.

Dabei nutzt man aus, dass die Elektronen für Flugzeiten, die einem Vielfachen der Zyklotronperiode entsprechen in den Wechselwirkungspunkt auf dem Detektor abgebildet werden. Trägt man daher z.B. R gegen die Flugzeit auf, so lässt sich anhand der Punkte minimaler transversaler Ausdehnung, den sogenannten „wiggles“, die Zyklotronperiode bestimmen. Da ein Elektron zur Flugzeit Null ebenfalls im Wechselwirkungspunkt gestartet ist, muss dieser Zeitpunkt ebenfalls auf einen „wiggles“ fallen. Kennt man daher die Flugzeit bis auf eine Zyklotronperiode genau, lässt sich die absolute Flugzeit mit einer Genauigkeit bestimmen, die der der Messung der Zyklotronfrequenz entspricht. Bei typischen Zyklotronfrequenzen im Bereich von 30 ns ist diese Anfangsvoraussetzung leicht gegeben.

Elektronen longitudinal

Da das Magnetfeld bei gewählter Geometrie die Elektronenbewegung in longitudinaler Richtung nicht beeinflusst, wird für die Berechnung des Longitudinalimpulses, wie bei den Ionen auch, nur die Flugzeit benötigt. Die für Ionen gemachte Näherung, dass die vom Feld aufgenommene Energie wesentlich größer ist als die bei der Reaktion übertragene Energie, ist nicht mehr gültig. Man löst daher Gleichung (3.9) nach E_{\parallel} auf und erhält damit für den Impuls in atomaren Einheiten:

$$p_{\parallel} = \left(0,457 \cdot \frac{\text{a.u. ns}}{\text{mm}}\right) \frac{a}{t} - \left(80,4 \cdot 10^{-3} \frac{\text{a.u. mm}}{\text{ns eV}}\right) \frac{qU}{a}, \quad (3.19)$$

wobei a wieder die Beschleunigungsstrecke und t Flugzeit des Elektrons darstellen.

3.2.3 Auflösung und Akzeptanz

Die erreichbare Auflösung des Spektrometers wird im wesentlichen durch die Targettemperatur, sowie die Unsicherheit bei der Orts- und Zeitmessung bestimmt. Die Unsicherheiten bei der Orts- und Zeitmessung entstehen durch die Ortsauflösung der Detektoren, sowie die Größe des Reaktionsvolumens und die Zeitauflösung des verwendeten Datenaufnahmesystems (näheres dazu im Kapitel 4). Zusätzlich können Inhomogenitäten der anliegenden Felder die erreichbare Auflösung mindern, was hier aber vernachlässigt werden soll.

Abhängig von Teilchensorte und Richtung wird die Auflösung von unterschiedlichen Faktoren dominiert. So ist bei Elektronen die Targettemperatur nahezu ohne Bedeutung, während sie bei Ionen den Hauptteil des Fehlers bei der Impulsmessung ausmacht. Daher erfolgt die folgende Diskussion unterteilt in Teilchensorten und Impulskomponenten.

Ionen

Anhand der Gleichungen (3.11) und (3.13) aus Abschnitt 3.2.2 lassen sich folgende Ausdrücke für das Quadrat der Fehler in longitudinaler und horizontaler Richtung ableiten:

$$\Delta p_{\parallel}^2 = \left(\left(8,04 \cdot 10^{-3} \frac{\text{cm a.u.}}{\text{eV ns}}\right) \frac{qU}{a} \right)^2 \Delta t^2 + \Delta p_{\text{therm}}^2, \quad (3.20)$$

$$\Delta p_{\perp}^2 = \left(\left(11,6 \frac{\text{a.u.}}{\sqrt{\text{amu eV}}}\right) \frac{\sqrt{qU \cdot m}}{2a} \right)^2 \Delta R^2 + \Delta p_{\text{therm}}^2. \quad (3.21)$$

3.2 Das Reaktionsmikroskop

Hierbei sind Δt und ΔR die Unsicherheiten der Zeit- und Ortsmessung. Sie sind gegeben durch die zeitliche Auflösung des verwendeten Datenaufnahmesystems, sowie der Ausdehnung des Reaktionsvolumens und der Ortsauflösung des Detektors. Δp_{therm} ist der durch die endliche Targettemperatur verursachte Fehler. Die Targettemperatur ist, wie bereits erwähnt, abhängig vom Produkt aus Vordruck und Düsendurchmesser sowie der Temperatur des Gases vor der Düse. Bei einer Targettemperatur von circa zwei Kelvin [40] ergibt sich eine mittlere kinetische Energie von 0,26 meV und damit ein mittlerer Impuls $\Delta p_{\text{therm}}^x \approx 0,37$ a.u. für Helium und $\Delta p_{\text{therm}}^x \approx 0,83$ a.u. für Neon. Dies gilt jedoch nur in Expansionsrichtung des Jets, welche im Sinne der bisherigen Bezeichnungen die x-Komponente der transversalen Ebene ist (vgl. Abb. 3.3). Senkrecht dazu wird die Breite der thermischen Verteilung des Targets durch die Blenden und Skimmer bestimmt. In dieser Ebene ergibt sich die Impulsbreite aus rein geometrischen Überlegungen unter Zuhilfenahme der Jetgeschwindigkeit⁷ und den Maßen der Blenden und Skimmer. Beachtet man nur die ersten beiden Skimmer, deren Geometrie nicht veränderbar ist, so ergibt sich $\Delta p_{\text{therm}}^{y,z} = 0,055$ a.u. für Helium und $\Delta p_{\text{therm}}^{y,z} = 0,123$ a.u. für Neon. Da hierbei die vorhandene Kühlung des Gases vor der Expansion nicht beachtet und stattdessen Zimmertemperatur angenommen wurde, sollten diese Werte tendenziell zu groß sein.

Es ergeben sich folgende Werte für die mindestens erreichbare Auflösung in atomaren Einheiten, wobei mit einem Fehler der Ortsmessung $\Delta R = 0,5$ mm und der Zeitmessung $\Delta t = 1$ ns gerechnet wurde.

	Δp_x	Δp_y	Δp_z
He	0,382	0,110	0,055
Ne	0,857	0,161	0,123

Im Experiment lässt sich die Impulsauflösung der Ionen anhand der Summe aus Ionen- und Elektronenimpuls bei der Einfachionisation abschätzen. Vernachlässigt man den Impuls des Photons, ist auf Grund der Impulserhaltung die Summe aus Ionen- und Elektronenimpuls bei der Einfachionisation gleich Null. Nimmt man an, dass die Impulsauflösung für Elektronen deutlich besser als für Ionen ist, ist die Breite der Summenverteilung ein direktes Maß der Impulsauflösung für letztere. In Abbildung 3.7 ist dies für die Einfachionisation von Neon dargestellt.

Die so erhaltenen Werte sind im Vergleich zu den zuvor abgeschätzten Werten stimmig. Einzig in y-Richtung weichen die Werte stark voneinander ab, was aber dadurch erklärt werden kann, dass in dieser Richtung die Ausdehnung des Reaktionsvolumens durch den Durchmesser des Gasjets von circa einem Millimeter gegeben ist, da die y-Richtung die Ausbreitungsrichtung des FEL-Strahls ist.

Zusätzlich kann noch die Winkelauflösung in der transversalen Ebene angegeben werden:

$$\Delta\varphi = \frac{1}{p_{\perp}^2} \sqrt{(p_x \cdot \Delta p_y)^2 + (p_y \cdot \Delta p_x)^2}. \quad (3.22)$$

Im vorliegenden Experiment lag sie zwischen $6^\circ/p_{\perp}$ und $22^\circ/p_{\perp}$ für Helium und zwischen $9^\circ/p_{\perp}$ und $49^\circ/p_{\perp}$ für Neon. Beim ersten angegebenen Wert wurde angenommen, dass der Impulsvektor in x-Richtung, beim zweiten Wert in y-Richtung zeigt.

⁷Die Jetgeschwindigkeit ergibt sich aus $p_{\text{Jet}} = \sqrt{5k_B T_0 m}$, mit k_B der Boltzmannkonstanten und T_0 der Temperatur des Gases vor der Expansion [36].

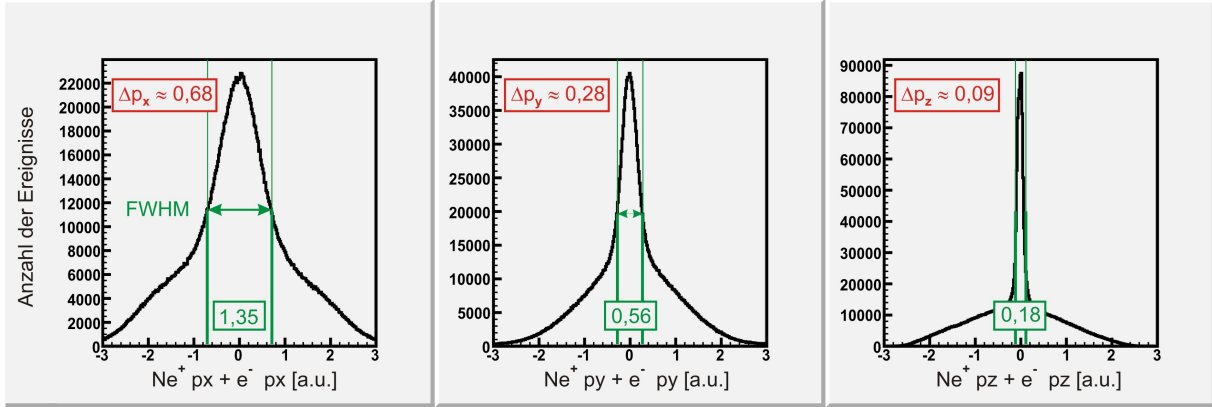


Abbildung 3.7: Summe der Impulse von Elektron und Ion in atomaren Einheiten bei der Einfachionisation Neon unterteilt in die drei Raumrichtungen. Mit den per Fit erhaltenen Werten für die Halbwertsbreite (FWHM) der Summe läßt sich die Impulsauflösung der Ionen mit $\Delta p \approx \text{FWHM}/2$ abschätzen.

Die Raumwinkelakzeptanz des Spektrometers hängt für Ionen von der Höhe der Extraktionsspannung und der nachzuweisenden Ionensorte ab. In longitudinaler Richtung ginge ein Ion dann verloren, wenn es genügend Anfangsenergie besäße, um entgegen der anliegenden Spannung auf den gegenüberliegenden Detektor zu gelangen. Da aber, wie schon erwähnt, zumeist $qU \gg E_{\parallel}$ gilt, ist die Akzeptanz in longitudinaler Richtung nicht eingeschränkt. In transversaler Richtung gehen all jene Ionen verloren, für die gilt: $R_{\perp} > R_{\text{Det}}$. Bei einer anliegenden Extraktionsspannung von 30 V sind das die Ionen mit $p_{\perp} > 12$ a.u. für Helium und $p_{\perp} > 27$ a.u. für Neon.

Elektronen

Die Auflösung des Elektronenspektrometers ist vor allem bestimmt durch die Unsicherheit in der Orts- und Zeitmessung. Die Targettemperatur spielt nahezu keine Rolle, da die bei der Reaktion übertragene Energie deutlich größer als die thermische Energie des Targets ist. Im Gegensatz zu Ionen ist für Elektronen die Angabe eines konstanten Wertes pro Richtung für die Auflösung nicht mehr möglich. Vielmehr hängt die Auflösung auf Grund des anliegenden Magnetfeldes von Anfangsimpuls und Flugzeit ab, was auch an der Ausdrücke für die Fehler der Impulse und des Azimutalwinkels sichtbar wird:

$$\Delta p_{\perp} = \left(\frac{8,04 \cdot 10^{-3} B}{2 |\sin(\frac{\omega_c t}{2})|} \right) \sqrt{\Delta R^2 + \left(\frac{R \omega_c \Delta t}{2 \tan(\frac{\omega_c t}{2})} \right)^2}, \quad (3.23)$$

$$\Delta \varphi = \sqrt{\left(\frac{\Delta R}{R} \right)^2 + \left(\frac{\omega_c}{2} \Delta t \right)^2}, \quad (3.24)$$

$$\Delta p_{\parallel} = \left(\left(0,457 \cdot \frac{\text{a.u. ns}}{\text{mm}} \right) \frac{a}{t^2} - \left(80,4 \cdot 10^{-3} \frac{\text{a.u. mm}}{\text{ns eV}} \right) \frac{qU}{a} \right) \cdot \Delta t. \quad (3.25)$$

Folgende Tendenzen sind erkennbar:

3.2 Das Reaktionsmikroskop

- In longitudinaler Richtung wächst die Auflösung mit der Flugzeit.
- In transversaler Richtung verhält sich die Auflösung periodisch.
- Für Flugzeiten, die einem ganzzahligen Vielfachen der Zyklotronperiode entsprechen (den sogenannten „wiggles“) verschwindet die Impulsauflösung in transversaler Richtung.

Zusätzlich zeigt sich bei einer ausführlichen Analyse der Verhältnisse, dass die Auflösung des Azimutalwinkels mit steigendem Transversalimpuls ansteigt, während die Auflösung des Transversalimpulses selbst, genauso wie die Energieauflösung zu größeren Werten hin schlechter wird [36]. Die Akzeptanz des Elektronenspektrometers wird vor allem durch drei Faktoren eingeschränkt. Erstens, in longitudinaler Richtung durch die am Spektrometer anliegende Spannung. Ist die kinetische Energie, die in der longitudinalen Bewegung eines Elektrons steckt, welches sich vom Detektor wegbewegt, größer als die ihm entgegengerichtete Potentialbarriere der Ionenseite des Spektrometers, so überwindet das Elektron diese Barriere und schlägt auf der falschen Seite des Spektrometers ein. Dadurch ergibt sich folgende Bedingung für den Impuls in longitudinaler Richtung:

$$p_{\parallel} > -\sqrt{eU/13,6 \cdot \text{a.u.}/\text{eV}}. \quad (3.26)$$

Zweitens, ist die Akzeptanz in transversaler Richtung durch die Größe R_{Det} des Elektronendetektors eingeschränkt. Diese bestimmt bei einem festen Wert des Magnetfelds den maximalen Transversalimpuls für Elektronen, wo diese gerade noch für jede Flugzeit detektiert werden. Die zugehörige Bedingung lautet:

$$p_{\perp} < \left(4,02 \cdot 10^{-3} \frac{\text{a.u.}}{\text{mm Gauß}}\right) R_{\text{Det}} \cdot B \quad (3.27)$$

Drittens, sorgt die Totzeit des Datenaufnahmesystems dafür, dass zwei Elektronen deren Signale sehr dicht aufeinander folgen nicht mehr voneinander getrennt werden können. Darauf soll hier aber nicht näher eingegangen werden, da dies später im Kapitel 4 ausführlich behandelt wird.

Bei einer Größe des Elektronendetektors von 40 mm und einem Magnetfeld von 11 Gauß, welches dem Wert des Feldes bei der Messung an Neon mit Photonen einer Energie von 45 eV entspricht, ergeben sich als Bedingungen für Longitudinal- und Transversalimpuls: $p_{\parallel} > -1,4 \text{ a.u.}$ und $p_{\perp} < 1,7 \text{ a.u.}$.

4 Datenaufnahme und Analyse

Da sich im beschriebenen Experiment nicht vermeiden lässt, dass neben der Doppelionisation auch andere Ionisationsprozesse ablaufen und das Reaktionsmikroskop alle dabei entstehenden geladenen Fragmente detektiert, müssen die gesuchten Teilchen aus der Gesamtmenge der detektierten Teilchen herausgesucht werden. Bei den erzeugten Ionen ist dies auf Grund ihres unterschiedlichen Ladungs-zu-Masse Verhältnisses leicht über die verschiedenen Flugzeiten möglich. Bei den Elektronen hingegen ist dies bedingt durch ihre überlappenden Flugzeitverteilungen nur mit Hilfe der koinzidenten Detektion aller bei einer Reaktion erzeugten Teilchen möglich. Durch die Erhaltung des Gesamtimpulses bei einer Reaktion wird dadurch die Identifikation des ursprünglichen Ionisationsprozesses möglich.

Die Wirkungsquerschnitte der untersuchten Doppelionisationsprozesse von Helium und Neon sind bei den verwendeten Photonenenergien im Vergleich zu ihren jeweiligen Einfachionisationen um etwa drei Größenordnungen kleiner. Daher muss eine Vielzahl an Ereignissen beobachtet werden, um eine ausreichend große Zahl an Doppelionisationsereignissen zu sammeln. Da die zur Verfügung stehende Strahlzeit begrenzt ist, wird dazu eine hohe Zählrate benötigt. Diese ist neben den Wirkungsquerschnitten auch von der Wiederholrate der verwendeten Strahlungsquelle und der Targetdichte des Gasjets abhängig, wobei eine Erhöhung der Zählrate durch die Vergrößerung der Targetdichte nur bedingt möglich ist. Der Grund dafür ist, dass durch eine größere Targetdichte die Anzahl der pro Puls induzierten Reaktionen erhöht wird. Entsteht bei einem Puls mehr als eine Reaktion, so kann dies dazu führen, dass die von den Teilchen in den Detektoren erzeugten Signale überlappen, was wie im vorigen Kapitel beschrieben, dazu führt, dass es zu Signalverlusten und damit zum Verlust der Information von detektierten Teilchen kommt.

Bei Experimenten mit Kurzpulslasern mit Wellenlängen im sichtbaren Bereich, umgeht man dieses Problem indem man die Targetdichte soweit reduziert, dass es zu weit weniger als einer Reaktion pro Laserschuss kommt. Die typischen Wiederholraten dieser Laser im kHz-Bereich sorgen dafür, dass trotzdem eine ausreichend hohe Zählrate erreicht wird.

Beim FLASH ist dies jedoch nicht möglich. Einerseits ist bei der verwendeten Energie der Photonen die Intensität auch außerhalb des Fokus ausreichend um das noch vorhandene Restgas zu ionisieren wodurch zusätzlich zu den Teilchen aus der Einfachionisation des Targetgases noch weitere Fragmente erzeugt werden, die ebenfalls detektiert werden. Andererseits erzeugt der FLASH momentan maximal 150 Einzelpulse pro Sekunde, so dass die Targetdichte erhöht werden muss, um eine ausreichend große Zahl an Doppelionisation während der Messzeit zu erzeugen. Dies führt dazu, dass die Anzahl der pro Puls stattfindenden Reaktionen deutlich größer als bei Experimenten mit Kurzpulslasern ist. Die dabei auftretenden Probleme begründen bei dem hier beschriebenen Experiment den Einsatz eines neuartigen Datenaufnahmesystems. Um dessen Vorteile aufzuzeigen wird im folgenden Abschnitt zunächst beschrieben, wie es bei konventionellen Datenaufnahmesystemen zum Verlust von Signalen kommt. Anhand der Funktionsweise des

neuen Datenaufnahmesystems wird anschließend erläutert welche Vorteile sich potentiell durch seinen Einsatz ergeben. Um Auskunft über die tatsächlichen Eigenschaften des Systems zu erhalten wird im letzten Abschnitt dieses Kapitels dessen Verhalten an künstlich erzeugten Signalen simuliert.

4.1 Datenaufnahme

Da die Bestimmung der Teilchenimpulse mit einem Reaktionsmikroskop über die Messung von Zeitdifferenzen zwischen Spannungssignalen erfolgt ergeben sich für ein Datenaufnahmesystem im wesentlichen zwei Aufgaben: Erstens im zeitlichen Verlauf der betrachteten Spannungen die von den Teilchen in Detektoren erzeugten Signale zu identifizieren und zweitens sie so abzuspeichern, dass sich bei der anschließenden Datenanalyse ermitteln lässt zu welchem Zeitpunkt die Signale registriert wurden.

Konventionelle Datenaufnahmesysteme basieren dabei auf der Kombination von Constant-Fraction-Discriminators (CFD) und Time-to-Digital Convertern (TDC). Die Identifikation der Signale erfolgt hierbei mit Hilfe des CFD, der im Falle einer erfolgreichen Signalidentifikation ein Normsignal ausgibt welches an den TDC weitergeleitet wird. Dieser ermittelt die Ankunftszeiten der Normsignale und gibt sie als reine Zeitinformation an einen Messrechner weiter¹.

Sieht man einmal von Fällen ab bei denen die Amplitude der Signale zu gering ist, so kommt es bei dieser Art von Signalverarbeitung im wesentlichen dann zu Signalverlusten, wenn der Abstand zweier Signale eine gewisse Grenze unterschreitet. Zum einen kann die Überlagerung von Signalen dazu führen, dass der CFD statt zwei Normsignalen nur eins an den TDC sendet. Zum anderen benötigt der TDC zur Verarbeitung eines Signals eine gewisse Zeitspanne. Während dieser Totzeit werden weitere, am TDC ankommende Signale ignoriert und gehen dadurch verloren. Bei handelsüblichen TDCs liegt die Totzeit zwischen 10 und 20 ns. Welcher der beiden Faktoren dabei hauptsächlich zum Verlust von Signalen beiträgt ist abhängig von der durchschnittlichen Breite der untersuchten Signale.

Bei dem im beschriebenen Experiment verwendeten Datenaufnahmesystem wird ein völlig anderer Weg gewählt. Statt ein Signal schon vor der Speicherung der Daten zu identifizieren und damit bei der Datenanalyse nur noch seinen Ankunftszeitpunkt zur Verfügung zu haben, wird zunächst mit sogenannten Digitalisierungskarten der Verlauf der Spannung über einen gewissen Zeitraum aufgezeichnet. Bei der anschließenden Datenanalyse identifiziert man in dem aufgezeichneten Spannungsverlauf mit Hilfe von Algorithmen die einzelnen Signale und ermittelt gleichzeitig die Zeitpunkte ihrer Registrierung. Kennt man die zu erwartende Pulsform der einzelnen Signale, so lassen sich prinzipiell Algorithmen finden, die selbst überlagerte Signale auflösen und ihnen somit getrennte Zeitpunkte zuweisen. Das dadurch der minimale noch trennbare Abstand zwischen zwei Signalen auf einen Bruchteil des Wertes reduziert werden kann, der mit einem konventionellen Datenaufnahmesystem erzielbar ist, konnte von Da Costa *et al.* in einer Untersuchung an Normsignalen bereits gezeigt werden [43].

Ein weiterer Punkt, der für den Einsatz von Digitalisierungskarten bei der Datenaufnahme spricht ist deren maximale kontinuierliche Aufzeichnungsdauer. Sowohl bei TDCs, als auch bei Digita-

¹Für eine ausführliche Beschreibung der verwendeten Module sowie der Funktionsweise eines konventionellen Datenaufnahmesystems sei auf [41, 42] verwiesen.

lisierungskarten werden in einen internen Speicher in konstanten zeitlichen Abständen Informationen geschrieben. Hierbei ist bei Digitalisierungskarten eine Information durch einen Spannungswert, bei TDCs durch das Anliegen eines Normsignals gegeben. Durch die Kenntnis der Reihenfolge und des Abstands der Speicherpunkte lassen sich die aufgezeichneten Informationen zeitlich zuordnen. Dabei bedingt die Größe des internen Speichers den maximalen Abstand zwischen zwei Informationen. Die spezielle zeitliche Struktur der vom FLASH emittierten Strahlung führt im beschriebenen Experiment dazu, dass die erforderliche Aufzeichnungsdauer mit den bisher verwendeten TDCs nicht realisierbar ist, wohingegen dies mit Digitalisierungskarten auf Grund ihres größeren Speichers möglich ist. Dies erklärt sich wie folgt: Die vom FLASH erzeugten maximal 150 Einzelpulse pro Sekunde verteilen sich auf fünf Pulszüge. Innerhalb eines Pulszuges beträgt der Abstand zweier Einzelpulse wenige Mikrosekunden, was im beschriebenen Experiment deutlich kleiner ist als die Flugzeit der Ionen. Die Flugzeiten der in Koinzidenz zu detektierenden Elektronen betragen einige hundert Nanosekunden. Um sicherzustellen, dass alle Signale erfasst werden wurde eine Aufzeichnungsperiode von $128 \mu\text{s}$ gewählt, in der sich die Reaktionen aller Einzelpulse gemeinsam befanden. Bei der anschließenden Datenanalyse werden die Reaktionen wieder voneinander getrennt.

Im folgenden sollen zunächst die Digitalisierungskarten beschrieben werden, die das Kernstück des neuen Datenaufnahmesystems bilden. Anschließend wird die Datenspeicherung der aufgezeichneten Spannungsverläufe geschildert, da diese im Vergleich zu konventionellen Datenaufnahmesystemen erhebliche Unterschiede aufweist.

4.1.1 Digitalisierung der analogen Signale

Digitalisierungskarten tasten die an den jeweiligen Kanälen anliegende Spannung mit einer einstellbaren Frequenz ab und liefern zu jedem Messpunkt einen digitalen Wert, welcher proportional zur Höhe der anliegenden Spannung zum Zeitpunkt der Messung ist. Im hier beschriebenen Experiment wurde ein System aus 3 DC282-Digitalisierungskarten der Firma Acqiris² verwendet. Jede dieser Karten besitzt vier Eingangskanäle, die mit maximal 2 GHz abgetastet werden können. Das heißt im Maximalfall wird an jedem der vier Kanäle alle 0,5 ns der aktuelle Spannungswert abgefragt. Die Genauigkeit des digitalisierten Spannungswertes hängt dabei einerseits davon ab, wie groß der eingestellte Meßbereich bei der Spannungsmessung ist und andererseits wieviele Unterteilungen dieses Meßbereichs der AD-Wandler der Digitalisierungskarte ermöglicht. Für die verwendeten DC282-Karten ist die Anzahl der Unterteilungen fest und beträgt 1024 was beispielsweise eine Auflösung von 0,01 V bei einem Messbereich von $\pm 5 \text{ V}$ ergibt. Um einen Spannungswert mit voller Genauigkeit abspeichern zu können wird bedingt durch die Anzahl der Unterteilungen ein Speicher von mindestens 10 Bit benötigt. Damit lässt sich über die Gesamtgröße des Speichers einer Karte zusammen mit der eingestellten Abtastrate der maximale Zeitraum bestimmen der in einer kontinuierlichen Messung aufgezeichnet werden kann. Die verwendeten Karten hatten einen Gesamtspeicher von $1024 \cdot 10^3$ Datenpunkten von jeweils 10 Bit, was bei Abtastung aller 4 Kanäle mit der maximalen Tastfrequenz von 2 GHz eine maximale kontinuierliche Aufzeichnungsdauer von $128 \mu\text{s}$ ergibt. Die Dauer des Auslesevorgangs des gesamten Speichers beträgt ca. 5 ms.

²www.Acqiris.com

4.1.2 Datenspeicherung

Um Einstellungen an den Digitalisierungskarten vornehmen zu können und die von ihnen ausgelesenen Daten zu speichern, sind die Karten durch einen PCI-Bus mit einem Auslesecomputer verbunden. Dabei bestimmt die Datenrate des PCI-Bus von ca. 200 MB/s die Dauer des Auslesevorgangs. Gestartet wird die Datenaufzeichnung aller Kanäle von einem gemeinsamen Triggersignal, welches entweder an einem der 12 digitalisierbaren Kanäle oder an einem individuellen Triggerkanal angelegt werden kann.

Beim Auslesevorgang werden alle zu einem Triggersignal gehörenden Spannungsverläufe ausgelesen³. Um die anfallende Datenmenge bei der anschließenden Speicherung der Daten zu reduzieren, durchsucht man vorab die Aufzeichnungssequenz. Dabei durchläuft man diese und vergleicht die gemessenen Spannungswerte mit einer voreingestellten Schwelle. Sind die Werte kleiner als die Schwelle werden sie verworfen. Erst wenn sie zu einem gewissen Zeitpunkt diese Schwelle übersteigen speichert man um diesen Zeitpunkt herum ein Zeitfenster voreingestellter Größe. Solch eine verkürzte Datensequenz wird im folgenden als Puls bezeichnet. Die Summe aller Pulse eines Eingangskanals einer Digitalisierungskarte, die zu einem Triggersignal gehören, werden im folgenden als Kanal bezeichnet. Die Summe aller Kanäle wiederum wird als Event bezeichnet. Diese Struktur ist in Abbildung 4.1 veranschaulicht. Sie bezieht sich auf die zur Steuerung der Digitalisierungskarten und Speicherung der aufgezeichneten Daten verwendete Software namens AGAT, die von Lutz Foucar von der Universität Frankfurt entwickelt wurde. Diese ist objektorientiert programmiert. Ein wesentlicher Aspekt objektorientierter Programmierung ist die Aufteilung eines Programms in Klassen, welche die jeweils für sie spezifischen Daten und Funktionen enthalten. So werden die einzelnen Kanäle eines Events in einer Klasse namens MyEvent gespeichert. In einem Kanal befinden sich Pulse, die dementsprechend in einer Klasse namens MyChannel verwaltet werden. Jeder Puls, dessen zugehörige Klasse MyPuls heißt, enthält ein Zeitfenster des Spannungsverlaufs, die bei der Datenspeicherung erstellt wurden. Diese Konstruktion hat ihren Ursprung in der bei der Speicherung der Daten durchgeführten Reduktion der Daten. Die dabei aus der Aufzeichnungssequenz herausgetrennten Zeitfenster können nur dann wieder zeitlich zugeordnet werden wenn ihre Anfangszeit sowie ihre Länge gespeichert werden. Um diese Informationen nicht von den Daten des Zeitfensters zu trennen, kapselt man diese gemeinsam in einer Klasse. Dadurch, dass sowohl die Daten als auch die Funktionen die auf diese Daten angewendet werden in Klasse gebündelt sind, vermeidet man die sonst nötige Übergabe der Daten zwischen den einzelnen Funktionen, was vorallem in Anbetracht der großen Menge an zu bearbeitenden Daten enorme Vorteile bietet.

4.2 Datenanalyse

4.2.1 Identifikation der Signale und Bestimmung der Zeitpunkte

Um aus den gespeicherten Spannungsverläufen in den Pulsen, die von den Teilchendetektoren erzeugten Signale zu identifizieren und aus ihnen Flugzeiten und Auftreffkoordinaten der Teilchen

³Hierbei sei angemerkt, dass nur diejenigen Kanäle ausgelesen werden, die zuvor vom Auslesecomputer angefordert wurden. Außerdem ist die jeweilige Aufzeichnungsperiode vor und nach dem Triggersignal in gewissen Grenzen frei wählbar.

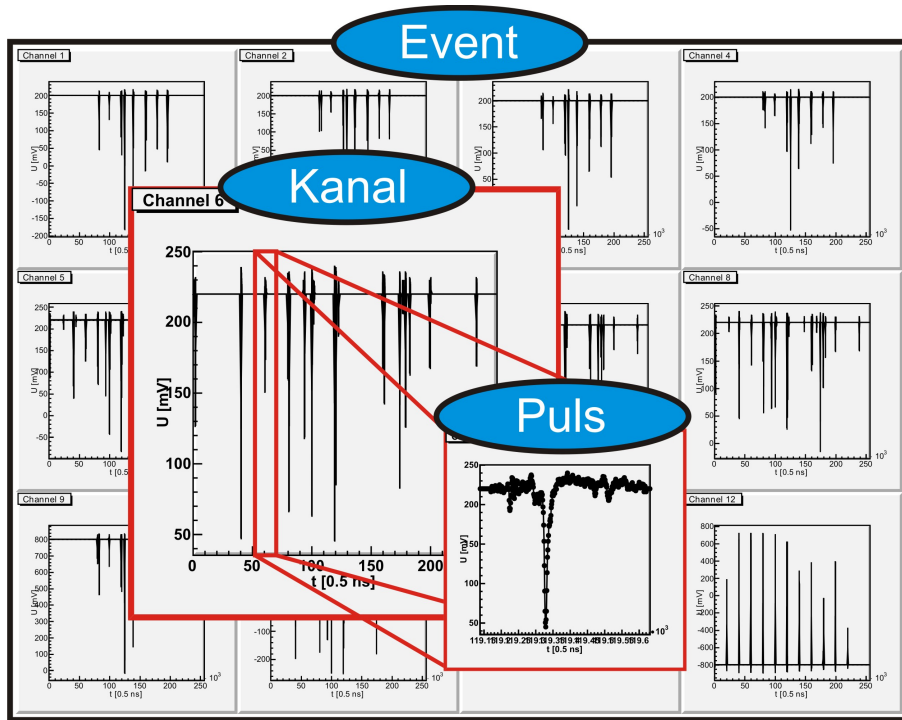


Abbildung 4.1: Visualisierung der mit der AGAT-Software erzeugten Datenstruktur. Dargestellt sind die aufgezeichneten Daten aus 12 Kanälen dreier Digitalisierungskarten über einen Aufzeichnungszeitraum von $128 \mu\text{s}$. Kanal 11 war dabei unbelegt und wurde nicht ausgelesen. Die Lücken zwischen den einzelnen Pulsen wurden mit Werten aufgefüllt die der Nulllinie der Messung entsprachen, so dass ein kontinuierlicher Verlauf entsteht.

auf den Detektoren zu bestimmen, verwendet man verschiedene Identifikationsalgorithmen. Diese identifizieren zunächst einzelne Signale im Spannungsverlauf um ihnen anschließend einen Zeitpunkt zuzuordnen. Die Zuordnung hat dabei so zu erfolgen, dass sie unabhängig von Höhe, Breite und, sofern möglich, Form des Signals ist. Im Folgenden sollen drei verschiedene Algorithmen vorgestellt werden, die dies annähernd ermöglichen.

Center of Mass (CoM)

Hierbei durchläuft man das in einem Puls enthaltene Zeitfenster des Spannungsverlaufs $U(t)$ und vergleicht die aufgezeichneten Spannungswerte mit einem Schwellenwert, welcher größer oder gleich dem bei der Datenaufnahme verwendeten Schwellenwert ist. Sobald der Schwellenwert überschritten wird, wird ein Anfangspunkt und sobald die Spannung wieder unter den Schwellenwert fällt ein Endpunkt gesetzt. In diesem Teilfenster des Spannungsverlaufs bildet man den Schwerpunkt:

$$t_{\text{CoM}} = \frac{\sum t \cdot U(t)}{\sum U(t)}. \quad (4.1)$$

Um dabei sicherzustellen, dass sich im betrachteten Teilfenster tatsächlich ein von einem Teilchen erzeugtes Signal und nicht nur Rauschen befindet, wird es auf eine ansteigende Flanke durchsucht. Eine ansteigende Flanke ist dabei dadurch definiert, dass die absoluten Spannungswerte zu n aufeinander folgenden Zeitpunkten jeweils größer sind als zu dem jeweils vorigen Zeitpunkt. Typischerweise ist dabei n gleich 3 oder 4. Ist in dem Teilfenster eine solche ansteigende Flanke vorhanden, so identifiziert dies ein Signal dem als Zeitpunkt der Schwerpunkt des Spannungsverlaufs zwischen Anfangs- und Endpunkt zugeordnet wird. In Abbildung 4.2 ist die Funktionsweise des CoM-Algorithmus veranschaulicht. Der dargestellte Spannungsverlauf enthält sowohl ein Teilfenster mit ansteigender Flanke als auch eins ohne. Dabei ist anhand des auf einen Punkt beschränkten Teilfensters erkennbar wie sich mit Hilfe der ansteigenden Flanke zwischen Teilfenstern unterscheiden lässt, die nur zufälliges Rauschen oder ein tatsächliches Signal enthalten.

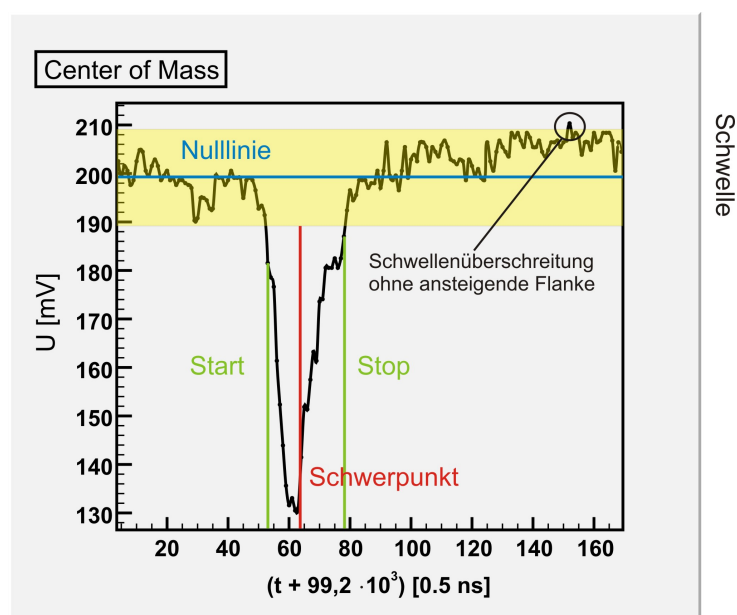


Abbildung 4.2: Darstellung der beim Center of Mass Algorithmus verwendeten Parameter. Das dargestellte Spannungsverlauf entstammt dem X1-Draht der Delay-Line Anode des Ionendetektors des im vorigen Kapitel beschriebenen Reaktionsmikroskops.

Constant-Fraction-Diskriminator (CFD)

Dieser Algorithmus arbeitet ähnlich wie das gleichnamige elektronische Modul. Für jeden Zeitpunkt des Spannungsverlaufs $U(t)$ wird die Summe $S(t)$ gebildet, die sich aus dem invertiertem und um den Faktor a abgeschwächtem Spannungswert an der Stelle t und dem unveränderten Spannungswert zu einem früheren Zeitpunkt $t - \text{Delay}$ zusammensetzt:

$$S(t) = U(t - \text{Delay}) - a \cdot U(t). \quad (4.2)$$

Betrachtet man einen Zeitabschnitt der ein Signal enthält, so wechselt diese Summe in diesem Abschnitt ihr Vorzeichen und identifiziert dadurch das Signal. Der Zeitpunkt dieses Vorzeichenwechsels dient gleichzeitig als zugeordneter Zeitpunkt für das identifizierte Signal. Um sicherzustellen, dass der Vorzeichenwechsel durch ein von einem Teilchen erzeugtes Signal und nicht durch Rauschen erzeugt wurde, vergleicht man den Spannungswert der dem Vorzeichenwechsel vorausgeht mit einem Schwellenwert und identifiziert nur solche Vorzeichenwechsel als Signale bei denen dieser Schwellenwert überschritten wird. für die Wahl des Schwellenwerts gelten dabei die gleichen Rahmenbedingungen wie beim Center of Mass Algorithmus.

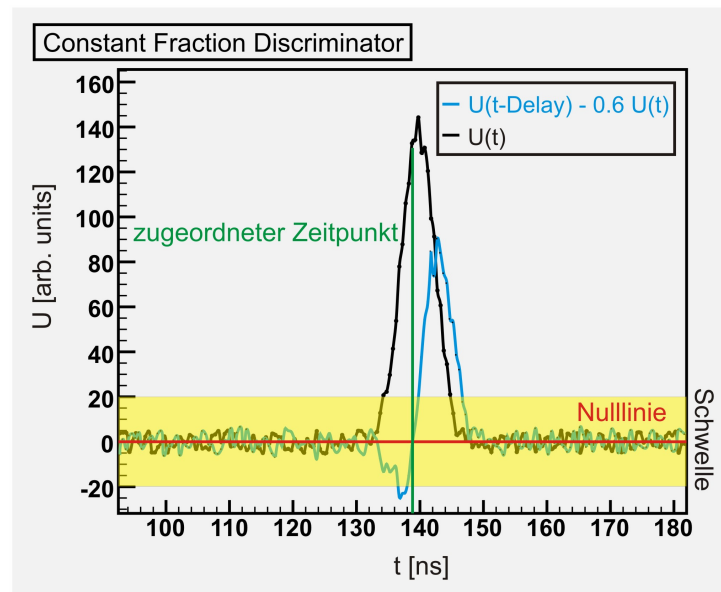


Abbildung 4.3: Darstellung der Arbeitsweise des CFD Algorithmus.

SearchHighRes

Bei diesem Algorithmus aus der vom *CERN* entwickelten Softwarebibliothek *ROOT* macht man sich die spezielle Pulsform der Detektorsignale zu Nutze. Auf Grund des statistischen Charakters der Elektronenvervielfachung im MCP des Detektors, die zur Erzeugung der Signale führte kann deren Pulsform in guter Näherung als gaußförmig betrachtet werden. Statt des Signals selbst betrachtet man dessen zweite Ableitung. Unter der Annahme eines linearen Untergrunds verschwindet die zweite Ableitung in Abwesenheit eines Signals. In der Nähe des Maximums eines positiven Pulses allerdings ist die zweite Ableitung auf Grund der Konvexität der Signalfunktion negativ. Da der Spannungsverlauf $U(t)$ nur zu diskreten Zeitpunkten bekannt ist, betrachtet man anstatt der stetigen Ableitung die finite Differenz, die für die zweite Ableitung wie folgt definiert ist:

$$U''(t) \approx \frac{U(t + \Delta t) - 2U(t) + U(t - \Delta t)}{2\Delta t}. \quad (4.3)$$

4.2 Datenanalyse

Hierbei ist Δt die Zeitdifferenz zwischen zwei benachbarten Abtastpunkten. Um dabei den Einfluß des Rauschens der Spannungsmessung zu minimieren wird der ursprüngliche Spannungsverlauf zunächst geglättet. Der dabei verwendete Algorithmus simuliert die Bewegung eines Teilchens, das sich zufällig in einem eindimensionalen Potential bewegt [44]. Das Potential ist dabei durch den invertierten Spannungsverlauf $-U(t)$ gegeben. Als Aufenthaltsorte des Teilchens sind nur die diskreten Punkte des Spannungsverlaufs erlaubt. Die Bewegung des Teilchens wird in einer Art Random-Walk durch eine feste Zahl an Iterationsschritten simuliert, in denen das Teilchen ausgehend von seiner aktuellen Position entweder einen Punkt in die Eine oder andere Richtung springt. Die Wahrscheinlichkeit eines Sprunges $P_{t \rightarrow t+\Delta t}$ ist dabei abhängig von der Potentialdifferenz zwischen Ausgangs- und Endpunkt des Sprunges:

$$P_{t \rightarrow t+\Delta t} = \exp \left(\frac{U(t + \Delta t) - U(t)}{\sqrt{U(t + \Delta t) + U(t)}} \right). \quad (4.4)$$

Als geglätteten Spannungsverlauf verwendet man die, über die Iterationsschritte gemittelte, Aufenthaltswahrscheinlichkeit des Teilchens im Potential $-U(t)$. Diese wird zu den Zeitpunkten an denen sich die gesuchten Signale befinden maximal, da das verwendete Potential lokale Minima aufweist.

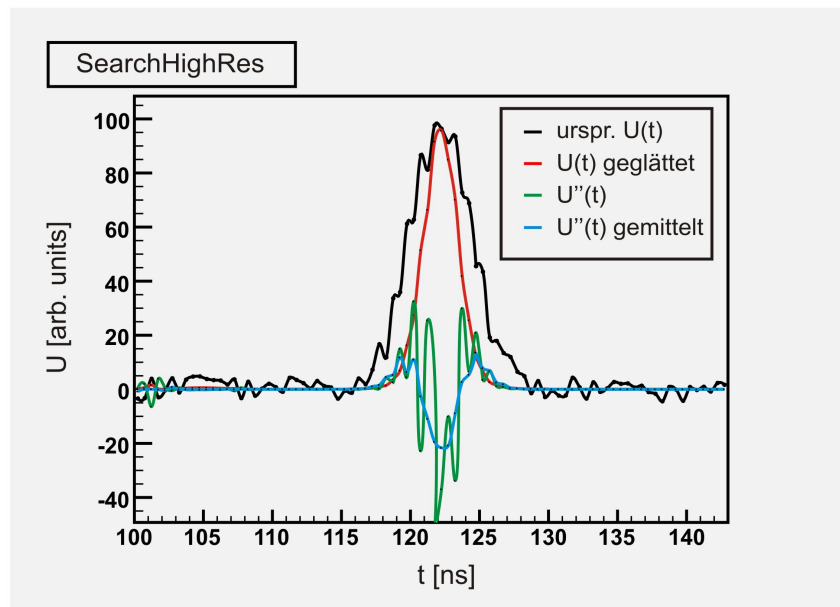


Abbildung 4.4: Darstellung der einzelnen Schritte des SearchHighRes Algorithmus.

Anschließend bildet man anhand des geglätteten Spannungsverlaufs für jeden Zeitpunkt die finite Differenz. Die finiten Differenzen sind nur noch in der Nähe der Zeitpunkte nichtverschwindend, an denen sich im ursprünglichen Spannungsverlauf die gesuchten Signale befinden. Da, um diese Zeitpunkte herum, die Werte der finiten Differenzen stark schwanken (siehe Abb. 4.4) bildet man den Durchschnitt mehrerer benachbarter Differenzen. Die gemittelten finiten Differenzen durchsucht man auf Minimalwerte, die man durch einfachen Vergleich benachbarter Werte ermittelt.

Das Vorhandensein eines Minimalwerts identifiziert dabei ein Signal. Ähnlich wie beim CFD-Algorithmus vergleicht man den Wert des ursprünglichen Spannungsverlauf $U(t)$ an den Stellen der ermittelten Maximalwerte mit einem Schwellenwert und identifiziert nur solche Maximalwerte als Signale bei den diese Schwelle überschritten wird. Um die Genauigkeit des zugeordneten Zeitpunkts zu erhöhen bildet man wie beim CoM-Algorithmus den Schwerpunkt der gemittelten finiten Differenzen eines Zeitfensters um einen Maximalwert herum. Eine detaillierte Beschreibung dieses Verfahrens findet sich in [45, 46].

4.2.2 Vergleich der Identifikationsalgorithmen

Um das Verhalten der im vorigen Abschnitt beschriebenen Algorithmen zu testen wurde deren Verhalten an simulierten Signalen getestet. Die simulierten Signale wurden durch Gaußfunktionen dargestellt, wobei sowohl für Amplitude als auch Halbwertsbreite Werte vorgegeben wurden, die typischen Werten im Experiment entsprachen. Die Mittelwerte der einzelnen Signale wurden in einem begrenzten Zeitfenster zufällig verteilt, wobei an den beiden Enden des Zeitfensters ein Freiraum gelassen wurde, um eine Beschneidung der erstellten Signale durch das endliche Zeitfenster zu vermeiden. Der so erzeugte Spannungsverlauf wurde auf einen konstanten Untergrund gesetzt, dem eine zufällige Schwankung aufgeprägt wurde, um weißes Rauschen zu simulieren. Die Amplitude dieser Schwankung wurde dabei anhand der experimentellen Daten so abgeschätzt, dass sich ein ähnliches Verhältnis aus Rauschen und dem bei der Datenaufnahme verwendeten Schwellenwert ergibt.

Da der so erzeugte künstliche Spannungsverlauf kontinuierlich in der Zeit ist, im Experiment die Spannung jedoch nur an diskreten Zeitpunkten abgetastet wird, wurden für den Test der Identifikationsalgorithmen lediglich die Spannungswerte an äquidistanten Punkten verwendet. Der Abstand zwischen den äquidistanten Punkten entsprach dabei der im Experiment verwendeten Tastfrequenz der Digitalisierungskarten.

Zeitauflösung

Zur Abschätzung der Zeitauflösung der Identifikationsalgorithmen wurde innerhalb des Zeitfensters ein einzelnes Signal erstellt. Anschließend wurde der simulierte Spannungsverlauf mit den Algorithmen durchsucht. Für den Fall, dass diese das Signal richtig identifizierten, wurde die Differenz zwischen dem zugeordneten Zeitpunkt und dem Mittelwert der ursprünglichen Gaußfunktion, die zur Erzeugung des Signals verwendet wurde gebildet. Die sich ergebende Verteilung der Zeitdifferenzen für 10^5 so erzeugte Signale ist in Abbildung 4.5 dargestellt.

Anhand der Breite der Verteilungen der Zeitdifferenz zwischen erzeugten und identifizierten Signalen lässt sich die Zeitauflösung der verschiedenen Algorithmen abschätzen. Die beste Zeitauflösung wird dabei mit dem CoM-Algorithmus erzielt. Dieser weist zwar den identifizierten Signalen stets zu späte Zeitpunkte zu, da jedoch die physikalischen Größen über die Zeitdifferenz zweier zugeordneter Signale berechnet werden, spielt für die Zeitauflösung lediglich die Breite der Zeitdifferenzverteilung eine Rolle. Die Breite der Verteilung liegt beim CoM-Algorithmus bei ca. 0,15 ns. Der Fehler einer Zeitmessung ist durch die Hälfte dieser Breite gegeben, so dass sich für den absoluten Fehler der Differenz zweier Signale ein Wert von 0,11 ns ergibt.

Beim SearchHighRes-Algorithmus schwanken die zugeordneten Zeitpunkte gleichmäßig um die

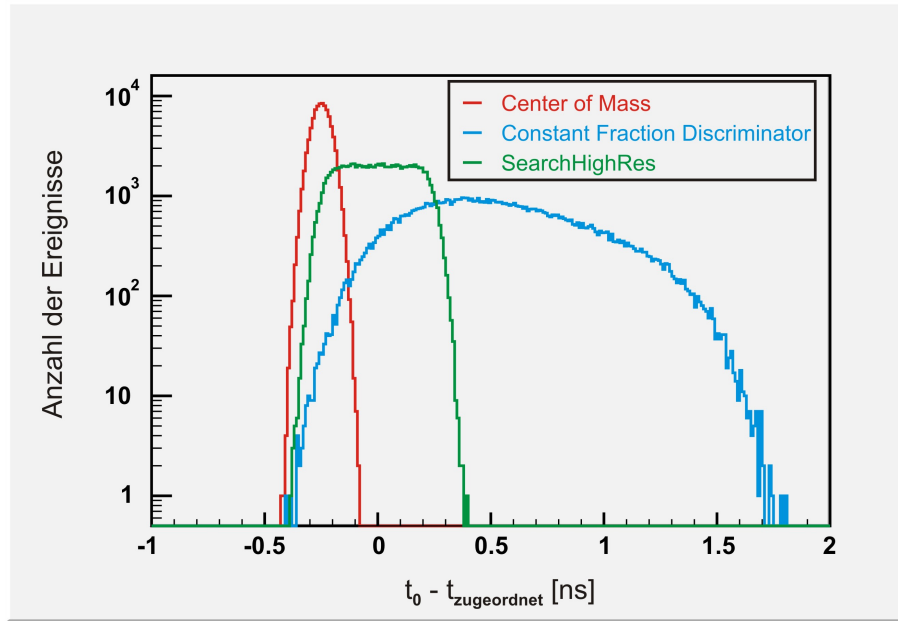


Abbildung 4.5: Verteilung der Differenz aus dem bei der Erzeugung des Signals verwendeten Mittelwerts der Gaußfunktion t_0 und dem bei der Durchsuchung des Spannungsverlaufs zugeordneten Zeitpunkt $t_{\text{zugeordnet}}$ für die verschiedenen Identifikationsalgorithmen.

Mittelwerte der gesuchten Signale. Dabei beträgt die Breite dieser Schwankung 0,6 ns, so dass sich ein Fehler für die Differenz zweier Signale von 0,42 ns ergibt.

Der CFD-Algorithmus weist von den drei betrachteten Algorithmen deutlich die schlechteste Zeitaufösung auf. Die Breite der nichtsymmetrischen Verteilung der zugeordneten Zeitpunkte lässt sich grob mit 1,0 ns abschätzen, was einen Fehler der Zeitdifferenz zweier Signale von ca. 0,7 ns ergibt.

Grund für die große Schwankungsbreite der mit dem CFD-Algorithmus zugeordneten Zeitpunkte im Vergleich zu den anderen beiden Algorithmen ist die fehlende Unterdrückung des Rauschens. So wird beim CoM-Algorithmus durch die Schwerpunktsbildung, beim SearchHighRes-Algorithmus durch die Glättung des Spannungsverlaufs der Einfluss des Rauschens auf den zugeordneten Zeitpunkt verringert. Beim CFD-Algorithmus dagegen ist der zugeordnete Zeitpunkt nur von einem einzigen Zeitpunkt, dem des Nulldurchgangs der gebildeten Summe $S(t)$ abhängig. In der Nähe dieses Nulldurchgangs ist der Gesamtwert der Summe klein, so dass der Rauschanteil der Spannung $U(t)$ stärker ins Gewicht fällt und die Summe in der Nähe ihres Nulldurchgangs stark schwankt. Dadurch variiert der Zeitpunkt des Nulldurchgangs und somit auch der dem Signal zugeordnete Zeitpunkt. Die Schwankung der Summe auf Grund des Rauschens, kann außerdem dazu führen, dass es pro Signal zu mehr als einem Nulldurchgang kommt. Da dadurch zusätzliche Signale erzeugt würden, wurde eine künstliche Totzeit eingeführt, d.h. bei Eintreten eines Nulldurchgangs wurde erst eine gewisse Zeit später nach einem neuen Nulldurchgang gesucht.

Dadurch wurden auch mit dem CFD-Algorithmus nahezu alle Signale nur einmal identifiziert.

Insgesamt wurden sowohl mit dem CFD- als auch dem SearchHighRes-Algorithmus in nahezu allen Fällen die Signale richtig identifiziert. Der CoM-Algorithmus hingegen identifizierte in ca. 6 Prozent der Fälle das einzelne erzeugte Signal gar nicht oder doppelt. Beide Fälle der Fehlidentifikation sind auf die Störung der Signalidentifikation durch das aufgeprägte Rauschen zurückzuführen. Um ein Signal als solches zu identifizieren wird beim CoM-Algorithmus eine ansteigende Flanke gesucht, d.h. eine Folge von n (in unserem Fall 3) aufeinanderfolgenden Spannungswerten, deren Absolutwerte jeweils größer sind als die ihres Vorgängers. Durch die Fluktuation der Spannung auf Grund des Rauschens kann es dabei vorkommen, dass sich trotz vorhandenen Signals keine ansteigende Flanke finden lässt und somit das Signal nicht identifiziert wird. Weitaus unwahrscheinlicher ist die Identifikation von zusätzlichen Signalen, die im Anstiegsbereich eines Signals möglich ist. Diese lässt sich ebenfalls auf den Einfluss des Rauschens zurückführen.

Der hier ermittelte Fehler der Zeitdifferenz zweier Signale gibt die Unsicherheit der Zeitmessung an, die in Abschnitt 3.2.3 verwendet wurde, um die Impulsauflösung zu berechnen. Vergleicht man den dabei angenommenen Wert von 1 ns mit den für die verschiedenen Algorithmen erhaltenen Werten so zeigt sich, dass dieser jeweils unterschritten wurde. Daher können die in diesem Abschnitt bestimmten Werte für die Impulsauflösung des Spektrometers lediglich als untere Grenze für die tatsächlich erreichte Impulsauflösung betrachtet werden.

Ein Vergleich mit der eingangs erwähnten Studie, bei der die Eigenschaften eines Datenaufnahmesystems, wie dem verwendeten an Normsignalen untersucht wurden, zeigt, dass das intrinsische Rauschen der Spannungsmessung die Zeitauflösung mindestens um einen Faktor von zwei verschlechtert [43].

Multi-hit Auflösung und Totzeit

Ein wesentliches Problem, mit dem sich jedes Datenaufnahmesystem konfrontiert sieht, ist die Auflösung zweier zeitlich eng beieinander liegender Signale. Eine wichtige Größe in diesem Zusammenhang ist die Totzeit, die hier als minimaler Abstand zwischen zwei Signalen definiert sein soll, für den die beiden Signale gerade noch getrennt identifiziert werden können. Um die Totzeiten für die behandelten Algorithmen zu ermitteln, wurden an Stelle eines Signals zwei Signale innerhalb eines Zeitfensters erstellt. Der Mittelwert jedes einzelnen Signals wurde dabei zufällig in das Zeitfenster gelegt.

Fanden sich bei der anschließenden Durchsuchung des so erzeugten Spannungsverlaufs mit einem Identifikationsalgorithmus genau zwei Signale, so wurde der zeitliche Abstand der beiden ursprünglichen Mittelwerte berechnet und in ein eindimensionales Histogramm eingetragen. Die dabei untersuchten Signale wurden mit einer zufälligen Halbwertsbreite zwischen 4,9 und 5,9 ns erzeugt. Ihre Amplitude wurde ebenfalls per Zufallsgenerator gewählt und beträgt das 3 bis 11-fache des beim CoM- und CFD-Algorithmus verwendeten Schwellenwertes. Diese Werte orientieren sich an den Verteilungen für Halbwertsbreiten und Amplituden, die im Experiment beobachtet wurden. Ein Beispiel für zwei solche Verteilungen, die sich bei der Photoionisation von Neon ergaben, ist in Abbildung 4.6 unter (a) und (b) dargestellt.

Das Ergebnis der Durchsuchung von 10^5 künstlich erzeugten Spannungsverläufen ist in Abbildung 4.6 unter (c) zu finden. Aus den Spektren lässt sich die Totzeit der jeweiligen Algorithmen abschätzen. Für den CoM- und den SearchHighRes-Algorithmus ergibt sich jeweils eine Totzeit von (10 ± 2) ns. Die schon bei der Abschätzung der Zeitauflösung beobachtete geringere Effizienz

4.2 Datenanalyse

des CoM- im Vergleich zum SearchHighRes-Algorithmus bei der Identifikation von Signalen eines rauschbehafteten Spannungsverlaufs äußert sich in der wesentlich geringeren Gesamtzahl an richtig identifizierten Signalen. So wurden mit dem SearchHighRes-Algorithmus 90% der Signale richtig identifiziert, während der CoM-Algorithmus eine Erfolgsquote von lediglich 76% hatte.

Für den CFD Algorithmus ist die Angabe eines einzelnen Wertes für die Totzeit auf Grund des isolierten Maximums im Zeitdifferenzspektrum bei kleinen Abständen der beiden Signale nicht möglich. Dieses Maximum entsteht durch die Überlagerung der beiden Signale bei der Bildung der Summe $S(t)$ im CFD Algorithmus. Je nach Abstand der beiden Signale können sich deren Anteile an der Summe gegenseitig aufheben oder verstärken. Dementsprechend ist die Position des isolierten Maximums im Zeitdifferenzspektrum abhängig von den beiden einstellbaren Parametern des CFD Algorithmus, dem Delay und dem Bruchteil a um den der invertierte Originalpuls abgeschwächt wird.

Zusätzlich fällt in Abbildung 4.6 (c) die niedrige Nachweiseffizienz des CFD-Algorithmus auf. Bei der Untersuchung der Zeitauflösung im vorigen Abschnitt wurde vom CFD-Algorithmus noch in nahezu 100% der Fälle das eine vorhandene Signal richtig identifiziert. In Abbildung 4.6 (c) erkennt man dagegen durch Vergleich der Verteilungen der ursprünglich erzeugten und der mit CFD-Algorithmus richtig identifizierten Zeitdifferenzen sofort, dass in einem erheblichen Teil der Fälle die Signale nicht korrekt identifiziert wurden. Da dies selbst für große Zeitunterschiede zwischen den beiden erzeugten Signalen der Fall ist, kann dies nicht nur durch die Überlagerung zweier Signale bedingt sein.

Diese unterschiedliche Nachweiseffizienz einzelner Signale im Vergleich zur Untersuchung der Zeitauflösung im vorigen Abschnitt ist der Wahl der Amplituden der Signale geschuldet, die zur Erzeugung des künstlichen Spannungsverlaufs verwendet wurden. War bei der Abschätzung der Zeitauflösung die Amplitude aller erzeugten Signale konstant, so sind hier die Amplituden der beiden pro Spannungsverlauf erzeugten Signale zufällig aus einem Intervall gewählt. Da sich aber die Nachweiseffizienz eines Signals mit dem CFD-Algorithmus bei gleichen Einstellungen seiner Parameter stark in Abhängigkeit der Amplitude des gesuchten Signals ändert, ist die durchschnittliche Nachweiseffizienz des CFD-Algorithmus für ein breites Amplitudenspektrum deutlich kleiner als die, bei der Abschätzung der Zeitauflösung ermittelte. Dies ist in Abbildung 4.7 verdeutlicht, in der die Zeitdifferenzspektren des CFD-Algorithmus für verschiedene feste Werte der Amplituden der erzeugten Signale dargestellt sind. Die Breite der untersuchten Signale spielt dabei nur für die absoluten Werte der Totzeit, nicht aber für die Effizienz und das gegenseitige Verhältnis der Totzeiten der drei Algorithmen eine Rolle.

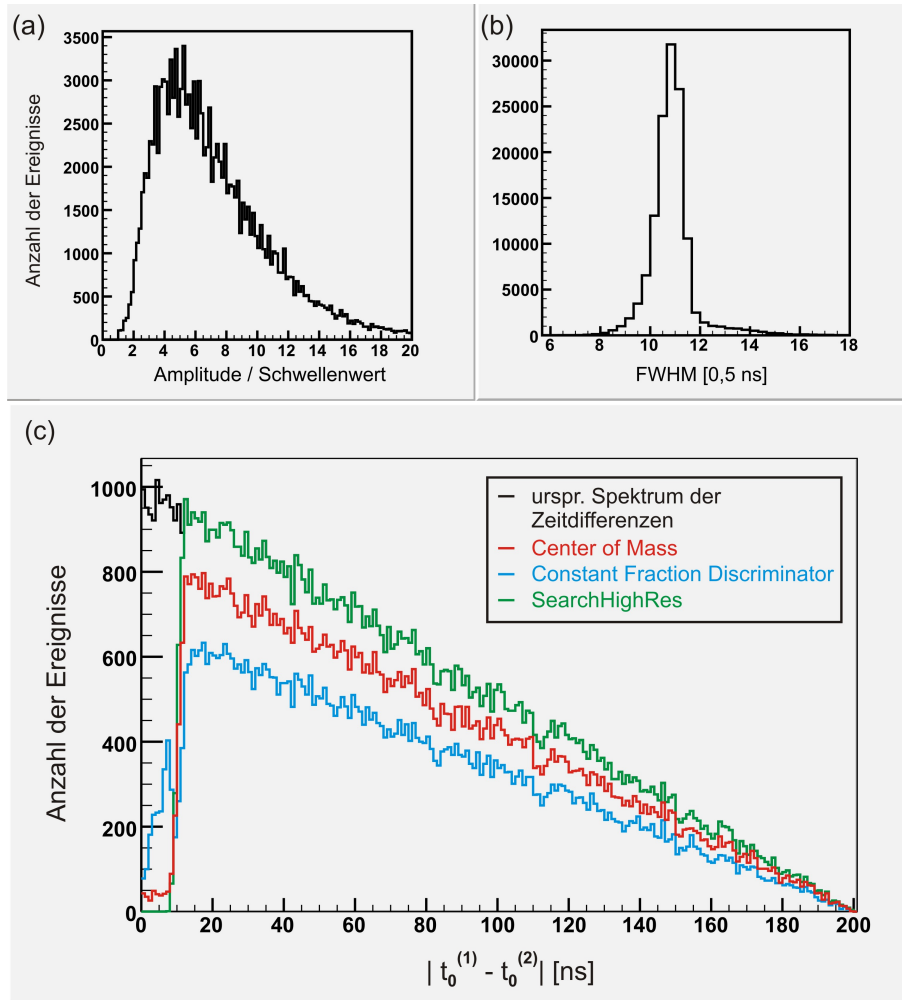


Abbildung 4.6: (a) Experimentell ermittelte Verteilung des Verhältnisses aus der Amplitude eines Signals und dem bei der Datenaufnahme verwendeten Schwellenwert. Die Signale entstammen einem Delay-Line Draht des Ionendetektors bei der Photoionisation von Neon. Die dazugehörigen Halbwertsbreiten sind in (b) dargestellt. (c) Per Simulation ermittelte Zeitdifferenzspektren für die drei verschiedenen Identifikationsalgorithmen. Jeder Eintrag in das jeweilige Histogramm eines Algorithmus steht hierbei für einen mit dem Algorithmus korrekt identifizierten Spannungsverlauf.

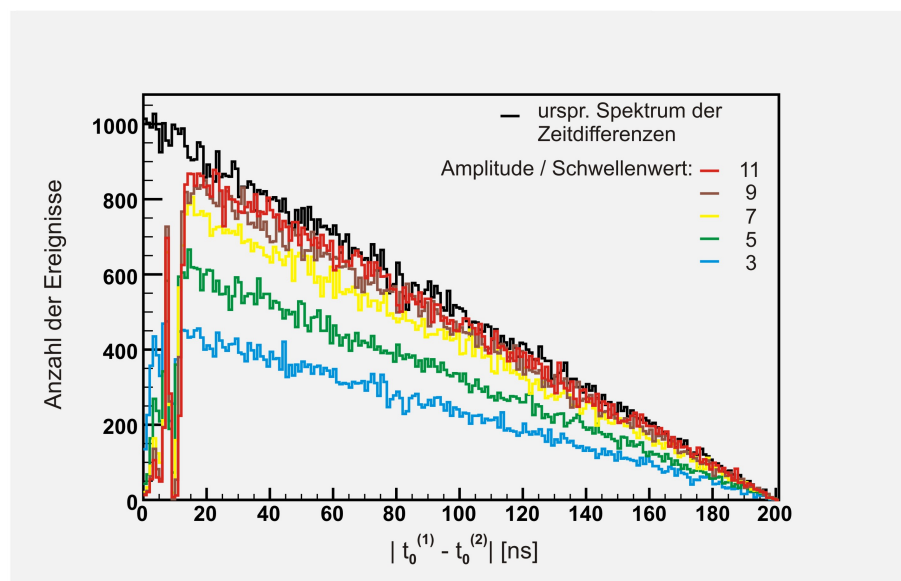


Abbildung 4.7: Zeitdifferenzspektren des CFD Algorithmus für unterschiedliche Verhältnisse aus Signalamplitude und Schwellenwert.

5 Ergebnisse

Das erste Experiment zur Zwei-Photonen Doppelionisation erfolgte im Jahr 2005 durch Nabekawa *et al.* [5]. Hierbei konnte der direkte Prozess in Helium erstmals nachgewiesen werden. Im folgenden Jahr gelang Benis *et al.* dieser Nachweis ebenfalls an Argon und Krypton [6]. Weiterhin studierten Wabnitz *et al.* die Verhältnisse von direkten und sequentiellen Prozessen bei der Erzeugung von mehrfach geladenen Argon- und Xenonionen [7].

Bei diesen Studien wurden im Wesentlichen die Intensitätsabhängigkeiten der Ionisationsraten für die verschiedenen Ionen betrachtet. Dadurch konnten Aussagen getroffen werden über die Beiträge von sequentiellen und direkten Prozessen zum totalen Wirkungsquerschnitt der Mehrfachionisation. Für ein tiefergehendes Verständnis hingegen sind differentielle Wirkungsquerschnitte unerlässlich. Im hier beschriebenen Experiment wurden daher erstmals winkelaufgelöste Messungen zur Zwei-Photonen Doppelionisation durchgeführt, deren Ergebnisse in den folgenden Abschnitten präsentiert werden. Hierbei wurden sowohl direkte als auch sequentielle Beiträge untersucht.

Zum Studium des direkten Prozesses wurden dabei zwei Messungen am FLASH durchgeführt. Zum Einen mit Helium als Targetgas bei einer Photonenenergie von 43,5 eV, zum Anderen mit Neon bei einer Photonenenergie von 38,8 eV. Wie in Abschnitt 2.2 bereits erläutert wurde, erwartet man bei diesen Kombinationen aus Targetgas und Photonenenergie, dass der überwiegende Anteil der erzeugten doppelt geladenen Ionen auf direkte Zwei-Photonen Doppelionisation zurückzuführen ist, wohingegen der Anteil, der durch den sequentiellen Prozess entsteht, vernachlässigbar klein ist.

Zur Untersuchung des sequentiellen Prozesses wurde Neon als Targetgas und Photonen einer Energie von 43,5 eV verwendet. Diese Messung erlaubt zusammen mit den beiden Anderen einen direkten Vergleich von sequentieller und direkter Doppelionisation.

Neben den bereits in Abschnitt 3.2 genannten Parametern des dazu verwendeten Reaktionsmikroskops sei der Vollständigkeit halber noch erwähnt, dass der Gasjet eine Temperatur von ca. 2 Kelvin hatte, sowie einen Durchmesser von ungefähr 2 mm aufwies. Die Spitzenintensität betrug zwischen 10^{12} und 10^{13} W/cm² für die Messung bei 38,8 eV, bzw. zwischen 10^{13} und 10^{14} W/cm² für die beiden Messungen bei 43,5 eV. Dabei lag die Fokusgröße des FLASH-Strahls am Kreuzungspunkt mit dem Target bei ca. 30 μ m.

5.1 Direkte Zwei-Photonen Doppelionisation

Die beiden Messungen zur Untersuchung des direkten Prozesses fanden in zwei verschiedenen Strahlzeiten im Abstand von einem Jahr statt. Bei beiden Messungen wurden die Impulsverteilungen der doppelt geladenen Ionen vermessen. Da bei der Photo-Doppelionisation der Impuls des Ions dem Summenimpuls der beiden Elektronen entspricht, lassen sich mit seiner Hilfe Rück-

5.1 Direkte Zwei-Photonen Doppelionisation

schlüsse über die relativen Emissionsrichtungen sowie die Energieaufteilung zwischen den beiden Elektronen ziehen.

Eine direkte Bestimmung der Energie- und Winkelverteilungen der Elektronen war jedoch bei beiden Messungen nicht möglich. Wie im vorigen Kapitel bereits erläutert wurde lassen sich die Elektronen aus Doppel- und Einfachionisation nur dann trennen, wenn Elektron und Ion einer Reaktion koinzident detektiert werden. Da aber die Nachweiseffizienz nicht nur auf Grund der Beschränkungen des Datenaufnahmesystems limitiert ist, sondern auch durch die Nachweiseffizienz der MCPs vermindert wird, werden nur für etwa jedes vierte detektierte doppelt geladene Ion beide Elektronen detektiert. Sowohl bei der Messung mit Neon bei 38,8 eV als auch bei der Messung mit Helium bei 43,5 eV konnten dabei nicht genügend koinzidente Ereignisse gesammelt werden um belastbare Aussagen über das Verhalten der emittierten Elektronen zu treffen. Einzig bei der im nächsten Abschnitt diskutierten Untersuchung der sequentiellen Ionisation von Neon während der zweiten Strahlzeit war die Kombination aus Intensität und Wirkungsquerschnitt so, dass das Verhalten der Elektronen bei der Doppelionisation untersucht werden konnte.

5.1.1 Neon bei 38,8 eV

Das vom FLASH emittierte Strahlungsfeld enthält neben seiner, durch Gleichung (3.1) gegebenen intrinsischen Wellenlänge zusätzlich Anteile höherer Harmonischer. Um zu überprüfen inwiefern diese hohen Harmonischen zur Doppelionisation beitragen wurde das Verhältnis der Ausbeuten einfach und doppelt geladener Ionen betrachtet. Dazu wurde die Gesamtzahl der Ionen bestimmt, die innerhalb eines gewissen Zeitraums detektiert wurden.

Anhand der Werte die von Dusterer *et al.* [47] für das Intensitätsverhältnis zwischen der Grundwellenlänge und der zweiten bzw. der dritten Harmonischen des FLASH ermittelt wurden, lässt sich zusammen mit Literaturwerten für die Wirkungsquerschnitte der Ein-Photon Einfach- und Doppelionisation von Neon (siehe [48, 49]) das Verhältnis zwischen Doppel- und Einfachionisationsrate abschätzen. Das so ermittelte Verhältnis $\Gamma_{\text{Ne}^{2+}}/\Gamma_{\text{Ne}^+}$ liegt bei $7,5 \cdot 10^{-5}$.

Experimentell wurde für dieses Verhältnis, ein Wert zwischen $2,6 \cdot 10^{-4}$ und $2,0 \cdot 10^{-3}$ gefunden, was die Schlussfolgerung zulässt, dass der wesentliche Teil der doppelt geladenen Ionen auf Mehr-Photonen Prozesse zurückzuführen ist. Der Fehler des ermittelten Verhältnisses ist hierbei auf den nicht separierbaren Resthintergrund im Ionenflugzeit- und Ortsspektrum zurückzuführen. Diese Spektren dienen bei der Bestimmung der Anzahl an detektierten Ionen zur Identifikation der Ionensorte, so dass durch den Hintergrund die Anzahl der detektierten Ionen einer gewissen Sorte mit einer Unsicherheit belegt ist.

Um herauszufinden welcher Mehr-Photonen Prozess, der Direkte oder der Sequentielle, für die detektierten Ereignisse verantwortlich ist, wurde die Intensitätsabhängigkeit der Ionisationsrate für die Ne^{2+} -Ionen untersucht (vgl. Abschnitt 2.3). Dazu wurde für jedes doppelt geladene Ion die Intensität des zugehörigen FLASH-Pulses ermittelt. Gemessen wurde die Intensität dabei anhand des Scheitelwerts des Faraday-Cup Signals, welches auch als Triggersignal dient. Die sich ergebende Verteilung der Anzahl der Ionen in Abhängigkeit von der Faraday-Cup Spannung wurde auf die Intensitätsverteilung der vom FLASH emittierten Pulse normiert. Die normierte Verteilung ist jedoch immernoch eine Funktion der Faraday-Cup Spannung, die zwar mit der Intensität zusammenhängt, dies aber in nichtlinearer Weise. Daher muss die Intensitätsskala einerseits noch linearisiert und andererseits in gebräuchliche Einheiten umgewandelt werden. Die Linearisierung

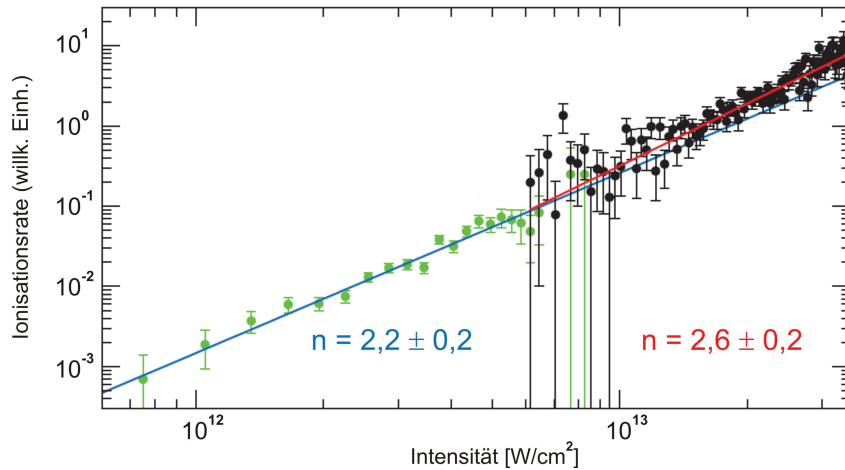


Abbildung 5.1: Intensitätsabhängigkeit der Ionisationsrate für Ne^{2+} -Ionen.

erfolgte dabei anhand der Verteilung einer Ionensorte mit bekannter Intensitätsabhängigkeit. Hierzu dienten die einfach geladenen H_2O^+ -Ionen, für die anhand einer Abschätzung überprüft wurde, dass im untersuchten Intensitätsbereich keine Sättigung auftrat und somit ihre Ionisationsrate linear von der Intensität abhängig war. Zur Angabe absoluter Werte für die Intensität in W/cm^2 wurden die von der Maschine protokollierten Werte für die Pulsenergie des FLASH innerhalb eines gewissen Zeitraums benutzt. Da die unnormierte Verteilung der Faraday-Cup Signale ein scharfes Maximum besitzt lässt sich trotz der Intensitätsabhängigkeit der Ionisationsrate annehmen, dass die aus der mittleren Pulsenergie berechnete Intensität auf dieses Maximum fällt. Da zur Umskalierung der Intensitätsachse mehr als ein Referenzwert nötig ist, wurde die mittlere Pulsenergie mit Hilfe zweier Blenden über mehrere Messungen hinweg verändert.

Das Ergebnis der so erhaltenen Intensitätsabhängigkeit für Ne^{2+} -Ionen ist in Abbildung 5.1 dargestellt. Gemäß Gleichung (2.12) ist der Verlauf der Ionisationsrate in doppelt-logarithmischer Auftragung linear, wobei der Wert der Steigung der Anzahl der Photonen entspricht, die beim Ionisationsprozess absorbiert wurden. Wie bereits in Abschnitt 2.2 erläutert wurde ist bei einer Photonenenergie von 38,8 eV für den sequentiellen Prozess die Absorption von mindestens drei Photonen nötig, wohingegen für den Direkten bereits zwei Photonen ausreichend sind. Mit Hilfe der dargestellten Intensitätsabhängigkeit lässt sich daher auf eine deutliche Dominanz des direkten Prozesses für Intensitäten kleiner $6 \cdot 10^{12} \text{ W}/\text{cm}^2$ schließen, da der lineare Fit in diesem Bereich eine Steigung von $2,2 \pm 0,2$ ergibt. Im darüber liegenden Intensitätsbereich ändert sich die Intensitätsabhängigkeit, was auch anhand eines separaten Fits in diesem Bereich deutlich wird, der eine Steigung von $2,6 \pm 0,2$ ergibt. Das beobachtete Verhalten deutet also auf einen Übergang von direkter zu sequentieller Doppelionisation mit zunehmender Intensität hin.

Leider gibt es noch keine theoretischen Studien für die Zwei- bzw. Drei-Photonen Doppelionisation von Neon, deren Ergebnisse mit den hier präsentierten verglichen werden könnten. Experimentell existiert eine vergleichbare Messung für Neon von Sorokin *et al.*, die den Intensitätsbereich von $7 \cdot 10^{12} \text{ W}/\text{cm}^2$ bis $2 \cdot 10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ abdeckt [24]. Die dabei ermittelte Intensitätsabhängigkeit der Ne^{2+} -Ionisationsrate zeigt, im Gegensatz zu den hier ermittelten Werten, eine klare

5.1 Direkte Zwei-Photonen Doppelionisation

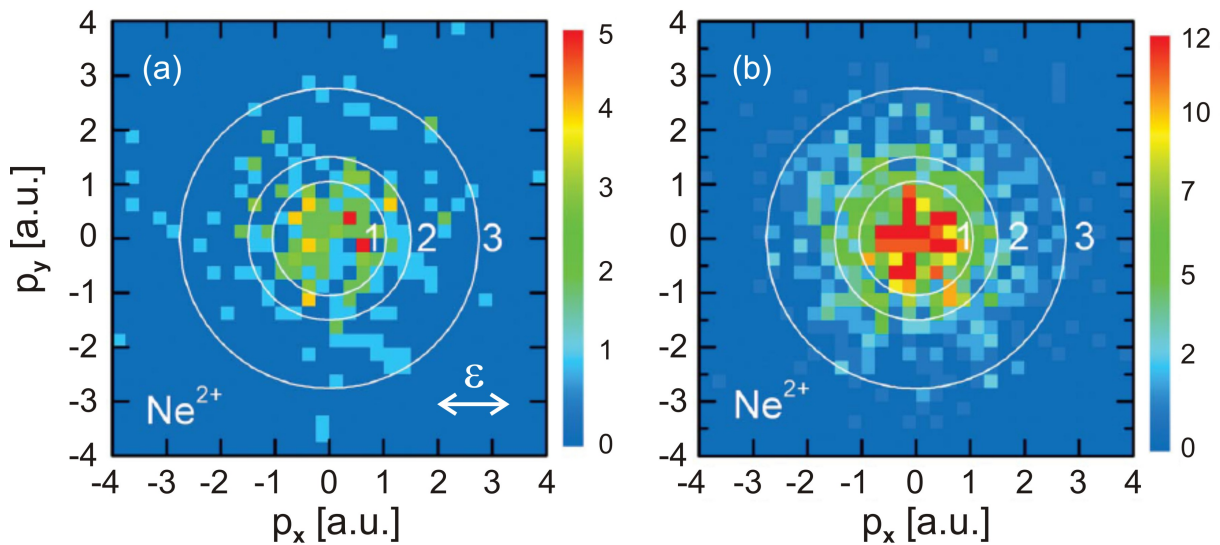


Abbildung 5.2: Zweidimensionale Ionenimpulsverteilung der Ne^{2+} -Ionen bei 38,8 eV in der xy -Ebene. Die x -Achse entspricht hierbei der Polarisationsrichtung der vom FLASH emittierten linear polarisierten Strahlung.

Dominanz des sequentiellen Prozesses im Intensitätsbereich oberhalb von $7 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$. Diese Messung fand jedoch bei einer leicht niedrigeren Photonenenergie von 38,4 eV statt, die sehr dicht an einer Resonanzlinie des Ne^+ -Ions bei 38,2 eV liegt (vgl. Abschnitt 2.2). Dadurch sollte der Wirkungsquerschnitt für den zweiten Schritt des sequentiellen Prozesses, die Zwei-Photon Einfachionisation von Ne^+ nach Ne^{2+} , deutlich erhöht sein. Zusammen mit der Schwankung der Photonenenergie des FLASH sollte dies trotz gleicher Intensität zu einer deutlichen Erhöhung des sequentiellen Anteils an der Ionisationsrate führen und damit die Diskrepanz zu den hier präsentierten Ergebnissen erklären.

Des Weiteren wurden die Impulsverteilungen der doppelt geladenen Ionen untersucht, die sich in den beiden Intensitätsbereichen ergeben. In Abbildung 5.2 sind dazu die zweidimensionalen Ionenimpulsverteilungen in der x - y Ebene dargestellt wobei in (a) nur Ionen bei Intensitäten von weniger als $3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ eingetragen sind, und in (b), nur diejenigen, die bei Intensitäten von mehr als $2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ erzeugt wurden. Dabei entspricht die x -Richtung der Polarisationsrichtung des FLASH-Lichts.

Wie bereits im vorigen Abschnitt erwähnt entspricht der Ionenimpuls bei der Photodoppelionisation dem Summenimpuls der beiden emittierten Elektronen. Bedingt durch die unterschiedlichen Energien, mit denen die beiden Elektronen beim direkten und beim sequentiellen Prozess emittiert werden, ist deren Summenimpuls abhängig vom Ionisationsprozess. Für den sequentiellen Prozess ist durch die zwei separaten Ionisationsschritte die Energie und damit auch der Impuls jedes einzelnen Elektrons fest vorgegeben. Abhängig von der relativen Emissionsrichtung der beiden Elektronen ergibt sich daraus der Gesamtimpuls des Ions. Nimmt man an, dass beide Elektronen in die selbe Richtung emittiert werden führt eine Photonenenergie von 38,8 eV zu

einem Ionenimpuls von 2,76 a.u. (Kreis 3 in Abb. 5.2).

Beim direkten Prozess werden beide Elektronen in einem Ionisationsschritt emittiert, wodurch nicht ihre jeweilige, sondern lediglich die Summe ihrer Energien konstant ist. Der sich ergebende Ionenimpuls hängt nun von Zweierlei ab. Erstens von der Aufteilung der Energie auf die beiden Elektronen. Und Zweitens, wie auch beim sequentiellen Prozess, von der relativen Emissionsrichtung der beiden Elektronen. Für den Fall gleicher Emissionsrichtung ergibt sich für die beiden Extremfälle gleichmäßiger bzw. vollkommen einseitiger Energieaufteilung ein Ionenimpuls von 1,50 a.u. (Kreis 2) bzw. 1,05 a.u. (Kreis 1).

Anhand dieser unterschiedlichen Maximalimpulse kann man versuchen die Anteile der jeweiligen Ionisationsprozesse abzuschätzen. In der dargestellten zweidimensionalen Impulsverteilung kommt dabei erschwerend hinzu, dass lediglich zwei der drei Impulskomponenten betrachtet werden und über die Dritte integriert wurde.

Im folgenden sei mit K_i die Anzahl der Ionen innerhalb des mit i gekennzeichneten Kreises bezeichnet. Als Maß für den Anteil des sequentiellen Prozesses verwendet man die Anzahl der Ionen, die sich zwischen Kreis 2 und 3 befinden, normiert auf die Gesamtzahl der innerhalb der Kreise befindlichen Ionen $(K_3 - K_2)/K_3$.

Für Intensitäten kleiner als $3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ ergibt sich aus dieser Abschätzung ein Anteil von 29% der Ne^{2+} -Ionen, die auf den sequentiellen Prozess zurückzuführen sind. Für Intensitäten größer $2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ steigt dieser Anteil auf 35%, was von der Tendenz her mit dem übereinstimmt, was man anhand der Intensitätsabhängigkeit der Ionisationsrate erwarten würde. Es wurde zwar kein Fehler für diese Werte bestimmt, man kann sich jedoch anhand der verschiedenen Faktoren, die die Genauigkeit dieser Abschätzung einschränken, leicht plausibel machen, dass die angegebenen Werte nur als grobe Abschätzung zu werten sind. Zum Einen liegt dies daran, dass die dargestellten Kreise lediglich Maximalimpulse für den Fall darstellen, dass beide Elektronen in die selbe Richtung emittiert wurden. Zum Anderen sorgt die Integration über die z -Komponente des Impulses dafür, dass die Beiträge der verschiedenen Prozesse überlappen, was zusätzlich noch durch die endliche Impulsauflösung für Ionen verstärkt wird.

Bezüglich des direkten Prozesses lässt sich anhand der bei Intensitäten kleiner als $3 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ gemessenen Ionenimpulsverteilung auf Grund des Maximums bei $p_x = p_y = 0$ auf eine bevorzugte Emission der beiden Elektronen in unterschiedliche Hemisphären bei relativ gleichmäßiger Aufteilung der Energie schließen. Dies deckt sich hinsichtlich der relativen Emissionswinkel mit der für den direkten Prozess bei Helium vorausgesagten bevorzugten Emission der beiden Elektronen unter einem Winkel von 180° aus [13], die bereits in Kapitel 2 diskutiert wurde. Was allerdings die Aufteilung der Energie zwischen den beiden Elektronen angeht, so wird bei Helium für Photonenenergien, die knapp unterhalb der Schwelle dafür liegen, dass auch die sequentielle Doppelionisation mit zwei Photonen möglich wird, eine stark einseitige Aufteilung der Energie vorhergesagt [13, 26]. Diese Schwelle liegt bei Neon bei 40,8 eV, so dass der Vergleich der beiden Fälle durchaus gerechtfertigt erscheint. Da die anhand der Ionenimpulsverteilung getroffenen Aussagen aus den zuvor erläuterten Gründen jedoch wenig belastbar sind, sollen hier keinerlei Spekulationen angestellt werden worauf dieses Verhalten zurückzuführen sein könnte.

5.1.2 Helium bei 43,5 eV

Im Unterschied zur vorherigen Messung wurde bei der Untersuchung von Helium nicht anhand der Intensitätsabhängigkeit der Doppelionisationsrate nachgewiesen welcher Prozess ursächlich für die Erzeugung der doppelt geladenen Ionen war, da dies bei ähnlichen Bedingungen in anderen Experimenten bereits untersucht wurde [5, 24]. Die dabei gefundene Dominanz der direkten Zwei-Photonen Doppelionisation lässt sich anhand der in Abbildung 5.3 unter (a) dargestellten zweidimensionalen Impulsverteilung der He^{2+} -Ionen ableiten. Die eingezeichneten Kreise 1 und 2 entsprechen in ihren Bezeichnungen denen aus Abbildung 5.2 für die gleiche Verteilung der Ne^{2+} -Ionen. Sie geben die aus dem direkten Prozess folgenden Maximalimpulse des He^{2+} -Ions bei verschiedenen Aufteilungen der Energie auf die beiden Elektronen an. Der zuvor mit 3 bezeichnete Kreis, der den Maximalimpuls für sequentielle Ionisation darstellt, liegt bei Helium und einer Photonenenergie von 43,5 eV bei 2,73 a.u. und somit außerhalb des dargestellten Bereichs. Die Impulsverteilung der Ionen außerhalb des zweiten Kreises lässt sich auf den Untergrund der Messung zurückführen, woraus man die klare Dominanz des direkten Anteils der Zwei-Photonen Doppelionisation bei dieser Messung ableitet.

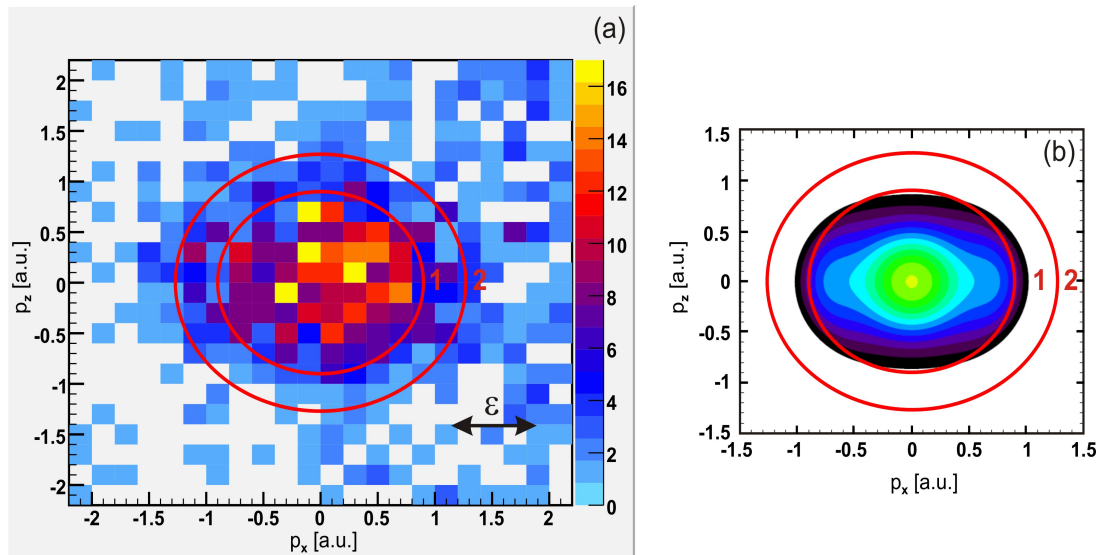


Abbildung 5.3: (a) Experimentell ermittelte zweidimensionale Ionenimpulsverteilung der He^{2+} -Ionen bei 45 eV in der xz -Ebene. Die x -Achse entspricht hierbei der Polarisationsrichtung der vom FLASH emittierten linear polarisierten Strahlung. (b) Berechnete Ionenimpulsverteilung in der selben Ebene (Quelle [50]).

Anhand der dargestellten Ionenimpulsverteilung ergibt sich, dass bei einem signifikanten Teil der Reaktionen beide Elektronen in entgegengesetzte Hemisphären emittiert werden und die Energie relativ gleichmäßig zwischen ihnen aufgeteilt wird. Dies deckt sich mit den Beobachtungen für den direkten Prozess bei Neon. Dabei wurde bereits erläutert, dass die Emission in unterschiedliche Hemisphären übereinstimmend von zahlreichen theoretischen Untersuchungen vorhergesagt wird. Ebenfalls wurde bereits erwähnt, dass für die einfach differentiellen Wirkungsquerschnitte

(vgl. Abschnitt 2.3) aus denen die Aufteilung der Energie auf die beiden Elektronen hervorgeht unterschiedliche Vorhersagen existieren. Da diese Vorhersagen explizit für Helium und bestimmte Photonenenergien aufgestellt wurden lassen sie sich direkt mit der ermittelten Impulsverteilung vergleichen. Die meisten Studien sagen für eine Photonenenergie von 43,5 eV einen flachen Verlauf des einfach differentiellen Wirkungsquerschnitts für die direkte Zwei-Photonen Doppelionisation voraus. Die sich daraus ergebende gleich große Wahrscheinlichkeit für jedwedes Maß an Energieaufteilung der beiden Elektronen deckt sich mit dem gefundenen Verhalten, wie auch der Vergleich mit der, unter (b) in Abbildung 5.3 dargestellten, berechneten Ionenimpulsverteilung zeigt [19, 25, 26, 50]. Dagegen lässt sich, auf Grund der geringen Anzahl der Teilchen mit Impulsen zwischen Kreis 1 und 2 eine rein asymmetrische Energieaufteilung wie sie in [13] für eine Photonenenergie von 44 eV vorhergesagt wird ausschließen.

5.2 Sequentielle Zwei-Photonen Doppelionisation

Die Untersuchung der sequentiellen Zwei-Photonen Doppelionisation ist aus verschiedener Hinsicht interessant. Zum Einen bietet sich eine direkte Vergleichsmöglichkeit zum direkten Prozess der Zwei-Photonen Doppelionisation. Zum anderen ist der Wirkungsquerschnitt deutlich größer als bei der direkten Doppelionisation. Dadurch ist die Anzahl der pro Zeiteinheit stattfindenden Reaktionen bei gleicher Licht-Intensität deutlich größer als bei den vorigen Messungen. Somit war es erstmals möglich alle drei, bei der Doppelionisation emittierten Teilchen mit ausreichender Statistik koinzident zu detektieren.

5.2.1 Neon bei 43,5 eV

Um die beiden Doppelionisationsprozesse direkt vergleichen zu können betrachtet man zunächst die Verteilung der Ne^{2+} -Ionen, welche unter (a) in Abbildung 5.4 dargestellt ist. Dabei wurde im Unterschied zu den zuvor gezeigten Impulsverteilungen nicht über die dritte Impulskomponente integriert. Stattdessen wurden nur diejenigen Ionen betrachtet deren Impulskomponente in der nicht eingezeichneten Richtung innerhalb von $\pm 0,1$ a.u. liegt. Der gestrichelt eingezeichnete Kreis entspricht dem Impuls des Elektrons aus dem ersten Ionisationsschritt, welcher bei 1,27 a.u. liegt. Um diesen Wert zu berechnen wurde zunächst die mittlere Photonenenergie während des Experiments bestimmt. Dazu wurden die bei der Einfachionisation erzeugten Elektronen benutzt. Deren Energieverteilung hatte einen Mittelwert von 21,9 eV bei einer Halbwertsbreite von 2,8 eV. Zusammen mit dem Wert der Ionisationsschwelle von Neon ergibt sich daraus eine mittlere Photonenenergie von 43,5 eV (vgl. Abb. 2.5). Dabei lässt sich aus der Elektronenenergieverteilung kein Wert für die Schwankung der Photonenenergie angeben. Dies ist einerseits bedingt dadurch, dass während der Messung, die sich über mehrere Tage erstreckte, die mittlere Photonenenergie von Tag zu Tag variierte. Andererseits kann man annehmen, dass die Impulsauflösung den Hauptfehler bei der Bestimmung der Energie eines einzelnen Elektrons ausmacht.

Mit der ermittelten Photonenenergie bestimmt man den Impuls des Elektrons aus dem zweiten Ionisationsschritt zu 0,44 a.u.. Addiert bzw. subtrahiert man diesen Wert von dem Impuls des Elektrons aus dem ersten Ionisationsschritt so ergeben sich die beiden durchgezogenen Kreise, die in der Impulsverteilung der Ne^{2+} -Ionen in Abbildung 5.4 dargestellt sind.

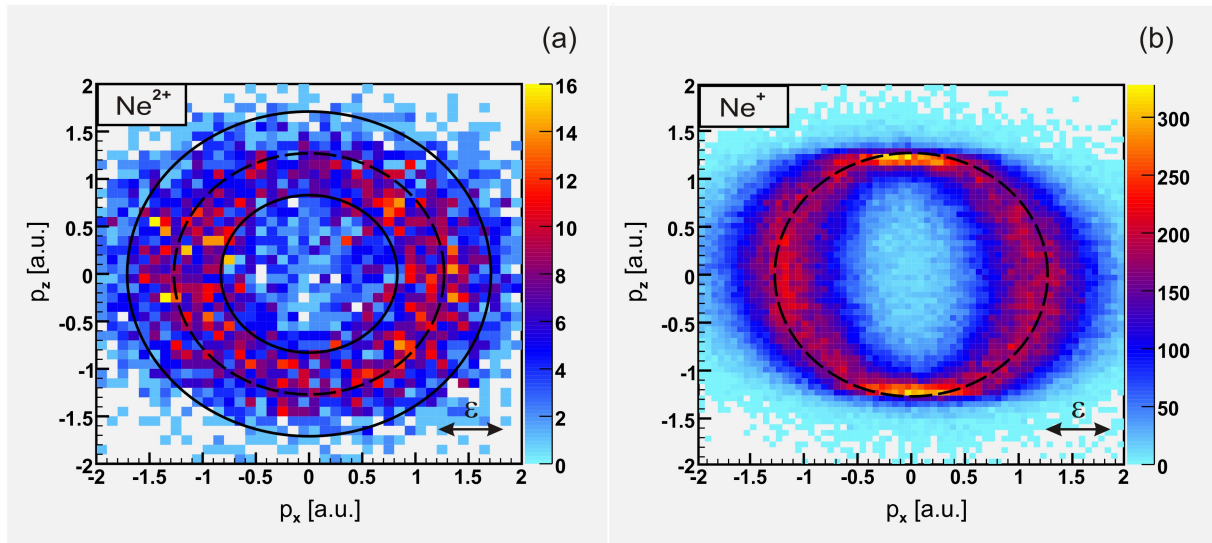


Abbildung 5.4: Impulsverteilung der Ne^{2+} -Ionen (a) und der Ne^{+} -Ionen (b) in der xz -Ebene bei einer Photonenenergie von 43,5 eV. Hierbei entspricht die x -Richtung der Polarisationsrichtung des FLASH-Lichts.

Vergleicht man die ermittelte Ionenimpulsverteilung mit den Verteilungen die sich bei der Untersuchung des direkten Prozesses ergaben, so stellt man fest das beim sequentiellen Prozess diese Verteilung nicht mehr maximal im Ursprung ist. Vielmehr ähnelt sie der unter (b) in Abbildung 5.4 dargestellten Verteilung, die sich bei der Einfachionisation von Neon ergibt. Dies ist darauf zurückzuführen, dass der Impuls des „ersten“ Elektrons in etwa dreimal so groß ist wie der des „Zweiten“ und damit den Rückstoß auf das Ion dominiert.

Darüberhinaus zeigt sich durch die Projektionen der zweidimensionalen Impulsverteilung auf die beiden Achsen, dass die beiden Elektronen bevorzugt entlang der Polarisation emittiert werden. Dies ist bereits von früheren Experimenten mit Synchrotronstrahlung bekannt und wird auf die Symmetrie der am Übergang beteiligten Zustände zurückgeführt [51].

Gut zu erkennen ist außerdem die unterschiedliche Impulsauflösung in den beiden dargestellten Richtungen. Sie führt dazu, dass bei den dargestellten Impulsen der Einfachionisation die ringförmige Verteilung für große Impulse in z -Richtung deutlich schmaler als für große Impulse in x -Richtung ist.

Bisher wurde auf Grund der theoretischen Vorhersagen vorausgesetzt, dass die beobachteten Doppelionisationsereignisse auf den sequentiellen Prozess zurückzuführen sind. Dies lässt sich anhand der ebenfalls detektierten Elektronen leicht nachweisen. Dazu soll zunächst einmal gezeigt werden, dass die im weiteren Verlauf behandelten Elektronen tatsächlich einer Reaktion entstammen. Hierzu ist in Abbildung 5.5 die Flugzeit der Ne^{2+} -Ionen gegen die Summe der Flugzeit der beiden Elektronen aufgetragen. Dabei sind nur solche Kombinationen von Teilchen dargestellt, die durch den selben Einzelpuls des FLASH erzeugt wurden. Da die Flugzeit eines Teilchens indirekt dessen Impuls in z -Richtung darstellt, führt die Impulserhaltung zu einer Korrelation der Flugzeiten für Teilchen die einer Reaktion entstammen. Man erkennt daher in

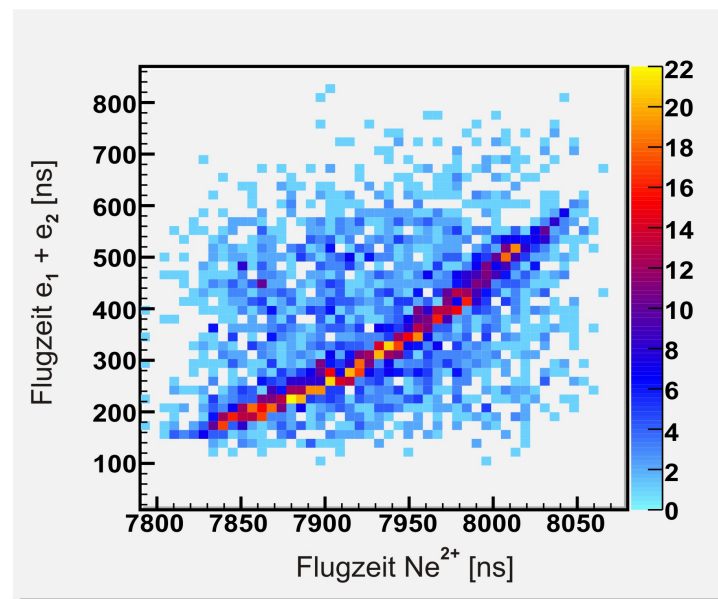


Abbildung 5.5: Koinzidenter Nachweis für die drei bei der Doppelionisation emittierten Teilchen anhand ihrer Flugzeiten. Details siehe Text.

Abbildung 5.5 deutlich eine Linie, die den echten Drei-Teilchen Koinzidenzen zugeordnet werden kann.

Um weitere Informationen zu erhalten betrachtet man die Energieverteilung der Elektronen, die zu solchen koinzidenten Ereignissen gehören (siehe (a) in Abbildung 5.6). Man erkennt deutlich drei getrennte Maxima bei ca. 0, 3 und 22 eV. Anhand des in Kapitel 2 dargestellten Term-schemas von Neon lassen sich diese leicht zuordnen. Eine Energie von 21,9 eV entspricht dem Abstand zwischen der Ionisationsschwelle des neutralen Atoms bei 21,6 eV und der mittlere Photonenenergie von 43,5 eV, so dass diese Elektronen auf den ersten Ionisationsschritt des sequentiellen Prozesses zurückzuführen sind. Entsprechend sind die Elektronen mit Energien um 0 und 3 eV auf den zweiten Ionisationsschritt zurückzuführen. Dabei ist die Energie des beim zweiten Ionisationsschritt emittierten Elektrons abhängig davon in welchem Zustand das Ne^{2+} -Ion zurückbleibt. Hierbei fällt auf, dass um den ^1S -Zustand des Ne^{2+} -Ions zu erreichen eine Energie von 44,17 eV nötig ist welche deutlich größer ist als die mittlere Photonenenergie. Dass dieser Zerfallskanal trotzdem beobachtet wurde ist darauf zurückzuführen, dass sich die mittlere Photonenenergie des FLASH im Verlauf der Messung änderte. So ist für den Teil der Daten, die an den letzten beiden Tagen der Messung aufgenommen wurden, eine mittlere Photonenenergie von 44 eV ermittelt worden, wohingegen diese während der ersten drei Tage bei 43,2 eV lag. Damit dies in der Elektronenenergieverteilung nicht zu mehreren Einzellinien führt, die auf den selben Übergang zurückzuführen sind, wurden die Elektronenenergien für die Daten der letzten beiden Messtage angepasst. Dazu wurde von der jeweiligen Energie eines Elektrons die Energiedifferenz zwischen den beiden mittleren Photonenenergien der verschiedenen Messtage abgezogen.

Um Aussagen bezüglich des Einflusses der Elektronenkorrelation bei der sequentiellen Zwei-Photonen Doppelionisation machen zu können wurde unter (b) in Abbildung 5.6 die Energie

5.2 Sequentielle Zwei-Photonen Doppelionisation

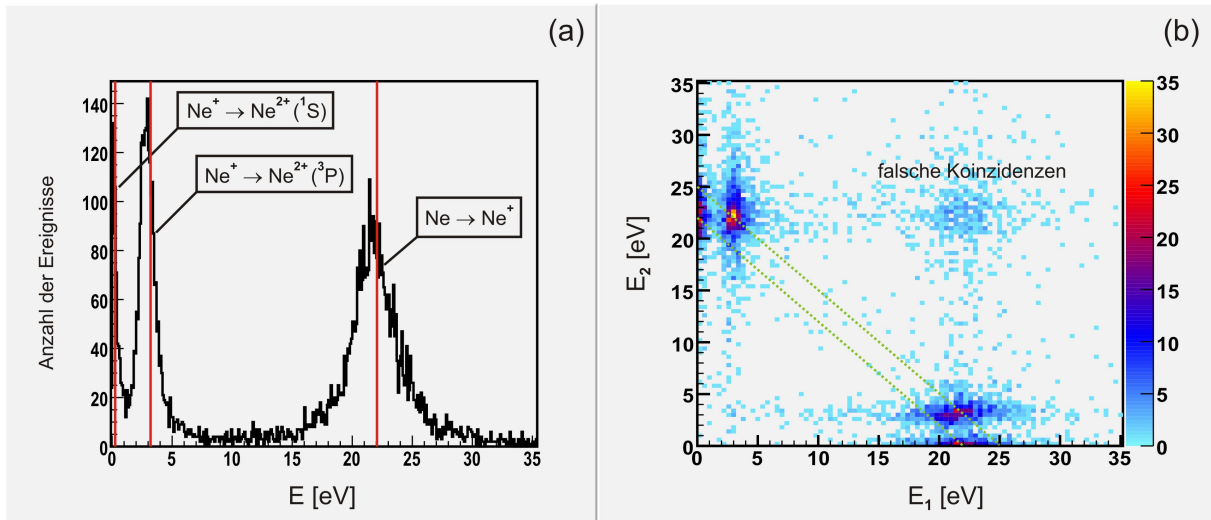


Abbildung 5.6: (a) Eindimensionale Darstellung der Energieverteilung der detektierten Elektronen aus Doppelionisationsreaktionen. (b) Paarweise Auftragung der Energie der beiden Elektronen einer Doppelionisation.

des einen Elektrons gegen die Energie des anderen aufgetragen, wobei nicht auf die Reihenfolge der Elektronen geachtet wurde. Die darin eingezeichneten diagonalen Linien stellen die Summe der Elektronenenergien aus dem ersten und dem zweiten Ionisationsschritt dar. Eine Korrelation der Elektronen führt zum Austausch von Energie zwischen ihnen, z.B. durch die gegenseitige Abstoßung. Dadurch ist die Energie der beiden Elektronen nicht mehr nur durch den jeweiligen Ionisationsschritt bestimmt und es sollten sich Elektronenpaare überall entlang der eingezeichneten Diagonalen finden lassen. Da die detektierten Elektronen jedoch dicht um die Energiewerte, die sich aus den Ionisationsschritten ergeben verteilt sind kann man schliessen, dass der Einfluss der Elektronenkorrelation auf den Prozess der Doppelionisation eher gering ist.

Zusätzlich zu den echten Koinzidenzen, also denjenigen Teilchen die tatsächlich aus einer Doppelionisationsreaktion stammen, enthält die Verteilung der Elektronenenergie auch zahlreiche falsche Koinzidenzen. Diese sind anhand ihrer Summenenergie leicht zu identifizieren. So stammt die Anhäufung falscher Koinzidenzen für Elektronenpaare bei denen beide Elektronen eine Energie von ca. 22 eV haben daher, dass von einem FLASH-Puls sowohl eine Einfach- als auch eine Doppelionisation ausgelöst wurde. Zwar erfolgt die Zuordnung der einzelnen Teilchen zu einer Reaktion über die Impulserhaltungsbedingung, da diese jedoch auf Grund der endlichen Impulsaufösung eine gewisse Breite hat, kann es in einem solchen Fall zu Verwechslungen der Elektronen kommen. Diese lassen sich jedoch durch eine Bedingung für die Summenenergie zweier Elektronen leicht aussortieren. Dies ist z.B. unter (a) in Abbildung 5.7 geschehen, in der der Impuls des „ersten“ Elektrons gegen den des „Zweiten“ aufgetragen wurde. Hierbei ist nicht der Gesamtimpuls der Teilchen dargestellt sondern die Impulskomponente in Polarisationsrichtung des FLASH-Lichts. Außerdem wurden die Elektronen ihrer Energie nach geordnet, so dass das „erste“ Elektron auch dasjenige ist, welches im ersten Ionisationsschritt emittiert wurde.

Um zu verdeutlichen, dass die beiden Elektronen bei der sequentiellen Zwei-Photonen Doppelio-

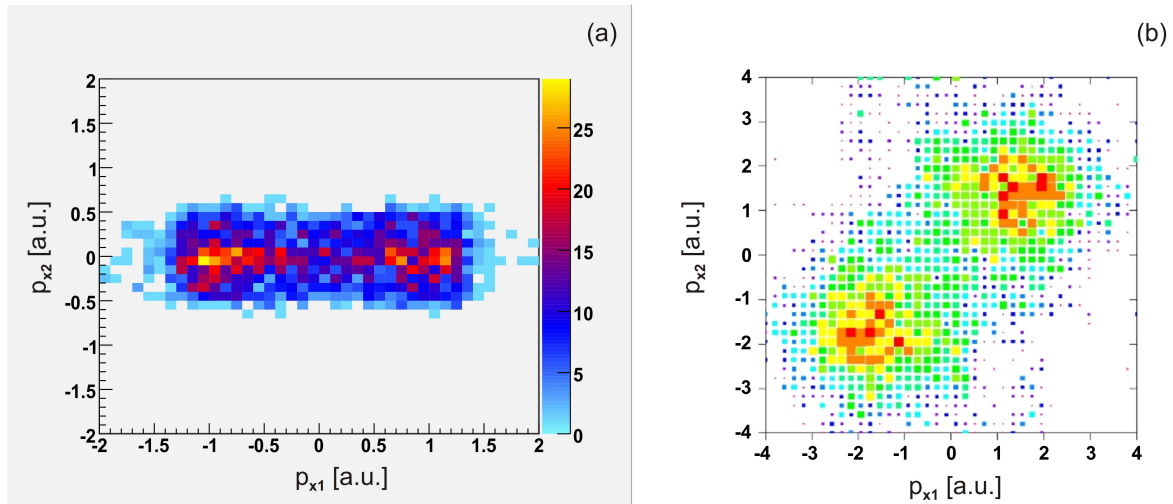


Abbildung 5.7: Korrelationsdiagramm der Impulse in Polarisationsrichtung der bei der Doppelionisation von Neon emittierten Elektronen. Bei der sequentiellen Zwei-Photonen Doppelionisation (a) und bei der Multi-Photonen Doppelionisation (b). Dabei wurde (b) aus [52] entnommen.

nisation von Neon nicht korreliert sind, ist unter (b) die gleiche Verteilung für die Multi-Photonen Doppelionisation bei einer mittleren Intensität von $6 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$ gezeigt. Bei dem hierbei für die Doppelionisation verantwortlichen Recollision Mechanismus sind die Elektronen stark korreliert, was sich in diesem speziellen Fall dahingehend auswirkt, dass die beiden Elektronen bevorzugt in dieselbe Richtung bezüglich der Polarisierung emittiert werden. In der dargestellten Verteilung führt dies zu den beiden ausgeprägten Maxima auf der Diagonalen, die die Summe der beiden Impulse darstellt. Dies ist für den sequentiellen Prozess mit zwei Photonen deutlich anders. Hier ist durch die fehlende Korrelation der beiden Elektronen die sich ergebende Verteilung achsensymmetrisch zur Impulsachse des ersten und des zweiten Elektrons.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Das grundsätzliche Ziel des in dieser Arbeit vorgestellten Experiments ist die kinematisch vollständige Untersuchung der Zwei-Photonen Doppelionisation. Dazu wurden mit Hilfe des in dieser Arbeit beschriebenen experimentellen Aufbaus mehrere Messungen an Helium und Neon durchgeführt. Die beiden dabei beobachteten Reaktionsmechanismen, der direkte und der sequentielle Prozess, wurden im zweiten Kapitel dieser Arbeit von theoretischer Seite her betrachtet. Hierbei wurde anhand der allgemeinen Eigenschaften dieser Prozesse einerseits erläutert wie diese z.B. anhand der Intensitätsabhängigkeit ihrer jeweiligen Ionisationsrate experimentell nachweisbar sind. Andererseits wurde im Hinblick auf die angestrebte kinematisch vollständige Untersuchung aufgezeigt unter welchen Voraussetzungen diese beiden Prozesse trennbar, und somit individuell studierbar sind.

Von experimenteller Seite her erfordert die Untersuchung der Zwei-Photonen Doppelionisation hochintensive Strahlung im XUV-Bereich, welche im beschriebenen Experiment vom Freielektronen-Laser in Hamburg (FLASH) zur Verfügung gestellt wurde. Dieser ist zusammen mit dem verwendeten Spektrometer, einem sogenannten Reaktionsmikroskop, im dritten Kapitel dieser Arbeit beschrieben. Bei einem Reaktionsmikroskop bietet sich auf Grund der geschickten Kombination aus Elektronen- und Ionenflugzeitspektrometer mit jeweils ortsauflösenden Detektoren die Möglichkeit alle drei Impulskomponenten der bei einer Ionisationsreaktion entstehenden geladenen Teilchen zu messen [8]. Dabei wird der Impuls der Teilchen anhand der Zeitdifferenzen zwischen den Spannungssignalen rekonstruiert, die die Teilchen in den Detektoren auslösen. Dieser Rekonstruktionsprozess ist jedoch nur unter der Bedingung möglich, dass keines der Spannungssignale eines einzelnen Teilchens verloren geht. Dabei ist die Anzahl der Signalverluste abhängig davon, wieviele Teilchen pro Zeiteinheit auf den Detektoren auftreffen, denn Verluste sind im wesentlichen auf das Überlappen zweier Signale zurückzuführen. Hierbei tritt bei der Untersuchung der Zwei-Photonen Doppelionisation folgendes Problem auf: Da sich nicht vermeiden lässt, dass neben der Doppelionisation auch andere Ionisationsprozesse auftreten, deren Fragmente ebenfalls detektiert werden, führt ein Verhältnis der Wirkungsquerschnitte von Einfach- und Doppelionisation von etwa Tausend zu Eins bei einem Wert von ca. 100 Hz für die maximale Wiederholrate des FLASH dazu, dass die Anzahl der pro Einzelpuls erzeugten Reaktionen im Vergleich zu früheren Experimenten mit Reaktionsmikroskopen deutlich erhöht werden muss, um innerhalb der begrenzten Strahlzeit Daten mit ausreichender Statistik zu sammeln. Unter diesen Bedingungen sind die in der Vergangenheit verwendeten Datenaufnahmesysteme nicht mehr in der Lage einen großen Teil der detektierten Signale in Echtzeit zu verarbeiten. Daher wurde bei den durchgeführten Messungen ein neuartiges Datenaufnahmesystem verwendet. Dieses verschiebt im Gegensatz zu seinen Vorgängern die Identifikation der Signale auf die anschließende Datenanalyse, indem es den gesamten Spannungsverlauf an den verschiedenen Ausgangskanälen der Detektoren aufzeichnet. Es wurde erläutert wie es dabei durch den Einsatz von geschickten Identifikationsalgorithmen theoretisch möglich ist selbst sich überlappende Signale zu trennen

und damit die Anzahl der Signalverluste deutlich zu reduzieren. Im Rahmen dieser Arbeit wurden verschiedene solcher Identifikationsalgorithmen getestet und dazu ihr Verhalten an künstlich erzeugten Signalen studiert. Dabei wurden sowohl für die Zeitauflösung als auch für den minimal erforderlichen Abstand zweier Signale Werte ermittelt, die besser sind als die Werte von bisher verwendeten Datenaufnahmesystemen, jedoch deutlich hinter den theoretischen Möglichkeiten zurückblieben. Dies wurde auf den Einfluss des intrinsischen Rauschens auf den Signalleitungen sowie die konzeptionellen Einschränkungen der verschiedenen Identifikationsalgorithmen zurückgeführt.

Trotz dieser Einschränkungen war es jedoch erstmals möglich alle drei bei einer Zwei-Photonen Doppelionisation entstehenden Teilchen in Koinzidenz zu detektieren. Dies ist ein erster wichtiger Schritt für die kinematisch vollständige Untersuchung vielfältiger durch FEL-Strahlung induzierter atomarer oder molekularer Prozesse deren Studium momentan durch zu geringe Zählraten verhindert wird, sei es auf Grund ihrer Wirkungsquerschnitte oder der zu geringen Wiederholrate der FEL Strahlungsquelle. So konnte bei der Untersuchung des sequentiellen Prozesses der Zwei-Photonen Doppelionisation anhand der Impulsverteilungen der koinzidenten Elektronen klar nachgewiesen werden, dass dieser Prozess ohne, oder nur mit äußerst schwacher, Korrelation der beiden emittierten Elektronen abläuft.

Darüberhinaus wurden die ersten differentiellen Messungen zum direkten Prozess bei Helium und Neon präsentiert. Dabei konnten anhand der Impulsverteilungen der detektierten Ionen erste Rückschlüsse über die Aufteilung der Energie zwischen den beiden emittierten Elektronen gezogen werden. Auf Grund der vielfältigen Abhängigkeiten dieser Ionenimpulsspektren waren jedoch belastbare quantitative Aussagen nicht möglich.

Bedingt durch den im Vergleich zum sequentiellen Prozess um mehrere Größenordnungen kleineren Wirkungsquerschnitt war in den bisherigen Messungen zum direkten Prozess keine Untersuchung der Elektronen möglich. Daher ist für zukünftige Messungen geplant durch einen fokussierenden Spiegel die Intensität des FLASH-Lichts im Reaktionsvolumen deutlich zu erhöhen. Dies führt auf Grund der Nichtlinearität des direkten Prozesses zu einer deutlichen Vergrößerung des Verhältnisses von Doppel- zu Einfachionisation und damit trotz gleicher Gesamtzählrate zu einer Steigerung der detektierten koinzidenten Doppelionisationsereignisse. Dadurch sollte es möglich werden die grundlegenden Fragen, hinsichtlich der Energieaufteilung und der Korrelation der Elektronen, die sich bei der Beschreibung des direkten Prozesses stellen zu beantworten.

Im Hinblick auf die geplanten Anwendungen des FLASH zur Untersuchung komplexer Moleküle und Festkörper besteht ein weiteres Ziel zukünftiger Messungen in der Untersuchung der Zwei-Photonen Doppelionisation bei einfachen Molekülen. Dazu wurde bereits eine Messung mit Stickstoffmolekülen durchgeführt deren Auswertung zum Zeitpunkt dieser Arbeit noch andauert.

Literaturverzeichnis

- [1] J.S.BRIGGS, V.SCHMIDT: *Differential cross section for photo-double-ionization of the helium atom*. J.Phys.B, 33:R1, 2000.
- [2] N.B.DELONE, V.P.KRAINOV: *Multiphoton Processes in Atoms*. Springer, 2 Auflage, 2000.
- [3] A.BECKER, F.H.M.FAISAL: *Intense-field many-body S-matrix theory*. J.Phys.B, 38:R1, 2005.
- [4] DESY: *FLASH - The Free-Electron-Laser in Hamburg*. <http://vuv-fel.desy.de/>, 2007.
- [5] Y.NABEKAWA: *Production of Doubly Charged Helium Ions by Two-Photon Absorption of an Intense Sub-10-fs Soft X-Ray Pulse at 42 eV Photon Energy*. Phys.Rev.Lett., 94:043001, 2005.
- [6] E.P.BENIS: *Two-photon double ionization of rare gases by a superposition of harmonics*. Phys.Rev.A, 74:051402, 2006.
- [7] H.WABNITZ: *Multiple Ionization of Rare Gas Atoms Irradiated with Intense VUV Radiation*. Phys.Rev.Lett., 94:023001, 2005.
- [8] J.ULLRICH, R.MOSHAMMER: *Recoil-ion and electron momentum spectroscopy: reaction-microscopes*. Rep.Prog.Phys., 66:1463, 2003.
- [9] L.A.A.NIKOLOPOULOS, P.LAMBROPOULOS: *Multichannel theory of two-photon single and double ionization of helium*. J.Phys.B, 34:545, 2001.
- [10] A.S.KHEIFETS, I.A.IVANOV: *Convergent close-coupling calculations of two-photon double ionization of helium*. J.Phys.B, 39:1731, 2006.
- [11] L.A.A.NIKOLOPOULOS, P.LAMBROPOULOS: *Time-dependent theory of double ionization of helium under XUV radiation*. J.Phys.B, 40:1347, 2007.
- [12] E.FOUMOUO: *Theory of multiphoton single and double ionization of two-electron atomic systems driven by short-wavelength electric fields: An ab initio treatment*. Phys.Rev. A, 74:063409, 2006.
- [13] S.X.HU: *Triple-differential cross-sections for two-photon double ionization of He near threshold*. J.Phys.B, 38:L35, 2005.
- [14] B.PIRAUX: *Probing electron-electron correlation with attosecond pulses*. Eur.Phys.J. D, 26:7, 2003.

- [15] P.LAMBROPOULOS: *Signatures of direct double ionization under xuv radiation*. Phys.Rev.A, 72:013410, 2005.
- [16] S.LAULAN, H. BACHAU: *Correlation effects in two-photon single and double ionization of helium*. Phys.Rev.A, 68:013409, 2003.
- [17] L.FENG, H.W.VAN DER HART: *Two-photon double ionization of He*. J.Phys.B, 36:L1, 2003.
- [18] I.A.IVANOV, A.S.KHEIFETS: *Two-photon double ionization of helium in the region of photon energies 42-50 eV*. Phys.Rev.A, 75:033411, 2007.
- [19] J.COLGAN, M.S.PINDZOLA: *Core-Excited Resonance Enhancement in the Two-Photon Complete Fragmentation of Helium*. Phys.Rev.Lett., 88:173002, 2002.
- [20] H.HASEGAWA: *Multiphoton ionization of He by using intense high-order harmonics in the soft-x-ray region*. Phys.Rev.A, 71:023407, 2005.
- [21] M.PROTOPAPAS: *Atomic physics with super-high intensity lasers*. Rep.Prog.Phys., 60:389, 1997.
- [22] J.E.SANSONETTI, W.C.MARTIN: *Handbook of Basic Atomic Spectroscopic Data*. J. Phys. Chem. Ref. Data, 34:1559, 2005.
- [23] L.A.A.NIKOLOPOULOS, P.LAMBROPOULOS: *Helium double ionization signals under soft-x-ray coherent radiation*. J.Phys.B, 39:883, 2006.
- [24] A.A.SOROKIN: *X-ray-laser interaction with matter and the role of multiphoton ionization: Free-electron-laser studies on neon and helium*. Phys.Rev.A, 75:051402, 2007.
- [25] M.A.KORNBERG, P.LAMBROPOULOS: *Photoelectron energy spectrum in direct two-photon double ionization of helium*. J.Phys.B, 32:L603, 1999.
- [26] D.A.HORNER: *Two-photon double ionization of helium above and below the threshold for sequential ionization*. Phys.Rev.A, 76:030701, 2007.
- [27] H.FRIEDRICH: *Theoretical Atomic Physics*. Springer, 2 Auflage, 1998.
- [28] DESY-TESLA-FEL-2002-01: *SASE FEL at the TESLA Facility, Phase2*. Technischer Bericht, DESY, Hamburg, 2002.
- [29] K.WILLE: *Physik der Teilchenbeschleuniger und Synchrotronstrahlungsquellen*. B.G.Teubner, Stuttgart, 2 Auflage, 1996.
- [30] S.EPP: *Röntgen-Laserspektroskopie hochgeladener Ionen in einer EBIT am Freie-Elektronen-Laser FLASH*. Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2007.
- [31] J.M.J.MADEY: *Stimulated Emission of Bremsstrahlung in a Periodic Magnetic Field*. Journal of Applied Physics, 42:1906, 1971.

- [32] T.BRABEC, F.KRAUSZ: *Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics*. Rev. Mod. Phys., 72:545, 2000.
- [33] C.PELLEGRINI: *Progress toward a soft x-ray FEL*. Nuclear Instruments and Methods in Physics Research, A272:364, 1988.
- [34] J.STEINMANN: *Multiphoton Ionization of Laser cooled Lithium*. Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2007.
- [35] D.R.MILLER: *Free Jet Sources in: Atomic and Molecular Beam Methods Volume 1*. Oxford University Press, Oxford/New York, 1988.
- [36] D.FISCHER: *Mehr-Teilchen-Dynamik in der Einfach- und Doppelionisation von Helium durch geladene Projektile*. Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2003.
- [37] W.C.WILEY, I.H.MCLAREN: *Time-of-Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution*. Rev. Sci. Instr., 26:1150, 1955.
- [38] A.CZASCH: *Doppelt hoch angeregte Zustände von Helium: Partielle Wirkungsquerschnitte und Winkelverteilungen der Elektronenemission*. Doktorarbeit, Universität Frankfurt a.M., 2004.
- [39] I.N.BRONSTEIN: *Taschenbuch der Mathematik*. Verlag Harri Deutsch, 5 Auflage, 2001.
- [40] R.MOSHAMMER: *Few-Photon multiple ionization of Ne and Ar by strong FLASH pulses*. Phys. Rev. Lett., 98:203001, 2007.
- [41] W.R.LEO: *Techniques for Nuclear and Particle Physics Experiments*. Springer Verlag, 1 Auflage, 1987.
- [42] M.DÜRR: *Electron Induced Break-up of Helium: Benchmark Experiments on a Dynamical Four-Body Coulomb System*. Doktorarbeit, Universität Heidelberg, 2006.
- [43] G.DACOSTA: *Design of a delay-line position-sensitive detector with improved performance*. Rev.Sci.Instr., 76:013304, 2005.
- [44] Z.K.ZILAGADZE: *A new algorithm for automatic photopeak searches*. Nucl. Instr. and Meth. A, 376:451, 1996.
- [45] M.MORHAC: *Identification of peaks in multidimensional coincidence γ -ray spectra*. Nucl. Instr. and Meth. A, 443:108, 2000.
- [46] M.A.MARISCOTTI: *A method for automatic identification of peaks in the presence of background and its application to spectrum analysis*. Nucl. Instr. and Meth., 50:309, 1967.
- [47] S.DÜSTERER: *Spectroscopic characterization of vacuum ultraviolet free electron laser pulses*. Opt. Lett., 31:1750, 2006.
- [48] D.M.P.HOLLAND: *Multiple photoionisation in the rare gases from threshold to 280 eV*. J.Phys.B, 12:2465, 1979.

- [49] G.V.MARR, J.B.WEST: *Absolute Photoionization cross-section tables for Helium, Neon, Argon and Krypton in the VUV spectral region.* Atom. Data Nucl.Data Tables, 18:497, 1976.
- [50] A.S.KHEIFETS: *private Kommunikation.*
- [51] U.BECKER, D.A.SHIRLEY: *VUV and Soft X-Ray Photionization.* Springer, 1996.
- [52] R.MOSHAMMER: *Strongly directed electron emission in non-sequential double ionization of Ne by intense laser pulses.* J.Phys.B, 36:L113, 2003.

Erklärung:

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

Heidelberg, den

.....

Moritz Kurka