



Thesis zur Erlangung des akademischen Grades Master of Science
Albert-Ludwigs-Universität Freiburg
Physikalische Fakultät

**EINZELSCHUSS
ELEKTRONEN-IMAGING VON
HELIUM-NANOPLASMEN IN
INTENSIVEN NAHINFRAROT
LASERFELDERN**

Vorgelegt von Nicolas Rendler
am 15. Dezember 2017
Referent Prof. Dr. Marcel Mudrich

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wird ein neu entwickeltes Velocity Map Imaging (VMI) Spektrometers charakterisiert, welches speziell für die Detektion von energetischen Elektronen und Ionen, bis ins keV-Regime konzipiert wurde. Das Spektrometer ermöglicht eine winkel- und energieaufgelöste Detektion von Elektronen und Ionen die bei der Wechselwirkung von dotierten Heliumnanotröpfchen mit ultrakurzen und intensiven Laserpulsen im NIR-Spektrums (785 nm Zentralwellenlänge) aus dem Nanoplasma emittiert werden. Durch die Charakterisierung kann gezeigt werden, dass mit dem neu gebauten VMI-Spektrometer und einem MCP-Detektor mit einem Durchmesser von 78 mm eine Energieakzeptanz von 850 eV bei einer Energieauflösung von $\lesssim 2\%$ bis hin zu 1.2 keV bei $\lesssim 5\%$ Energieauflösung theoretisch erreicht werden kann. Im Experiment wurde bisher eine maximale kinetische Energie der Elektronen von 65 eV gemessen, welche durch die Benutzung eines kleinen Detektors beschränkt ist und technischen Problemen geschuldet ist, die durch eine Graphitbeschichtung der Spektrometer-Elektroden verursacht werden.

Weiterhin werden Messungen vorgestellt, welche die Wechselwirkung einzelner mit Xenon dotierter Heliumnanotröpfchen mit einzelnen NIR-Femtosekundenpulsen untersuchen und die durch Xenon induzierte Nanoplasmazündung im Heliumnanotröpfchen demonstriert. Dabei wird ein prägnantes Signal niederenergetischer Elektronen gemessen, dessen Entstehungsgrund bisher nicht genau in theoretischen sowie experimentellen Studien geklärt ist, jedoch in aktuell noch unveröffentlichten Simulationen von Heidenreich et al. reproduziert wurde. Messungen bei denen Systemparameter wie die Größe des Dotandencluster oder des Helium-Hostcluster systematisch variiert werden, zeigen, dass die maximale kinetische Energie im Signal der niederenergetischen Elektronen mit steigender Heliumtröpfchengröße zunimmt aber unabhängig von der Größe des Xenon-Dotandencluster ist und somit von der Plasmadynamik des Heliums dominiert wird. Diese Ergebnisse geben Hinweise für den Entstehungsgrund dieser langsamen Nanoplasma-Elektronen und können zukünftige Studie motivieren den Ursprung dieses Signals zu erklären.

Abstract

In this thesis a newly designed Velocity Map Imaging (VMI) spectrometer is characterized which was designed to be capable of detecting energetic electrons and ions up to the keV regime. This spectrometer allows an angle and energy resolved detection of nanoplasma electrons and ions which are produced during the interaction of doped helium nanodroplets with intense femtosecond near-infrared laser pulses (785 nm central wavelength). According to this characterization it is shown that with the newly designed spectrometer in combination with a 78 mm-MCP detector an energy acceptance of 850 eV with a resolution of $\lesssim 2\%$ up to 1.2 keV with a resolution of $\lesssim 5\%$ can be achieved. However, in the experiment electrons with a maximum kinetic energy of 65 eV are measured which is limited by technical issues produced by the graphite coating of the spectrometer electrodes and due to a small detector.

In addition single shot VMI measurements with near-infrared femtosecond pulses on xenon doped helium nanodroplets are presented which demonstrate the xenon induced plasma ignition inside of the helium droplets. Thereby the experiment shows a prominent signal of electrons with low kinetic energies which is hitherto not fully explained by theoretical and experimental studies. However in unpublished simulations performed by Heidenreich et al. this signal is reproduced. Systematic variations of the helium nanodroplet size as well as the dopant cluster size show that the maximum kinetic energy of the low energetic electrons increases with the helium droplet size but is independent of the dopant cluster size. These results are first steps to an explanation of the origin of slow nanoplasma electrons and can be a basis for future studies that aim to explain this phenomenon more in detail.

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	7
2 Theoretische Grundlagen	10
2.1 Heliumnanotröpfchen: Eigenschaften und Erzeugung	10
2.1.1 Eigenschaften von Helium	10
2.1.2 Nanotröpfchenproduktion	11
2.1.3 Dotierung von Heliumnanotröpfchen	14
2.2 Photoionisation	18
2.2.1 Räumliche Photoelektronenverteilung	20
2.2.2 Mehrphotonen-Ionisation	22
2.2.3 Starkfeld-Ionisation	22
2.3 Cluster in intensiven NIR-Pulsen	26
2.3.1 Clusterpotential - innere und äußere Ionization	26
2.3.2 Dotierte Edelgas-Cluster	30
3 Methoden	32
3.1 Velocity-Map-Imaging (VMI)	32
3.2 Inverse Abel-Transformation	35
3.3 Erzeugung intensiver Femtosekundenpulse	37
4 Experimenteller Aufbau	39
4.1 Quellenkammer	39
4.2 Ofenkammer	40
4.3 Detektorkammer	41
4.3.1 VMI-Spektrometers	41
4.4 LT-Detektorkammer	49
5 Messungen	51
5.1 Charakterisierung des Spektrometers	51
5.1.1 VMI-Kalibrationsmessungen mit Helium	51
5.1.2 VMI-Kalibrationsmessungen mit Kalium	55

5.2	Lasercharakterisierung	57
5.2.1	Intensitätsbestimmung	57
5.2.2	Pulslängenmessung	61
5.3	Messungen zur Tröpfchengrößenbestimmung	64
5.4	Einzelschuss Elektronen-VMI von Xenon dotierte Heliumnanotröpfchen in kurzen NIR-Femtosekundenpulsen	67
5.4.1	Diskussion	73
6	Zusammenfassung und Ausblick	79
7	Literaturverzeichnis	86

Abkürzungsverzeichnis

ATI	above threshold ionization
BSI	barrier suppression ionisation
CCD	Charge-coupled Device
CPA	Chirp Pulse Amplification
CWL	Central wavelength
EM	Elektromagnetisch
LASER	Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation
LT	Langmuir-Taylor
MCP	Micro Channel Plate
NIR	Nahinfrarot
pBASEX	polar Basis Set Expansion
PID	Proportional–Integral–Derivative
TBR	Three Body Recombination
TOF	Time of flight
VMI	Velocity Map Imaging
VUV	Vakuumultraviolett
XUV	Extrem ultraviolett

1 Einleitung

Die Wechselwirkung von Licht mit Materie ist von grundlegender Bedeutung für unsere Verständnis und die Erforschung von physikalischen Prozessen, welche außerhalb unseres natürlich wahrnehmbaren Lichtspektrums liegen oder auf Zeitskalen stattfindet die für unsere Sinnesorgane nicht mehr direkt wahrnehmbar sind. So war es schon immer ein Drang der Menschheit, Prozesse in der Natur auf kürzeren Zeitskalen und auf kleineren räumlichen Maßstäben zu erforschen und zu verstehen.

Zum heutigen Zeitpunkt ermöglichen die Fortschritte in der Entwicklung von Lasertechnologien die Erzeugung von kohärenten hochintensiven Laserpulsen mit Intensitäten im Fokus bis zu $2 \times 10^{22} \text{ W/cm}^2$ [63] und von Pulsen mit einer zeitlichen Ausdehung von wenigen Femtosekunden (10^{-15} s) [64] bis hin zu Attosekunden (10^{-18} s) [32, 45]. Femtosekundenpulse erlauben eine zeitlich aufgelöste Beobachtung von Ionenbewegungen in Molekülen, was zuerst durch Ahmed H. Zewail et al. demonstriert wurde [64]. Mit den heute verfügbaren Attosekundenpulsen ist es sogar möglich Prozesse auf der Zeitskala von Elektronenbewegungen in Atomen und Molekülen zu beobachten. Diese Fortschritte ermöglichen die Entstehung neuer Forschungsgebiete, wie auch die Erforschung von ultraschnellen Dynamiken in hoch angeregter Materie auf Nanometer-Größe. Im Speziellen wurden in den letzten Jahren viele Studien an Atom- und Molekül-Clustern veröffentlicht, welche deren Wechselwirkung mit NIR, UV oder XUV Pulsen untersuchen. Motiviert werden diese durch eine breites Spektrum von möglichen Anwendungen wie die Erzeugung von energetischen Elektronen und Ionen im keV-Regime [23, 48], sowie intensiven XUV und Attosekundenpulsen [56]. In dieser Arbeit wird das Hauptaugenmerk auf die Ionisationsdynamiken durch NIR-Femtosekundenpulse in dotierten Clustern aus ${}^4\text{He}$ gerichtet, wodurch diese in ein Plasma verwandelt werden, was auch als Nanoplasma bezeichnet wird. Bei der Wechselwirkung von NIR-Femtosekundenpulse mit einem Nanoplasma kann dieses sehr effizient Energie aus dem Feld des Laserpulses absorbieren. Das kann durch resonante Wechselwirkung des Laserfeldes mit einer kollektiven Oszillation der Elektronen im Plasma, getrieben vom Laserfeld erklärt werden [23, 48]. Dieser Prozess verursacht eine, überwiegend durch Elektronenstoßionisation, lawinenartige Ionisation der Atome im Cluster. Das führt zu einer

Aufheizung des Plasmas und in Folge dessen zu einer hydrodynamischen Expansion und Coulomb Explosion des Nanoplasma.

Dotierte ^4He -Cluster eignen sich auf Grund der hohen ersten Ionisationsenergie von 24.6 eV und der Transparenz für NIR-Strahlung selbst für hohe Intensitäten bis zu $1.5 \times 10^{15} \text{ W/cm}^2$, dafür den Einfluss des Dotanden auf die Nanoplasmadynamik zu untersuchen. Ein weiterer Vorteil von ^4He -Clustern ist die superfluide Phase, in der sich die Cluster trotz den tiefen Temperaturen von wenigen Kelvin befinden. Dies ermöglicht die gezielte Platzierung von Dotanden an unterschiedlichen Positionen im Cluster und damit die systematische Untersuchung des Einflusses der Dotandenposition auf die Plasmadynamiken. So lokalisieren sich Edelgasatome im Zentrum von Heliumnanotröpfchen im Gegensatz zu Alkaliatomen, welche sich auf der Oberfläche anlagern [57] oder Erdalkaliatome, die sich in den äußereren Schichten des Heliumnanotröpfchen befinden [33]. Studien zeigen, dass sich Xenon als Dotierstoff für Heliumnanotröpfchen besonders eignet, um eine effiziente Zündung des Heliumnanoplasmas einzuleiten. Das wird einerseits auf die zentrale Position der Dotanden im Heliumtröpfchen und andererseits auf die vergleichsweise einfache Mehrfachionisation von Xenon zurückgeführt [30, 38].

Die Möglichkeit, auch kontrolliert heterogene Cluster bestehend aus mehreren unterschiedlichen Spezies zu erzeugen, erlaubt es die Nanoplasmadynamiken abhängig von der Zusammensetzung des Clusters zu untersuchen und sie dadurch zu kontrollieren. Von wissenschaftlichem Interesse ist dies nicht nur wegen den zuvor genannten möglichen Anwendungen als Teilchenquelle, sondern zum Beispiel auch, da die Nanoplasmadynamiken die Auflösung in Einzelschuss X-Ray Imaging Experimenten an großen Molekülen wie Viren oder Proteinen oder an Clustern beschränkt. Ein genaueres Verständnis der zugrundeliegenden physikalischen Prozesse ist somit von interdisziplinärem Interesse.

Diese Arbeit ist wie folgt gegliedert. In Kapitel 2 werden die physikalischen Grundlagen erläutert, welche für das Verständnis der Produktion, der Dotierung und der Ionisation von Heliumnanotröpfchen benötigt werden. In Kapitel 3 werden die in dieser Arbeit benutzten Methoden zur Detektion der Nanoplasmaelektronen erklärt. Dies umfasst Velocity Map Imaging (VMI) und die Methode zur Rekonstruktion der 3D-Impulsverteilung der Nanoplasmaelektronen, welche durch die VMI-Methode auf einen 2D-Detektor projiziert wird. In Kapitel 4 werden zuerst die Messungen zur Charakterisierung des VMI-Spektrometers vorgestellt, nachfolgend Messungen zur Bestimmung der Laserpulslänge, der Fokusintensität im Ionisationsvolumen des Spektrometers und zur Bestimmung der mittleren Heliumtröpfchengröße.

ßen, die mit der verwendeten cw-Düse produziert werden. Abschließend sind Messungen an Xenon induziertem Heliumnanoplasma gezeigt, welches durch intensive NIR-Femtosekundenpulse erzeugt wird. Diese Messungen lassen erste Rückschlüsse über den Einfluss der Heliumtröpfchengröße und der Dotandentröpfchengröße auf ein prägnantes Signal von niederenergetischen Nanoplasmalelektronen zu.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Heliumnanotröpfchen: Eigenschaften und Erzeugung

In diesem Kapitel werden die relevanten Eigenschaften von Helium hinsichtlich der Erzeugung von Atomstrahlen und Clustern und deren Dotierung mit Fremdatomen beschrieben.

2.1.1 Eigenschaften von Helium

Helium hat mit 2 Elektronen eine abgeschlossene erste Unterschale ($1s^2$). Die gerundeten Ionisationsenergien liegen bei 24.6 eV für das erste und 54.4 eV für das zweite Elektron [?]. Damit weisst Helium die höchste erste Ionisationsenergie unter den Edelgasen auf, hat eine sehr kleine Polarisierbarkeit und die Wechselwirkung der Heliumatomen untereinander ist sehr gering. Durch die Hohe Nullpunktsenergie von Helium bleibt dieses bis hin zum absoluten Nullpunkt als einziges Element in der flüssigen Phase. Von Helium existieren die zwei stabile Isotope ^3He und ^4He wovon das bosonische ^4He bei einer Temperatur von $T \leq 2.8 \text{ K}$ [60] und unter Normaldruck einen Phasenübergang von "normalflüssigem" He I zu superflüssigem He II aufweist, in welchem das Helium sich durch ein Bose-Einstein-Kondensation beschreiben lässt. Selbst das fermionische ^3He weist diesen Phasenübergang bei $T \leq 3 \text{ mK}$ auf, wo sich zwei ^3He Atome paarweise zu einem bosonischen Quasiteilchen verbinden.

Die Superfluidität von He II, bei Temperaturen nahe dem absoluten Nullpunkt, bringt einige einzigartigen Eigenschaften mit sich, welches He II zu einem ausgezeichneten Medium für kryogene Matrixisolations-Spektroskopie und zur Untersuchung von Nanoplasma-Dynamiken in heterogenen Clustern macht. Die wesentlichen Eigenschaften dafür umfassen eine nahezu verschwindende Viskosität in der superfluiden Phase, schwache Wechselwirkung, sehr effiziente Abkühlung und die Transparenz für Elektromagnetische Strahlung bis hin zu Wellenlängen im Vakuum-ultravioletten (VUV) Spektralbereich.

2.1.2 Nanotröpfchenproduktion

Heliumnanotröpfchen werden typischerweise durch kontinuierliche oder gepulste adiabatische Expansion von vorgekühltem ($T < 30$ K) Helium durch eine kleine Öffnung von wenigen Mikrometern aus einem Reservoir ins Vakuum erzeugt. Bei diesem Prozess entsteht ein Tröpfchenstrahl, für welchen, unter Kontrolle der Expansionsbedingungen (Druckdifferenz ΔP zwischen Reservoir und Vakuumkammer, Temperatur der Düse T_0 und Geometrie der Düsenöffnung) sich die Charakteristika (Strahlgeschwindigkeiten v , Tröpfchengrößeverteilung) des Strahl gezielt kontrollieren lassen. Die Bedingungen bei der Expansion lassen sich in drei Regime einteilen, welche sich dahingehend unterscheiden ob das zu expandierende Medium sich vor der Expansion in der Gasphase oder der Flüssigphase befindet. Die drei Regime sind in Abb. 2.1 durch ausgezeichnete Bereiche und Trajektorien im Phasendiagramm für Helium gekennzeichnet. In Regime I wird die Expansion unterkritisch genannt, beginnt in der Gasphase und führt über Kondensation zur Tröpfchenbildung. Das Regime II umfasst Trajektorien welche nahe des kritischen Punktes beginnen und demnach zu unkontrollierbaren Fluktuationen während der Expansion führen. Regime III wird auch überkritische Expansion genannt welche schon in der flüssigen Phase beginnt und durch Aufbrechen der Flüssigkeit Tropfen bildet.

Bei der unterkritischen Expansion bilden sich Tropfen bis hin zu einem Düsendistanz von ~ 1000 Düsendurchmessern, während die mittlere freie Weglänge der Atome noch ausreichend klein ist [60]. Im Verlauf der Tröpfchenbildung kühlen die Tröpfchen weiter ab, indem von deren Oberfläche Atome abdampfen, bis sie innerhalb von einigen Millisekunden einen Gleichgewichtszustand bei $T \sim 0.4$ K erreichen.

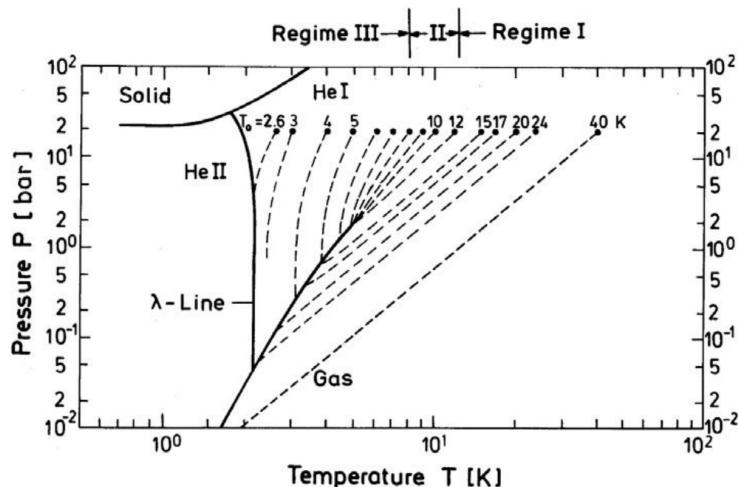


Abb. 2.1: Isentropen (gestrichelte Linien) im Phasendiagramm von ^4He , entlang welcher die Tröpfchenbildung bei einer Überschallexpansion stattfindet. Die Bereiche der zuvor beschriebenen Expansionsregime sind an der oberen Achse markiert. Aus [8].

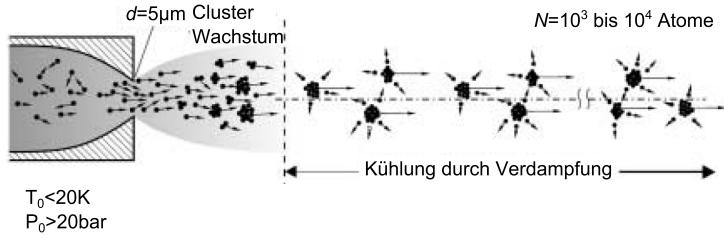


Abb. 2.2: Entstehungsprozess von Heliumtröpfchen bei einer Überschallexpansion und deren Abkühlungsprozess durch Abdampfen von Heliumatomen. Aus [59].

In Abb. 2.2 ist der Prozess der Tröpfchenbildung bei einer Überschallexpansion aus einer cw-Düse (continuous wave) grafisch dargestellt. Die Teilchenimpulse sind in dem Düsenreservoir ungerichtet und die Geschwindigkeitsverteilung folgt einer Maxwell-Boltzmann-Verteilung. Durch die Druckdifferenz zwischen Düsenreservoir und der Vakuumkammer in welche die Expansion stattfindet, strömen die Heliumatome durch die Düsenöffnung. Dabei führen Stöße zwischen den einzelnen Atomen dazu, dass sich die Teilchenimpulse entlang der Strahlachse ausrichten. Die thermische Energie des Gases wird somit teilweise in kinetische Energie des gerichteten Molekularstrahls umgewandelt. Dadurch wird die Geschwindigkeitsverteilung im Strahl erheblich schmäler und verschiebt sich hin zu einer größeren mittleren Geschwindigkeit. Weiterhin führend Dreikörperstöße zur Bildung von Dimeren welche am Anfang der Bildung der Heliumnanotröpfchen stehen. Die Dimere wachsen im folgenden durch weitere Stöße, wodurch sich größere Clustern bilden.

Die Tröpfchengrößenverteilung bei einer Überschallexpansion im unterkritischen Regime folgt einer Log-Normal-Verteilung der Form

$$p(N) = \frac{1}{\sqrt{2\pi}N\delta} \exp \left[-\frac{(\ln(N) - \mu)^2}{2\delta^2} \right] \quad (2.1)$$

woraus sich ein Mittelwert

$$\bar{N} = \exp \left(\mu + \frac{\delta^2}{2} \right) \quad (2.2)$$

und eine Halbwertsbreite

$$\Delta N_{\frac{1}{2}} = \exp \left(\mu - \delta^2 + \delta \sqrt{2 \ln(2)} \right) - \exp \left(\mu - \delta^2 - \delta \sqrt{2 \ln(2)} \right) \quad (2.3)$$

für die Tröpfchengrößenverteilung ergibt [29].

Geht man davon aus, dass die Heliumnanotröpfchen sich geometrisch durch eine Kugel beschreiben lassen, kann der Tröpfchenradius aus der Teilchendichte N und dem Volumen einer Kugel abgeschätzt werden. Für ausreichend große Tröpfchen ($\gtrsim 100$ Atome) nimmt die Teilchendichte im Zentrum der Tröpfchen nahezu den Wert flüssigen Heliums von $\rho = 0.022 \text{ Å}^{-3}$ an [58], wodurch sich mit dem Volumen einer Kugel der Zusammenhang

$$r_{He} = N^{\frac{1}{3}} \cdot 2.22 \text{ Å} \quad (2.4)$$

für den Radius des Heliumnanotröpfchens ergibt. Die Heliumdichte nimmt im äußersten Bereich des Tröpfchens innerhalb von 6 Å von 90% auf 10% des ursprünglichen Werts ab.

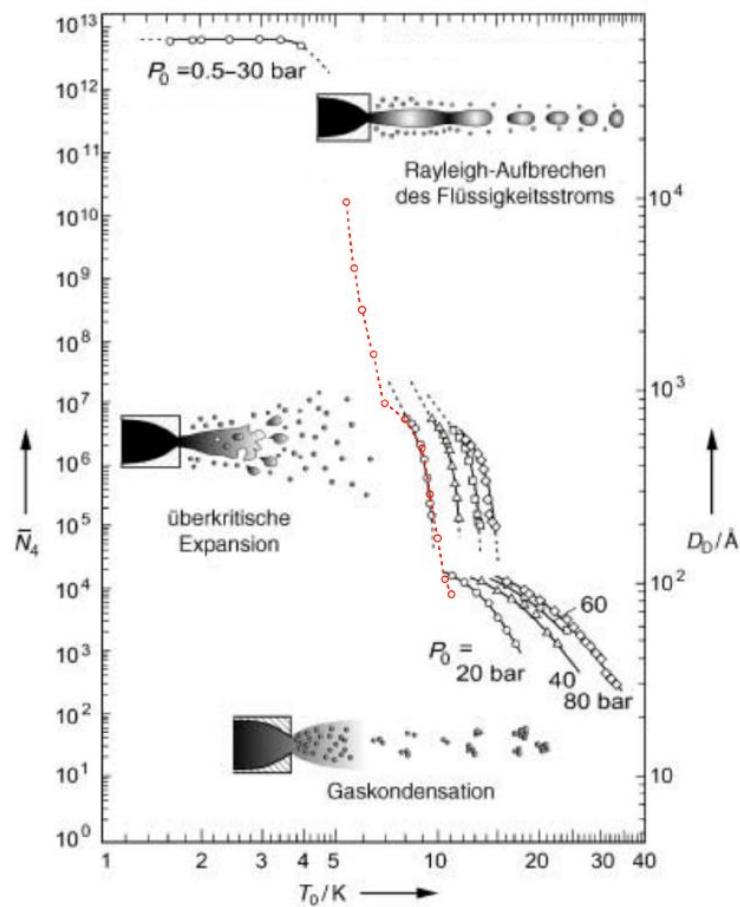


Abb. 2.3: Mittlere Tröpfchengrößen von ${}^4\text{He}$ die bei der Expansion in unterschiedlichen Regimen entstehen, für verschiedene Stagnationsdrücke P_0 und Düsentemperaturen. Die roten Datenpunkte wurden in der Dissertation von Raphael Katzy gemessen. Die Grafik wurde entnommen aus [47]

2.1.3 Dotierung von Heliumnanotröpfchen

Es gibt mehrere gängige Verfahren um Fremdatome oder Moleküle in Cluster einzubetten. Eine Möglichkeit besteht darin direkt ein Gemisch aus Trägergas und Dotand zu expandieren, wobei der Dotierstoff bei der Clusterformation des Trägergases in diese eingelagert wird. Diese Technik bringt jedoch experimentelle Schwierigkeiten und Einschränkungen an die Molekularstrahlquelle mit sich, so ist sie für Experimente bei denen das Trägergas vorgekühlt wird nur anwendbar, solange dabei der Dotand dabei nicht ausfriert, was zum Verschluss der Düse führen kann. Eine weitere Methode ist die sogenannte pick-up Technik, bei der die Trägergascluster eine definierte Strecke einer Dotierzelle passieren, in welcher der Dotierstoff gasförmig und mit kontrolliertem Druck bzw. Teilchendichte vorliegt. In diesem Bereich kollidieren die Tröpfchen inelastisch mit den Dotanden. Dabei können eine oder mehrere Einheiten des Dotanden vom Tröpfchen aufgenommen werden.

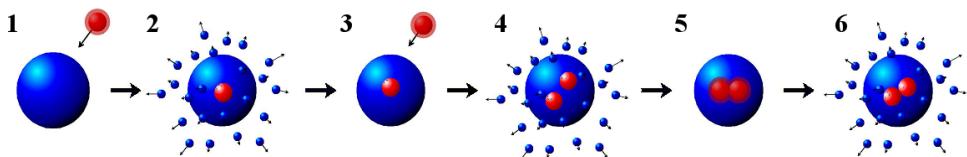


Abb. 2.4: Schema eines sukzessiven Dotierprozesses mit zwei Dotanden (rot) eines Heliumnanotröpfchens (blau). Die kleinen blauen Punkte deuten abdampfende Heliumatome an, welche durch die eingetragene kinetische Energie beim inelastischen Stoß zwischen Dotand und Heliumnanotröpfchen, falls vorhanden durch innere Energie des Dotanden oder durch freiwerdende Bindungsenergie abgeführt wird.

Die mittlere Anzahl der Dotanden die von den Tröpfchen aufgenommen wird, lässt sich über den Partialdruck in dem Dotiervolumen kontrollieren. Die Wahrscheinlichkeit das ein Tröpfchen auf einer Strecke l und konstantem Wirkungsquerschnitt σ , k Dotanden aufnimmt, hängt von dem Partialdruck bzw. der Teilchendichte n in dem Dotiervolumen ab und folgt einer Poisson-Verteilung

$$P_k(n, l, \sigma) = \frac{(ln\sigma)^k}{k!} \exp(-ln\sigma). \quad (2.5)$$

Der Dotierprozess über die Pick-up Methode ist in Abb.2.4 schematisch dargestellt. Genauer zeigt Abb. 2.4 eine Abfolge an Prozessen die während einer Mehrfachdotierung stattfinden könne. In Schritt 1 stoßen der Dotand und das Heliumnanotröpfchen inelastisch, wobei der Dotand seine kinetische Energie sowie eventuelle

innere Energie an den Stoßpartner abgibt. In Schritt 2 wird die durch Schritt 1 vom Heliumnanotröpfchen aufgenommene Energie durch abdampfen von einzelnen Heliumatomen wieder abgeführt. Dieser Vorgang kann abhängig vom Dotierdruck mehrfach stattfinden was durch Schritt 3 und 4 dargestellt ist. Aufgrund der Suprafluidität des Heliums ziehen sich die Dotanden im Heliumnanotröpfchen an und verbinden sich innerhalb von $\tau \approx 10^{-10}$ s zu einem Dimer, oder bei mehr als zwei Dotanden zu einem Cluster [41]. Die dabei frei werdende Bindungsenergie wird wiederum durch abdampfen von Heliumatomen dissipiert oder führt zur Bildung von Phononen [41].

Die übertragene Energie auf das Heliumtröpfchen setzt sich zusammen aus der kinetischen Energie E_{koll} übertragen durch den inelastischen Stoßprozesses, der Bindungsenergie des Dotanden mit weiteren Dotanden E_{D-D} , der Bindungsenergie des Dotanden an die Heliumumgebung E_{D-He} und der inneren Energie E_{inner} des Dotanden im Falle von Molekülen als Dotierspezies. Somit lässt sich die Gesamtenergie E_{tot} die das Tröpfchen aufnimmt durch die Gleichung

$$E_{tot} = E_{koll} + E_{D-D} + E_{D-He} + E_{inner} \quad (2.6)$$

zusammenfassen. Hierbei ist $E_{koll} \approx E_{inner} + 3/2k_bT + m_d/2|\langle v_{He} \rangle|^2$ mit m_d der Masse des Dotanden, v_{He} der Geschwindigkeit des Heliumtröpfchens und E_{inner} der inneren Energie des Dotanden [41].

Berücksichtigt man die Energieaufnahme der Heliumnanotröpfchen durch den Dotierprozess, wird klar, dass die Annahme eines konstanten Wirkungsquerschnitt für den Dotierprozess nicht korrekt sein kann, da sich die Heliumnanotröpfchen dabei verkleinern. Kuma et al. stellt in [39] eine verbesserte Formel zur Berechnung der von einem Heliumnanotröpfchen aufgenommene Anzahl an Dotanden vor, welche die Evaporation von Heliumatomen auf Grund des Dotierprozesses berücksichtigt:

$$K = \frac{N_0}{N_{evap}} \left[1 - \left(1 - \frac{N_{evap}\chi}{3N_0} P \right)^3 \right]. \quad (2.7)$$

Darin sind P der Druck in der Dotierzelle, N_0 die Anzahl der Heliumatome im Tröpfchen vor dem Dotierprozess, N_{evap} die Anzahl der vom Tröpfchen abgedampften Heliumatome auf Grund des Dotierens mit K Dotieratomen und χ ist ein Parameter vorgestellt in [41] durch Lewerenz et al., welcher durch

$$\chi = \frac{\sigma_{cap} l}{k_b T} \sqrt{\frac{\langle v_{He}^2 \rangle + \langle V_X^2 \rangle}{\langle v_{He}^2 \rangle}} \quad (2.8)$$

definiert ist. Darin ist σ_{cap} der Pick-up Wirkungsquerschnitt vor der Dotierung, l und T die Länge und die Temperatur der Dotierzelle, v_{He} die Geschwindigkeit des Heliumtröpfchens und V_X die des Dotanden. Die Geschwindigkeit V_X kann aus der Temperatur und dem Druck in der Gasdotierzelle berechnet werden. Die mittlere Geschwindigkeit des v_{He} Heliumstrahls berechnet sich nach der *Saint-Venant-Wantzel* Formel

$$v_{He} = \sqrt{2 \frac{\kappa}{\kappa - 1} \frac{RT_0}{m} \left(1 - \left(\frac{P}{P_0} \right)^{\frac{\kappa-1}{\kappa}} \right)}. \quad (2.9)$$

Darin ist κ der Isentropenexponent für ein monoatomiges Gas, m die molare Masse, T_0 und P_0 die Düsentemperatur und der Stagnationsdruck, P der Druck in der Vakuumkammer und R die universelle Gaskonstante.

Der geometrische Wirkungsquerschnitt hängt über einen Koeffizient ζ mit dem Pick-up Wirkungsquerschnitt σ_{cap} zusammen:

$$\sigma_{cap} = \zeta \cdot \sigma_{geo}. \quad (2.10)$$

Worin ζ nach [41] Werte zwischen 0.5-0.9 annehmen kann.

In der Dissertation von Siva Rama Krishnan wurden die Pick-up Wahrscheinlichkeiten von K Edelgasatomen von Heliumnanotröpfchen durch Monte-Carlo Simulationen berechnet, welche sich an den Simulationen von Bünermann et al. für Alkali-Dotanden orientieren. Die Simulationen zeigen eine gute Übereinstimmung mit den berechneten Dotierwahrscheinlichkeiten nach Gl. 2.7.

Da in dieser Arbeit vorwiegend mit Xenon als Dotierstoff gearbeitet wurde, sind in Tabelle ?? die für den Dotierprozess relevanten Energien aufgeführt.

Tab. 2.1: Die für den Dotierprozess von Heliumnanotröpfchen mit Xenon relevanten Energien und Größen woraus sich der Energieeintrag pro vom Heliumtröpfchen aufgenommenen Dotanden berechnen lässt. Werte entnommen aus [41].

m_{Xenon} [amu]	T_D [K]	E_{koll} [cm $^{-1}$]	E_{D-D} [cm $^{-1}$]	E_{D-He} [cm $^{-1}$]
131,3	293	1183,3	210	1319

Position der Dotanden in Heliumnanotröpfchen Die Position von Dotanden in einem Heliumnanotröpfchen wird durch das Verhältnis von anziehenden Van-der-Waals-Kräften und der abstoßenden Kraft zwischen Helium und Elektronen, welche vom Pauli-Verbot verursacht wird, bestimmt. Das hat zur Folge, dass sich Kationen sowie Atome und Moleküle mit geschlossenen Elektronenschalen im inneren des Heliumnanotröpfchens lokalisieren. Für Dotanden mit einer nicht abgeschlossenen Elektronenschale hingegen überwiegt die Pauli-Abstoßung zwischen der Heliumumgebung und dem Dotanden. Das hat zur Folge, dass sich die Dotanden an der Oberfläche des Heliumnanotröpfchens lokalisieren [33, 57]. Für eine einfache Abschätzung der Position eines Dotanden in einem Heliumnanotröpfchen führte Ancilotto et al. den dimensionslosen Ancilotto-Parameter

$$\lambda = 2^{-1/6} \cdot \frac{\epsilon}{\sigma \rho^{-1} R_m^{-1}} \quad (2.11)$$

ein. Darin ist σ die Oberflächenspannung und ρ die Teilchendichte des Heliumnanotröpfchens, ϵ ist die Potentialtiefe des Lenard-Jones Potentials welches die Helium-Dotand-Bindung beschreibt und R_m der Bindungsabstand des Gleichgewichtszustands. Ist $\lambda < 1.9$ für einen Dotanden so lokalisiert sich dieser an der Tröpfchenoberfläche, hingegen für Werte $\lambda \gtrsim 1.9$ im Zentrum.

Weiterhin verändert die Dotierung die DichteVerteilung und Geometrie des Heliumnanotröpfchens in der direkten Umgebung der Dotanden. Überwiegt die Van-der-Waals Anziehung zwischen Dotand und der Heliumumgebung, so bilden sich Schalen stark erhöhter Heliumdichte direkt um die Dotierung. Die lokale Dichte kann in diesem Fall die Dichte von festem Helium übersteigen. Im Falle von Dotanden die sich an der Oberfläche des Tröpfchens lokalisieren, sorgt die Pauli-Abstoßung zwischen Helium und dem Dotanden für die Ausbildung einer Mulde im Heliumnanotröpfchen unterhalb des Dotanden, mit wiederum einer erhöhten Heliumdichte im Oberflächenbereich der Mulde.

2.2 Photoionisation

Der Prozess der Photoionisation beschreibt das Verlassen eines Elektrons aus dem gebundenen Zustand mit einem Atom ins Kontinuum, durch Wechselwirkung mit elektromagnetischer Strahlung. Eine monochromatische ebene elektromagnetische Welle kann durch das Vektorpotential

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = A_0 \hat{\epsilon} \exp \left[i \left(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t \right) \right] \quad (2.12)$$

beschrieben werden, mit der Amplitude A_0 , dem Wellenvektor \vec{k} , der Frequenz ω , der Zeit t , dem Ortsvektor \vec{r} und dem normalisierten Polarisationsvektor $\hat{\epsilon}$, welcher orthogonal auf der Ausbreitungsrichtung der Welle steht, daher $\hat{\epsilon} \cdot \vec{k} = 0$ gilt [24]. Das Vektorpotential hängt mit dem magnetischen- und dem elektrischen Feld über die beiden Gleichungen

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial}{\partial t} \vec{A}(\vec{r}, t) \quad (2.13)$$

$$\vec{B}(\vec{r}, t) = \nabla \times \vec{A}(\vec{r}, t) \quad (2.14)$$

zusammen, wobei hier das skalare Feld Φ weggelassen wurde, welches im allgemeinen Fall das Feld der Raumladungen beschreibt [24]. Durch Einsetzen des Vektorpotentials (2.12) in die Gleichungen (2.13) und (2.14), ergibt sich $\vec{E} \parallel \hat{\epsilon}$ und $\vec{B} \perp \hat{\epsilon}$. Der Hamilton H , der die Wechselwirkung eines solchen Felds mit einem einzelnen an ein Atom gebundenen Elektron beschreibt, ergibt sich aus der Addition des Einteilchen-Hamiltonian $H_0 = \vec{p}^2/2m_e + V(\vec{r})$ und des Störungs-Hamiltonian H_s

$$H_s = -\frac{e}{2m_e c} \left(\vec{p} \vec{A} + \vec{A} \vec{p} \right) + \frac{e^2}{2m_e c^2} |\vec{A}|^2. \quad (2.15)$$

Daher ergibt sich

$$H = H_0 + H_s \quad (2.16)$$

$$= \frac{1}{2m_e} \left(\vec{p} - \frac{e}{c} \vec{A}(\vec{r}, t) \right)^2 + V(\vec{r}). \quad (2.17)$$

Der Störungs-Hamiltonian lässt sich noch weiter vereinfachen, wenn man von der Coulomb-Eichung, daher $\nabla \vec{A} = 0$, ausgeht. Damit gilt für den Kommutator

$[\vec{p}\vec{A}] = \vec{p}\vec{A} + \vec{A}\vec{p} = 0$. Macht man zusätzlich die Annahme, dass die Amplitude des Vektorpotentials A_0 klein genug ist um die quadratischen Komponenten des Feldes vernachlässigen zu können und wendet die Langwellen-Näherung oder auch Dipol-Näherung (eng.: dipole approximation) $\exp[i\vec{k} \cdot \vec{r}] = 1 + i\vec{k} \cdot \vec{r} + \dots \approx 1$ an, vereinfacht sich der Störungs-Hamiltonian H_s zu:

$$\tilde{H}_s = -\frac{e}{m_e c} A_0 \hat{\epsilon} \exp(-i\omega t) \quad (2.18)$$

Die Langwellen-Näherung ist für Wechselwirkungen gerechtfertigt, bei denen die Wellenlänge des Lichts groß gegenüber der räumlichen Ausdehnung des Wechselwirkungspartners ist. Für die Wechselwirkung von Atomen sowie kleine Molekülen ($r < 1\text{nm}$) mit Licht der Wellenlängen bis runter ins VUV-Regime ($\lambda = 200\text{nm}$) ist diese Näherung anwendbar, da hier $\vec{k} \cdot \vec{r} = 2\pi r/\lambda \ll 1$ gilt.

Der vereinfachte Störungs-Hamilton \tilde{H}_1 aus Gleichung (2.18) beschreibt eine periodische Störung, für welche sich die zeitabhängigen Übergangswahrscheinlichkeiten aus einem gebundenen initialen Zustand $|i\rangle$ in einen finalen ungebundenen Zustand $|f\rangle$ im Kontinuum mit Hilfe der zeitabhängigen Störungstheorie berechnen lassen. Damit erhält man die Gleichung

$$W_{|i\rangle \rightarrow |f\rangle} = \frac{2\pi}{\hbar} |\langle f | H_s | i \rangle|^2 \delta(E_f - E_i - \hbar\omega) \quad (2.19)$$

zur Berechnung der Übergangswahrscheinlichkeiten, welche auch *Fermis Goldene Regel* genannt wird; mit E_i der potentiellen Energie des gebundenen initialen Zustands, E_f der Energie des finalen Zustands und \hbar dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum. Die Herleitung dieser Formel ist in Kapitel 16.3.3. in dem Buch *Quantum Mechanics* von Schwabl [52] einzusehen. Damit die Übergangswahrscheinlichkeit ungleich null ist muss die Bedingung $E_f - E_i - \hbar\omega = 0$ erfüllt sein. Für einfache Ionisation muss das Photon eine höhere Energie aufweisen, als die Bindungsenergie des zu ionisierenden Elektrons, was durch die Bedingung $\hbar\omega \geq (E_f - E_i)$ gegeben ist. Ein ins Kontinuum ionisierte Elektron kann durch eine ebene Welle beschrieben werden mit dem Wellenvektor \vec{k}' . Damit ergibt sich

$$E_f(\vec{k}') = \frac{\hbar k'^2}{2m_e} = E_i + \hbar\omega \quad (2.20)$$

für die Energie des ionisierten Elektrons, wobei zu beachten ist, dass E_i negativ ist, da der Energienullpunkt der Konvention nach auf die Ionisationsenergie gesetzt wird.

2.2.1 Räumliche Photoelektronenverteilung

In der bisherigen Betrachtung der Photoionisation ging eine mögliche Richtungsabhängigkeit der Elektronenemission noch nicht ein, welche durch den initialen Zustand $|i\rangle$ des Atoms bedingt ist. In der folgenden Betrachtung wird davon ausgegangen, dass der Ionisationsprozess nur ein einziges Elektron beeinflusst, wodurch der Prozess durch jeweils eine Single-Elektronen-Wellenfunktion für den Anfangszustand $|i\rangle$ und den Endzustand $|f\rangle$ beschrieben werden kann (engl: single active electron approximation). Damit kann der gebundene Anfangszustand durch

$$\Psi_{nlm}^i(r, \theta, \Phi) = R_{nl}^i(r) Y_{lm}(\theta, \Phi) \quad (2.21)$$

beschrieben werden, welcher in der Form die Lösung der zeitunabhängigen Schrödinger-Gleichung mit dem ungestörten Hamiltonian H_0 in Kugelkoordinaten ist. Der Zustand besteht aus dem Radialteil R und den Kugelflächenfunktionen Y , welche durch die Haupt-, die Drehimpuls- und die Magnetische-Quantenzahlen n , l und m charakterisiert werden. Der Winkel θ gibt einen Winkel bezogen zur Polarisationsrichtung des EM-Feldes an.

Für die Richtungsverteilung der Photoelektronen ergibt sich nach einer Erweiterung mit Partialwellen [?]:

$$J_{nlm}(\theta, \Phi) \propto \left| k^{-1/2} \sum_L \sum_M (-i^L e^{i\delta_L}) Y_{LM}(\theta, \Phi) \tilde{R}_{nl}^{kL} \tilde{Y}_{lm}^{LM} \right|^2, \quad (2.22)$$

mit den beiden Matrixelementen

$$\tilde{R}_{nl}^{kL} = \int_0^\infty R_{\kappa L}^{(f)}(r) R_{nl}^{(i)}(r) r^3 \quad (2.23)$$

$$\tilde{Y}_{lm}^{LM} = \int_0^\pi \int_0^{2\pi} Y_{LM}^*(\theta, \Phi) Y_{lm}(\theta, \Phi) \sin \theta \cos \theta d\theta d\Phi, \quad (2.24)$$

worin k den Betrag des Wellenvektors der auslaufenden Welle angibt und δ_L die Phasenverschiebung der L -ten Partialwelle.

Auswahlregeln Für den physikalisch relevanten Fall, dass die Winkelmatrixelemente \tilde{Y}_{lm}^{LM} nicht null sind, lassen sich Auswahlregeln für die Quantenzahlen l, m, L und M ableiten.

Setzt man die Kugelflächenfunktionen

$$Y_{lm}(\theta, \phi) = \sqrt{\frac{(2l+1)(l-m)!}{4\pi(l+m)!}} P_l^m(\cos\theta) e^{im\phi}, \quad (2.25)$$

mit den zugeordneten Legendrepolytomen $P_l^m(\cos(\theta))e^{im\phi}$ in den Ausdruck für das Winkelmatrixelement 2.24 ein, nutzt die Orthogonalität der Legendrepolytome

$$\int_0^\pi P_{l'm} P_{lm} \sin(\theta) d\theta = \delta_{l'l} \quad (2.26)$$

sowie die Identität

$$P_{lm}(\cos\theta) = \sqrt{\frac{(l+1)^2 - m^2}{(2l+3)(2l+1)}} P_{l+1,m} + \sqrt{\frac{l^2 - m^2}{(2l+1)(2l-1)}} P_{l-1,m}, \quad (2.27)$$

ergeben sich folgende Auswahlregeln für nicht- verschwindende Übergangs-Matrixelemente:

$$\Delta l = L - l = \pm 1 \quad (2.28)$$

$$\Delta m = M - m = 0. \quad (2.29)$$

Damit bleiben nach dem Ausführen der Summe in Gleichung 2.22 nur zwei Summanden übrig. Damit erhält man für die Winkelverteilung der Elektronen den Ausdruck:

$$J_{nlm}(\theta, \Phi) \propto \left| \sqrt{\frac{l^2 - m^2}{4l^2 - 1}} \tilde{R}_{n,l-1}^{E,l-1} Y_{l-1,m}(\theta, \Phi) \right. \quad (2.30)$$

$$\left. - e^{i(\delta_{l+1} - \delta_{l-1})} \sqrt{\frac{(l+1)^2 - m^2}{(2l+3)(2l+1)}} \tilde{R}_{n,l+1}^{E,l+1} Y_{l+1,m}(\theta, \Phi) \right|^2 \quad (2.31)$$

Anisotropie-Parameter β

Betrachtet man ein Ensemble aus Atomen welche ionisiert werden und zu dem Photoelektronensignal beitragen, sind erstmal die Bahndrehimpulse der Elektronen zufällig orientiert. Ionisiert man mit einem linear polarisierten Licht die Atome in dem Ensemble, erhält man die Projektionen aller vorliegenden Orientierungen der Bahndrehimpulse auf diese ausgezeichnete Polarisationsrichtung. Somit erhält man die Winkelverteilung in diesem Fall, durch Mitteln von Gleichung 2.31 über alle m-Werte.

Für einen Ein-Photon-Prozess, ergibt sich für die Winkelverteilung die Gleichung:

$$J_{nl}(\theta) \propto 1 + \beta P_2(\cos \theta) \quad (2.32)$$

[12]. Hierin wird β als Anisotropie-Parameter bezeichnet. Dieser ist auf Werte zwischen -1 und +2 beschränkt, da $J_{nl} \geq 0$ gelten muss.

2.2.2 Mehrphotonen-Ionisation

Neben der Photoionisation durch ein einzelnes Photon, sind auch Mehrphotonen Ionisationsprozesse möglich, wobei zwischen resonanten und nicht-resonanten Prozessen unterschieden wird. Im Falle eines nicht-resonanten Ionisationsprozesses wird das Elektron direkt aus seinem Anfangszustand ionisiert. Dabei benötigt es eine Vielzahl an Photonen welche in einem kleinen Zeitintervall mit dem Atom wechselwirken, plus einer hohen Laserintensität. Ionisation durch mehrere Photonen bei geringen Laserintensitäten können durch die sogenannten Resonanzverstärkte Multiphotonenionisation (engl.: resonance enhanced multiphoton ionisation (REMPI)) realisiert werden. Die Ionisation durch einen REMPI-Prozess läuft in zwei Schritten ab. Im ersten Schritt findet eine rezonante Anregung eines Elektronen-Zustands des Atoms durch ein oder mehrere Photonen statt. Im zweiten Schritt wird aus diesem oder aus einem, durch einen spontanen Zerfall angeregten Zustand ein Elektron ionisiert.

2.2.3 Starkfeld-Ionisation

In Kapitel 2.2 wird Grundlegendes zur Photoionisation dargelegt, wobei zur Vereinfachung des Problems, Annahmen gemacht wurden, welche ab dem Übersteigen einer gewissen Feldstärke des Lichts, nicht mehr gerechtfertigt sind.

Für höhere Lichtfeldstärken wurden verschiedene Theorien und Methoden entwi-

ckelt, mit welchen sich Dynamiken von Systemen in starken Lichtfeldern voraussagen lassen, auf die im Folgenden näher eingegangen wird.

Bei der Wechselwirkung von Materie mit ultrakurze Laserpulse oder starke Laserstrahlung spielen mit steigender Feldstärke nicht-lineare Effekte eine immer größere Rolle, wie zum Beispiel die *above threshold ionization* (ATI) [1], Tunnelionization, barrier suppression ionisation (BSI) [10] oder Erzeugung von höher Harmonischen (engl.: High harmonic Generation (HGG)) [13]. Von starken Feldern wird im folgenden geredet, wenn die Feldstärke ausreicht, um einen signifikanten Einfluss auf die Energielandschaft des zu untersuchenden Systems hat.

Eine wichtige Größe bei Wechselwirkung von Materie mit starken Lichtfeldern, ist die ponderomotive Energie, welche die mittlere Oszillationsenergie beschreibt, die ein freies Elektron durch ein elektromagnetisches Strahlungsfeld erhält. Das ponderomotive Potential für den nicht-relativistischen Fall ist gegeben durch

$$\Phi(r, t) = \frac{q^2}{2m_e\epsilon_0 c\omega^2} |E(r, t)|^2, \quad (2.33)$$

wobei q die Elektronenladung, m_e die Elektronenmasse, ϵ_0 die dielektrische Konstante im Vakuum, c die Lichtgeschwindigkeit, ω die Frequenz des Lichtfeldes und $|E(r, t)|^2 = I$ die Lichtfeldintensität ist [7]. Die ponderomotive Energie U_p kann als Kriterium verwendet werden um zu beurteilen ob die Feldstärke stark ist bezogen auf die Ionisationsenergie des zu betrachteten Systems. Eine einfache Abschätzung für das einsetzen des Stark-Feld Regimes ist, wenn

$$U_p > E_I \quad (2.34)$$

gilt.

Wenn die Feldstärke vergleichbar wird mit dem Coulomb-Potential des Atoms, kann es zu der sogenannten **Tunnelionisation** kommen, bei welcher das Coulomb Potential durch das einfallenden Strahlungsfeld soweit abgesenkt wird, dass die Elektronen durch die abgesenkten Potentialbarriere tunneln können. Das resultierende Potential ergibt sich aus der Summe des Coulombpotentials eines Atoms der Ladung Z und einem EM-Feld $\epsilon(t)$ (hier in z-Richtung) zu

$$V(r, t) = -\frac{Ze^2}{4\pi\epsilon r} - e\epsilon(t)z \quad (2.35)$$

[8]. In Abb. 2.5 ist der Effekt des Lichtfeldes auf das Coulombpotential, auf ein Elektron und die dadurch verursachte Dynamik illustriert.

L. W. Keldysh führte theoretische Untersuchungen zur Abhängigkeit der Ionisationswahrscheinlichkeit von dem Ionisationspotential und den Strahlungsparametern des elektromagnetischen Feldes (Intensität und Frequenz der Strahlung) durch [34]. Keldysh führte den sogenannten **Keldysh-Parameter**

$$\gamma = \frac{\omega}{\omega_{tunnel}} = \sqrt{2m_e U_I P} \frac{\omega}{e\epsilon_0} = \sqrt{\frac{U_{IP}}{2U_P}} \quad (2.36)$$

ein. Darin ist ω die Frequenz des EM-Feldes, $\omega_{tunnel} = 1/2t_{tunnel}$ die Tunnelrate, U_{IP} die Ionisationsenergie, m_e und e die Masse und Ladung des Elektrons, ϵ_0 die dielektrische Konstante im Vakuum. Der Keldysh-Parameter gibt je nach Wert an, ob Tunnelionisation oder Multiphoton-Ionisation (MPI) der dominante Ionisations-Prozess ist. Für die Definition ging er von einer Zeit t_{tunnel} aus, welche das Elektron benötigt um aus der Potentialbarriere raus zu tunneln. Dabei wird deutlich, dass diese Zeit kleiner sein muss, als die Lebensdauer der durch das Lichtfeld gesenkten Potentialbarriere, damit Tunnelionisation der dominante Ionisationsprozess sein kann.

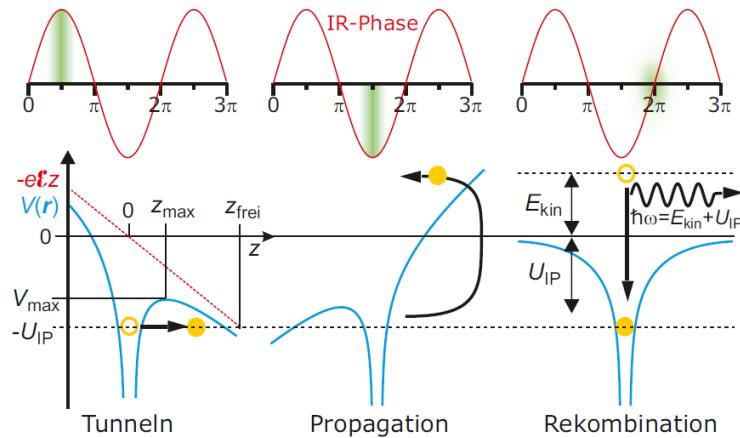


Abb. 2.5: Schematische Darstellung der Tunnelionisation, Propagation und Rekombination eines Elektrons im starken Lichtfeld. Der gelbe Punkt stellt das Elektron dar. Oben sieht man die Amplitude des Lichtfeldes; in grün ist die jeweilige Amplitude des Lichtfeldes bei den drei Schritten markiert. Entnommen aus [8]

Allgemein lässt sich sagen, dass angenommen die Energie eines Photons $\hbar\omega$ ist kleiner als die Ionisationsenergie, findet vorwiegend MPI statt wenn $\gamma > 1$ (Hohe Frequenz ω und niedrige Intensität I) und Tunnelionisation für $\gamma \ll 1$ (Niedrige Frequenz ω bei hoher Intensität I).

Keldysh hat weiterhin eine Ionisationsrate mit Hilfe störungstheoretischer Berechnungen hergeleitet, welche jedoch den Einfluss des Coulombfeldes des Atoms aus dem das Elektron ionisiert wurde nicht berücksichtig. Er berechnete die Ionisationsrate ausgehend von einem gebundenen Zustand hin zu einem freien Elektron, welches nach der Ionisation lediglich das EM-Feld spürt und dessen Zustand durch einen sogenannten *Volkov-Zustand* beschrieben werden kann [6]; dadurch ergibt sich nach dieser Theorie eine zu hohe Ionisationsrate.

Mit der 1966 von Perelemov, Popov und Terent'ev vorgestellte Theorie (PPT-Theorie) lässt sich die Ionisationsrate für Wasserstoffartige-Atome unter dem Einfluss von linear polarisiertem Licht, für beliebige Grundzustände berechnen [46]. Diese Theorie wurde von Ammonov, Delone und Krainov weiterentwickelt (ADK-Theorie) für die Anwendung beliebig komplexe Atome (siehe [11] Seiten 183 und folgende). Nach dieser Theorie errechnet sich die Rate für Tunnelionisation für linear polarisiertes Licht zu

$$\Gamma_{ADK}^{lin} = \sqrt{\frac{3(n^*)^3\sqrt{I}}{\pi Z^3}} \frac{\sqrt{I}D^2}{8\pi Z} \exp\left[-\frac{2Z^3}{3(n^*)^3\sqrt{I}}\right] \quad (2.37)$$

und für zirkular polarisiertes Licht ergibt sich

$$\Gamma_{ADK}^{zirk} = \frac{\sqrt{I}D^2}{8\pi Z} \exp\left[-\frac{2Z^3}{3(n^*)^3\sqrt{I}}\right], \quad (2.38)$$

worin $n^* = \frac{Z}{\sqrt{2E_I}}$ die sogenannte *effektive principle quantum number* ist und $D = \left(\frac{4eZ^3}{3(n^*)^4}\right)^{n^*}$.

Die sogenannte Feldionisation, auch *barrier suppression ionisation* (BSI) genannt, findet bei noch höheren Feldstärken statt. Dabei wird die Coulomb-Barriere durch das Lichtfeld soweit abgesenkt, dass dieses unter das Energilevel des Elektrons fällt und das Elektron das Atom direkt verlassen kann. Dieser Effekt ist in Abb. 2.6 schematisch dargestellt.

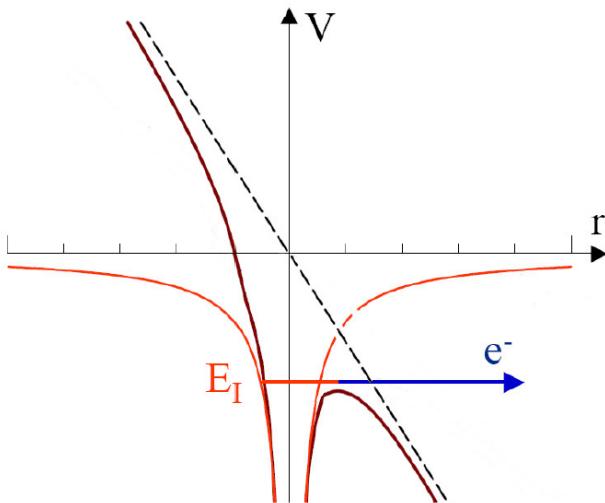


Abb. 2.6: Schematische Darstellung der direkten Feldionisation durch ein Starkes EM-Feld. Die orange Kurve ist das ungestörte Coulombpotential; Die braune Kurve gibt das durch das Lichtfeld gestörte Potential an, welches das Elektron sieht.

2.3 Cluster in intensiven NIR-Pulsen

In den vorherigen Kapiteln wurde auf die Ionisationsprozesse von einzelnen Atomen eingegangen. In diesem Abschnitt werden die Dynamiken von Cluster in starken Nahinfrarot (NIR) Laserpulsen erläutert. Cluster sind Zusammenschlüsse von Atomen oder Molekülen welche je nach Spezies durch Van der Waals Kräfte, Ionenbindung oder auch durch metallische Bindung zusammengehalten werden. Das untersuchen von Clustern ist aus vielerlei Hinsicht von wissenschaftlichem Interesse, da sich Cluster in einer weiten Spanne von Größen (10^2 bis 10^7) generieren lassen und somit ein probates Mittel sind um den Übergangsbereich von einzelnen Atomen und Molekülen (quantisierte Zustände) hin zu Festkörper (quasi-kontinuierliche Zustände) zu untersuchen.

In dieser Arbeit wurde nur mit Helium-Clustern gearbeitet, welche im Gegensatz zu anderen Edelgas-Clustern keine kristalline Struktur aufweisen sondern in der für Helium einzigartigen suprafluiden Phase vorliegen.

2.3.1 Clusterpotential - innere und äußere Ionization

In dieser Arbeit werden Cluster betrachtet, welche aus $\sim 10^2 - 10^6$ Atomen bestehen und demnach Radien im Bereich von $\sim (1 - 50)\text{nm}$ aufweisen. Da die Radien der Cluster deutlich kleiner sind als die Wellenlängen des NIR-Pulse erfahren alle Atome in einem Cluster während der Wechselwirkung mit dem NIR-Puls das gleiche EM-

Feld. Daher ist es selbst bei der Betrachtung der Ionisationsdynamiken von Clustern gerechtfertigt die Ionisationsprozesse für einzelne Atome heranzuziehen um diese zu erklären.

Jedoch kommen bei der Wechselwirkung von Clustern mit intensiven Laserpulsen kollektive Elektronen- und Ionen-Dynamiken hinzu.

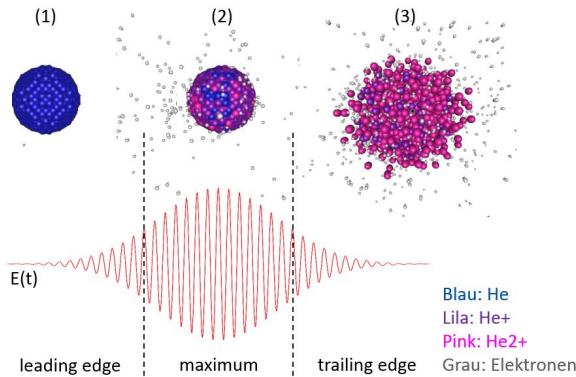


Abb. 2.7: Schematische Darstellung der Plasmaformation in 3 Schritten

Es ist hilfreich die Wechselwirkung von Clustern mit einem intensiven NIR-Laserpuls in drei Schritte zu unterteilen wie es in Abb. 2.7 dargestellt ist. Im ersten **Schritt (1)** werden die ersten Atome im Cluster während der Wechselwirkung mit der sogenannten *leading edge* des Laserpulses ionisiert. Dabei sind abhängig von der Laserintensität Tunnelionisation und barrier suppression Ionisation (BSI) die dominierenden Ionisationsmechanismen. Da einige der dadurch von den Atomen gelösten Elektronen ausreichend kinetische Energie gewinnen, können diese den Cluster verlassen.

Dadurch wird er Cluster positiv geladen und es bildet sich ein Clusterpotential U

$$U(r) = \begin{cases} -\frac{Q}{2R} \left(3 - \frac{r^2}{R^2} \right), & r \leq R \\ -\frac{Q}{r}, & r \geq R \end{cases}. \quad (2.39)$$

aus, worin R der Clusterradius und r die Entfernung vom Zentrum des Cluster ist [36].

Das Clusterpotential sorgt dafür, dass manche Elektronen, die durch Ionisation von einem Atom im Cluster gelöst werden, keine ausreichende kinetische Energie haben um das Clusterpotential zu verlassen ($E_{kin} < E_{pot}$) und als quasifreie Elektronen betrachtet werden können. Dieser Prozess wird **innere Ionisation** genannt und erzeugt somit ein Plasma [40]. Bei der sogenannten **äußerer Ionisation** gewinnt ein quasifreies Elektron soviel kinetische Energie, dass es das Clusterpotential verlassen kann. In **Schritt (2)** beginnt das Nanoplasma zu expandieren, während

es mit dem Laserpuls wechselwirkt. Dabei finden eine Reihe an Prozessen statt, welche eine effektive Absorption von Energie aus dem Laserfeld zur Folge haben. Die quasifreien Elektronen beginnen mit dem Laserfeld zu oszillieren, wodurch sie stark aufgeheizt werden. Dies Absorption wird sehr effizient falls die Eigenfrequenz der Elektronen im Plasma die Laserfrequenz trifft. Die Oszillation der Elektronen gegen den Ionenrumpf kann als harmonischer getriebener, gedämpfter Oszillator betrachtet werden [49], mit der Eigenfrequenz, auch Plasmafrequenz

$$\omega_p = \frac{4\pi n_e e^2}{m_e} \quad (2.40)$$

genannt [5]. Darin ist n_e die Elektronendichte und e die Elementarladung. Bei dieser Resonanz ist die Rate für äußere Ionisation sehr hoch. Anzumerken ist, dass die Plasmafrequenz während der Wechselwirkung des Clusters mit dem Laserfeld nicht konstant. Das wird dadurch klar, dass die Ladungsdichte durch die Expansion des Clusters nicht konstant.

In **Schritt (3)**, während der sogenannten trailing egde des Laserpulses (siehe Abb. 2.7) expandiert der Cluster, genauer ausgedrückt der Ionenrumpf weiter. Das hat zur Folge, dass einerseits das Clusterpotential abnimmt und andererseits die Potentialbarrieren zwischen den Ionen tiefer werden. Dadurch wird die Rate für die innere Ionisation geringer und die quasifreien Elektronen haben es einfacher das Clusterpotential zu verlassen. Während dieser Phase wird ein Teil der kinetischen Energie der Elektronen durch Stöße in kinetische Energie und Anregung der Ionen umgewandelt. Durch die Rekombination von Elektronen mit den Ionen werden während dieser Phase auch Röntgenstrahlung produziert [36].

Energieabsorption und Ionisationsmechanismen im Cluster Im Folgenden wird genauer auf die Ionisationsprozesse und die unterschiedlichen Mechanismen für die Energieabsorption von Clustern während der Wechselwirkung mit kurzen intensiven NIR-Laserpulsen eingegangen.

Ionisation: Ab einer Laserintensität von 10^{14} W/cm^2 spielt die Multiphotonenionisation für die Clusterionisation mit NIR-Pulsen keine Rolle mehr, wie auch durch den Keldysh-Parameter von 1.1 für Licht der Wellenlänge $\lambda = 800 \text{ nm}$ ersichtlich wird. Somit sind für NIR-Pulse und Intensitäten ab 10^{14} W/cm^2 BSI und ATI die dominierenden Ionisationsmechanismen, welche die ersten quasifreien Elektronen im Cluster erzeugen und somit die sogenannte Nanoplasmazündung (ignition) einleiten.

Wie zuvor schon erwähnt, spielt Elektronenstoß-Ionisation eine wichtige Rolle bei der Ionisation von Clustern. Dies wird auch speziell für Heliumnanotropfchen

deutlich, welche im Innern eine Dichte annährend der von flüssigem Helium haben, was zu einer hohen Elektronen-Ionen Kollisionsrate führt. Die quasifreien Elektronen erfahren durch das elektromagnetische Wechselfeld des Laserpulses eine periodische Kraft

$$F_p = -\frac{e^2}{4m\omega^2} \nabla(E^2) \quad (2.41)$$

mit e der Elementarladung, m der Masse des geladenen Teilchens, ω der Winkelfrequenz des EM-Feldes und E der Amplitude des EM-Feldes. Durch diese Kraft führen die Elektronen eine Schwingung mit dem Laserfeld gegen die schwereren Ionen aus. Die Energie die das Elektron über das EM-Feld des Laserpulses gewinnt, wird auch ponderomotive Energie genannt.

Die Ionisationsrate durch Elektronenstoßionisation kann mit der empirischen Formel von Lotz [42] berechnet werden. In Abb.2.8 ist der Verlauf des Wirkungsquerschnitts nach Lotz für die Elektronenstoßionisation von Helium als Funktion der kinetischen Energie des Elektrons gezeigt. Darin wird nicht nur die thermische Energie der Elektronen berücksichtigt, sondern auch die Schwingungsenergie der Elektronen welche durch das Laserfeld gewonnen wird.

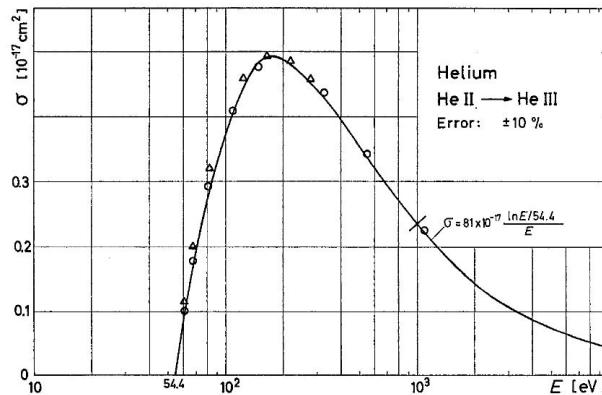


Abb. 2.8: Wirkungsquerschnitt für Elektronenstoßionisation von Helium als Funktion der Stoßenergie der Elektronen berechnet nach der Formel von Lotz. Aus [42]

Energieabsorption: Wie schon zuvor erwähnt führt die kollektive Elektronenschwingung durch das Laserfeld zu einer Aufheizung des Clusters durch Stöße. Dieser Prozess kann als Aufheizung einer dielektrischen Kugel in einem elektrischen Wechselfeld betrachtet werden, hier durch das Laserfeld gegeben. Dabei kann das elektrische Feld im Cluster mithilfe des Drude Models und den Maxwellgleichungen berechnet werden. Das elektrische Feld im Cluster berechnet sich nach

$$E = \frac{3E_0}{|\epsilon + 2|}, \quad (2.42)$$

mit E_0 dem externen elektrischen Feld und ϵ der dielektrischen Konstanten des Plasmas nach der Drude Theorie:

$$\epsilon = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega_0(\omega_0 + i\nu)}. \quad (2.43)$$

Darin ist ω_0 die Laserfrequenz und ν die Elektronen-Ionen Stoßfrequenz, welche mit der Silin Formel berechnet werden kann [53]. Aus den Formeln 2.42 und 2.43 wird deutlich, dass die Aufheizung des Clusters maximal wird wenn $\epsilon = -2$ gilt.

Expansion: Die Expansion eines Cluster wird durch zwei Drücke hervorgerufen. Durch die effektive positive Aufladung des Cluster auf Grund von Elektronen welche durch äußere Ionisation den Cluster verlassen, stoßen sich die Ionen im Cluster voneinander ab. Der Druck

$$P_C = \frac{3Q^2}{8\pi R^4}. \quad (2.44)$$

der dadurch auf den Cluster ausgeübt wird, wird sinngemäß auch Coulomb-Druck genannt.

Weiterhin üben die heissen Elektronen einen hydrodynamischen Druck P_H auf die Ionen aus, indem sie sich abstoßen und durch Stöße die Ionen mit sich ziehen:

$$P_H = n_e k_b T \quad (2.45)$$

[5]. Da der Coulomb-Druck mit Q/r^4 skaliert, spielt dieser für kleinere Cluster mit niedrig geladenen Ionen eine wichtige Rolle, wohingegen der hydrodynamische Druck auf größere Cluster einen stärkeren Effekt ausübt, da dieser mit r^{-3} skaliert.

2.3.2 Dotierte Edelgas-Cluster

In den vorangegangenen Kapiteln wurden nur Cluster bestehend aus einem Edelgas betrachtet. Jedoch kann das dotieren von Fremdatomen oder ganzen Clustern in einen Edelgascluster die Ionisationsparameter und Dynamik drastisch beeinflussen. Dabei kann der Dotand als eine Art Katalysator für die Plasmazündung fungieren, indem er die ersten quasifreien Elektronen bereitstellt welche die lawinenartige Plas-

mazündung einleiten. Damit hat sich gezeigt, dass zum Beispiel im Falle von Xenon dotierten Heliumclustern sich die benötigte Laserintensität um circa zwei Größenordnungen verringern lässt um den gesamten Heliumcluster zu ionisieren . Da in dieser Arbeit mit Heliumnanotröpfchen dotiert mit Xenon gearbeitet wurde, wird in diesem Kapitel exemplarisch dieses System betrachtet.

Dotiert man Heliumnanotröpfchen mit nur einigen wenigen Xenonatomen, wird dieser in ein hochreaktives Objekt für NIR-Pulse, obwohl das Helium alleine durch Strahlung der Wellenlänge $\lambda = 780 \text{ nm}$ und einer Intensität von $I \sim 10^{14} \text{ W/cm}^2$ nicht ionisiert werden kann. Mit nur wenigen Xenonatomen als Dotanden, kann das gesamte Heliumnanotröpfchen unter diesen Bedingungen ionisiert werden und in ein Nanoplasma verwandelt werden. Dies wird durch zwei Prozesse hervorgerufen, wovon der erste das Bereitstellen von ersten Seed-Elektronen und der zweite rezonante Energieabsorption des Cluster ist. Der erste Prozess findet auf ultrakurzen Zeitskalen von Elektronen-Dynamiken statt, der zweite auf vergleichsweise langsameren Zeitskalen der Ionenbewegung [49]. In diesem Prozess dient das Xenon als eine Art Katalysator für die Nanoplasmazündung, da das erste Ionisationspotential von Xenon mit $E_{ip} = 12.1 \text{ eV}$ deutlich tiefer liegt als das von Helium bei $E_{ip} = 24.6 \text{ eV}$. Die dadurch produzierten Seed-Elektronen Wechselwirken mit dem Laserfeld indem Sie pondromotive Energie gewinnen und durch Stöße mit dem Helium dieses ionisieren können. Dieser Prozess wurde in theoretischen molecular dynamics (MD) Simulationen vorhergesagt und im Experiment bereits nachgewiesen [30, 54].

3 Methoden

3.1 Velocity-Map-Imaging (VMI)

Velocity map imaging (VMI) ist eine verbreitete Technik in Bereichen wie der Atom- und Molekülphysik sowie in der physikalischen Chemie. Genutzt wird VMI zur Messung von Geschwindigkeitsverteilungen geladener Teilchen, welche durch Photoionisation oder sonstige Ionisationsprozesse in einem definierten Volumen erzeugt werden. In Abb. 3.1 ist die VMI Technik schematisch dargestellt. Diese Technik, welche zum ersten Mal von Eppink und Parker [20] angewandt wurde, ist nicht sensitiv auf den Ionisationsort, das heißt die anfängliche räumliche Verteilung der geladenen Teilchen hat hierbei keinen Einfluss auf das Messergebnis. Teilchen mit gleichen anfänglichen Geschwindigkeitsvektoren expandieren in einer sogenannten Newtonkugel, welche durch elektrostatische Felder eines Linsensystems auf einen planaren Detektor beschleunigt wird. Das Detektorsystem besteht typischerweise aus einem oder mehreren Micro Channel Plates (MCP) und einem Phosphorschirm, dessen Signal eine CCD-Kamera aufzeichnet.

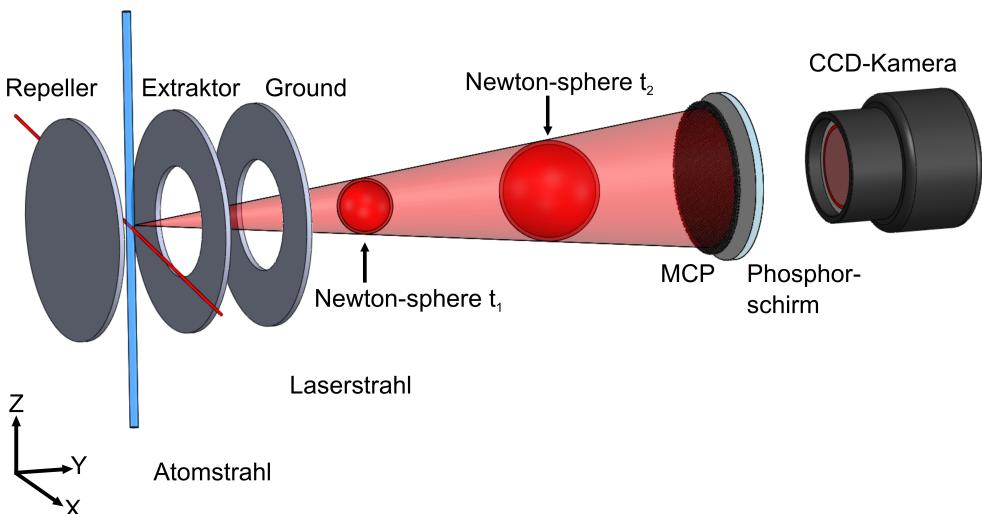


Abb. 3.1: Schematische Darstellung eines VMI Setups. Ein Laserstrahl kreuzt sich mit einem Atomstrahl zwischen den Repeller- und Extraktorelektroden wo er die Atome/Moleküle ionisiert. Die frei werdenden Elektronen formen Newtonkugeln, welche in der Flugzeit zum Detektor expandieren - angezeigt durch die Zeiten t_1 und t_2 - und durch das E-Feld zwischen den Elektroden in Richtung des MCP beschleunigen. Dort wird die 3D-Geschwindigkeitsverteilung auf den ortsauflösenden 2D-Detektor (MCP) projiziert. Eine CCD-Kamera zeichnet das vom Phosphorschirm erzeugte Bild auf. Die initiale 3D-Geschwindigkeitsverteilung kann über eine Abel-Transformation rekonstruiert werden, siehe dazu 3.2.

Geschwindigkeitsverteilung der Photoelektronen

In diesem Abschnitt wird näher auf die Geschwindigkeitsverteilung der geladenen Teilchen eingegangen, welche man in einem VMI-Spektrometer messen will. Ein-fachheitshalber gehen wir davon aus, dass die geladenen Teilchen aus einem punktförmigen Volumen emittiert werden, welches zwischen den Repeller und Extraktor-Elektroden liegt. Weiterhin setzen wir voraus, dass die durch die Überschussenergie des Ionisationsprozesses erhaltene kinetische Energie der Teilchen, klein gegenüber der Energie ist, die sie aus dem elektrischen Feld zwischen den Elektroden erhalten. Die Anfangsbedingungen der geladenen Teilchen werden durch das Ionisationsvolumen (hier ein Punkt) und die initialen Geschwindigkeitsvektoren $\vec{v}_i = (v_x, v_y, v_z)$ gegeben, deren Verteilung gemessen werden soll. Die Teilchen werden von dem E-Feld in Richtung der Spektrometerachse (hier Z-Richtung) der planaren Detektorfläche beschleunigt wo sie, abhängig von ihren anfänglichen Geschwindigkeitsvektoren, auf einem Punkt $P_i = (x_i, y_i)$ treffen. Geht man von einer isotropen initialen Verteilung der Geschwindigkeiten aus, können Teilchen mit sich unterscheidenden initialen Geschwindigkeitsvektoren auf den gleichen Punkt des Detektors treffen. Dieser Effekt

ist in Abb. 3.2 illustriert. Folglich lässt sich nicht direkt von den Auftreffpunkten P_i auf dem Detektor die initiale Geschwindigkeitsverteilung bestimmen. Aus diesem Grund benötigt man zusätzliche Informationen über die anfängliche Geschwindigkeitsverteilung, um diese rekonstruieren zu können. Verwendet man zum Beispiel einen linear polarisierten Laserstrahl zur Ionisation wird durch den Polarisationsvektor $\vec{\epsilon}$ eine Raumrichtung ausgezeichnet, wodurch die Geschwindigkeitsverteilung radial zylindersymmetrisch bezogen auf diese Achse ist. Wählt man die Polarisierung parallel zur Detektorfläche erhält man eine zylindersymmetrische Verteilung um die y-Achse. Für diesen Fall lässt sich der Zusammenhang der Projektion F mit der Verteilung $f(r, y)$ mathematisch herleiten. Ein unendlich weit entfernter Beobachter, der in in z-Richtung auf die Verteilung f schaut, sieht das in z-Richtung integrierte Signal F

$$F(x, y) = \int_{-\infty}^{\infty} f(r, y) dz = 2 \int_0^{\infty} f(r, y) dz \quad (3.1)$$

Führt man die Substitution $r^2 = x^2 + z^2$ durch, erhält man für die Gl. 3.1

$$F(x, y) = 2 \int_{|x|}^{\infty} \frac{f(r, y)r}{\sqrt{r^2 - x^2}} dz, \quad (3.2)$$

welche auch Abel-Transformation genannt wird und mit welcher sich unter gegebenen Umständen aus der 3D-Geschwindigkeitsverteilung die Projektion berechnen lässt.

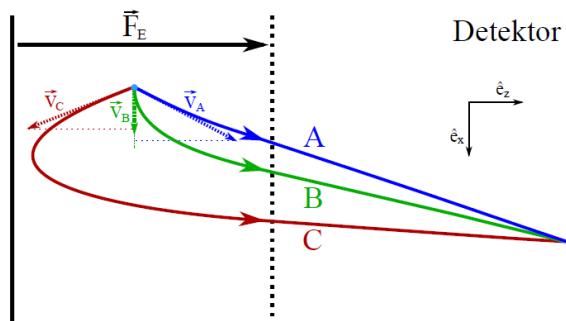


Abb. 3.2: Schematische Darstellung von Teilchentrajektorien A, B und C vom Ionisationsvolumen zur Detektorebene, welche trotz anfänglich unterschiedlicher Geschwindigkeitsvektoren auf den selben Punkt der Detektorebene beschleunigt werden. Entnommen aus [22].

3.2 Inverse Abel-Transformation

In Kapitel ist gezeigt wie man mit der Abel-Transformation aus einer gegeben dreidimensionalen zylinder- oder achsen-symmetrischen Verteilung, die zweidimensionale Projektion dieser Verteilung auf eine Ebene berechnen kann. Beim Arbeiten mit einem VMI-Spektrometer hat man jedoch genau die umgekehrte Situation - man will aus der 2D-Projektion auf die ursprüngliche 3D-Verteilung zurückschließen. Es kann gezeigt werden, in diesem Fall der Zusammenhang zwischen den Funktionen über

$$F(x, y) = -\frac{1}{\pi} \int_{|r|}^{\infty} \frac{dF(x, y)}{dx} \frac{1}{\sqrt{x^2 - r^2}} dx \quad (3.3)$$

gegeben ist [4].

Die BASEX und pBASEX-Methode Im Fall von realen Messdaten, ist die Formel zur inversen Abel-Transformation nur bedingt anwendbar, da die 2D-Projektion nicht durch eine hinreichend glatte Funktion beschreiben lässt, die man durch die Gleichung 3.3 transformieren könnte.

Aus diesem Grund muss man auf andere Methoden zurückgreifen, welche die ursprüngliche Geschwindigkeitsverteilung aus dem aufgenommen Bild rekonstruieren können. Eine Methode ist die von Dribinski *et al.* vorgestellte BASEX-Methode [18], welche das gemessene Bild durch eine Linearkombination von Basis-Funktionen nähert, dessen Abelinversionen analytische berechenbar sind. Das Set von Funktionen gegeben durch

$$f_k(x) = \left(\frac{3}{k^2}\right)^{k^2} \left(\frac{r}{\sigma}\right)^{2k^2} \exp\left[\left(-\frac{r}{\sigma}\right)^2\right] \quad (3.4)$$

erfüllt diese Eigenschaft; worin ω ein fester Parameter ist [4].

Damit lässt sich jede initiale 2D-Verteilung durch die Linearkombination

$$f(\varrho) = \sum_k c_k f_k(x) \quad (3.5)$$

nähern. In Abb. 3.3 sind einige Basisfunktionen und deren inverse Abel-Transformationen gezeigt.

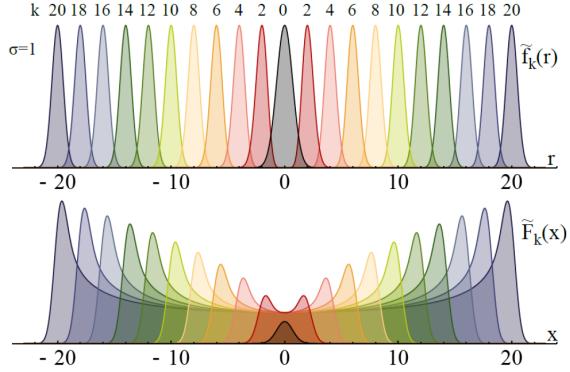


Abb. 3.3: Oben in der Grafik sind einige Basisfunktionen f_k geplottet, welche für die BASEX-Methode verwendet werden und unten sieht man die entsprechenden Abel-transformierten Funktionen F_k . Entnommen aus [22]

Garcia *et al.* stellte die sogenannte pBASEX-Methode vor, welche im Prinzip wie die BASEX-Methode funktioniert, jedoch anstelle von kartesischen Koordinaten auf Polarkoordinaten zurückgreift. Mit dieser Methode lassen sich in Polarkoordinaten ausgedrückte Basis-Funktionen wählen, welche Symmetrien aufweisen die nahe den vorhandenen Symmetrien im Experiment sind.

Die verwendeten Basisfunktionen sind in diesem Fall gegeben durch

$$f_{kl}(r, \theta) = \exp\left[-\frac{(r - r_k)^2}{2\sigma}\right] \times P_l(\cos\theta), \quad k = 1 \dots 128 \quad l = 0, 2 \quad (3.6)$$

mit den Legendrepolynomen p_l .

Damit erhält man wieder die ursprüngliche Verteilung durch

$$f(r, \theta) = \sum_k \sum_l c_{kl} f_{kl}(r, \theta). \quad (3.7)$$

Meveler-Methode Mittlerweile wurden eine Vielzahl an Methoden entwickelt mit der die Rekonstruktion der 3D-Geschwindigkeitsverteilung für reale Daten durchgeführt werden kann, wie zum Beispiel die MEVIR oder MEVELER Methode, welche auf der Maximum-Entropie-Methode (MEM) beruhen. Im Rahmen dieser Arbeit wird nicht genauer auf diese Methoden eingegangen, jedoch kann Genaueres über diese Methoden in [16] nachgelesen werden.

3.3 Erzeugung intensiver Femtosekundenpulse

Die Standardmethode zur Erzeugung von intensiven Femtosekundenpulsen umfasst die Pulserzeugung durch einen modengekoppelten Oszillator mit großer spektraler Bandbreite, gefolgt von der sogenannten Chirp Pulse Amplification (CPA) (dt.: Verstärkung gechirpter Pulse). Dabei wird der initiale Laserpuls durch optisch disperse Elemente (z.B.: Gitter, Prisma, optische Faser) zeitlich stark ausgeweitet um das danach folgende Verstärkermedium nicht durch zu hohe Intensitäten zu zerstören. Nach der Verstärkung des Pulses beim Durchlauf des Verstärkermediums wird dieser wieder durch eine Gitter- oder Prisma-Anordnung komprimiert, wodurch der Puls wieder auf seine ursprüngliche Pulslänge mit erheblich höherer Intensität verkürzt wird. Im Folgenden wird genauer auf die einzelnen genannten Komponenten eingegangen.

Oszillator Der Oszillator des Lasersystems beinhaltet einen Ti:Sapphire (Ti:Sa) Kristall als aktives Medium, welcher über einen Nd:YVO gepumpt wird. Die Pulse werden durch passive Modenkopplung, realisiert durch den Kerr-Linsen Effekt, erzeugt. Der Start der gepulsten Mode wird zufällig in Phase schwingender Moden eingeleitet. Der Kerr-Linsen Effekt beruht auf dem intensitätsabhängigen Brechungsindex $n(I)$, welcher durch die Formel

$$N(I) = n_0 + n_2 \cdot I(r, t) \quad (3.8)$$

berechnet werden kann. Darin ist n_0 der lineare Brechungsindex und n_2 der sogenannte Kerr-Koeffizient der die Stärke der Intensitätsabhängigkeit beschreibt. Dadurch werden ausgehen von einem transversalen Gaußprofil des Laserstrahls in Phase schwingende Moden, welche sich konstruktiv überlagern und eine höhere Intensität aufweisen, stärker fokussiert. Dadurch erfahren in Phase schwingende Moden eine höhere Verstärkung pro Oszillatormlauf, verglichen mit der cw-Mode. Dies setzt sich fort bis nahezu alle Moden des Oszillators in Phase schwingen und die gepulste Mode erzeugen.

Verstärker und Kompressor Da die Pulse aus einem solchen Oszillator nur wenigen nJ aufweisen, müssen diese verstärkt werden um im späteren Verlauf eine ausreichen hohe Pulsintensität zu erreichen. Dies wird durch Chirp Pulse Amplification erreicht. Der Puls wird dabei zuerst zeitlich durch disperse Elemente auf einige Pikosekunden gestreckt, um den Puls im Folgenden durch einen Multipass-

Verstärker zu schicken ohne das Verstärkermedium zu beschädigen. Das Verstärkermedium besteht wiederum aus einem Ti:Sa Kristall, welcher durch einen Nd:YAG Laser gepumpt wird der eine Repetitionsrate von 3 kHz aufweist. Die im Oszillator erzeugten Pulse haben eine Repetitionsrate von 80 MHz. Dadurch werden nur die Pulse des Oszillators verstärkt welche mit den Pulsen des Pump-Lasers gleichzeitig auf das Verstärkermedium treffen. Nicht verstärkte Pulse werden durch eine Pockels-Zelle raus gefiltert. Nach dem Multipass-Verstärker haben die Pulse ca. 1 m J bei einer Repetitionsrate von 3 kHz aber einer Pulslänge von einigen Pikosekunden, welche jedoch durch die hohe Bandbreite auf eine Pulslänge von 25 fs komprimiert werden können.

4 Experimenteller Aufbau

Für die vorliegende Arbeit wurde an einer Apparatur gearbeitet, die in der Arbeitsgruppe Molekül- und Nanophysik an der Universität Freiburg aufgebaut und für das Erforschen von Nanoplasmen konzipiert wurde. In Abb. 4.1 ist der schematische Aufbau der Apparatur gezeigt. Mithilfe der Apparatur lassen sich ultrakalte Molekularstrahlen, bestehend aus Edelgasen erzeugen, mit weiteren Gasen oder thermisch verdampften Feststoffen dotieren und mithilfe eines VMI- und eines TOF-Spektrometers lichtinduzierte Dynamiken untersuchen. Zur Erzeugung der Nanoplasmen wurde die Apparatur nach Heidelberg ans Max-Planck-Institut für Kernphysik gebracht, da dort geeignete Lasersysteme bereitgestellt werden können.

In den folgenden Abschnitte werden die wesentlichen Komponenten der Apparatur in Funktion und Design beschrieben.

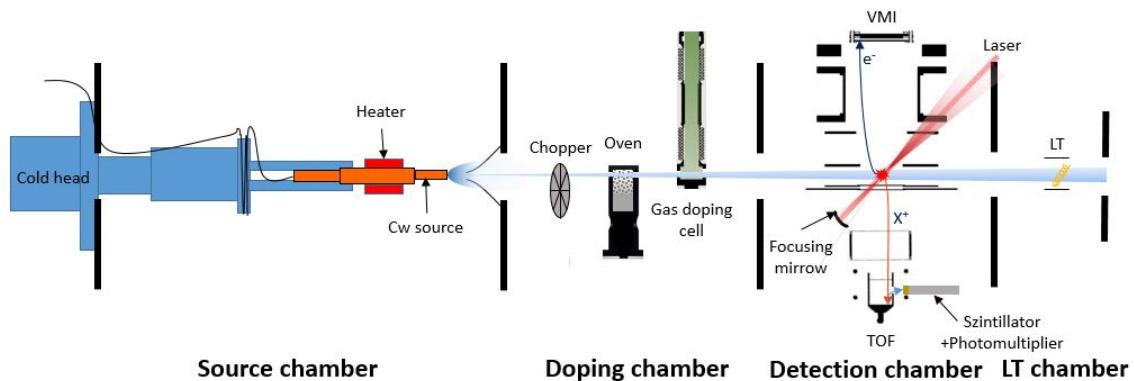


Abb. 4.1: Schema des Setups

4.1 Quellenkammer

Die Quellenkammer besteht aus einer 6-Wege-CF-Vakuumkammer, an welcher sich ein 2-stufiger-Kryostat befindet mit dem sich die daran angebrachte Düse auf $\approx 12\text{ K}$ kühlen lässt. Der Kühlleistung des Kryostats lässt sich mit Hilfe von Heizwiderständen entgegensteuern. In Kombination mit einer Diode zur Temperaturmessung

und einem PID-Regler ist es möglich die Düse auf eine gewünschte Temperatur zu stabilisieren. Die zur Atomstrahlerzeugung verwendete kontinuierliche Düse wird in Freiburg gefertigt. Sie besteht aus Kupfer und hat vorne ein Platinplättchen mit einem runden 5 µm Loch eingebracht, welches zusammen mit dem variable einstellbaren Gasdruck an der Düse und der Düsenteratur den Durchfluss reguliert. Der Kaltkopf und damit die Düse sind über einen x-y-Manipulator an der Kammer angebracht, welches eine Strahljustage bezogen auf die weitere Komponenten im Setup ermöglicht, während die Düse in Betrieb ist. An der Unterseite der Kammer ist eine Turbopumpe mit einer Pumpleistung von maximal $33\,000\,\text{l min}^{-1}$ angebracht.

4.2 Ofenkammer

Die Ofenkammer ist über einen Skimmer mit der Quellkammer verbunden. Der Skimmer dient zum Zuschneiden des Atomstrahls, was zum einen die anfallende Gaslast in der Ofenkammer verringert und zum anderen den Strahl, im Ruhesystem der Teilchen, abkühlt. Um eine mögliche Beschädigung des Skimmers durch Druckdifferenzen in Quell- und Ofenkammer zu verhindern, sind die beiden Kammern durch einen Beipass mit einem Ventil verbunden.

In der Ofenkammer befinden sich Halterungsschienen, auf welchen sich zwei Dotieröfen in den Atomstrahl einbringen lassen. Des weiteren ist ein Chopper in den Strahlverlauf eingebaut, der über eine externe Steuerung mit einer Drehfrequenz von 1 Hz bis 100 Hz betrieben werden kann oder im Stillstand dauerhaft den Atomstrahl am Passieren in die Detektorkammer hindert. An der Unterseite der Kammer ist eine Turbopumpe mit einer Pumpleistung von maximal $1150\,\text{l s}^{-1}$ angebracht.

Dotierofen

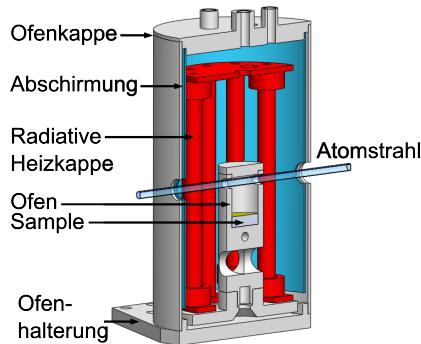


Abb. 4.2: CAD-Model einer Ofenassembly mit radiativem Heizelement und Halterung.

In Abb. 4.2 ist ein CAD-Modell des verwendeten Dotierofens dargestellt. Wie in der Zeichnung zu sehen ist, befindet sich der Ofen unter einer radiativen Heizkappe, welche den ganzen Ofen auf eine feste Temperatur erhitzen kann. Die restliche Ofenkammer ist vor der Strahlung der Heizkappe durch eine Abschirmung und durch die Ofenkappe abgeschirmt. Der Ofen hat ein Hohlvolumen in welches sich das Probenmaterial einbringen lässt. Die Ofenkappe, die Abschirmung sowie der Ofen haben konzentrisch angeordnet Öffnungen, welche das passieren eines Atomstrahls erlauben. Der passierende Atomstrahl nimmt über Stöße mit verdampftem Probenmaterial Dotanden auf.

4.3 Detektorkammer

Die Detektorkammer schließt über ein Ventil und einen Flansch zum Zuschneiden des Atomstrahls an die Ofenkammer an. In dem Flansch befinden sich zwei vertikal an Drehdurchführungen angebrachte Rasierklingen. Diese lassen sich von außerhalb des Vakuums horizontal in oder aus der Strahlachse bewegen, was ein präzises Zuschneiden des Strahlprofils ermöglicht. An der Unterseite der Kammer ist eine Turbopumpe mit einer maximalen Pumpleistung von 300 l s^{-1} angebracht.

In der Detektorkammer befindet sich das neu entwickelte Velocity-Map-Imaging Spektrometer und ein Flugzeit-Massenspektrometer.

4.3.1 VMI-Spektrometers

In dieser Arbeit wird ein neu entwickeltes VMI-Spektrometer vorgestellt, was speziell für die Detektion von energetischen Elektronen und Ionen entwickelt wurde. Dafür wurden der Standardgeometrie von Eppink und Parker [20] zwei ausgedehnte Elektroden hinzugefügt, was das Spektrometer um eine zusätzliche Einzellinse erweitert. Die damit erreichbare Energieakzeptanz liegt bei $\lesssim 270$ eV für ein 42 mm bzw.

$\lesssim 1200$ eV für ein 78 mm MCP-Detektor. Erste Kalibrationsmessungen am Sychrotron in Italien *Elettra* und REMPI-Messungen an Kalium mit einem Diondenlaser zeigen eine Energieauflösung von $\Delta E/E \lesssim 4\%$, welche durch Simulationen bestätigt werden. Die Ergebnisse der Messungen und Simulationen werden in Kapitel 5 vorgestellt.

Spektrometer Design

Das Spektrometer wurde insbesondere für VMI-Messungen an Nanoplasmen, erzeugt durch Starkfeld-Ionisation von Heliumnanotröpfen und dotierten Edelgas-Clustern konzipiert. Das Design erlaubt das Platzieren eines Fokussierspiegels nahe am Ionisationsvolumen, was eine starke Fokussierung des Laserstrahls ermöglicht. Weiterhin wurde das Design dahingehend optimiert, dass energetische Elektronen und Ionen (keV-Bereich) aus einem Nanoplasma detektieren werden können.

Ausgehend von dem Eppink-Parker-Design hat man folgende vier Möglichkeiten um die Energieakzeptanz eines VMI-Spektrometers zu erhöhen:

- (i) Erhöhen des **Detektordurchmessers**.
- (ii) Verkürzen der **Flugstrecke** der geladenen Teilchen vom Ionisationsvolumen zum Detektor.
- (iii) Erhöhung der an die Elektroden angelegten **Beschleunigungsspannung**.
- (iv) Hinzufügen von elektro- bzw. magnetostatischen **optische Elemente** zur Fokussierung geladener Teilchen.

In unserem Spektrometer wurden die Modifikationen der Punkte (ii), (iii) und (iv) umgesetzt. Dabei wurde das Spektrometer-Design, bezogen auf die Modifikationen (ii) und (iii), auf den optimalen Kompromiss zwischen großer Energieakzeptanz bei noch ausreichend guter Auflösung optimiert. Der Kompromiss muss eingegangen werden, da prinzipiell eine längere Flugstrecke die Auflösung des Spektrometers erhöht, jedoch ebenso die Energieakzeptanz verringert. Bezuglich der Modifikation (iv) wurde der Eppink-Parker Elektrodenanordnung aus drei Elektroden, zwei weitere ausgedehnte Elektroden hinzugefügt um eine Einzellinse zu realisieren, welche die geladenen Teilchen nochmals fokussiert. In Abb. 4.3 ist der Effekt der Einzellinse für drei verschiedene Spannungen U_{lens} gezeigt. Die Spannungen von Repeller U_{rep} und Extraktor U_{extr} werden so eingestellt, dass Teilchen mit gleichem initialem Geschwindigkeitsvektor, aber unterschiedlichem Emissionsort ins unendliche fokussiert werden, wie in dem Inset zu erkennen ist. Durch die Linsenspannung U_{lens} lässt

sich der Fokus auf den Detektor bringen und unter Variation der angelegten Spannung der Fokus entlang der Spektrometerachse verschieben. Dabei ändert sich der Auftreffpunkt der Teilchen auf dem Detektor nur unwesentlich. Somit lässt sich die Energiefokussierung annähernd unabhängig von den Auftreffpunkten der Elektronen einstellen. Ein weiterer Vorteil der Linse ergibt sich dadurch, dass die Elektronentrajektorien hinter der Linse von der Spektrometerachse weggebogen werden. Dadurch wird verhindert, dass Elektronen, welche knapp am Detektor vorbeifliegen würden, durch Randfelder der Elektroden unkontrolliert auf den Detektor beschleunigt werden. Die kurze Driftstrecke macht das Spektrometer wenig anfällig für externe Magnetfelder. Zur Abschirmung wurde bisher nur ein μ -Metall Schild verwendet, jedoch ist falls nötig ein weiterer Schild einfach zu installieren. Eine effektive Abschirmung gegen elektrische Felder von außerhalb wird durch die ausgedehnten Linsenelektroden und die kompakte Bauweise gewährleistet.

Bei der Entwicklung des Designs des Spektrometers wurde sich an den von Garcia *et al.* und Skruszewicz *et al.* vorgestellten Designs orientiert [26,35]. Für die Findung eines optimalen Designs wurden systematische Simulationen der Elektronentrajektorien durchgeführt, wobei auf maximale Energieakzeptanz mit ausreichend guter Auflösung optimiert wurde. Dazu wurde die Software SIMION8.0 verwendet, welches die Bewegungsgleichungen für geladenen Teilchen in einem Potential berechnen kann, welches für eine vorgegebene Elektrodenanordnung und beliebige Spannungswerte gegeben wird.

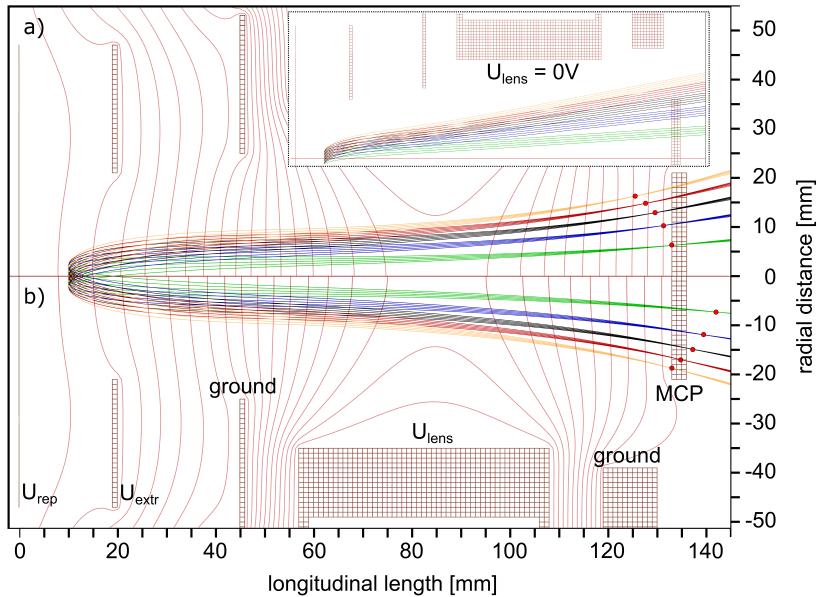


Abb. 4.3: Schnittansicht der Elektrodenanordnung des Spektrometers, exemplarische Elektronentrajektorien für verschiedene Startpositionen, verschiedene transversale Geschwindigkeiten und unterschiedliche Spannungseinstellungen. Die entsprechenden Spannungseinstellungen $U_{rep} = -3000\text{ V}$, $U_{extr} = -2320\text{ V}$ in a) sind $U_{lens} = +5240\text{ V}$, in b) $U_{lens} = +4685\text{ V}$. Das Inset zeigt die Trajektorien für $U_{lens} = 0\text{ V}$.

Für die Simulation wurden die Trajektorien von Elektronen betrachtet, welche mit unterschiedlichen Startenergien und Winkeln aus einem Würfelveolumen mit Kantenlänge von 0.6 mm emittiert wurden. Die Emissionswinkel wurden von 10 bis 170 Grad zur Spektrometerachse in 10 Grad Schritten variiert. Für diese Bedingungen wurde die Positionen sowie die Geometrie eines Einzellinsensystems aus 3 Elektroden variiert, wobei auch zylindrische und konische Geometrien getestet wurden. Gleiche Simulationsritte wurden für eine Version mit nur zwei räumlich ausgedehnten Linsenelektroden durchgeführt, was unwesentlich verschiedene Eigenschaften bezogen auf die Version mit 3 Elektroden aufwies. Daher wurde die einfacheren Version mit nur 2 Linsenelektroden realisiert.

In Abb. 4.4 ist die technische Umsetzung des Spektrometers gezeigt. Der Elektrodenaufbau passt auf einen CF160-auf-CF200 Adapterflansch. Koaxiale Durchführungen für Hochspannungen ($\approx 20\text{ kV}$), welche in CF16-Flansche eingeschweißt sind, können an CF16-Flansche angebracht werden, welche mit Rohransätzen in den Adapterflansch eingeschweißt sind. Der Detektoraufbau wird an einen CF100-auf-CF160 Adapterflansch angebracht. Die unabhängige Anbringung der Elektroden und des Detektoraufbaus ermöglicht ein einfaches Wechseln des Detektortyps. Den Abschluss

macht ein CF100-Fensterflansch, durch den das Signal des Phosphoschirms zur CCD-Kamera gelangen kann.

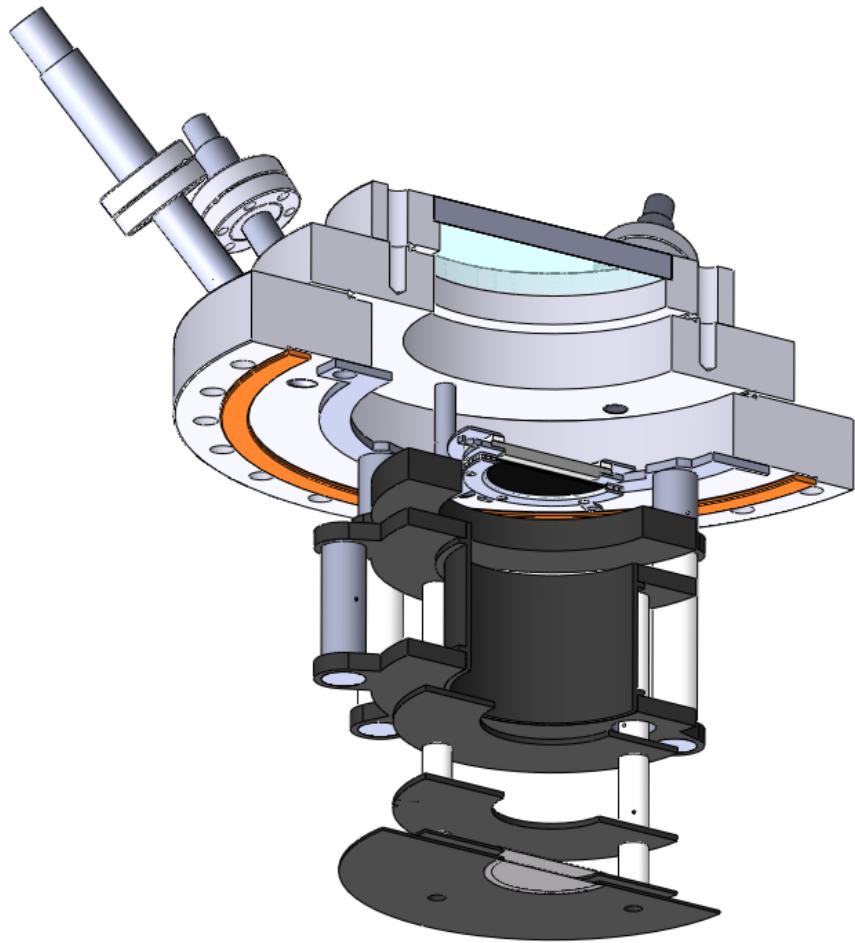


Abb. 4.4: Schnittansicht des CAD-Modells des Spektrometeraufbaus. Die schwarzen Bauteile sind die Elektroden und die weißen Bauteile sind PEEK Isolatoren.

Der Aufbau der Elektroden besteht aus zwei durch wenige Millimeter getrennte Repellerelektroden mit kreisförmigen Öffnungen, auf welche ein feinmaschiges Kupfergitter aufgebracht wurde, einer Blendenelektrode als Extraktor, einer weiteren Blendenelektrode die auf Groundpotential gehalten wird und anschließend aus der ausgedehnten Linsenelektrode mit folgender zweiter Groundelektrode. Die Öffnungen der Repellerelektroden ermöglichen die Nutzung dieser Elektroden ebenso als Extraktorelektroden für ein TOF-Spektrometer. Bei simultanem Betrieb des VMI- und des TOF-Spektrometers, verhindern die aufgeklebten Gitter gegenseitige Feld-einflüsse der beiden Spektrometer. Alle Elektroden wurden in einer ersten Version aus Aluminium gefertigt und mit einer dünnen Schicht Grafit beschichtet. Jedoch hat sich die Grafitbeschichtung als problematisch herausgestellt, da Grafitpartikel

von den Elektrodenoberflächen auf die Isolatoren gezogen werden können, wenn sich die Isolatoren während der Konditionierung des Spektrometers kurzzeitig statisch aufladen. Das hatte zur Folge, dass die Durchschlagsfestigkeit deutlich verringert wurde. Als Folge wurden die Repeller-, Extraktor und erste Groundelektrode aus Titan und die Linsenelektroden aus Edelstahl neu angefertigt und ausgetauscht. Die entsprechende Dimensionen der Elektroden und Abstände werden aus Abb. 4.3 ersichtlich.

Detektorsystem

Das Detektorsystem besteht aus drei Komponenten: Zwei MCPs der Firma Topaq (MCP 46-12) in Chevron-Konfiguration, einem Phosphorschirm der Firma Proxi-vision mit einer P47 Beschichtung und einem Durchmesser von 50 mm und einer CCD-Kamera von Basler (acAl920-155um).

Microchannel plate detector (MCP)

Ein MCP ist ein planarer ortsauflösender Detektor für einzelne Teilchen wie Elektronen, Ionen oder Photonen. In Abb. 4.5 sind das Design und das Funktionsprinzip eines MCPs schematisch dargestellt. Die Detektorplatte besteht typischerweise aus Glas und hat eine Vielzahl an parallel angeordnete Kanälen, wovon jeder einzelne als Sekundärelektronenvervielfacher fungiert. Die Kanäle haben typischerweise einen Winkel von 8-15 Grad bezogen auf die Normale auf der Oberfläche des MCPs, was sogenanntes Ion-Feedback minimiert und die Wahrscheinlichkeit verringert, dass ein Teilchen durch die MCPs fliegt, ohne auf eine Kanalwand zu treffen. Vorder- und Rückseite eines MCPs werden metallisch beschichtet und fungieren als Elektroden zwischen denen eine Beschleunigungsspannung angelegt wird. Energetische Teilchen, welche auf eine Kanalwand treffen, lösen ein oder mehrere Sekundärelektronen aus, welche durch das von der Hochspannung generierte elektrische Feld in Richtung der Hinterseite der MCP beschleunigt werden und durch den 8 Grad Winkel wieder auf die Kanalwand treffen, um dort weitere Sekundärelektronen auszulösen. Der dadurch verursachte Lawineneffekt verstärkt das Signal um ein Vielfaches abhängig von der spezifizierten Verstärkung. Dieser Effekt ist in Abb. 4.5 schematisch illustriert. In der zuvor erwähnte Chevron-Konfiguration werden zwei MCPs direkt hintereinander angeordnet, sodass die Kanäle aneinander anschließen und eine V-Form bilden. Dadurch wird das Ion-Feedback für eine feste Verstärkung nochmals deutlichen gemindert, bezogen auf eine einzelne MCP. Weiterhin kann eine ausreichende Verstärkung schon bei geringeren Beschleunigungsspannungen erreicht werden.

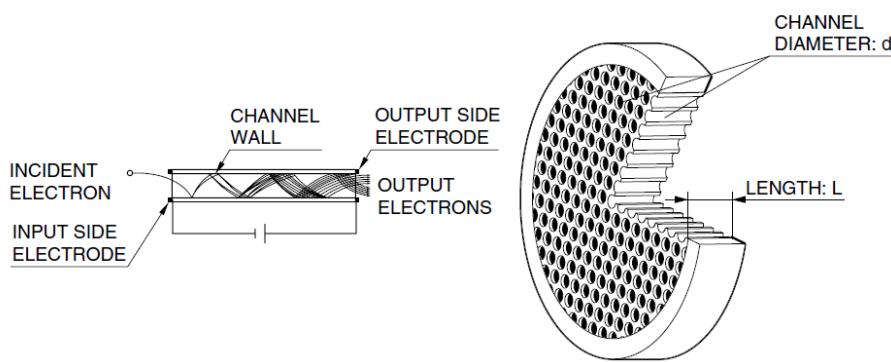


Abb. 4.5: Schematische Darstellung eines MCPs und dessen Funktionsweise [28]

Phosphorschirm

Ein typischer Detektoraufbau für ein VMI besteht aus einem MCP und einem Phosphorschirm. Der Phosphorschirm wird auf ein hohes Potential gesetzt ($\approx 3.5\text{ kV}$) wodurch die Elektronen, welche von der MCP-Rückseite kommen auf den Phosphorschirm beschleunigt werden. Dort erzeugen diese einen Lichtblitz am jeweiligen Auftreffpunkt, welcher von einer CCD-Kamera aufgezeichnet wird. Die Zerfallszeit des angeregten Zustandes des verwendeten Phosphors ($\text{P47}; \text{Y}_3\text{SiO}_5:\text{Ce}$) beträgt $\approx 100\text{ ns}$ (90% auf 10%) [21].

Time-of-flight Spektrometer (TOF)

Bei einem Time-of-flight Flugzeitmassenspektrometer wird die Flugzeit geladener Teilchen von einem Ionisationsvolumen zu einem Detektor gemessen wodurch das Verhältnis von Masse zu Ladung der Teilchen bestimmt werden kann. Dazu werden die geladenen Teilchen durch ein elektrisches Feld beschleunigt und fliegen anschließend durch eine feldfreie Driftstrecke zum Detektor. Dadurch lässt sich in einem Messschritt innerhalb weniger Mikrosekunden ein vollständiges Massenspektrum aufnehmen [61].

In Abb. 4.6 ist ein Querschnitt durch das TOF-Spektrometer zu sehen, welches in der Apparatur verwendet wird.

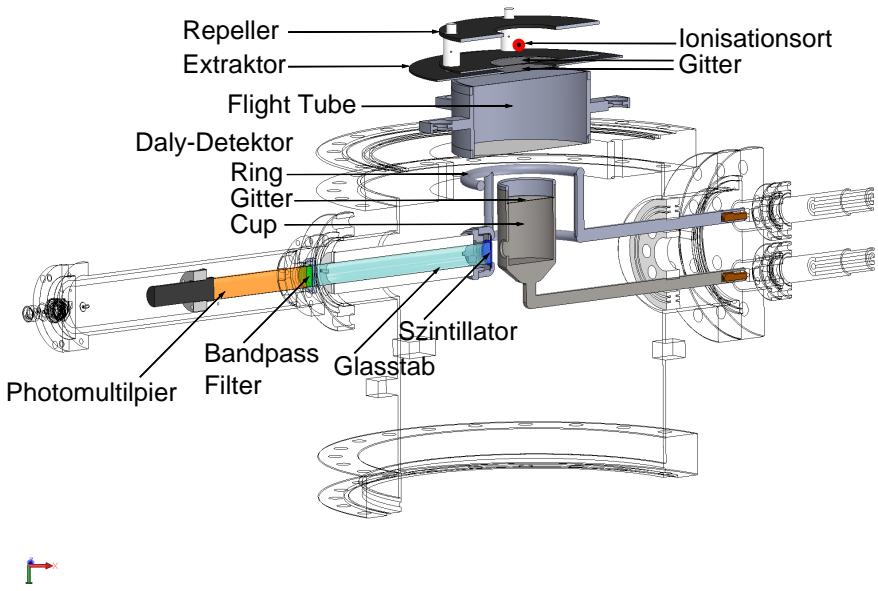


Abb. 4.6: Querschnitt durch das CAD-Modell des TOF Spektrometers mit Daly-Detektor

Das verwendete TOF Spektrometer wurde nach dem Design von Wiley und McLaren gebaut [61]. Die Erzeugung der Ionen findet zwischen den planaren Repeller und Extraktor Blendenelektroden statt, in einem Volumen, das durch den Überlapp vom Atomstrahl mit dem Laserstrahl definiert wird. Hinter der Extraktor-Elektrode befindet sich eine weitere Blendenelektrode, welche auf Nullpotential gehalten wird und somit eine weitere Flugstrecke mit definiertem Feld erzeugt; das damit realisierte zweistufige Beschleunigungsfeld kennzeichnet das erwähnte *Wiley-McLaren-Design*. Es weist eine verbesserte Auflösung im Gegensatz zum einstufigen Design auf, da es die unterschiedlichen Entstehungsorte zweier identischer Ionen kompensiert. Auf die Öffnungen der Elektroden sind Gitter geklebt, welche die Ausbreitung der Felder durch die Blendenöffnungen in den Elektroden verhindert. Die Repeller-Elektrode wird auf ein positives und der Extraktor auf negatives Potential gesetzt. Das dadurch erzeugte elektrische Feld beschleunigt die Ionen durch die Öffnungen in den Flight Tube, an welchem wiederum Gitter auf beiden Seiten angebracht sind um die Driftstrecke feldfrei zu halten.

Daly-Detektor Nach der Driftstrecke findet die Ionendetektion mittels eines Daly-Detektors statt [14] Der Detektor besteht aus einer Cup-, einer Ringelektrode, eines Szintillators und einem Photomultilpier. Das Design ist in Abb. 4.7 zu sehen.

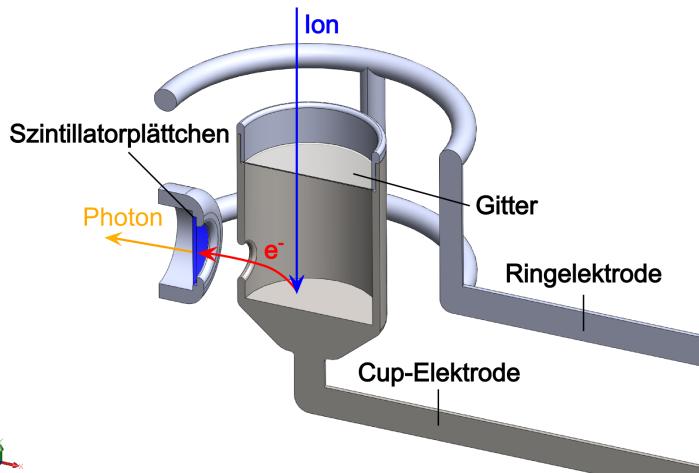


Abb. 4.7: Illustration des Funktionsprinzips eines Daly-Detektors.

Fliegen Ionen vom Drift Tube kommend durch das Gitter in den Cup, werden diese durch die an den Cup angelegte Hochspannung ($\approx 20\text{ kV}$) auf die Innenseite des Cups beschleunigt, wo sie Sekundärelektronen auslösen. Durch ein Loch im Cup werden die Elektronen aus dem Cup beschleunigt, da in die Richtung des Loches das Potential für die Elektronen stark abfällt. Die Ringelektrode erzeugt ein E-Feld, welches die Ionen in den Cup leitet. An ihr ist ein Szintillatorplättchen gehalten, auf welches die Elektronen auftreffen und in Photonen umgewandelt werden. Die Photonen werden mittels eines Glasstabs zu einem Fenster geleitet, wo sie einen auf das Szintillatormaterial angepassten Bandpassfilter (CWL=400 nm) passieren und von einem Photomultiplier verstärkt werden.

4.4 LT-Detektorkammer

Die LT-Detektorkammer besteht aus einer kleinen CF40-6-Wege-Kammer, in der ein sogenannter Langmuir-Taylor-Detektor (LT-Detektor) sich befindet. Gepumpt wird die Kammer durch eine kleine Turbo-Drag-Pumpe mit einer Saugleistung von maximal 32 l s^{-1} (für N_2). Die LT-Kammer ist über eine Blende mit der VMI-Kammer verbunden. Die Blende verringert die Gasrückdiffusion aus der LT-Kammer, welche als letzte Kammer auch als Beamdump für den Atomstrahl dient.

Langmuir-Taylor Detektor (LT)

Der Detektor besteht im Wesentlichen aus einem Glühfilament, welches sich zwischen zwei planaren runden Elektroden befindet. Das Arbeitsprinzip eines LT-Detektors

beruht auf der Oberflächenionisation durch den Tunneleffekt [15]. Für das Glühfilament wird typischerweise Rhenium, Platin oder Wolfram verwendet, da dieses eine vergleichsweise hohe Austrittsarbeit für Elektronen aufweist. Das hat zur Folge, dass vorbeifliegende neutrale Atome durch den geheizten Draht ionisiert werden, indem ein Elektron an den Draht abgeben wird. Die entstehenden Ionen werden von den um den Draht befindlichen Repeller- und Extraktorelektroden angezogen. Der Ionenstrom der an den Elektroden anfällt ist proportional zur Anzahl der ionisierten Atome und wird über ein Picoampermeter gemessen. Der Detektor dient hauptsächlich zur Strahlanalyse von effusiven Alkaliatomstrahlen und zur Justage des Strahls.

5 Messungen

In diesem Kapitel werden zuerst Messungen zur Kalibrierung des VMI-Spektrometers gezeigt, im Folgenden Messungen zur Bestimmung der Laserparameter und der Expansionseigenschaften der im Experiment verwendeten cw-Düse. Abschließend in diesem Kapitel werden Ergebnisse von Einzelschuss Elektronen-VMI Messungen an mit Xenon dotierten Heliumnanotröpfchen in kurzen NIR-Pulsen vorgestellt. Zur Charakterisierung des Spektrometers wurde zwei Experimente durchgeführt. Das erste Experiment wurde am *Syncrotrone Elletra* in Italien an der Gasphase Beamline durchgeführt, wobei Helium direkt ionisiert wurde und die Photoelektronenverteilung mit dem Spektrometer aufgenommen wurde. Ein weiteres Experiment wurde an der Albert-Ludwigs-Universität Freiburg durchgeführt, bei dem Photoelektronen aus Kalium gemessen wurden. Im folgenden wird genauer auf die Durchführung der Experimente und deren Ergebnisse eingegangen.

5.1 Charakterisierung des Spektrometers

5.1.1 VMI-Kalibrationsmessungen mit Helium

Das erste Experiment mit dem neuen Spektrometer (siehe 4.3.1) und der dafür aufgebauten Apparatur wurde während einer Beamtime in Italien am Syncrtrone Elletra, Trieste durchgeführt, wofür die komplette Apparatur an der Gasphase Beamline [19] aufgebaut wurde. Das Ziel der Messungen war die Charakterisierung des Spektrometers hinsichtlich der Energieakzeptanz und des Auflösungsvermögens des Spektrometers. Für die Messungen wurde Heliumgas (Stagnationsdruck $p_0 = 55\text{bar}$) an der Düse aus einer kontinuierlichen Düse mit einer $5\text{ }\mu\text{m}$ -Öffnung ins Vakuum expandiert und damit ein Heliumstrahl erzeugt. Der innere Teil des Strahls wurde im weiteren Strahlverlauf durch einen Skimmer ausgeschnitten, welcher in der Detektorkammer zwischen Repeller- und Extraktor-Elektrode sich mit dem XUV-Strahl des Synchrotron in einem rechten Winkel kreuzt. Dabei wird das Interaktionsvolumen auf $0.5 \times 0.5 \times 2\text{mm}^3$ geschätzt [50]. Die Gasphase Beamline kann Licht mit Photonenenergien von $13 - 900\text{ eV}$ bereitstellen [19], was uns ermöglichte das Helium aus dem Strahl bei verschiedenen Photonenenergien direkt zu ionisieren. Für die ers-

te Messreihe nahmen wir die Photoelektronen bei Photonenenergien von 25 eV bis 90 eV auf, wobei die Spannungen an den Elektroden für alle Photonenenergien identisch waren ($U_{rep} = -4.98 \text{ kV}$, $U_{ext} = -3.82 \text{ kV}$, $U_{lens} = +7.0 \text{ kV}$). Die aufgenommen Photoelektronenbilder für jede einzelne Photonenenergie wurden Hintergrund bereinigt und aus mehreren Einzelbildern (Belichtungszeit der CCD-Kamera $t = 1 \text{ ms}$) aufaddiert. Für das Zusammenfassen der Daten in einem Photoelektronenbild, wurden die aufaddierten Bilder von jeder einzelnen Photonenenergie aufaddiert, wobei die Bilder größerer Ringe im Zentrum maskiert wurden, um im addierten Bild die kleinen Ringe deutlicher sichtbar zu machen. Das Ergebnis der Bildaddition ist in Abb. 5.1 links in der oberen Bildhälfte zu sehen.

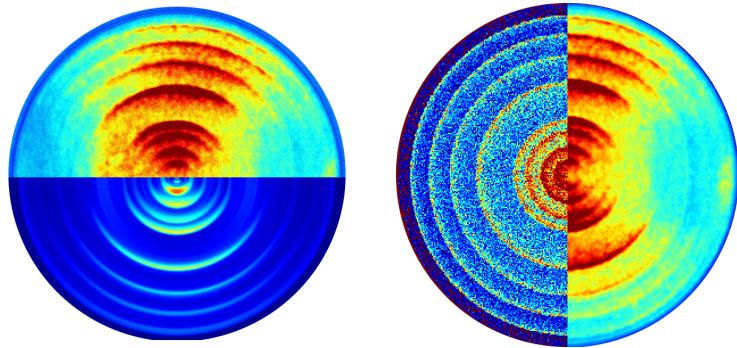


Abb. 5.1: Links: In der oberen Hälfte des Bildes ist die Summe von 8 Photoelektronenbildern zu sehen, die Photoelektronenenergien von 1.4, 3.4, 5.4, 15.4, 25.4, 45.4, 55.4, 65.4 eV darstellen. Unten ist das inverse Abel-transformierte Bild zu sehen. Rechts: Hier sieht man links die Bilder erzeugt durch Simulationen und auf der rechten Seite die entsprechenden gemessenen Daten.

Die Ringe weisen die typische Anisotropie auf, die man bei der Elektronenemission aus dem Grundzustand des Heliumatoms erwartet, wenn die Ionisation durch einen Ein-Photonen-Prozess verursacht wird mit Synchrotron-Strahlung welche bezogen zur Spektrometerachse senkrecht linear polarisiert ist. Zur Analyse der Auflösung der verschiedenen Photoelektronenenergien, wurden jedes Bild der einzelnen Energien mit der pBasex-Methode inverse Abel-transformiert. Die Auflösung wurde durch fitten der Peaks mit einer Gauß-Funktion ermittelt.

In Abb. 5.2 a) sind die quadrierten Peakpositionen aus den Fits über der Photoelektronenenergie ($E = h\nu - E_I$, mit $h\nu$ der Photonenenergie und $E_I = 24.6 \text{ eV}$ der Ionisationsenergie von Helium) aufgetragen. In b) von Abb. 5.2 ist die relative Energieauflösung $\Delta E/E$ der Photoelektronen über der Photoelektronenenergie aufgetragen. Dabei wurde ΔE definiert als die Halbwertsbreite (FWHM) der Peakfits. Die schwarzen Quadrate in Abb. 5.2 zeigen die Simulierte Daten, welche passend zu den Messungen durchgeführt wurden. Bei der Simulation wurde von einer drei-

dimensionalen Gauß-Verteilung der Startpositionen der Photoelektronen ausgegangen, welche Standartabweichungen von 1 mm in Richtung der Spektrometerachse und $1 \times 1.5 \text{ mm}^2$ in die Richtungen senkrecht auf Spektrometerachse aufweist. Die Anzahl der Elektronen für die Simulation lag für die niedrigste Energie bei 2×10^4 und wurde bis zur Höchsten auf 3×10^5 erhöht. Da für größere Ringe die Elektronen auf eine größere Fläche verteilt werden, wurde durch diese Wahl der Elektronenzahl eine annähernd vergleichbare Signalstärke zwischen kleinen und großen Ringen erreicht. Die Geschwindigkeitsverteilung wurde für die Simulation isotrop gewählt, was gerechtfertigt ist, da dies die Ergebnisse für die Energieauflösung und der Peakpositionen nicht ändert. Die Ergebnisse der Simulationen reproduzieren die Messergebnisse für die Messpunkte über 3.4 eV gut. Unterhalb dieser Elektronenenergie haben Störfelder einen größeren Effekt auf die Elektronenbewegung, weshalb für diesen Bereich die Simulation tendenziell bessere Auflösungen liefert, als in den Messungen erreicht wurde.

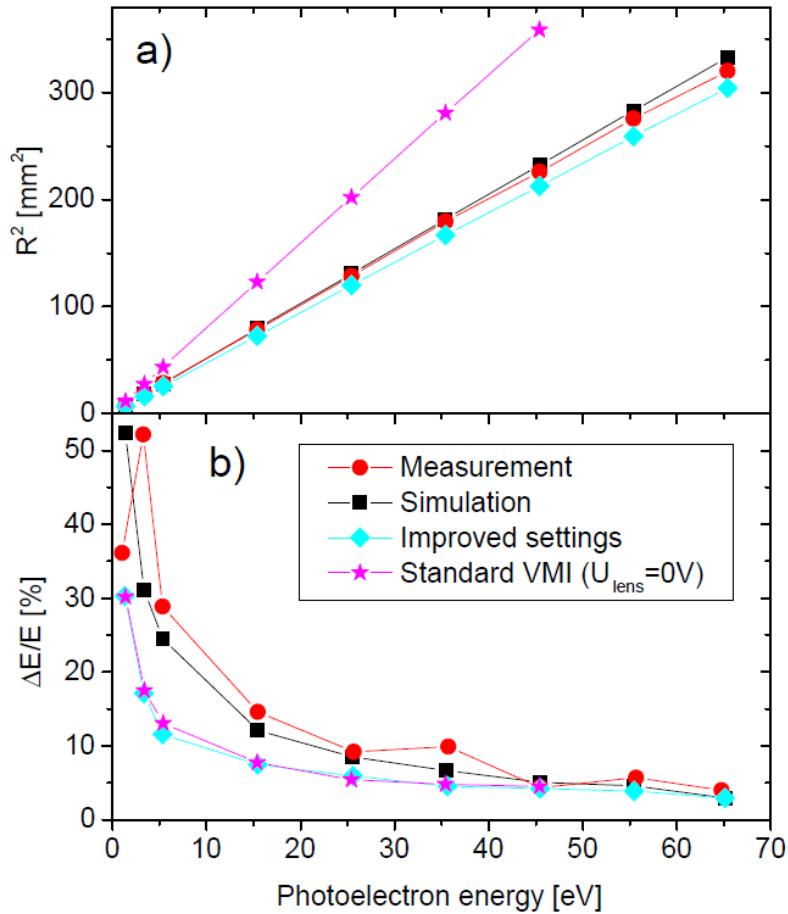


Abb. 5.2: Vergleich zwischen den experimentell gemessenen und den simulierten Spektrometer-Eigenschaften. a) Radien der Geschwindigkeitsverteilungen der Photoelektronen in der Detektorebene; b) Relative Energieauflösung für verschiedene Photoelektronenenergien. Entnommen aus [50].

Da wir während der Beamtime Probleme mit der Spannungsfestigkeit des Spektrometers hatten, konnten wir nicht bei den optimalen Spannungseinstellungen Messungen machen. Ab einer Spannung $U_{lens} > 7\text{ kV}$ waren Überschläge entlang der Isolatoren zu beobachten. Es stellte sich heraus das Grafitpartikel von der Elektrodenbeschichtung auf die Isolatoren gezogen wurde, was die Spannungsfestigkeit deutlich herabsetzte. Daher weisen die Messdaten in Abb. 5.2 schlechtere Auflösungen auf, als Simulationen mit optimalen Spannungseinstellung (hellblaue Datenpunkte), bei welchen die Photoelektronen bestmöglich auf den Detektor fokussiert werden konnten.

Simulationen bei denen die Linsenspannung $U_{lens} = 0$ gesetzt wurde (pinke Sterne in Abb. 5.2), um die Bedingungen für ein Standard-VMI nach Eppink und Parker [20] zu simulieren, zeigen eine nahezu identische Auflösung wie die Simulationen mit Linsenspannung und optimalen Einstellungen, jedoch kann die Energieakzeptanz durch die Erweiterung mit einer Einzellinse erheblich verbessert werden, wie in Abb. 5.2 a) ersichtlich ist.

Weitere Simulationen hinsichtlich der maximal erreichbaren Energieakzeptanz wurden durchgeführt, bei welchen das Verhältnis zwischen Repeller- und Extraktorspannung variiert wurde, weg von der optimalen Einstellung für die Energieauflösung, hin zu einer höheren Energieakzeptanz. Die Ergebnisse der Simulationen sind in Abb. 5.3 gezeigt. Die Simulationen zeigen, dass man für ein MCP mit einem Durchmesser von 42 mm eine Energieakzeptanz von 260 eV erreichen kann, falls man eine Repellerspannung von 20 kV bei einem Verhältnis U_{extr}/U_{ext} von 82% einstellt. Dabei verschlechtert sich die Energieauflösung auf 3.7%. Falls mit dem Spektrometer ein 78 mm MCP verwendet wird, lassen sich Maximalenergien bis in den keV-Bereich auf den Detektor projizieren, falls man ein Verhältnis U_{extr}/U_{ext} von 86% bei einer Repellerspannung von 20 kV einstellt und eine Auflösung von $\gtrsim 4.8\%$ akzeptiert.

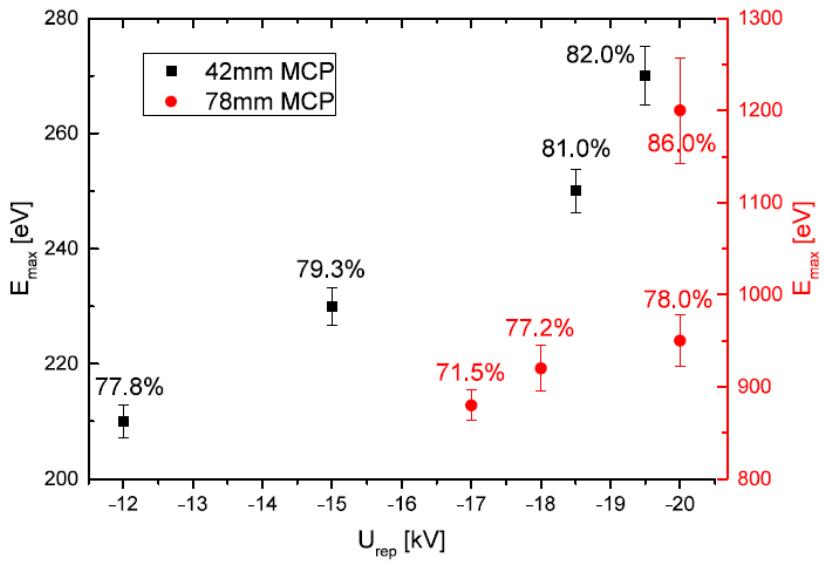


Abb. 5.3: Simulierte maximale Energieakzeptanz des Spektrometers als Funktion der Repellerspannung. Unterschiedliche Datenpunkte entsprechen verschiedenen Verhältnissen von Repeller- und Extraktorspannung (Prozentzahlen an den Daten). Schwarze Datenpunkte sind der linken Energieachse für ein 42mm MCP zugeordnet; Die Roten entsprechend der rechten Achse. Die Fehlerbalken geben die Energieauflösung an. Entnommen aus [50].

5.1.2 VMI-Kalibrationsmessungen mit Kalium

In Freiburg wurde eine weitere Messung mit Kalium durchgeführt. Dabei wurde Kalium in einem radiativ geheizten Ofen im Vakuum verdampft und durch eine kleine Öffnung im Ofen ein Effusivstrahl generiert, welcher sich mit einem fokussierten Laserstrahl von einem frequenz-stabilisierten Diodenlaser im Spektrometer in einem 90 Grad Winkel kreuzt. Der Ionisationsprozess beginnt mit der resonanten Anregung der Übergänge vom 4s-Level in die beiden 5p-Level ($5p_{3/2}$ und $5p_{1/2}$) statt, mit den Wellenlängen (Vakuum) $\lambda_1 = 404.5285$ nm und $\lambda_2 = 404.8357$ nm wie es in Abb. 5.5 durch die roten Pfeile gekennzeichnet ist. Die Ionisation findet aus den 5p-Zuständen und den darunter liegenden 3d und 4p-Zuständen statt, welche durch spontanen Zerfall der 5p-Zustände bevölkert werden. Die entsprechenden Übergangsraten für die spontanen Zerfälle und die Photoionisations-Wirkungsquerschnitte können in der NIST Datenbank nachgeschlagen werden [37]. In Abb. 5.4 links in der oberen Bildhälfte ein VMI-Bild zu sehen, welches wir für dem oben beschrieben Schema aufgenommen haben. In der unteren Bildhälfte ist das inverse Abel-transformierte Bild der Rohdaten zu sehen, welches wir mit der pBasex-Methode generiert haben und woraus wir das Photoelektronenspektrum extrahiert haben (Abb. 5.4 rechts). Für die Aufnahme der Photoelektronen hatten wir folgende Elektronenspannungen

eingestellt: $U_{rep} = -600$ V, $U_{extr} = -480$ V und $U_{lens} = +850$ V. Die Belichtungszeit lag bei wenigen Sekunden. Die Peaks in dem Photoelektronenspektrum liegen bei den Energien $E_1 = 0.34$ eV, $E_2 = 1.4$ eV und $E_3 = 1.8$ eV mit den jeweiligen Auflösungen 11%, 7.6% und 14%. Diese drei Energiewerten berechnen sich nach $E = h\nu + E_{nl} - E_I$ mit $h\nu$ der Photonenergie, E_{nl} der Energie der jeweiligen Level und E_I der Ionisationsenergie. Der Kalibrationsfaktor für die gegebenen Spektrometereinstellungen ist somit $k_{eVMI} = 0.0385$ meV/pix².

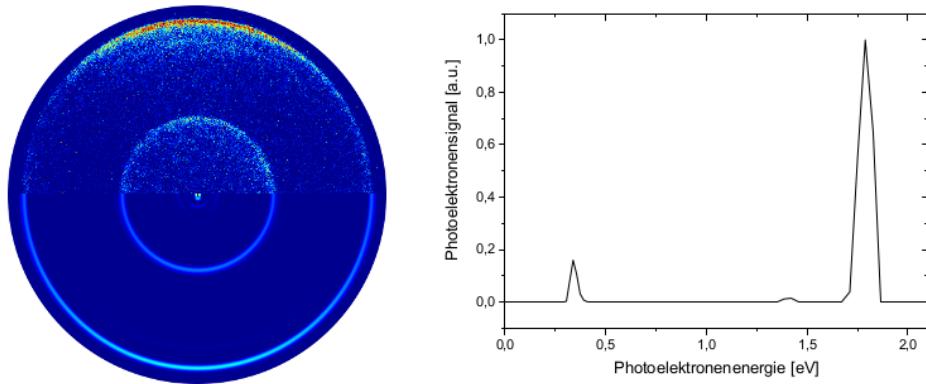


Abb. 5.4: Links: in der oberen Hälfte sieht man das Photoelektronenbild aufgenommen bei resonanter Photoionisation von Kalium mit einem Dioden-Laser, in der unteren Hälfte das inverse Abel-transformierte Bild. Rechts: PES extrahiert aus dem transformierten Bild links.

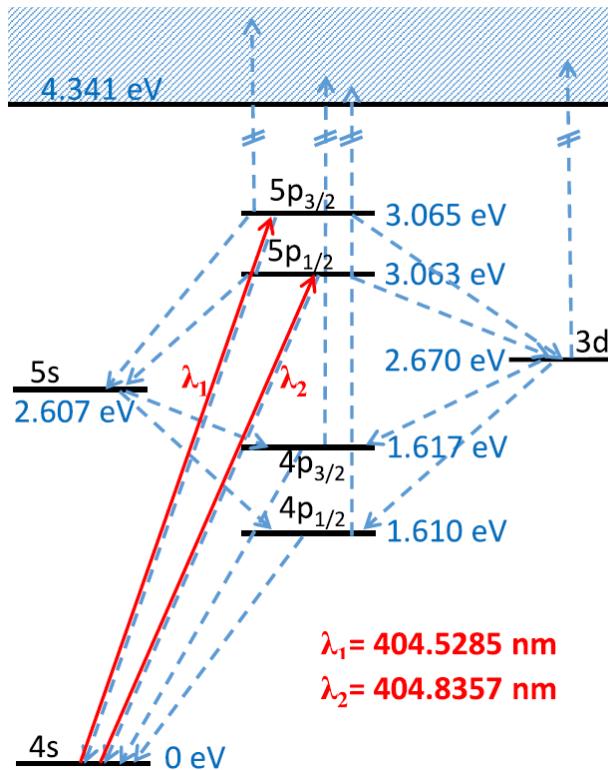


Abb. 5.5: Leveldiagramm von Kalium, mit den wichtigsten Energieleveln und den relevanten optischen Übergängen (gestrichelte Linien). Entnommen aus [62]

5.2 Lasercharakterisierung

In diesem Kapitel werden Messungen zur Charakterisierung der Pulslänge und der Intensität im Fokusvolumen des VMI-Spektrometers vorgestellt. Das verwendete Lasersystem besteht aus einem TiSa-Festkörperlaser der Firma Coherent (Legend) mit einer Zentralwellenlänge von 785 nm und einer Pulslänge von 25 fs.

5.2.1 Intensitätsbestimmung

Für die Interpretation der Messungen ist es wichtig die Laserintensität im Fokus des Ionisationsvolumens zu bestimmen. Diese kann aus bekannten Laserparametern berechnet werden, was jedoch ohne die Berücksichtigung von sphärischer Aberration keine genaue Abschätzung liefert. Eine weitere Möglichkeit zur Abschätzung der Fokusintensität ist durch TOF-Messungen von Ionen welche durch Ionisation von Edelgasatomen im Fokus entstehen. Durch das Auftreten von bestimmten Ladungszuständen der Edelgasatome im TOF-Spektrum, kann durch Referenzwerte auf die dafür benötigte Intensität geschlossen werden.

Im Folgenden wird zuerst die Intensität im Fokus aus den bekannten Parametern berechnet und danach über TOF-Messungen von Xenonionen verschiedener Ladungszustände und den dafür benötigten Intensitätsschwellwerten aus Referenzmessungen bestimmt.

Will man die Intensität im Fokus ermitteln, muss man zuerst den Strahlradius im Fokus w_0 berechnen. Dieser lässt sich aus Brennweite f des Fokusierspiegels (75 mm, der Wellenlänge λ des Lichts und dem Strahlradius w vor der Fokussierung nach

$$w_0 = \frac{f\lambda}{\pi w} \quad (5.1)$$

berechnen. Abbildungsfehler wie die sphärische Aberration des Spiegels werden jedoch hierbei nicht berücksichtigt.

Mit dem berechneten Strahlradius im Fokus, lässt sich die Laserintensität I_0 im Fokus über

$$I_0 = \frac{2P}{\pi\omega_0^2 R \Delta\tau} \quad (5.2)$$

berechnen. Darin sind P die Laserleistung vor der Fokussierung, R die Repetitionsrate des Lasers und $\Delta\tau$ die Pulslänge.

Die so berechneten Strahlradien und Intensitäten im Fokus für verschiedene Strahlradien und Leistungen vor der Fokussierung sind aus der Tabelle 5.1 zu entnehmen.

Tab. 5.1: Berechnete Strahlradius und Intensitäten nach der Fokussierung durch den sphärischen Spiegel. Fehler auf die Messgrößen wurden über Gauß'sche Fehlerfortpflanzung berechnet.

Laserleistung[mW]	$w[\text{mm}]$	$w_0[\mu\text{m}]$	$I_0[\text{W}/\text{cm}^2]$
11 ± 4	2,0 ± 0,5	9,5 ± 0,2	(8,9 ± 1,4) × 10 ¹³
25 ± 4	3,5 ± 0,5	5,5 ± 0,6	(5,8 ± 5,3) × 10 ¹⁴
54 ± 4	6,0 ± 0,5	2,9 ± 2,2	(7,6 ± 7,7) × 10 ¹⁵

Im Folgenden wird die Fokusintensität über die Detektionsschwellwerte für unterschiedlich hohe Ladungszustände von Xenonionen über TOF-Messungen bestimmt. Dazu wurde mit Hilfe der Gasdotierzelle in der Ofenkammer ein effusiver Strahl aus Xenonatomen erzeugt, welcher durch das Ionisationsvolumen der Detektorkammer fliegt. In Abb. 5.6 sieht man ein TOF-Spektrum welches bei einer Laserleistung von 57 mW aufgenommen wurde und worin die Peaks von Xe^+ , Xe^{2+} und Xe^{3+} zu erkennen sind.

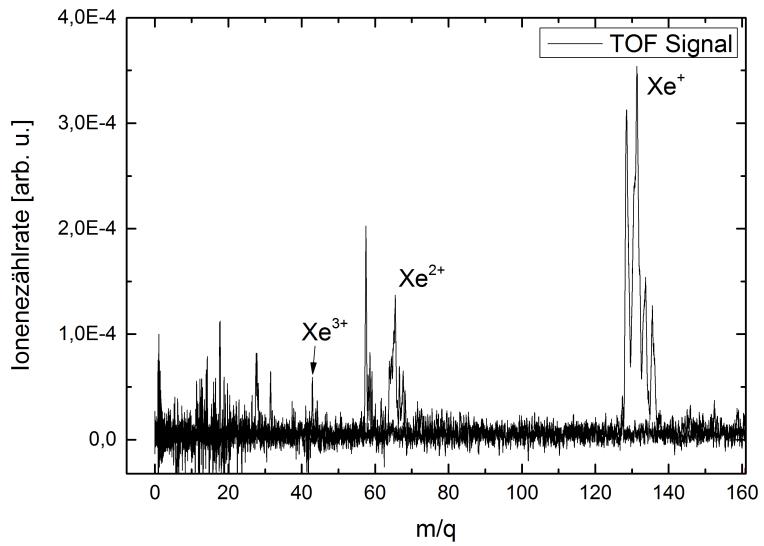


Abb. 5.6: TOF-Massenspektrum effusiver Xenonatome ionisiert durch fokussierte NIR-Femtosekundenpulse bei einer Laserleistung von 54 mW.

Höhere Ladungszustände sind auf Grund des vergleichsweise niedrigen Xenonio-nensignals nicht mehr zu erkennen. Für ein besseres Verhältnis zwischen Hintergrund- und Xenionionensignal, müsste man die Strahldichte bzw. die Xenondichte im Ionisationsvolumen erhöhen, was mit dem Effusivstrahl aus der Gaszelle in Kombination mit dem Leckventil nicht möglich ist.

Weitere Massenspektren wurden für die Laserleistungen aufgenommen, bei welchen die Xe^+ , Xe^{2+} und Xe^{3+} -Peaks entsprechend im TOF-Spektrum zu erkennen waren. Die Laserleistung wurde durch Verkleinern des Strahldurchmesser mit Hilfe einer Blende vor dem einkoppeln in die Kammer auf die entsprechenden Laserleis-tungen eingestellt. Die Schwellwerte der Laserleistung wurden in Abb. 5.7 gegen die Laserintensitätsschwellwerte aus den Studien von Augst et al. [3] aufgetragen, welche experimentell gemessen und mit theoretische Modelle basierend auf dem Keldysh tunneling model verglichen wurden [2].

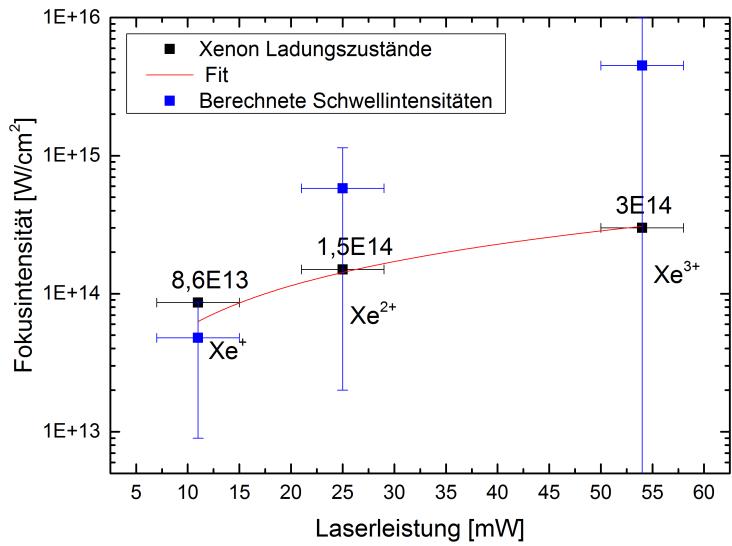


Abb. 5.7: Abhängigkeit der Laserintensität im Fokusvolumen der Detektorkammer von der Laserleistung gemessen vor dem einkoppeln in die Kammer. Die Schwellwerte für die Fokusintensität für das Auftreten von Xe^+ , Xe^{2+} und Xe^{3+} wurden aus [3] entnommen.

Die Fehlerbalken für die Datenpunkte der Referenzintensitäten (schwarze Vier-ecke) in Abb. 5.7 setzen sich zusammen aus der Schwankung der Laserleistung während der Messung und der Ungenauigkeit beim Messen der Leistung mit dem Powermeter, welches dazu händisch nach der Blende in Verlauf des Laserstrahls gehalten wurde. Die Fehlerbalken auf die berechneten Schwellintensitäten sind in Tab.5.1 erläutert. Aus dem linearen Fit ergibt sich für den Zusammenhang zwischen der Laserleistung P , gemessen vor der Kammer, und der Laserintensität I nach der Fokussierung mit dem sphärischen Spiegel die Abhängigkeit

$$I(P) = P \cdot 5.7 \times 10^{12} \frac{W}{cm^2}. \quad (5.3)$$

Die maximale Leistung bei vollständig geöffneter Blende betrug während dieser Messreihe 86 mW. Anzumerken ist, dass der Fehler auf die berechnete Schwellintensität für das Auftreten des Xe^{3+} Peaks sehr groß ist, was zum einen dem schlechten Signal zu Rauschverhältnis und damit der schwierigen Erkennbarkeit im TOF-Massenspektrum geschuldet ist und zum anderen durch eine ungenaue Ausmessung des Strahldurchmessers vor der Fokussierung geschuldet ist. Ein weiterer Faktor der besonders für größere Strahldurchmesser vor der Fokussierung an Einfluss gewinnt und das Ergebnis für die berechneten Schwellintensitäten verfälscht,

ist sphärische Aberration durch den Fokussierspiegel, welche in dieser Berechnung der Fokusintensitäten nicht berücksichtigt wurde.

Berücksichtigt man die Fehler auf die berechneten Werte stimmen diese mit den Referenzwerten überein. Für die Abschätzung der Intensitäten durch Messung der Laserleistung sollte die berechneten Intensität für das Auftreten des Xe^{3+} auf Grund der hohen Unsicherheit, nicht berücksichtigt werden. Die Werte bezüglich Xe^+ und Xe^{2+} können aber für eine erste Abschätzung der Intensität im Fokus genutzt werden.

5.2.2 Pulslängenmessung

Da die Laserpulse in einer nicht unerheblichen Entfernung von der in dieser Arbeit verwendeten Apparatur erzeugt werden und durch Luft sowie viele Spiegel zur Apparatur geleitet werden, ist es notwendig die Pulslänge direkt an der Apparatur zu messen. Zur Bestimmung der Pulslänge, welche die Laserpulse aufweisen, wenn sie an der Apparatur ankommen, wurde eine interferometrische Feld-Autokorrelationsmessung direkt vor der Einkopplung in die Detektorkammer durchgeführt. Dazu wurde der einzelne Puls des Lasers durch einen Strahlteiler in zwei identische Pulse aufgespalten, wovon einer durch den variablen Arm einer Delaystage geschickt wird und somit gegenüber dem anderen Puls verzögert wird. Der so erzeugte zweite Puls wird über einen zweiten Strahlteiler wieder kollinear zu dem ursprünglichen Puls umgeleitet. Der Delay von maximal 200 fs lässt sich präzise über einen Piezokristall und ein Labview-Steuerungs-Programm einstellen. Das Labview-Programm erlaubt ein automatisiertes Abfahren der Verzögerung zwischen den Pulsen in 0.1 fs-Schritten.

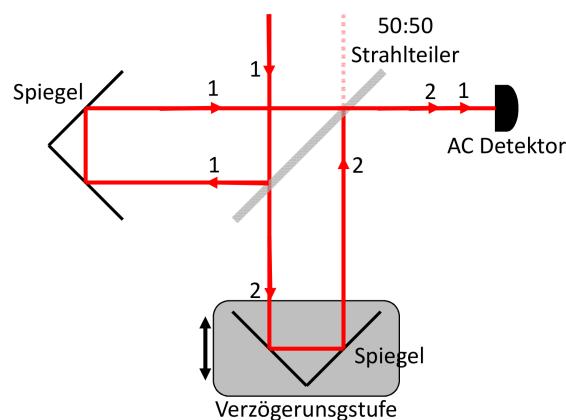


Abb. 5.8: Schema einer Delaystage. Vom Ausgangspuls (1) wird über ein 50:50 Strahlteiler eine identische Kopie (2) erzeugt, welcher über eine piezogesteuerte Verzögerungsstufe gegenüber Puls (1) variabel verzögert werden kann.

Unterscheiden sich die Wegstrecken der beiden Arme der Delay-Stage um eine halbe Wellenlänge, löschen sich die beiden E-Felder durch destruktive Interferenz aus. Im Falle, dass sich die beiden E-Felder der zwei Pulse in Phase überlagern findet konstruktive Interferenz statt. In Abb. 5.9 ist dieser Prozess schematisch dargestellt.

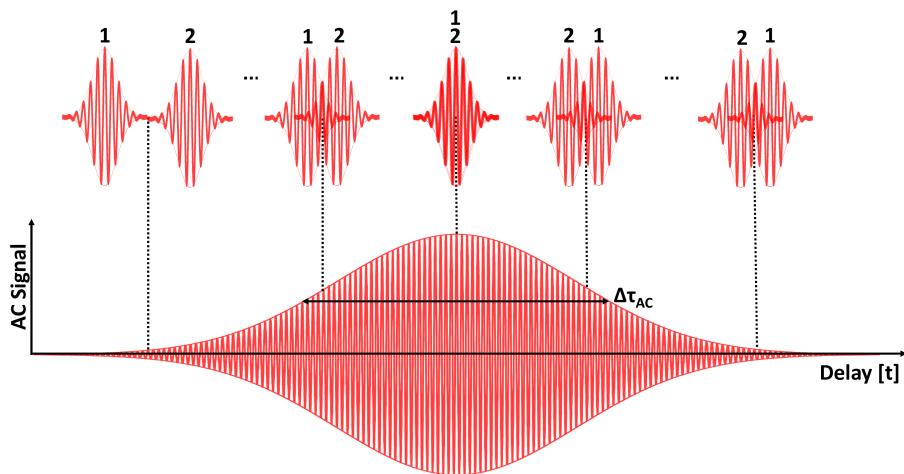


Abb. 5.9: Schema einer interferometrischen E-Feld Autokorrelation. 1 und 2 markieren die zeitlich zueinander verzögerten identischen Laserpulse. Der Verlauf solch einer Messung ist im oberen Teil der Grafik von links nach rechts zu verstehen. Unten ist das Autokorrelationssignal gezeigt.

Zur Aufnahme der Autokorrelation wurde ein Powermeter (Thorlabs PM100A) in den Strahlengang platziert und die Laserpower über die Zeit, mithilfe der dazugehörigen Software (Power Meter Utilities Software Version 1.0.2) aufgezeichnet. Für die Messungen wurde der verzögerte Puls innerhalb von circa 10 Minuten zweimal über den nicht verzögerten Puls gefahren, wodurch die in Abb. 5.10 gezeigten Autokorrelationssignale gemessen wurden.

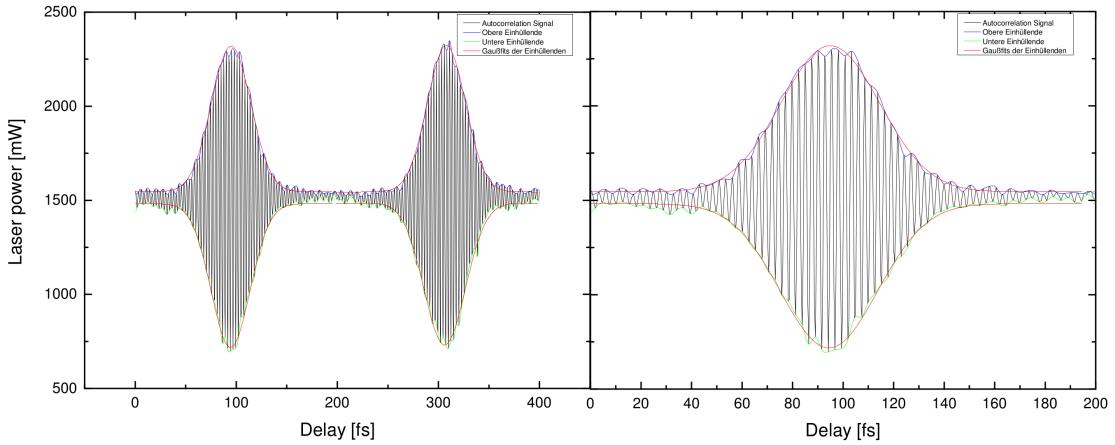


Abb. 5.10: In (a) sieht man die gemessene Autokorrelation. In (b) ist ein Ausschnitt aus (a) gezeigt um die Oszillation in der Autokorrelation sichtbarer zu machen.

Die Autokorrelationsmessungen in Abb. 5.10 wurden jeweils mit einer Gaussfunktion plus einer Geraden gefittet woraus man die Halbwertsbreite des Autokorrelationssignals erhält.

Geht man von Gaußpulsen aus, berechnet sich die Pulslänge τ_p aus der Halbwertsbreite (FWHM) τ_{AC} des Autokorrelationssignals nach der Formel:

$$\tau_p = \tau_{AC}/2\sqrt{\ln(2)} \quad (5.4)$$

[17].

Die in Abb. 5.10 gemessene Autokorrelation wurde unter selbigen Bedingungen wiederholt. Aus den gemessenen Autokorrelationssignalen lassen sich acht Pulslängen bestimmen, da jeweils ein Signal aus dem Überlapp der zwei Pulse, durch die obere und die untere Einhüllende, zwei Pulslängen liefert.

Die damit bestimmten acht Pulslängen wurden gemittelt und ergaben dadurch eine Pulslänge von

$$\tau_p = (28 \pm 3) \text{ fs}$$

ergibt. Anzumerken ist, dass diese Methode zur Pulslängenbestimmung nicht sensitiv ist für Chirps oder Abweichungen von Gaußpulsen. Falls die Pulse einen nicht unerheblichen Chirp aufweisen, würde man mit dieser Methode die Pulslänge unterschätzen. Anschaulich ist das über eine kürzere kohärente Überlagerung der sich abtastenden Pulse zu verstehen. Falls ein bedeutender Chirp in den gemessenen Pulsen vorhanden gewesen wäre, würde sich das auch in den gemessenen Autokor-

relationssignalen bemerkbar machen, indem die Form der Einhüllenden von einer Gaußfunktion abweicht.

5.3 Messungen zur Tröpfchengrößebestimmung

In diesem Kapitel wird eine Messung vorgestellt, mit welcher sich die mittlere Größe von Heliumtröpfchen $\langle N \rangle$ über Referenzwerte bestimmen lässt. Gemessen wurde der Druckanstieg in der letzten Kammer der Apparatur, der LT-Kammer (4.1, wo der Strahlverlauf unterbrochen wird und die Tröpfchen durch Kollision mit der Kammerwand zerstört werden. Der dadurch messbare Druckanstieg in Abhängigkeit der Düsentemperatur gibt indirekt Aufschluss darüber in welchem Expansionsregime man sich befindet und damit auch über die mittleren Tröpfchengrößen der Heliumnanotröpfchen im Strahl.

Die Referenzwerte wurden durch Toennies et al. mit Hilfe der *Strahlablenkungstechnik* in [60] gemessen.

Da keine Referenzwerte für einen Stagnationsdruck von $P_0=50$ bar vorliegen, wurde mit Hilfe der mittleren Tröpfchengrößen bei $P_0=40$ bar die mittlere Tröpfchengröße bei $P_0=50$ bar, über das Skalierungsgesetz

$$\frac{\langle N \rangle}{\langle N_{ref} \rangle} = \left(\frac{P_0}{P_{ref}} \right)^{2.35} \left(\frac{d}{d_{ref}} \right)^{1.9975} \left(\frac{T_0}{T_{ref}} \right)^{-5.3756} \quad (5.5)$$

aus [47], berechnet. Mit diesem Skalierungsgesetz lässt sich aus gegebenen Stagnationsbedingungen einer Referenzmessung (Index *ref*) die mittlere Tröpfchengröße einer Messung mit ähnlichen Stagnationsbedingungen abschätzen.

In den Abb. 5.11, 5.12 und 5.13 wurde der Helium korrelierte Druckanstieg in der LT-Kammer mit einem Kaltkathoden-Messkopf gemessen und als Funktion der Düsentemperatur aufgetragen. Dabei sind in Abb. 5.11 die Tröpfchengrößen für Stagnationsdrücke von 40 und 60 bar und der Verlauf des Drückanstiegs bei einem Stagnationsdruck von 50 bar gezeigt. In Abb. 5.12 wurde über das Skalierungsgesetz 5.5 auf Tröpfchengrößen für einen Stagnationsdruck von 50 bar extrapoliert. In Abb. 5.13 sind die Tröpfchengrößen für einen Stagnationsdruck von 20 bar und die entsprechende Messung des LT-Drückanstiegs gegen die Düsentemperatur aufgetragen. Die Düsentemperatur wurde mit einer Silicium-Diode (DT670) gemessen und einem Controller der Firma LakeShore Cryogenics (Model 325) ausgelesen. Zusätzlich sind in den Abbildungen die jeweilig passenden Referenzwerte der Tröpfchengrößen gezeigt. Durch den Vergleich der Kurvenverläufe kann man auf die Übergänge zwischen

den Expansionsregimen schließen. Wie in den folgenden Abbildungen zu erkennen ist, stimmen die Übergänge zwischen den Expansionsregime für die Druckmessung und die Referenzwerte überein, weshalb man auf ein ähnliches Verhalten der verwendeten Düse schliessen kann, verglichen mit der, welche bei der Bestimmung der Referenzwerte genutzt wurde, schließen kann. Für die folgenden Messungen wird somit davon ausgegangen, dass die mittleren Tröpfchengrößen unserer Düse mit denen aus [60] übereinstimmen.

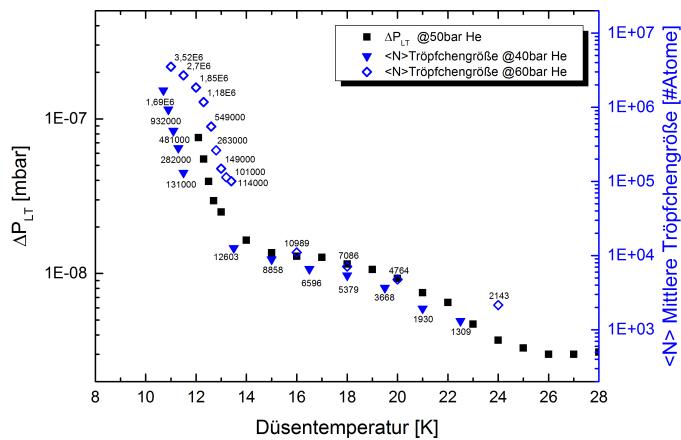


Abb. 5.11: Die Datenpunkte gekennzeichnet mit blauen Dreiecken ($P_0=40$ bar) und Rauten ($P_0=40$ bar) beziehen sich nur auf die rechte y-Achse und geben die mittlere Tröpfchengrößen für verschiedene Düsentemperatur einer cw-Düse mit $5\text{ }\mu\text{m}$ Öffnung an, welche aus [60] entnommen wurden. Die Schwarzen Vierecke sind gemessene Drücke in der LT-Kammer (siehe 4.1) in Abhängigkeit der Düsentemperatur bei einem Stagnationsdruck von $P_0=50$ bar. Die Zahlen an den Datenpunkten geben die mittlere Anzahl der Atome in den Tröpfchen an.

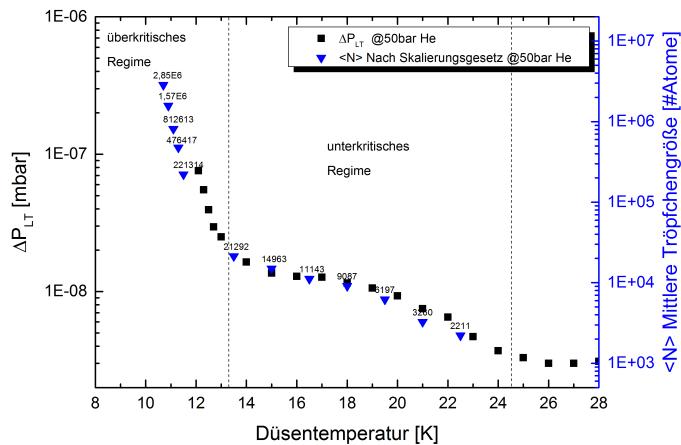


Abb. 5.12: Die Datenpunkte gekennzeichnet mit blauen Dreiecken ($P_0=50$ bar) geben die mittlere Tröpfchengröße für verschiedene Düsentemperatur einer cw-Düse mit $5\text{ }\mu\text{m}$ Öffnung an, welche mittels des Skalierungsgesetzes aus [47] und Referenzwerten aus [60] berechnet wurden. Die Schwarzen Vierecke sind gemessene Drücke in der LT-Kammer in Abhängigkeit der Düsentemperatur bei einem Stagnationsdruck von $P_0=50$ bar. Die Zahlen an den Datenpunkten geben die mittlere Anzahl der Atome in den Tröpfchen an.

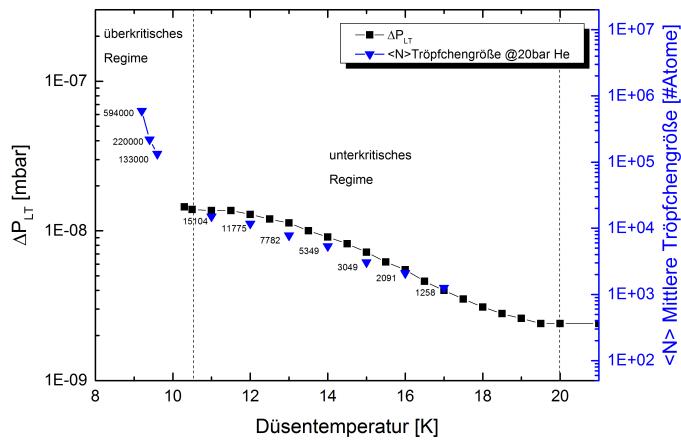


Abb. 5.13: Die Datenpunkte gekennzeichnet mit blauen Dreiecken ($P_0=20$ bar) geben die mittlere Tröpfchengröße für verschiedene Düsentemperatur einer cw-Düse mit $5\text{ }\mu\text{m}$ Öffnung an aus [60]. Die Schwarzen Vierecke sind gemessene Drücke in der LT-Kammer in Abhängigkeit der Düsentemperatur bei einem Stagnationsdruck von $P_0=20$ bar. Die Zahlen an den Datenpunkten geben die mittlere Anzahl der Atome in den Tröpfchen an.

5.4 Einzelschuss Elektronen-VMI von Xenon dotierte Heliumnanotröpfchen in kurzen NIR-Femtosekundenpulsen

In diesem Abschnitt werden Einzelschuss Elektronen-VMI Messungen an Xenon dotierten Heliumnanotröpfchen vorgestellt, welche mit der in dieser Arbeit beschriebenen Apparatur durchgeführt wurden. Dazu wurde Helium aus einer cw-Düse mit $5\text{ }\mu\text{m}$ Öffnung bei einem Stagnationsdruck von $P_0=20\text{ bar}$ und verschiedenen Düsentemperaturen expandiert um einen Strahl aus Heliumnanotröpfchen zu produzieren. Dieser Strahl wird beim durchfliegen einer Gasdotierzelle in der Ofenkammer mit Xenon dotiert. Die mittlere Dotandenclustergröße wird dabei durch den Xenondruck in der Gasdotierzelle gesteuert, welcher sich durch ein Hochpräzisions-Leckventil kontrollieren lässt. Die Flugstrecke l durch die Gasdotierzelle beträgt 30 mm. Die NIR-Laserpulse werden orthogonal zum Clusterstrahl durch ein Vakuumfenster in die Kammer eingekoppelt und durch einen Fokussierspiegel in den Clusterstrahl fokussiert. Die Laserintensität im Fokus während den Messungen aus Abb. 5.16 bemisst sich, bei einer Laserleistung von 80 mW , nach Gleichung 5.3 auf $4.6 \times 10^{14}\text{ W cm}^{-1}$. Nach den Autokorrelationsmessungen betrug die Pulslänge $\tau \approx 28\text{ fs}$. Die Polarisation des Laserfeldes stand orthogonal zur Spektrometerachse. Die Elektronensignale wurden mit einer hochsensitiven und schnellen CCD-Flächenkamera der Firma Basler aus der Serie ace (Bezeichnung ace1920-15um) aufgenommen, nachdem sie von einem MCP verstärkt wurden und durch einen Phosphorschirm sichtbar gemacht wurden. Die Belichtungszeit wurde so eingestellt (100 ms), dass nur Signale korrespondierend zur Wechselwirkung eines Tröpfchens mit einem Laserpuls in einer Aufnahme aufgenommen wurden. In Abb. 5.14 sind beispielhaft einige Elektronen-VMI-Rohsignale in Falschfarben gezeigt, in welchen ein Nanoplasma in einem mit Xenon dotierten Heliumnanotröpfchen durch eine Laserpuls geziündet wurde. Dabei wurde die Laserleistung so eingestellt, dass die Fokusintensität nicht ausreicht um Helium zu ionisieren. Erst durch Anstellen der Dotierung mit Xenon konnte die Avalanche-Ionisation durch Seed-Elektronen vom Xenon eingeleitet werden (siehe Kapitel 2.3).

Die in den Signalen in Abb. 5.14 detektierten Elektronen, weisen eine überwiegend kinetische Energie von $< 1\text{ eV}$ auf. Der Entstehungsgrund dieser scharfen niedrigerenergetischen Signale wurde bisher theoretisch noch nicht erklärt, jedoch durch Simulationen von Heidenreich et al. reproduziert. Gezielte experimentelle Studien zur Klärung des Entstehungsgrund wurden bisher nicht veröffentlicht. Um Anhaltspunkte über die Entstehung und die verursachenden Dynamiken zu erhalten

wurden deren Abhängigkeit von der Heliumtröpfchengröße und und der Xenon-Dotandentröpfchengröße durchgeführt.

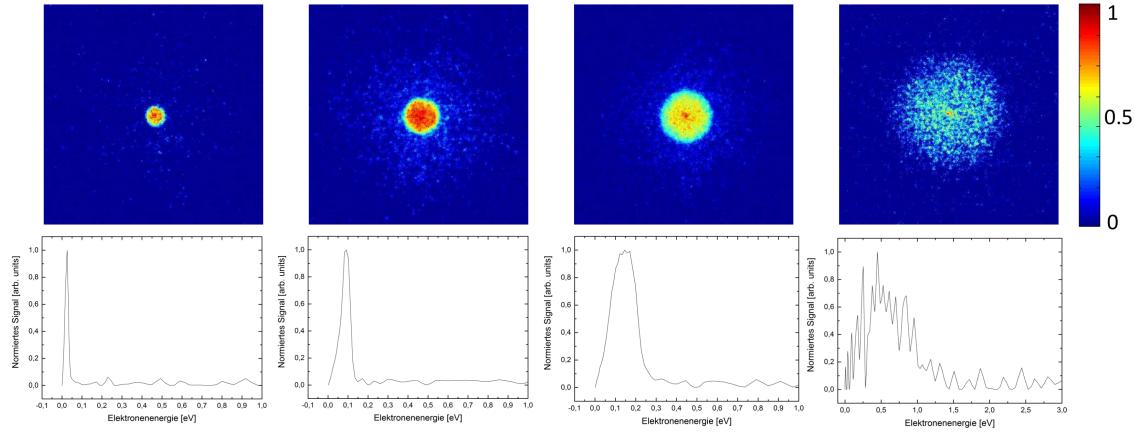


Abb. 5.14: (oben): Beispielhafte Einzelschuss Elektronen-VMI Rohsignale von Xenon dotierten Heliumnanotröpfchen in intensiven NIR-Femtosekundenpulsen, aufgenommen bei 80mW Laserleistung, 20 bar Helium-Stagnationsdruck, einer Düsentemperatur von 12 K und einem Dotierdruck von 50×10^{-5} m bar. In der Falschfarbendarstellung von Rot nach Blau markieren rote Bereiche eine hohe Elektronenintensität und entsprechend blaue Bereiche ein geringe. Die Farbskala wurde auf die maximale Intensität skaliert. (unten): Elektronenernnergiespektren erhalten durch inverse Abeltransformation der jeweils darüber befindlichen VMI-Bildern.

Für die in Abb. 5.16 gezeigte Messreihe wurde für jede Düsentemperatur (10.6 K bis 15 K) und jeweils sieben Dotierdrücken (10×10^{-5} m bar bis 120×10^{-5} m bar) 5000 Einzelschuss Elektronen-VMI Bilder aufgenommen. In der ersten Analyse der Signale wurde die maximal auftretende kinetische Energie der Elektronen aus jedem Einzelschuss VMI-Bild ausgelesen. Dazu wurde ein Feature-Erkennungs-Skript genutzt welches den äußeren Rand des Signals sucht und es mit einem Kreis fittet. Der daraus erhaltene Radius wurde zur Bestimmung der maximalen Energie der Elektronen genutzt. Die Auftretenshäufigkeiten der verschiedenen maximalen kinetischen Energien aus jedem Datensatz aus 5000 Bildern wurde für die zuvor beschriebenen Messreihen in der Abb. 5.16 als Histogramm aufgetragen.

Die mittleren Tröpfchengrößen für die in den Messungen verwendeten Stagnationsbedingungen wurden auf Basis der Messungen und Referenzwerten aus Kapitel 5.3 bestimmt und sind in Abb. 5.16 in der Legende einzusehen.

Beispielhaft für eine mittlere Heliumnanotröpfchengröße von 8000 Atomen wurde die mittlere Anzahl der Dotanden, welche vom Heliumnanotröpfchen in der Gasdotierzelle aufgenommen werden, für die Dotierdrücke in den Messungen aus Abb. 5.16 in Tabelle 5.2 aufgeführt. Die Werte beruhen auf Simulationen von Barbara Grü-

ner [27] welche mit Hilfe eines Programms von Oliver Bünermann [9] durchgeführt wurden.

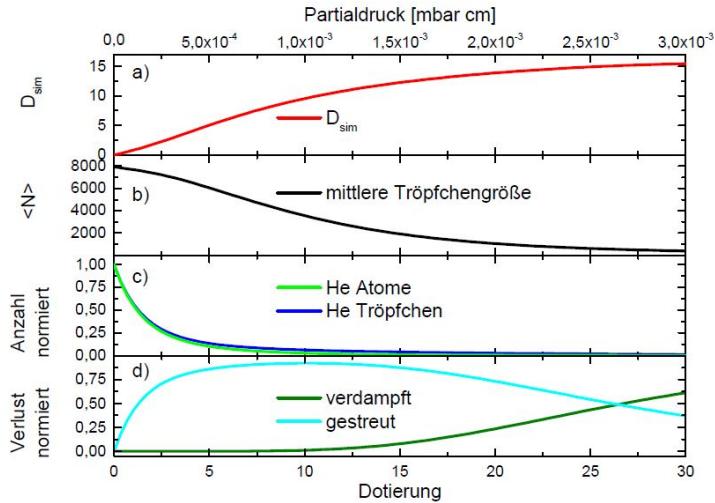


Abb. 5.15: Simulation der Dotierung von Heliumnanotröpfchen der mittleren Größe von 8000 Atomen mit Xenon über die Pick-up Methode. In a) ist die mittlere Anzahl an Dotanden im Heliumnanotröpfchen als Funktion des Partialdrucks in der Dotierzelle gezeigt, b) mittlere Tröpfchengröße nach der Dotierung, c) relative Anzahl an Heliumatomen im Tröpfchen und relative Anzahl an Tröpfchen nach der Dotierung, d) relativer Verlust der Heliumnanotröpfchen und vollständige Verdampfung durch Streuung dieser mit Dotanden. Entnommen aus [27].

Anhand dieser Werte lässt sich die mittlere Anzahl an Xenonatomen zugehörig zu den mittleren Heliumnanotröpfchengrößen für die durchgeführten Messungen abschätzen. So sind ab einer Düsentemperatur von 13 K Dotandeccluster mit maximal 10 Xenonatome im Heliumtröpfchen im Mittel zu erwarten. Für die tieferen Düsentemperaturen in der Messreihe können auch mehr Xenonatome von den größeren Heliumtröpfchen aufgenommen werden, wie es auch aus Abb. 5.19 ersichtlich wird. Die durch Evaporation in Folge der Dotierung verkleinerten mittleren Heliumtröpfchengrößen wurden in Tabelle 5.2 berechnet.

Die Messungen aus Abb. 5.16 zeigen, dass mit sinkender Düsentemperatur, daher steigender Tröpfchengröße, die Häufigkeit der Einzelschusssignale zunimmt und höhere kinetische Energien detektiert werden, daher der Radius der Signale wie sie in Abb. 5.14 zu sehen sind nimmt tendenziell zu. Weiterhin ist zu erkennen, dass die Häufigkeit der Signale auch bis zu einem Dotierdruck in der Gasdotierzelle von 50×10^{-5} m bar zunimmt aber dann in Sättigung geht, wie es auch aus Abb. 5.18 ersichtlich wird, in welcher die Integrale der Verteilungen aus Abb. 5.16 gegen den Dotierdruck aufgetragen wurde.

In Abb. 5.17 sind die mittleren maximalen kinetischen Energien aus den Ver-

teilungen aus Abb. 5.16 für verschiedene Düsentemperaturen als Funktion des Dotierdrucks aufgetragen. Daraus wird ersichtlich, dass die mittlere maximale kinetische Energie der Elektronen mit steigender Heliumtröpfchengröße zunimmt. Weiterhin zeigt Messung, dass die mittlere maximale kinetische Energie der Elektronen ab einem Dotierdruck von 50×10^{-5} m bar für die kleineren Heliumnanotröpfchen ($\approx 3050\text{-}8000$ Atome pro Tröpfchen) nicht weiter ansteigt. Für die größeren Heliumnanotröpfchen tritt die Sättigung schon bei dem minimal eingestellten Dotierdruck von 10×10^{-5} m bar ein.

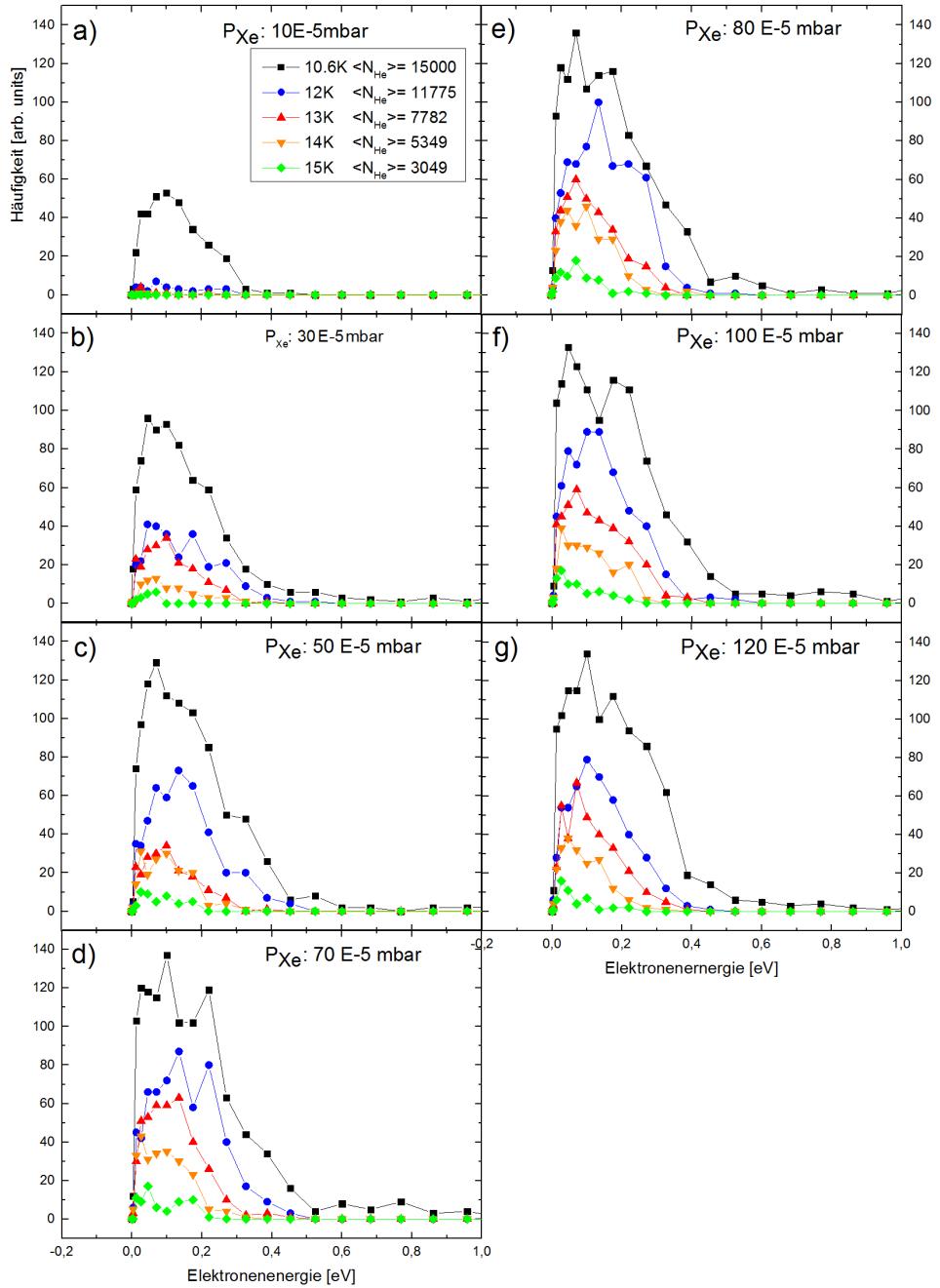


Abb. 5.16: In den Histogrammen von a) bis g) sind die Auftretenshäufigkeiten maximaler kinetischer Energien der Nanoplasmalelektronen in Abhängigkeit der Heliumnanotröpfchengröße und der Anzahl der Dotanden im Heliumtröpfchen aufgetragen. Für jeden Datensatz in den Histogrammen wurden 5000 Einzelschuss VMI-Bilder bezüglich der maximal auftretenden kinetischen Energie der Elektronen in den Signalen ausgewertet.

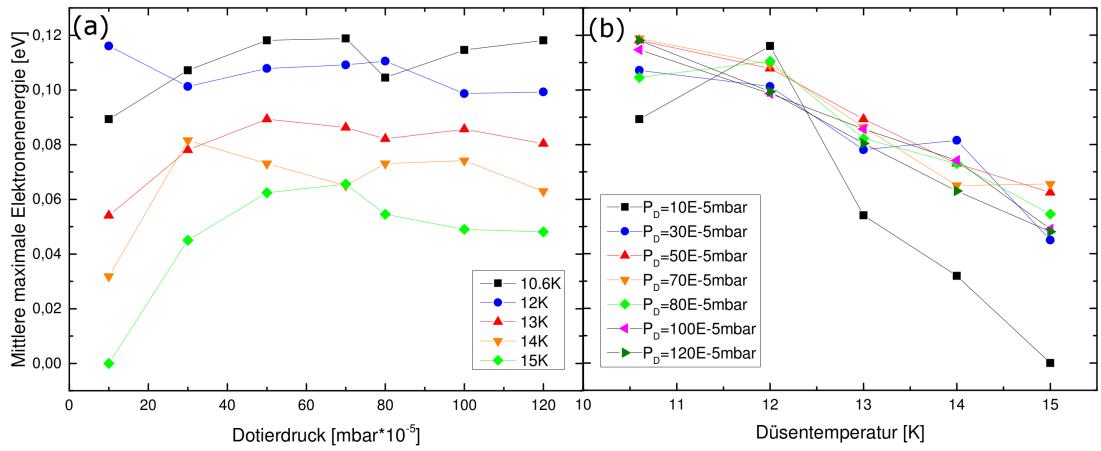


Abb. 5.17: (a) Mittlere maximale kinetische Energien der niederenergetischen Elektronen als Funktion des Dotierdrucks für verschiedene Düsentemperaturen bei der Wechselwirkung von mit Xenon dotierten Heliummanotröpfchen für die Messungen aus Abb. 5.16. (b) Mittlere maximale kinetische Energien der niederenergetischen Elektronen als Funktion der Düsentemperatur für verschiedene Dotierdrücke.

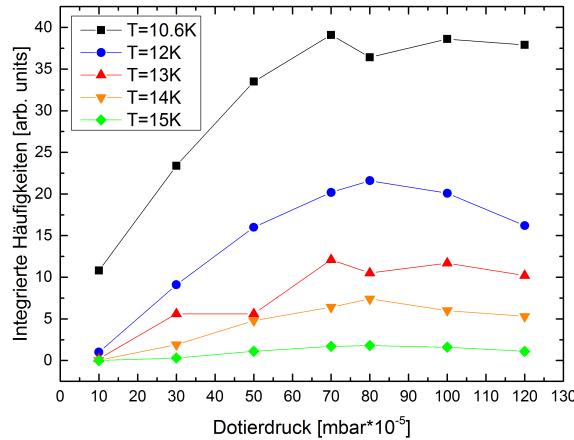


Abb. 5.18: Integrale der Elektronenenergieverteilungen aus Abb. 5.16 für verschiedene Heliumtröpfchengrößen als Funktion des Dotierdrucks.

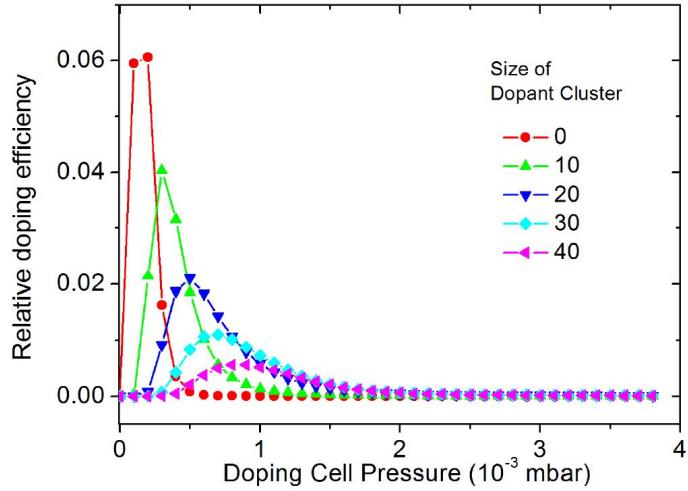


Abb. 5.19: Relative Dotiereffizienz als Funktion des Dotierdrucks für Xenon-Dotierung von Heliumnanotröpfchen, berechnet über Monte-Carlo Simulationen aus [54]. Die Dotiereffizienz wurde für eine Log-Normal-Verteilung für die Heliumtröpfchengrößen mit dem Mittelwert von 1.5×10^4 Heliumatome pro Tröpfchen berechnet.

Tab. 5.2: Mittlere Dotandenzahlen für Dotierdrücke aus den Messungen aus 5.16 und eine mittlere Heliumnanotröpfchengröße von 8000 Atomen aus Simulationen aus der Dissertation von Barbara Grüner [27]. Mittlere Heliumnanotröpfchengrößen nach der Schrumpfung auf Grund von Evaporation von Heliumatomen durch die Dotierung; berechnet nach der Formel 2.6 und den Werten aus Tabelle 2.1.

$P_0 [E-4 \text{ mbar}]$	N_D	$\langle N \rangle$
1	1-2	7690-7380
3	2-3	7380-7070
5	5	6450
7	7-8	5830-5520
8	8-9	5520-5210
10	9	4900
12	10	4590

5.4.1 Diskussion

Die statistische Auswertung der niederenergetischen Elektronensignale, welche bei der Nanoplasmazündung von mit Xenon dotierten Heliumnanotröpfchen beobachtet wurde zeigt, dass die maximale kinetische Energie dieser niederenergetischen Elektronen durch die Plasmadynamik des Heliums dominiert wird. Dies wird aus der Beobachtung deutlich, dass ab einer Mindestdotierung die maximale kinetische Energie unabhängig von der Anzahl der Dotieratome im Heliumnanotröpfchen ist aber mit steigender mittlerer Größe des Heliumnanotröpfchens zunimmt.

In 2016 veröffentlichte theoretische und experimentelle Studien von Heidenreich et. al. [30], in welchen auch die Wechselwirkung von mit Xenon dotierten Heliumnanotröpfchen und intensiven NIR-Femtosekundenpulsen untersucht wurde scheinen diese Beobachtungen zu stützen. In der Abb. 5.20 ist zu erkennen, dass nach Simulationen aus diesen Studien schon eine Dotandenzahl von 5 Xenonatomen bei einer Laserintensitäten von $<1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ausreicht um das Heliumnanoplasma zu zünden. Ähnliches deuten die simulierte und gemessene Heliumionenausbeute als Funktion der Dotandenzahl an, welche in Abb. 5.21 gezeigt werden und ab einer Dotandenzahl von 8 Xenonatomen ein Maximum aufweisen.

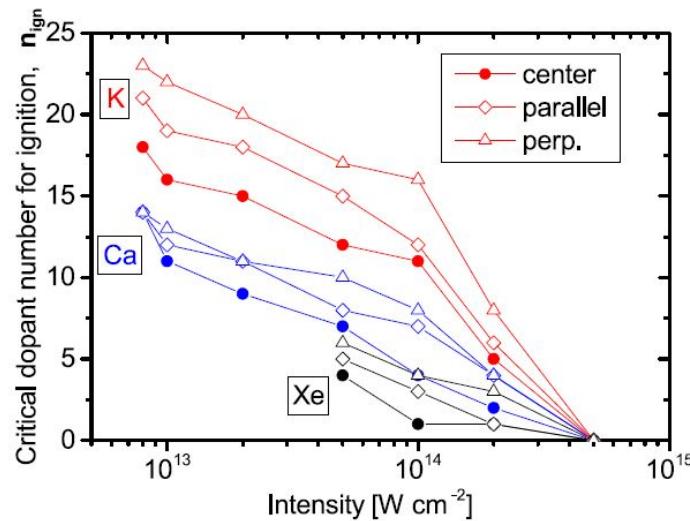


Abb. 5.20: Simulierte minimale Dotandenzahlen von K, Ca und Xe für die Heliumnanoplasmazündung eines Tröpfchen bestehen aus 2171 Atomen als Funktion der Laserintensität.

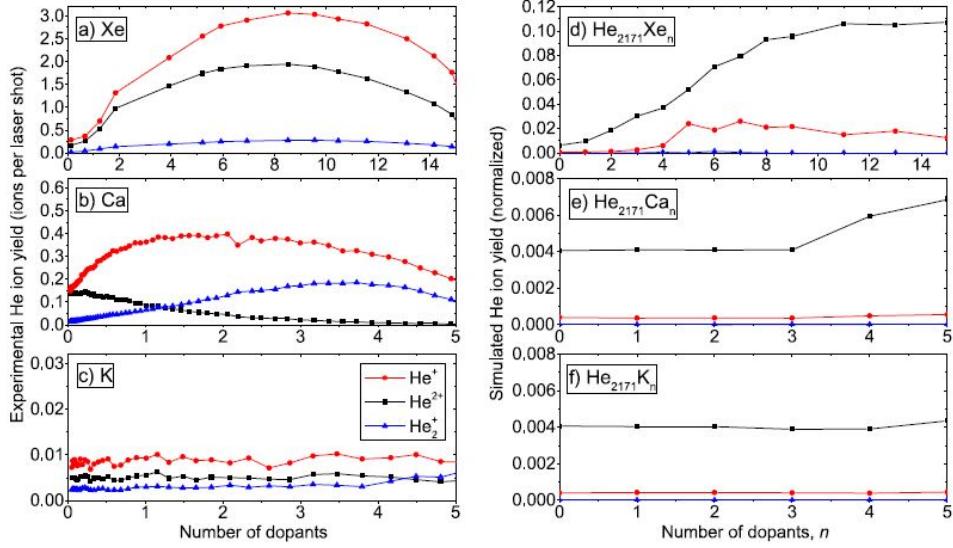


Abb. 5.21: (a)-(c) Experimentell gemessene und (d)-(f) simulierte Heliumionenausbeute bei der durch Dotanden induzierten Nanoplasmaformation als Funktion der Dotandenanzahl. In (a) und (d) sind die Ergebnisse für Xenon dotierte Heliumtröpfchen mit mittlerer Größe von 2171 Atomen gezeigt. Entnommen aus [30].

Diese Studien wurde mit einer Pulslänge von 200 fs durchgeführt, welche wesentlich länger ist als die in dieser Arbeit gemessene und für die vorgestellten Messungen verwendete von 29 fs. Letztere Pulslänge ist nicht lang genug um auf Grund der Clusterexpansion mit der Plasmafrequenz resonant zu werden, was nach [54] für ein sphärisches Heliumtröpfchen bestehend aus 7000 Atomen erst nach 150 fs stattfindet. Jedoch wurde eine frühere Resonanz theoretisch vorhergesagt, welche auf Grund von anisotroper Nanoplasmaentwicklung entlang der Laserpolarisation ermöglicht wird. Von Mikaberidze et al. wurde diese zigarren-förmige Nanoplasmaentwicklung vorhergesagt, welche sich ausgehend vom Dotandencluster im Zentrum des Heliumtröpfchens entlang der Laserpolarisation entwickelt [38, 44]. Das so geformte längliche Nanoplasma hat entlang seiner längeren Achse eine deutlich niedrigere Plasmafrequenz, welche schon bei Pulslängen von 20 fs in Resonanz mit einem Laserpuls einer Wellenlänge von 800 nm kommt [43]. Mit diesen Überlegungen wird verständlich, warum in dieser Arbeit trotz einer gemessenen Pulslänge von 29 fs die Zündung des Nanoplastas beobachtet werden konnte.

Zu klären bleibt jetzt noch der Ursprung der gemessenen niederenergetischen Elektronen, welche aus dem Nanoplasma emittiert werden. In Studien von Schütte et al. wurden vergleichbare Signale bei Experimenten mit Argon-Clustern gemessen, welche NIR-Pulsen mit einer Intensität von $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ausgesetzt wurden. [51].

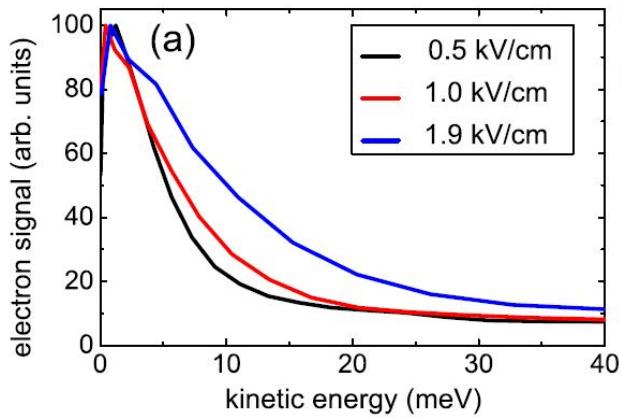


Abb. 5.22: Kinetische Energiespektrum für verschiedene Stärken des elektrischen Felds des Detektors, gemessen für Argon Cluster mit mittlerer Größe von 3500 Atomen welche durch einen Puls der Wellenlänge von 790 nm und einer Intensität von $5 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2$ ionisiert wurden. Entnommen aus [51].

Die Spektren in Abb. 5.22 zeigen eine Abhängigkeit von der E-Feldstärke des Detektors. Schütte et al. schlussfolgern, dass diese niederenergetischen Elektronen durch Reionisation von schwach gebundenen Rydberg-Atomen durch das E-Feld des Detektors erzeugt werden. Die Entstehung von Rydberg-Atome im expandierenden Nanoplasma wird durch Rekombination von freien Elektronen mit den erzeugten Ionen erklärt. Um die Signale aus dieser Arbeit auch diesem Effekt zuordnen zu können, müsste das Signal systematisch hinsichtlich der VMI-Elektrodenspannungen untersucht werden, was im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt wurde.

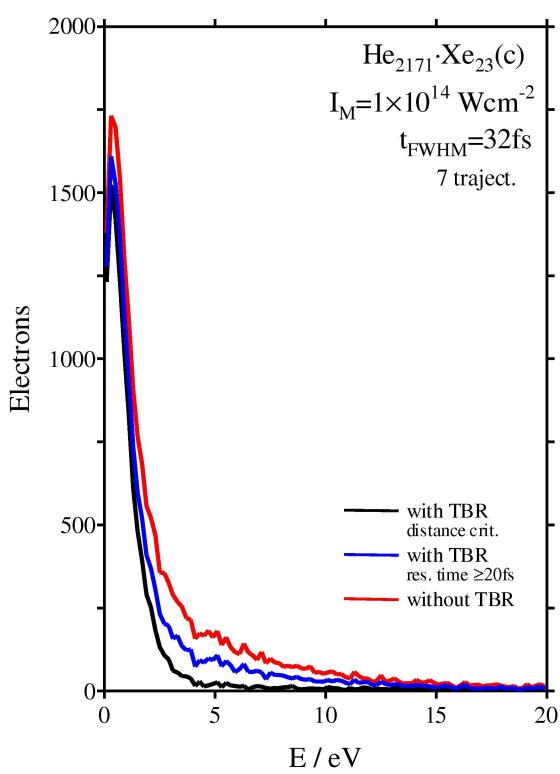


Abb. 5.23: Simulationen von Heidenreich et al. der emittierten Nanoplasmaelektronen aus Heliumtröpfchen einer Größe von 2171 Heliumatomen, dotiert mit 23 Xenon Atomen in 32 fs NIR-Pulsen mit einer Intensität von $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$.

situation ein elektronenreiches Nanoplasma gezündet wird, jedoch wenige der Elektronen das Tröpfchenpotential verlassen. Die Tröpfchenexpansion wird dabei einerseits durch Stöße der Elektronen mit den Ionen im Plasma getrieben und andererseits von der positiven Aufladung des Tröpfchens. Die sich im Tröpfchen bildende Elektronenwolke expandiert dabei und zieht die Ionen mit sich. Somit wird ein Teil der Energie der Elektronen an die Ionen weitergegeben [31], wodurch man sehr viele niederenergetischen Elektronen erhält, welche das beobachtete Signal verursachen könnten.

In Zukunft kann durch Ionen TOF-Spektren, welche korreliert zu den Einzelschuss Elektronen-VMI Signalen aufgenommen werden können, mehr Informationen aus den Messungen extrahiert werden und dadurch mehr Rückschlüsse auf die grundlegenden Dynamiken bei der Nanoplasmaentwicklung gezogen werden. Das

Ein Indiz welches gegen diesen Ursprung des Signals spricht sind noch unveröffentlichte Simulationen von Heidenreich et al., in welchen dieses Signal auch ohne die Berücksichtigung von Dreikörper-Rekombination (engl.: Three Body Recombination (TBR)) unter gleichen Bedingungen, wie in den hier vorgestellten Messungen reproduziert wurde. Exemplarische Simulationsergebnisse sind in Abb. 5.23 für Heliumtröpfchen mit einer Größe von 2171 Heliumatomen und 23 Xenon Dotanden gezeigt, welche mit Pulsen einer Intensität von $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$ und einer Pulslänge t_{FWHM} von 32 fs wechselwirken. Die niederenergetische Elektronenspektrum wurde unter Berücksichtigung von TBR (schwarzer und blauer Kurve) und ohne TBR (rote Kurve) simuliert.

Eine naheliegende Vermutung über den Ursprung der niederenergetischen Nanoplasmaelektronen ist, dass bei den kurzen Pulsen moderater Inten-

TOF-Spektrometer konnte für die Messungen im Rahmen dieser Arbeit nicht genutzt werden, da es erst gegen Ende des Zeitraumes dieser Arbeit funktionsfähig war.

6 Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wird das speziell für Nanoplasma-Experimente neu entwickelte VMI-Spektrometers durch Kalibrationsmessungen hinsichtlich der Energieakzeptanz und des Energieauflösungsvermögens charakterisiert. Weiterhin werden Parameter wie die Laserpulslänge und die Intensität der fokussierten Laserpulse bestimmt und Messungen zur Abschätzung der Heliumtröpfchengröße, der in dieser Arbeit verwendeten kontinuierlichen Düse gezeigt. Die Charakterisierungen der Apparaturparameter ermöglichen systematische Einzelschuss-Elektronen-VMI-Messungen an dotierten Heliumnanotröpfchen in intensiven NIR-Femtosekundenpulsen.

Anhand von Autokorrelationsmessungen wird die Laserpulslänge vor dem Ein-koppeln in die Apparatur auf $\tau_p = (28 \pm 3)$ fs bestimmt. Weiterhin wird ein Zusammenhang zwischen der Laserleistung in Abhängigkeit des Strahldurchmessers, und der Laserintensität im Fokus des Interaktionsvolumen des Spektrometers bestimmt. Dazu wird das Auftreten von Xenon-Ladungszuständen in TOF-Spektren gemessen und mit den dafür benötigten Mindestintensitäten verglichen.

Charakterisierung des Spektrometers

Das neu entwickelte Spektrometer zeichnet sich speziell durch seinen kompakten und einfachen Aufbau, sowie seine hohe Energieakzeptanz bei der Detektion gelandener Teilchen aus. Das Standarddesign von Eppink und Parker [20] wurde um zwei zusätzliche ausgedehnten zylindrische Elektroden erweitert um eine Einzellinse zu realisieren, welche zusammen mit der kurzen Flugstrecke die Energieakzeptanz gegenüber dem Standarddesign erheblich vergrößert. Charakterisiert wird das Spektrometer durch Messungen der Geschwindigkeitsverteilungen von Photoelektronen, welche durch Ionisation von Helium mittels Synchrotronstrahlung, sowie durch resonante Ionisation von Kaliumatomen, die mit Hilfe eines frequenzstabilisierten Diodenlaser erzeugt werden. Während den Messungen traten Probleme bezüglich der Spannungsfestigkeit auf, welche sich durch Überschläge entlang der Isolatoren äußerten, was bedingt war durch Grafitpartikel, welche sich von der Grafitbeschichtung der Elektroden ablösten und auf die Isolatoren gelangten. Dadurch lag die

maximal einstellbare Elektrodenspannung bei 7 kV. Mit dieser Einschränkung und einem kleinen Detektor ist es möglich Photoelektronen mit kinetischen Energien bis zu 65 eV mit einer Energieauflösung von 11% zu detektieren. Die Messungen und Simulationen zeigen jedoch, dass ohne die Probleme mit der Spannungsfestigkeit, eine Energieakzeptanz von 260 eV für ein MCP mit einem Durchmesser von 42mm erreicht werden kann. Bei der Nutzung eines MCPs mit einem Durchmesser von 78mm erhöht sich die Energieakzeptanz auf 850 eV bei einer Auflösung von $\lesssim 2\%$ und auf 1.2 keV bei einer Auflösung von $\lesssim 5\%$.

Vergleicht man das hier vorgestellte Spektrometer mit kürzlich von Garcia *et al.* [26], Skruszewicz *et al.* [55], Fukuzawa *et al.* [25] oder Kling *et al.* [35] vorgestellten Designs, können lediglich die Designs von Kling *et al.* und Fukuzawa *et al.* eine vergleichbare Energieakzeptanz und Auflösung erreichen. Jedoch ist das Design bestehend aus 11 Elektroden von Kling *et al.* erheblich komplexer, was die Handhabung und Konstruktion erschwert. Das Design von Fukuzawa *et al.* benötigt sehr hohe Elektrodenspannungen bis zu 27 kV um eine vergleichbare Energieakzeptanz zu erreichen, was höhere Ansprüche an die technische Umsetzung zur Folge hat. Somit zeigt die vorliegende Arbeit, dass das hierin charakterisierte VMI-Spektrometer hinsichtlich Energieakzeptanz und Auflösung den genannten Alternativen nicht nachsteht, jedoch durch seinen einfachen Aufbau vorteilhaft in Handhabung und Konstruktion ist.

Einzelschuss Elektronen-VMI von Xenon dotierten Heliumnanotröpfchen in NIR-Femtosekundenpulsen

Die in dieser Arbeit gezeigten Einzelschuss Elektronen-VMI Messungen, an Xenon dotierten Heliumnanotröpfchen, konzentrieren sich auf prominente Signale niedrigerenergetischer Nanoplasma-Elektronen. Diese werden bei der Wechselwirkung der dotierten Heliumnanotröpfchen mit NIR-Femtosekundenpulsen einer Länge von (28 ± 3) fs und einer Fokusintensität im Bereich von $1 \times 10^{14} \text{ W cm}^{-2}$ beobachtet. Systematische Messungen zur Untersuchung der Abhängigkeit dieser Signale von der Heliumtröpfchengröße und der Anzahl an Xenondotanden im Heliumtröpfchen, die im Rahmen dieser Arbeit gezeigt werden, liefern erste Hinweise über den Ursprung dieser Signale. Sie zeigen, dass die maximale Energie dieser Elektronen mit steigender Heliumtröpfchengröße zunimmt, wohingegen sie ab einer Mindestdotierung unabhängig von der Anzahl der Xenon-Dotanden im Heliumtröpfchen wird. Somit sprechen die Messergebnisse dafür, dass das Signal der niederenergetischen Elektronen von der Dynamik des Heliumnanoplasmas dominiert wird. Der Entstehungs-

grund dieser niederenergetischen Nanoplasma-Elektronen ist bisher experimentell und theoretisch in veröffentlichten Studien nicht genau untersucht. Bisher unveröffentlichte Simulationen, welche für diese Arbeit von Heidenreich et al. zur Verfügung gestellt werden, reproduzieren das Auftreten dieser niederenergetischen Elektronen jedoch.

Ein genaueres Verständnis über die Prozesse, welche zur Entstehung dieser niederenergetischen Elektronen führen, kann aus weiteren Experimenten und Simulationen gewonnen werden. So kann man mit Hilfe von simultaner Aufnahmen der Ionen-TOF-Spektren, jeweils zugehörig zu den Einzelschuss Elektronen-VMI-Bildern, die durch die Plasmazündung entstehenden Ionen korreliert zu den Elektronensignalen betrachten. Damit könnte man die Ladungszustände der im Nanoplasma entstehenden Ionen messen. Weiterhin kann mittels Pump-Probe-Technik die Entwicklung des Nanoplastas zeitlich aufgelöst untersucht werden. Eine Messung bei welcher man die Pulslänge systematisch variiert, bzw. verlängert könnte weiteren Aufschluss über den Ursprung dieser niederenergetischen Nanoplasmaelektronen liefern, da zu erwarten ist, dass diese mit steigender Pulslänge mehr Energie aus dem E-Feld des Laserpulses aufnehmen und somit im Spektrum zu höheren Energien verschoben werden.

In kürzlich durchgeföhrten Messungen an reinen Heliumnanotröpfchen, werden zuvor unbeobachtete Strukturen in der Emission der niederenergetischen Nanoplasmaelektronen beobachtet, welche lediglich für orthogonal zur Spektrometerachse polarisierten Laserfeldern beobachtet werden. Diese Messungen wurden bei einer Düsentemperatur von 12.2 K, einer Laserleistung von 200 mW und einer Pulslänge (28 ± 3) fs durchgeführt. In Abb. 6.1 sind exemplarisch Signale aus dieser Messung gezeigt, die charakteristische Strukturen aufweisen, welche in dieser Messung auftreten. Diese Elektronen-VMI-Bilder weisen häufig eine geringere Intensität im Zentrum (Abb. 6.1 links) oder einen scharfen Ring nahe um das intensive innere Signal (Abb. 6.1 rechts) auf. Diesen Strukturen könnten bisher nicht beobachtete Dynamiken in Heliumnanoplasmen zugrunde liegen, was eine gute Motivation für weiterführende Experimente an diesem System liefert.

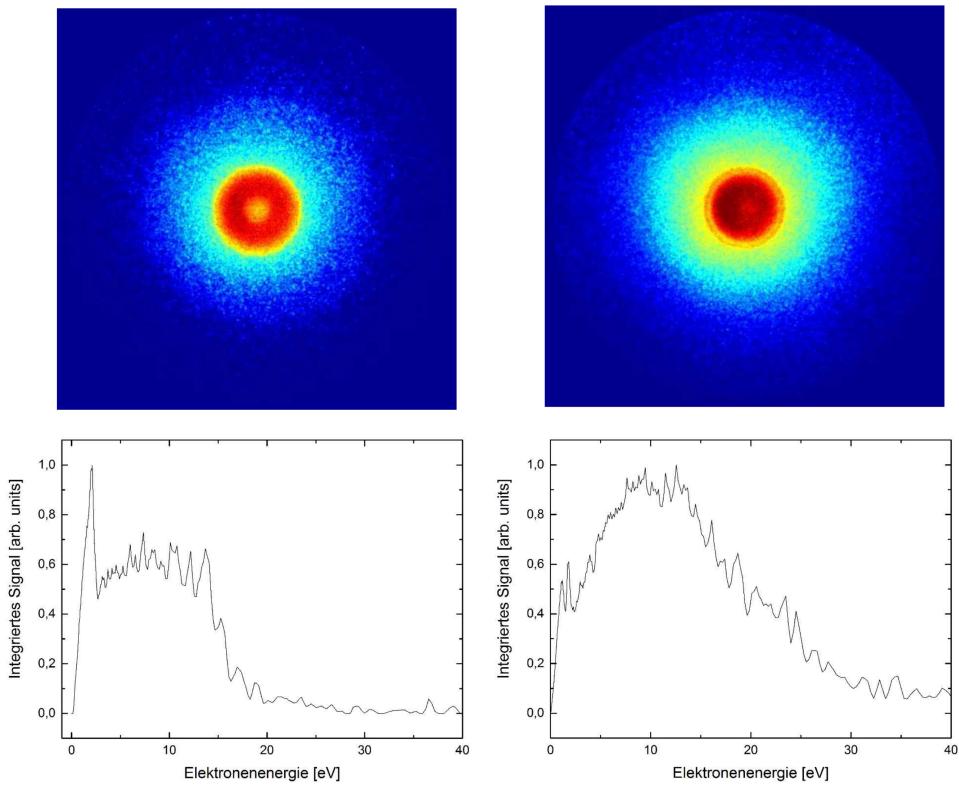


Abb. 6.1: (oben): Einzelschuss Elektronen-VMI-Bilder aufgenommen bei einer Düsentemperatur von $T_0=12.2\text{ K}$, einer Laserpulslänge von $(28 \pm 3)\text{ fs}$ und einer Laserleistung von 200 mW . (unten): Durch inverse Abeltransformation erhaltene Elektronenenergiespektren der darüber befindlichen Elektronen-VMI-Bilder.

Abbildungsverzeichnis

2.1	Phasendiagramm von ^4He	11
2.2	Entstehungsprozess von Heliumtröpfchen bei einer Überschallexpansion	12
2.3	Mittlere Tröpfchengrößen von ^4He bei Überschallexpansionen	13
2.4	Schematic of the doping process	14
2.5	Tunnelionisation und Rekombination	24
2.6	Schematische Darstellung der direkten Feldionisation	26
2.7	Schematische Darstellung der Plasmaformation in 3 Schritten	27
2.8	Wirkungsquerschnitt für Elektronenstoßionisation von Helium	29
3.1	Schematische Darstellung eines VMI Setups	33
3.2	Schematische Darstellung von Teilchentrajektorien A, B und C vom Ionisationsvolumen zur Detektorebene, welche trotz anfänglich unterschiedlicher Geschwindigkeitsvektoren auf den selben Punkt der Detektorebene beschleunigt werden. Entnommen aus [22].	34
3.3	Basisfunktionen für die BASEX-Methode	36
4.1	Schema des Setups	39
4.2	CAD-Modell eines Dotierofens mit Radiativheizkappe	41
4.3	Schnittansicht der Elektrodenanordnung + Elektronentrajektorien . .	44
4.4	Schnittansicht des CAD-Modells des Spektrometers	45
4.5	Schematische Darstellung eines MCPs und dessen Funktionsweise . .	47
4.6	Querschnitt durch das CAD-Modell des TOF Spektrometers mit Daly-Detektor	48
4.7	Illustration des Funktionsprinzips eines Daly-Detektors	49
5.1	VMI-Bilder für Photoelektronen aus Helium + Simulierte Daten und inverse Abel-transformiertes Bild.	52
5.2	Radius und Auflösung der Photoelektronenergien	53
5.3	Simulierte maximale Energieakzeptanz des Spektrometers	55
5.4	Kalium VMI-Photoelektronenbild und PES	56
5.5	Leveldiagramm von Kalium	57

5.6	Exemplarisches TOF Spektrum von effusiven Xenonatomen	59
5.7	Abhangigkeit der Laserintensitat im Fokusvolumen von der Laserleistung	60
5.8	Schemazeichnung einer Delay stage	61
5.9	Schema einer interferometrischen E-Feld Autokorrelation	62
5.10	Autokorrelationsmessung zur Pulslangenbestimmung	63
5.11	Mittlere Heliumnanotropfchengroe fur verschiedene Dusentemperatur einer cw-Duse mit 5 µm	65
5.12	Mittlere Heliumnanotropfchengroe fur verschiedene Dusen-T	66
5.13	Mittlere Heliumnanotropfchengroe fur verschiedene Dusen-T @20bar He	66
5.14	Bespielhafte Rohsignale und Elektronenspektren der Einzelschuss Elektronen VMI Messungen an Xe dotierten He-Tropfchen	68
5.15	Simulation zur Dotierung von Heliumnanotropfchen mit Xenon	69
5.16	Abhangigkeit der maximalen kinetischen Energie der Nanoplasmaelektronen von der Tropfchengroe und Dotandenzahl	71
5.17	Mittlere maximale kinetische Energien der Elektronen als Funktion der Dusentemperatur und des Dotierdrucks	72
5.18	Integrale der Elektronenenergieverteilungen fur verschiedene Heliumtropfchengroen und Dotierdrucke	72
5.19	Relative Dotiereffizienz als Funktion des Dotierdrucks fur Xenon-Dotierung von Heliumnanotropfchen	73
5.20	Simulierte minimale Dotandenzahlen fur die Heliumnanoplasmazundung als Funktion der Laserintensitat.	74
5.21	Simulierter und experimentell gemessene He-Ionen Ausbeute aus dotierten Heliumnanotropfchen in NIR-Femtosekundenpulsen.	75
5.22	Kinetische Energiespektrum von Argon Cluster fur verschiedene Starke des elektrischen Felds des Detektors	76
5.23	Simulationen von Heidenreich et al. der emittierten Nanoplasmaelektronen aus Heliumtropfchen einer Groe von 2171 Heliumatomen, dotiert mit 23 Xenon Atomen in 32 fs NIR-Pulsen mit einer Intensitat von $1 \times 10^{14} \text{ W/cm}^2$	77
6.1	Strukturierte Signale niederenergetischer Nanoplasmaelektronen . . .	82

Tabellenverzeichnis

2.1	Die für den Dotierprozess von Heliumnanotröpfchen mit Xenon relevanten Energien und Größen woraus sich der Energieeintrag pro vom Heliumtröpfchen aufgenommenen Dotanden berechnen lässt. Werte entnommen aus [41].	17
5.1	Berechnete Strahlradius und Intensitäten nach der Fokussierung durch den sphärischen Spiegel. Fehler auf die Messgrößen wurden über Gauß'sche Fehlerfortpflanzung berechnet.	58
5.2	Mittlere Dotandenzahlen für Dotierdrücke aus den Messungen aus 5.16 und eine mittlere Heliumnanotröpfchengröße von 8000 Atomen aus Simulationen aus der Dissertation von Barbara Grüner [27]. Mittlere Heliumnanotröpfchengrößen nach der Schrumpfung auf Grund von Evaporation von Heliumatomen durch die Dotierung; berechnet nach der Formel 2.6 und den Werten aus Tabelle 2.1.	73

7 Literaturverzeichnis

- [1] AGOSTINI, P. ; FABRE, F. ; MAINFRAY, G. ; PETITE, G. ; RAHMAN, N. K.: Free-Free Transitions Following Six-Photon Ionization of Xenon Atoms. In: *Physical review letters* 42 (1979), Nr. 17, S. 1127–1130. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.42.1127>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.42.1127. – ISSN 0031-9007
- [2] AMMOSOV, M. V. ; DELONE, N. B. ; KRAINOV, V. P.: Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions in an alternating electromagnetic field.
- [3] AUGST, S. ; MEYERHOFER, D. D. ; STRICKLAND, D. ; CHINT, S. L.: Laser ionization of noble gases by Coulomb-barrier suppression. In: *Journal of the Optical Society of America B* 8 (1991), Nr. 4, S. 858. <http://dx.doi.org/10.1364/JOSAB.8.000858>. – DOI 10.1364/JOSAB.8.000858. – ISSN 0740-3224
- [4] BARTELS, C. : *Angular distributions of photoelectrons from cold, size-selected sodium cluster anions*. Freiburg im Breisgau, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Inaugural-Dissertation, 03.2008
- [5] BATANI, D. ; JOACHAIN, C. J. ; MARTELLUCCI, S. ; CHESTER, A. N.: *Atoms, Solids, and Plasmas in Super-Intense Laser Fields*. Boston, MA : Springer US, 2001. – ISBN 9781461513513
- [6] BAUER, D. ; MULSER, P. : Exact field ionization rates in the barrier-suppression regime from numerical time-dependent Schrödinger-equation calculations. 59 (1999), Nr. 1. <https://journals.aps.org/pra/pdf/10.1103/PhysRevA.59.569>
- [7] BAUER, D. : *Theory of intense laser-matter interaction*. <http://www.physik.uni-rostock.de/fileadmin/Physik/Bauer/tilmi.pdf>. Version: 22.06.2006
- [8] BÖTTCHER, M. : *Ionisation mit Dissoziation von H₂ und Doppelionisation von Xenon in ultrakurzen, kombinierten XUV- und IR-Laserpulsen*

- [9] BÜNERMANN, O. : *Spektroskopie von Alkali- und Erdalkaliatomen, -molekülen, Alkaliclustern und Komplexen organischer Moleküle auf Heliumnanotröpfchen*. Bielefeld, Universität Bielefeld, Dissertation, 2006
- [10] BURNETT, K. ; REED, V. C. ; KNIGHT, P. L.: Atoms in ultra-intense laser fields. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 26 (1993), Nr. 4, S. 561–598. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/26/4/003>. – DOI 10.1088/0953-4075/26/4/003. – ISSN 0953-4075
- [11] CHANG, Z. : *Fundamentals of attosecond optics*. Boca Raton, Fla. : CRC Press, 2011. – ISBN 9781420089387
- [12] COOPER, J. ; ZARE, R. N.: Angular Distribution of Photoelectrons. In: *The Journal of Chemical Physics* 48 (1968), Nr. 2, S. 942–943. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1668742>. – DOI 10.1063/1.1668742. – ISSN 0021-9606
- [13] CORKUM: Plasma perspective on strong field multiphoton ionization. In: *Physical review letters* 71 (1993), Nr. 13, S. 1994–1997. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.71.1994>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.71.1994. – ISSN 0031-9007
- [14] DALY, N. R.: Scintillation Type Mass Spectrometer Ion Detector. In: *Review of Scientific Instruments* 31 (1960), Nr. 3, S. 264–267. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1716953>. – DOI 10.1063/1.1716953. – ISSN 0034-6748
- [15] DELHUIILLE, R. ; MIFFRE, A. ; LAVALLETTE, E. ; BÜCHNER, M. ; RIZZO, C. ; TRÉNEC, G. ; VIGUÉ, J. ; LOESCH, H. J. ; GAUYACQ, J. P.: Optimization of a Langmuir–Taylor detector for lithium. In: *Review of Scientific Instruments* 73 (2002), Nr. 6, S. 2249–2258. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1472467>. – DOI 10.1063/1.1472467. – ISSN 0034-6748
- [16] DICK, B. : Inverting ion images without Abel inversion: Maximum entropy reconstruction of velocity maps. In: *Physical chemistry chemical physics : PCCP* 16 (2014), Nr. 2, S. 570–580. <http://dx.doi.org/10.1039/C3CP53673D>. – DOI 10.1039/C3CP53673D. – ISSN 1463-9076
- [17] DIELS, J.-C. ; RUDOLPH, W. : *Ultrashort laser pulse phenomena: Fundamentals, techniques, and applications on a femtosecond time scale / Jean-Claude Diels, Wolfgang Rudolph*. 2nd ed. Amsterdam and London : Elsevier/Academic Press, 2006. – ISBN 9780122154935

- [18] DRIBINSKI, V. ; OSSADTCHI, A. ; MANDELSHTAM, V. A. ; REISLER, H. : Reconstruction of Abel-transformable images: The Gaussian basis-set expansion Abel transform method. In: *Review of Scientific Instruments* 73 (2002), Nr. 7, S. 2634–2642. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1482156>. – DOI 10.1063/1.1482156. – ISSN 0034–6748
- [19] <https://www.elettra.trieste.it/elettra-beamlines/gasphase.html>
- [20] EPPINK, A. T. J. B. ; PARKER, D. H.: Velocity map imaging of ions and electrons using electrostatic lenses: Application in photoelectron and photo-fragment ion imaging of molecular oxygen. In: *Review of Scientific Instruments* 68 (1997), Nr. 9, S. 3477–3484. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1148310>. – DOI 10.1063/1.1148310. – ISSN 0034–6748
- [21] FANDRICH: *PR-0056E-03-Phosphor_Screens*. <http://www.proxivision.de/datasheets/Phosphor-Screen-PR-0056E-03.pdf>
- [22] FECHNER, L. : *Aufbau eines Velocity-Map-Imaging-Spektrometers und winkeelaufgelöste Spektroskopie an Rubidium-dotierten Helium-Nanotröpfchen*. Freiburg im Breisgau, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Diplomarbeit, 2011
- [23] FENNEL, T. ; MEIWES-BROER, K.-H. ; TIGGESBÄUMKER, J. ; REINHARD, P.-G. ; DINH, P. M. ; SURAUD, E. : Laser-driven nonlinear cluster dynamics. In: *Reviews of Modern Physics* 82 (2010), Nr. 2, S. 1793–1842. <http://dx.doi.org/10.1103/RevModPhys.82.1793>. – DOI 10.1103/RevModPhys.82.1793. – ISSN 0034–6861
- [24] FLIESSBACH, T. : *Lehrbuch zur Theoretischen Physik / Torsten Fliessbach*. Bd. 2: *Elektrodynamik*. 6. Aufl. Heidelberg : Spektrum Akademischer Verlag, 2012. – ISBN 978–3–8274–3036–6
- [25] FUKUZAWA, H. ; TACHIBANA, T. ; MOTOMURA, K. ; XU, W. Q. ; NAGAYA, K. ; WADA, S. ; JOHNSSON, P. ; SIANO, M. ; MONDAL, S. ; ITO, Y. ; KIMURA, M. ; SAKAI, T. ; MATSUNAMI, K. ; HAYASHITA, H. ; KAJIKAWA, J. ; LIU, X.-J. ; ROBERT, E. ; MIRON, C. ; FEIFEL, R. ; MARANGOS, J. P. ; TONO, K. ; INUBUSHI, Y. ; YABASHI, M. ; YAO, M. ; UEDA, K. : Electron spectroscopy of rare-gas clusters irradiated by x-ray free-electron laser pulses from SACLAC. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 49 (2016), Nr. 3, S. 034004. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/49/3/034004>. – DOI 10.1088/0953-4075/49/3/034004. – ISSN 0953–4075

- [26] GARCIA, G. A. ; NAHON, L. ; HARDING, C. J. ; MIKAJLO, E. A. ; POWIS, I. : A refocusing modified velocity map imaging electron/ion spectrometer adapted to synchrotron radiation studies. In: *Review of Scientific Instruments* 76 (2005), Nr. 5, S. 053302. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1900646>. – DOI 10.1063/1.1900646. – ISSN 0034–6748
- [27] GRÜNER, B. U.: *Femtosekundenspektroskopie an dotierten Heliumnanotröpfchen: Dissipative Vibrationsdynamik und Charakterisierung eines Nanoplasm as*. Freiburg im Breisgau, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Dissertation, 2013
- [28] HAMAMATSU PHOTONICS K.K.: *MCP (Microchannel Plate) And MCP Assembly*. http://www.hamamatsu.com/resources/pdf/etd/MCP_TMCP0002E.pdf
- [29] HARMS, J. ; TOENNIES, J. P. ; DALFOVO, F. : Density of superfluid helium droplets. In: *Physical Review B* 58 (1998), Nr. 6, S. 3341–3350. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevB.58.3341>. – DOI 10.1103/PhysRevB.58.3341. – ISSN 0163–1829
- [30] HEIDENREICH, A. ; GRÜNER, B. ; ROMETSCH, M. ; KRISHNAN, S. R. ; STIENKEMEIER, F. ; MUDRICH, M. : Efficiency of dopant-induced ignition of helium nan plasmas. In: *New Journal of Physics* 18 (2016), Nr. 7, S. 073046. <http://dx.doi.org/10.1088/1367-2630/18/7/073046>. – DOI 10.1088/1367–2630/18/7/073046. – ISSN 1367–2630
- [31] HEIDENREICH, A. ; INFANTE, I. ; UGALDE, J. M.: Ion energetics in electron-rich nanoplasmas. In: *New Journal of Physics* 14 (2012), Nr. 7, S. 075017. <http://dx.doi.org/10.1088/1367-2630/14/7/075017>. – DOI 10.1088/1367–2630/14/7/075017. – ISSN 1367–2630
- [32] HENTSCHEL, M. ; KIENBERGER, R. ; SPIELMANN, C. ; REIDER, G. A. ; MILOSEVIC, N. ; BRABEC, T. ; CORKUM, P. ; HEINZMANN, U. ; DRESCHER, M. ; KRAUSZ, F. : Attosecond metrology. In: *Nature* 414 (2001), Nr. 6863, S. 509–513. <http://dx.doi.org/10.1038/35107000>. – DOI 10.1038/35107000. – ISSN 0028–0836
- [33] HERNANDO, A. ; MAYOL, R. ; PI, M. ; BARRANCO, M. ; ANCILOTTO, F. ; BÜNERMANN, O. ; STIENKEMEIER, F. : The structure and energetics of 3He and 4He nanodroplets doped with alkaline earth atoms. In: *The journal of physical chemistry. A* 111 (2007), Nr. 31, S. 7303–7308. <http://dx.doi.org/10.1021/jp0701385>. – DOI 10.1021/jp0701385. – ISSN 1089–5639

- [34] KELDYSH, L. V.: IONIZATION IN THE FIELD OF A STRONG ELECTROMAGNETIC WAVE. 20 (1965), Nr. 5. http://www.jetp.ac.ru/cgi-bin/dn/e_020_05_1307.pdf
- [35] KLING, N. G. ; PAUL, D. ; GURA, A. ; LAURENT, G. ; DE, S. ; LI, H. ; WANG, Z. ; AHN, B. ; KIM, C. H. ; KIM, T. K. ; LITVINYUK, I. V. ; COCKE, C. L. ; BEN-ITZHAK, I. ; KIM, D. ; KLING, M. F.: Thick-lens velocity-map imaging spectrometer with high resolution for high-energy charged particles. In: *Journal of Instrumentation* 9 (2014), Nr. 05, P05005. <http://stacks.iop.org/1748-0221/9/i=05/a=P05005>
- [36] KRAINOV, V. P. ; SMIRNOV, B. M. ; SMIRNOV, M. B.: In: *Physics-Uspekhi* 50 (2007), Nr. 9, 907 S. <http://dx.doi.org/10.1070/PU2007v050n09ABEH006287>. – DOI 10.1070/PU2007v050n09ABEH006287. – ISSN 1063–7869
- [37] KRAMIDA, A. ; RALCHENKO, Y. ; READER, J. ; NIST ASD TEAM: *NIST Atomic Spectra Database (version 5.4)*, [Online]. <https://www.nist.gov/pml/atomic-spectra-database>
- [38] KRISHNAN, S. R. ; FECHNER, L. ; KREMER, M. ; SHARMA, V. ; FISCHER, B. ; CAMUS, N. ; JHA, J. ; KRISHNAMURTHY, M. ; PFEIFER, T. ; MOSHAMMER, R. ; ULLRICH, J. ; STIENKEMEIER, F. ; MUDRICH, M. ; MIKABERIDZE, A. ; SAALMANN, U. ; ROST, J.-M. : Dopant-induced ignition of helium nanodroplets in intense few-cycle laser pulses. In: *Physical review letters* 107 (2011), Nr. 17, S. 173402. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.173402{#}>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.107.173402#. – ISSN 0031–9007
- [39] KUMA, S. ; GOTO, H. ; SLIPCHENKO, M. N. ; VILESOV, A. F. ; KHRAMOV, A. ; MOMOSE, T. : Laser induced fluorescence of Mg-phthalocyanine in He droplets: Evidence for fluxionality of large H₂ clusters at 0.38 K. In: *The Journal of Chemical Physics* 127 (2007), Nr. 21, S. 214301. <http://dx.doi.org/10.1063/1.2802303>. – DOI 10.1063/1.2802303. – ISSN 0021–9606
- [40] LAST, I. ; JORTNER, J. : Quasiresonance ionization of large multicharged clusters in a strong laser field. In: *Physical Review A* 60 (1999), Nr. 3, S. 2215–2221. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevA.60.2215>. – DOI 10.1103/PhysRevA.60.2215. – ISSN 1050–2947
- [41] LEWERENZ, M. ; SCHILLING, B. ; TOENNIES, J. P.: Successive capture and coagulation of atoms and molecules to small clusters in large liquid helium

- clusters. In: *The Journal of Chemical Physics* 102 (1995), Nr. 20, S. 8191–8207. <http://dx.doi.org/10.1063/1.469231>. – DOI 10.1063/1.469231. – ISSN 0021–9606
- [42] LOTZ, W. : An empirical formula for the electron-impact ionization cross-section. In: *Z. Physik (Zeitschrift für Physik)* 206 (1967), Nr. 2, S. 205–211. <http://dx.doi.org/10.1007/BF01325928>. – DOI 10.1007/BF01325928
- [43] MIKABERIDZE, A. : *Atomic and molecular clusters in intense laser pulses*. Dresden, Technische Universität Dresden, Dissertation
- [44] MIKABERIDZE, A. ; SAALMANN, U. ; ROST, J. M.: Laser-driven nanoplasmatics in doped helium droplets: Local ignition and anisotropic growth. In: *Physical review letters* 102 (2009), Nr. 12, S. 128102. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.128102{#}>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.102.128102#. – ISSN 0031–9007
- [45] PAUL, P. M. ; TOMA, E. S. ; BREGER, P. ; MULLOT, G. ; AUGE, F. ; BALCOU, P. ; MULLER, H. G. ; AGOSTINI, P. : Observation of a train of attosecond pulses from high harmonic generation. In: *Science (New York, N.Y.)* 292 (2001), Nr. 5522, S. 1689–1692. <http://dx.doi.org/10.1126/science.1059413>. – DOI 10.1126/science.1059413. – ISSN 0036–8075
- [46] PERELOMOV, A. M. ; POPOV, V. S. ; TERENT’EV, M. V.: IONIZATION OF ATOMS IN AN ALTERNATING ELECTRIC FIELD. In: *SOVIET PHYSICS JETP* 23 (1966), Nr. 5, 1393–1409. http://www.jetp.ac.ru/cgi-bin/dn/e_023_05_0924.pdf
- [47] RAPHAEL KATZY: *Entwicklung der Molekularstrahlquellen der LDM-Beamline am Freie-Elektronen-Laser FERMI und Spektroskopie an dotierten Helium-nanotröpfchen in intensiver XUV-Strahlung*. Freiburg im Breisgau, Albert-Ludwigs-Universität Freiburg, Dissertation, 2017
- [48] SAALMANN, U. ; SIEDSCHLAG, C. ; ROST, J. M.: Mechanisms of cluster ionization in strong laser pulses. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 39 (2006), Nr. 4, S. R39–R77. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/39/4/R01>. – DOI 10.1088/0953–4075/39/4/R01. – ISSN 0953–4075
- [49] SAALMANN, U. ; ROST, J.-M. : Ionization of Clusters in Intense Laser Pulses through Collective Electron Dynamics. In: *Physical review letters* 91 (2003), Nr. 22, S. 223401. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.91.223401>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.91.223401. – ISSN 0031–9007

- [50] SCHOMAS, D. ; RENDLER, N. ; KRULL, J. ; RICHTER, R. ; MUDRICH, M. : A compact design for velocity-map imaging of energetic electrons and ions. In: *The Journal of Chemical Physics* 147 (2017), Nr. 1, S. 013942. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4984076>. – DOI 10.1063/1.4984076. – ISSN 0021–9606
- [51] SCHÜTTE, B. ; ARBEITER, M. ; FENNEL, T. ; VRAKKING, M. J. J. ; ROUZÉE, A. : Rare-gas clusters in intense extreme-ultraviolet pulses from a high-order harmonic source. In: *Physical review letters* 112 (2014), Nr. 7, S. 073003. <http://dx.doi.org/10.1103/PhysRevLett.112.073003>. – DOI 10.1103/PhysRevLett.112.073003. – ISSN 0031–9007
- [52] SCHWABL, F. : *Quantum mechanics*. 4th ed. Berlin and New York : Springer, 2007
- [53] SILIN, V. P. ; URYUPIN, S. A.: Absorption of intense electromagnetic radiation in collisions of charged particles. In: *Sov. Phys. - Journal of Experimental and Theoretical Physics* 54:3 (1981), S. 910–926
- [54] SIVA, R. K.: *Doped Helium Nanodroplets in Intense Few-Cycle Infrared Pulses*. Combined Faculties for the Natural Sciences and for Mathematics, Ruperto-Carola University of Heidelberg, Dissertation, 2011
- [55] SKRUSZEWCZ, S. ; PASSIG, J. ; PRZYSTAWIK, A. ; TRUONG, N. X. ; KÖTHER, M. ; TIGGESBÄUMKER, J. ; MEIWES-BROER, K.-H. : A new design for imaging of fast energetic electrons. In: *International Journal of Mass Spectrometry* 365–366 (2014), S. 338–342. <http://dx.doi.org/10.1016/j.ijms.2014.02.009>. – DOI 10.1016/j.ijms.2014.02.009. – ISSN 13873806
- [56] STEBBINGS, S. L. ; SÜSSMANN, F. ; YANG, Y.-Y. ; SCRINZI, A. ; DURACH, M. ; RUSINA, A. ; STOCKMAN, M. I. ; KLING, M. F.: Generation of isolated attosecond extreme ultraviolet pulses employing nanoplasmonic field enhancement: Optimization of coupled ellipsoids. In: *New Journal of Physics* 13 (2011), Nr. 7, S. 073010. <http://dx.doi.org/10.1088/1367-2630/13/7/073010>. – DOI 10.1088/1367–2630/13/7/073010. – ISSN 1367–2630
- [57] STIENKEMEIER, F. ; LEHMANN, K. K.: Spectroscopy and dynamics in helium nanodroplets. In: *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* 39 (2006), Nr. 8, S. R127–R166. <http://dx.doi.org/10.1088/0953-4075/39/8/R01>. – DOI 10.1088/0953–4075/39/8/R01. – ISSN 0953–4075

- [58] STRINGARI, S. ; TREINER, J. : Systematics of liquid helium clusters. In: *The Journal of Chemical Physics* 87 (1987), Nr. 8, S. 5021–5027. <http://dx.doi.org/10.1063/1.452818>. – DOI 10.1063/1.452818. – ISSN 0021–9606
- [59] TOENNIES, J. P. ; VILESOV, A. F.: Superfluid helium droplets: A uniquely cold nanomatrix for molecules and molecular complexes. In: *Angewandte Chemie (International ed. in English)* 43 (2004), Nr. 20, S. 2622–2648. – ISSN 1433–7851
- [60] TOENNIES, J. P. ; VILESOV, A. F.: Suprafluide Heliumtröpfchen: Außergewöhnlich kalte Nanomatrices für Moleküle und molekulare Komplexe. In: *Angewandte Chemie* 116 (2004), Nr. 20, S. 2674–2702. <http://dx.doi.org/10.1002/ange.200300611>. – DOI 10.1002/ange.200300611. – ISSN 0044–8249
- [61] WILEY, W. C. ; MCLAREN, I. H.: Time-of-Flight Mass Spectrometer with Improved Resolution. In: *Review of Scientific Instruments* 26 (1955), Nr. 12, S. 1150–1157. <http://dx.doi.org/10.1063/1.1715212>. – DOI 10.1063/1.1715212. – ISSN 0034–6748
- [62] WITUSCHEK, A. ; VANGEROW, J. von ; GRZESIAK, J. ; STIENKEMEIER, F. ; MUDRICH, M. : A simple photoionization scheme for characterizing electron and ion spectrometers. In: *Review of Scientific Instruments* 87 (2016), Nr. 8, S. 083105. <http://dx.doi.org/10.1063/1.4960401>. – DOI 10.1063/1.4960401. – ISSN 0034–6748
- [63] YANOVSKY, V. ; CHVYKOV, V. ; KALINCHENKO, G. ; ROUSSEAU, P. ; PLANCHON, T. ; MATSUOKA, T. ; MAKSIMCHUK, A. ; NEES, J. ; CHERIAUX, G. ; MOUROU, G. ; KRUSHELNICK, K. : Ultra-high intensity- 300-TW laser at 0.1 Hz repetition rate. In: *OPTICAL EXPRESS* 2109 (2008), Nr. 3. https://www.osapublishing.org/DirectPDFAccess/E80E37EE-FB7B-6821-8E3BF1DC58EB50F3_152180/oe-16-3-2109.pdf?da=1&id=152180&seq=0&mobile=no
- [64] ZEWAIL, H. A.: *FEMTOCHEMISTRY - ATOMIC-SCALE DYNAMICS OF THE CHEMICAL BOND USING ULTRAFAST LASERS*. Pasadena, 1999 (Nobel Lecture)

Danksagung

An dieser Stelle Danke ich allen Personen die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben. An erster Stelle möchte ich Marcel Mudrich danken, dass er mir die Möglichkeit gegeben hat in seinem Projekt meine Masterarbeit zu schreiben, für die gute Betreuung während meiner Masterarbeit die durch seine freundliche Art und seine ansteckende Motivation geprägt war und ein gutes Maß an Anleitung und Eigeninitiative beinhaltete.

Bei Frank Stienkemeier möchte mich mich bedanken, dass er mir in seiner Arbeitsgruppe ermöglichte meine Arbeit zu schreiben.

Besonderer Dank gilt auch Dominik Schomas für die Betreuung während meiner Masterarbeit, welche von vielen aufschlussreichen Diskussionen geprägt war. Ich möchte allen meinen Kollegen aus der AG Stienkemeier Danken für die allzeit freundliche Atmosphäre und den fruchtbaren wissenschaftlichen Austausch. Die spannenden Tischkicker-Partien und nahezu wöchentlichen Kuchen haben für eine angenehme Arbeitsatmosphäre gesorgt.

Ein Dank geht auch an Nicholas Crescimanno der drei Monate in unserem Projekt über einen Austausch des Deutschen Akademischen Austauschdiensts mitgearbeitet hat. Danken möchte weiterhin Hannif von der Universität Aarhus, welcher auf einer Messzeit in Heidelberg dabei war und dabei eine hilfreiche Unterstützung war. Ich danke auch Cristian Medina für die tatkräftige und motivierte Mitarbeit während einer Strahlzeit in Heidelberg.

Ein Dankeschön geht auch an alle Mitarbeiter der Mechanikwerkstatt der Universität Freiburg welche einen großen Anteil der in dieser Arbeit benutzen Apparatur anfertigten.

Ich möchte mich auch bei Thomas Pfeifer und Robert Moshammer, den Projektpartnern am Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg bedanken, und deren Mitarbeiter Claus Dieter Schroeter, Patrick Foss, Ana Denhi Martinez Farfan und Nicolas Camus, welche bei technischen Fragen und bei der Handhabung des Lasersystems in Heidelberg eine große Unterstützung waren. Besonders danke ich Nicolas Camus für schnelle Beantwortung von Fragen bezüglich des Lasersystems und für die Hilfe bei Messungen zur Pulscharakterisierung. + Danken möchte ich

auch Andreas Heidenreich für seine zur Verfügung gestellten Simulationen.

Genauso will ich mich bei den Mitarbeitern der Mechanikwerkstatt des Max-Planck-Instituts für Kernphysik in Heidelberg bedanken, welche während Messzeiten mehrere kurzfristige Anpassungen von Apparaturkomponenten durchführten.

Meinen Studienkollegen und Freunden die ich während meines Studiums kennengelernt habe und mit denen ich gemeinsam das Studium meisterte, möchte ich an dieser Stelle auch nochmals danken. Dank euch wird mir meine Studienzeit immer in guter Erinnerung bleiben mit Diskussionen über Physik und die Welt, Übungsblatt-Rechnen oder Protokoll schreiben, Spieleabende, Parties und vieles mehr was ich nicht missen wollte.

Schließlich möchte ich besonders meiner Familie herzlichst danken, welche mich während meiner ganzen Zeit des Physikstudiums in jeglicher Form unterstützten.

Erklärung

Hiermit versichere ich, die eingereichte Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die von mir angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt zu haben. Wörtlich oder inhaltlich verwendete Quellen wurden entsprechend den anerkannten Regeln wissenschaftlichen Arbeitens (lege artis) zitiert. Ich erkläre weiterhin, dass die vorliegende Arbeit noch nicht anderweitig eingereicht wurde.

Ort, Datum

Unterschrift