

Kapitel 3

Apparativer Aufbau und Lasersystem

Steuerungsexperimente an Molekülen sind bestmöglich an Systemen mit definierten Anfangszuständen und möglichst kleiner Wechselwirkung zwischen den Molekülen durchführbar. Diese Bedingungen sind idealerweise in einem Molekularstrahl gegeben. Zur Durchführung der in dieser Arbeit vorgestellten Experimente wurde eine Molekularstrahl-Apparatur verwendet, die die Erzeugung von kalten Alkaliclustern erlaubt. Die andere Seite der apparativen Erfordernisse bildet eine zuverlässige Femtosekundenquelle, die kurze Pulse mit einer hohen Puls-zu-Puls-Stabilität liefert. Als Basis der geformten fs-Pulse wird in dieser Arbeit ein Titan:Saphir-Oszillator verwendet. In diesem Kapitel wird zunächst die Funktionsweise der Clusterstrahl-Apparatur dargestellt. Im Anschluss folgt ein Überblick über das verwendete Lasersystem.

3.1 Der Molekularstrahl

Die Alkalicluster entstehen in der adiabatischen Überschall-Expansion des Alkalidampfes aus einer kleinen Düse ins Vakuum. Die für die Erzeugung notwendige Molekularstrahlapparatur benötigt einen Verdampfungssofen, eine Vakuum-Apparatur und eine Nachweis-Einheit. Die Apparatur besteht aus zwei differentiell gepumpten Vakuumkammern, die durch ein Ventil miteinander verbunden sind. In der ersten Kammer (Ofenkammer) werden die Cluster erzeugt; hier befindet sich der Verdampfungssofen und ein Skimmer. In der zweiten Kammer (Nachweiskammer) findet die Wechselwirkung mit dem Laser und der Nachweis der Teilchen statt. Die Basis-Apparatur wurde von H. Kühling [56] aufgebaut und in den letzten Jahren stetig erweitert.

3.1.1 Vakuum-Kammern

In Abbildung 3.1 ist die Vakuum-Apparatur dargestellt. Die Ofenkammer (links) wird von einer Öldiffusionspumpe mit einer Saugleistung von 3070 l/min gepumpt, die den anfallenden Gasballast während der Messung bewältigt. Zwischen Pumpe und Ofenkammer befinden sich eine Kühlfalle und ein Schieberventil. Der Druck während der Messung beträgt etwa $6 \cdot 10^{-4}$ bis $2 \cdot 10^{-3}$ mbar. In der Nachweiskammer darf der Druck $4 \cdot 10^{-5}$ nicht überschreiten. Dafür sorgen zwei Turbopumpen mit einer gemeinsamen Saugleistung von 2700 l/min. Alle Pum-

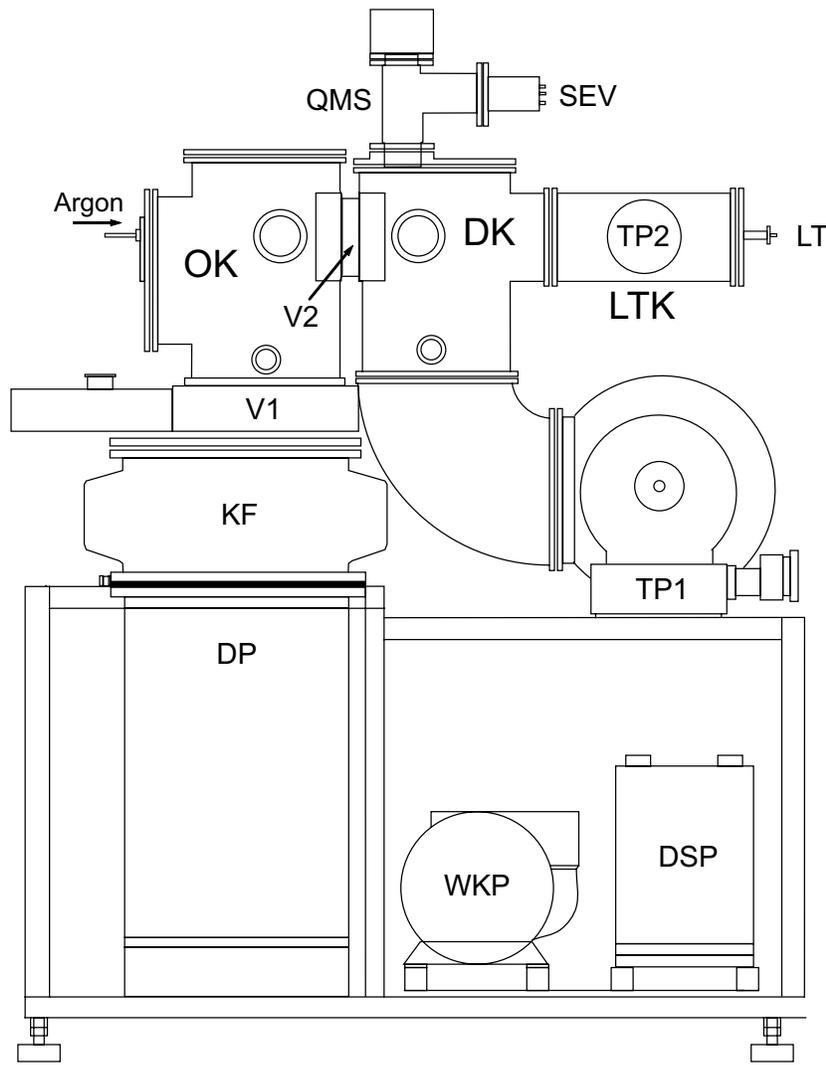


Abbildung 3.1: Die Molekularstrahl-Apparatur besteht aus zwei Hauptkammern, die differenziell gepumpt werden. Die Ofenkammer (OK) wird durch eine Öl-Diffusionspumpe (DP) mit zwischengeschalteter Kühlfalle (KF) und Schieberventil (V1) auf etwa $P_{OK} \approx 1 \cdot 10^{-6}$ mbar abgepumpt. Den Druck von etwa $P_{DK} \approx 1 \cdot 10^{-8}$ mbar in der Detektionskammer (DK) erzeugt die Turbopumpe TP1. In der Detektionskammer befinden sich das Quadrupol-Massenspektrometer (QMS) und der Sekundär-Elektronenvervielfacher (SEV). Ofenkammer und Detektionskammer sind durch ein Ventil (V2) getrennt. An die Detektionskammer schließt sich eine weitere Kammer (LTK) an, die den Langmuir-Taylor-Detektor (LTD) beinhaltet und von Turbopumpe TP2 gepumpt wird. Alle Pumpen werden durch ein Vorpumpen-System auf einen Vordruck von etwa $P_{Vordruck} \approx 1 \cdot 10^{-3}$ mbar gebracht. Dies geschieht mit einer Wälzkolbenpumpe (WKP), die wiederum von einer Drehschieberpumpe (DSP) gepumpt wird.

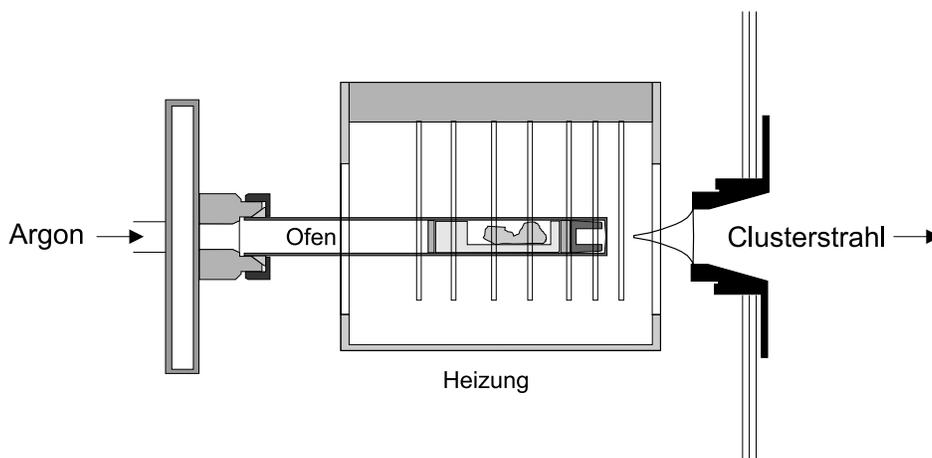


Abbildung 3.2: Experimentelle Anordnung innerhalb der Ofenkammer. Der Ofen wird von einer Strahlungsheizung auf über 800°C erhitzt. Die Strahlungsheizung besteht aus sieben hufeisenförmigen Filamenten, in die der Ofen geschoben wird. Innerhalb des Ofens befindet sich das Schiffchen, das mit den Alkali-Metallen befüllt ist. Zur Sicherung vor verstopften Düsen wird zwischen Schiffchen und Düse ein Filter und ein Distanzstück platziert.

pen werden von einer Wälzkolbenpumpe vorgepumpt, der wiederum eine Drehschieberpumpe vorgeschaltet ist.

3.1.2 Erzeugung des Clusterstrahls

Bei einer adiabatischen Expansion des Metaldampfes durch eine Düse kommt es aufgrund von Stößen der Teilchen zur Abkühlung und zur Entstehung von Aggregaten [91]. Bei Koexpansion mit einem inerten Trägergas (Argon) wird die Energie zusätzlich an die Trägergasatome abgegeben. Die Clusterbildung während der adiabatischen Expansion wird durch die mittlere freie Weglänge bestimmt. Bei gegebenem Düsendurchmesser und Ofentemperatur kann diese durch Erhöhung des Trägergasdrucks verkleinert und eine größere Abkühlung der kondensierenden Cluster erreicht werden [92]. Die Cluster der hier verwendeten Molekularstahlapparatur besitzen eine Vibrationstemperatur von $T_{vib} < 50\text{ K}$ und eine Rotationstemperatur von $T_{rot} < 10\text{ K}$ im elektronischen Grundzustand [93]. Die Cluster des Molekularstrahls besitzen eine einheitliche Geschwindigkeit. Stöße zwischen den Teilchen finden nicht mehr statt.

Das Gemisch aus Natrium und Kalium wird in einer **Ofenkartusche** verdampft. Die Ofenkartusche wird mit den Alkalis befüllt und in der Ofenkammer mit einer Strahlungsheizung auf Temperaturen zwischen 600° und 900° erhitzt (siehe Abbildung 3.2). An der vorderen Seite der Ofenkartusche mit einer zentralen Wandstärke von etwa $400\ \mu\text{m}$ befindet sich die Düsenöffnung mit einem Durchmesser von $70\ \mu\text{m}$. Die Metalle Natrium und Kalium werden in sogenannte Schiffchen gefüllt, die sich in den Ofen schieben lassen. Die Schiffchen sollen vermeiden, dass das flüssige Material nach vorne läuft und die Düse verstopft¹. Als weitere Vorsichtsmaßnahme gegen die Düsenverstopfung wird ein Filter-Pfropfen aus feinmaschigem Nickelgewebe zwischen Düse und Schiffchen gepresst. Für weitere Details siehe [56].

Der Ofen kann nicht aus gewöhnlichem Stahl bestehen, da wegen der hohen Temperatu-

¹Dies bedeutet meist das vorzeitige Ende des Clusterstrahls.

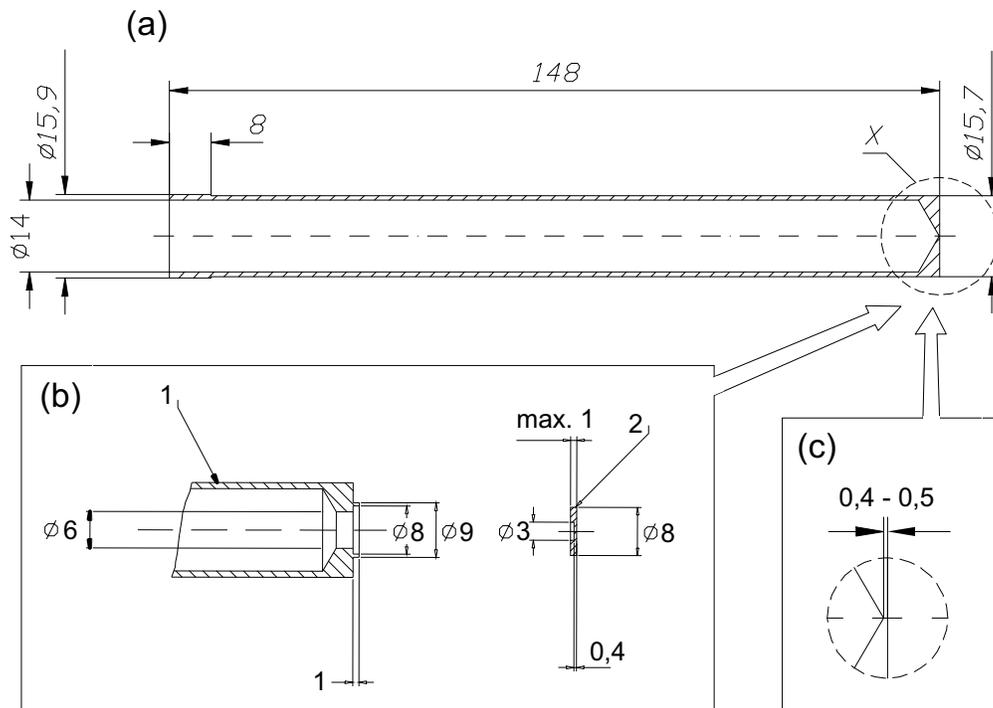


Abbildung 3.3: Zwei Konfigurationen des Alkali-Verdampfungsovens. (a): Ofenkartusche. (b): Das aus Speziallegierungen (Nimonic oder Inconel) bestehende Düsenplättchen wird vor der Bohrung an die Edelstahl-Kartusche geschweißt. (c): Ofenkartuschen aus TZM werden bis zur Düsenwandstärke von 400 - 500 μm ausgebohrt.

ren im Ofen das Material um die Düse sehr schnell aufreißt und damit eine Clusterbildung unmöglich wird. Der in Abbildung 3.3 (a) und (c) schematisch dargestellte Ofen besteht aus einer Titan-Zirkon-Molybdän-Legierung (TZM), die eine besonders hohe Beständigkeit gegen hohe Temperaturen und heiße Alkalidämpfe aufweist. Dabei wird der Vollzylinder bis auf eine Düsenwandstärke von etwa 0.4-0.5 mm ausgebohrt.

Die andere und häufiger verwendete Variante ist in Abbildung 3.3 (b) skizziert. Eine an beiden Seiten geöffnete Ofenkartusche aus Chrom-Nickel-Stahl (Stahlschlüssel 1.4401) wird an der Düsen Seite mit einem **Düsenplättchen** aus Nimonic 90 oder Inconel² (Stahlschlüssel 2.4952) versehen (WIG-Schweißung). Die Plättchen sind vorher auf eine Wandstärke von 400 μm abgedreht worden. Die Düsenlöcher mit einem Durchmesser von 70 μm werden im Labor durch eine **Feinbohrmaschine** erstellt, die druckluftgetrieben wird und auf einen computeransteuerbaren Linearversteller montiert ist. Der Bohrvorgang wird computergestützt vorgenommen, da die feine Spitze des Spiralbohrers sehr zerbrechlich ist. Nach einem Bohrvortrieb von 5 μm wird der Bohrer zurückgefahren und der Vorgang an der neuen Stelle fortgesetzt. Für eine Gesamtbohrtiefe von 400 – 500 μm benötigt diese iterative Bohrmethode je nach Härtegrad des Materials zwischen einer und vier Stunden. Die Düsenmaterialien Nimonic und Inconel erlauben selbst bei hohen Temperaturen die Erzeugung eines über viele Stunden stabilen Clusterstrahls.

²Diese Speziallegierungen sind aus dem Flugzeugbau bekannt.

Durch Verunreinigungen im Metall können ebenfalls Düsenverstopfungen hervorgerufen werden. Wird mit einem Gemisch aus Natrium und Kalium gearbeitet, sollte die Legierung in einer sogenannten „Destille“ gereinigt werden. Besonders das Kaliummetall kann schwammartig das zur Lagerung benutzte Parafinöl aufsaugen, das nach der Erhitzung im Ofen verdampft und die Düse verklebt. Der ursprüngliche Aufbau der Destille stammt von J. Blanc [94] und wurde von D. v. Seggern umgebaut [95]. Zu Reinigung mit der Destille werden die Metalle in einen beheizbaren Kolben gefüllt und auf etwa 120°C erhitzt, um beide Metalle zu verflüssigen. Der Kolben ist durch einen Filter mit einer evakuierten Kammer verbunden. Bei Zugabe von etwa 0.2 bar Argon wird das flüssige Metall durch den Filter geschoben und über eine trichterförmige Führung in ein darunter befindliches Schiffchen geleitet.

Nach dem Abkühlen kann das Schiffchen direkt in den Ofen geschoben werden. Um einen etwaigen Rücklauf des Metalls zu verhindern, wird hinter das Schiffchen ein weiterer Filterpfropfen in den Ofen gepresst. An diesen lassen sich zwei Temperaturfühler anbringen und mit Keramik gegen die Strahlung abschirmen. Die Position der Temperaturfühler wird so gewählt, dass sich die Temperatur der Ofenspitze getrennt von der Position des Schiffchens kontrollieren lässt. Die Ofenkartusche wird mit dem Ofenflansch verbunden und zwischen die Filamente der Strahlungsheizung geschoben (siehe Abbildung 3.2). Die Beheizung des Ofens erfolgt durch sieben Wolframfilamente, die U-förmig den Ofen umschließen. Die vorderen drei Filamente können getrennt angesteuert werden und heizen den Düsenbereich des Ofens. Dadurch kann ein Temperaturgradient zwischen dem Düsenbereich und dem Bereich des Ofens, in dem sich das Metall befindet, eingestellt werden. Der Temperaturunterschied von etwa 100 K ist notwendig, um ein Verstopfen der Düse durch kondensiertes Alkalimetall zu vermeiden. Typische Temperaturen für die Erzeugung eines Natrium-Kalium-Clusterstrahls liegen bei 600° für den Ofen und 700° für die Düse.

3.1.3 Nachweiskammer

Die Cluster des Molekularstrahls gelangen durch den Skimmer in die Nachweiskammer. Der Skimmer trennt den Strahlkern vom diffusen Rand des Strahls. Der Laser wird durch das Fenster in die Apparatur gestrahlt und mit einer vor dem Fenster positionierten Linse ($f = 200\text{ mm}$) auf den Clusterstrahl fokussiert. Durch die Wechselwirkung mit dem Laserpuls werden die Cluster photoionisiert und durch die in der Wechselwirkungszone befindliche Ionenoptik senkrecht zu Cluster- und Laserstrahl vertikal nach oben auf die Achse eines Quadrupol-Massenspektrometers fokussiert. Die massenselektierten Ionen treffen auf einen Sekundärelektronen-Vervielfacher (SEV) und lösen eine Elektronenkaskade aus. Der Strom (einige nA) wird von einem Vorverstärker und einem nachgeschalteten Hauptverstärker verstärkt und als Spannung im Bereich zwischen 0 und 10 V ausgegeben. Im Folgenden wird diese Spannung als Ionensignal bezeichnet. Außer der Ionenoptik, die für die Photoionisation umgebaut wurde [56], ist das gesamte Nachweissystem kommerziell (Balzers, QMS 420). Durch den Einsatz eines Quadrupol-Massenspektrometers ist im Gegensatz zu einem Flugzeit-Massenspektrometer eine kontinuierliche Aufnahme des Ionensignals möglich. Damit können die Experimente mit der vollen Repetitionsrate von 80 MHz des Laseroszillators durchgeführt werden. Die große Nähe des Nachweissystems zur Wechselwirkungszone sorgt zudem verglichen mit TOF-Massenspektrometern (*Time Of Flight*) für große Ionenintensitäten.

Die Stabilität des Clusterstrahls kann während der Messung mit einem Langmuir-Taylor-Detektor (LTD) kontrolliert werden. Der LTD befindet sich am Ende der Achse, die durch Ofen, Skimmer und Wechselwirkungszone gegeben ist, und wird somit vom Clusterstrahl

getroffen. Die Alkali-Teilchen werden durch Oberflächen-Thermoionisation an einem heißen Rheniumdraht ionisiert und über zwei Elektroden nachgewiesen [96]. Das LT-Signal ist eine vom Laser unabhängige Referenz des Clusterstrahls. Zum einen hilft das LT-Signal bei der Justage der Ofenposition bezüglich des Skimmers. Wichtig ist das LT-Signal allerdings für die Interpretation der Messung. So können Aussagen getroffen werden über die Stabilität des Clusterstrahls während einer Messung. Eine freie Optimierung von fs-Pulsen für maximale Ionenausbeuten benötigt zwischen 35 und 50 Minuten. Während dieser Zeit muss der Clusterstrahl stabil bleiben. Bleibt die Konvergenz eines Optimierungsexperiments aus, so kann das an zu großen Schwankungen des Clusterstrahls liegen. Mit dem LT-Signal können diese Schwankungen ermittelt werden.

3.2 Der Titan:Saphir Laser

Die in dieser Arbeit vorgestellten Messungen sind mit einem regenerativ modengekoppelten Titan:Saphir-Laser (SPECTRA PHYSICS TSUNAMI) durchgeführt worden. Als Pumplaser dient ein diodengepumpter YAG-Laser (SPECTRA PHYSICS MILLENIA X). Das laseraktive Medium des Titan:Saphir-Lasers ist ein mit Ti^{3+} -Ionen dotierter Saphirkristall ($\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$), der in einem Wellenlängenbereich um 500 nm absorbiert. Die Wechselwirkung der dotierten Ionen mit dem Feld des Wirtsgitters führt zu einem breiten Laserübergang im Bereich um 800 nm [97]. Um fs-Pulse zu erzeugen, müssen die Resonatormoden phasengekoppelt werden³. Im hier verwendeten Titan:Saphir-Laser wird die Kopplung der longitudinalen Moden durch die Kerr-Linsen-Modenkopplung erreicht. Als Kerr-Linse wird der Effekt der Selbstfokussierung intensiver Laserfelder bezeichnet. Danach kann bei großen elektrischen Feldern der nichtlineare Anteil des Brechungsindex n nicht mehr vernachlässigt werden, d.h. n wird intensitätsabhängig [101]. Der Pumplaser wird in den Titan:Saphir-Kristall fokussiert. In der Mitte des Fokus herrscht eine größere Intensität als am Rand. Folglich ist auch die Intensität des emittierten Lichts im Zentrum des Fokus intensiver, d.h. es liegt ein räumliches Intensitätsgefälle von der Mitte zu den Rändern vor. Die Folge ist eine Verbiegung der Wellenfronten und damit eine Selbstfokussierung des Strahls [102]. Der Resonator ist so konfiguriert, dass die stärker fokussierten Anteile eine größere Verstärkung erfahren [103]. So kann sich aus anfänglich zufälligen Intensitätsschwankungen ein stabiler Puls herausbilden. Dieses Prinzip ist ähnlich einer passiven Modenkopplung, bei der ein sättigbarer Absorber in den Strahlengang gestellt wird. Die Modenkopplung des Titan:Saphir-Lasers kann mit einem akusto-optischen Modulator [103] aktiv stabilisiert werden (aktive Modenkopplung). Zudem unterstützt der akusto-optische Modulator die Initialisierung der Modenkopplung. Über eine Regelschleife, die die momentane Repetitionsrate des Lasers aufnimmt, wird die Frequenz des akusto-optischen Modulators kontinuierlich nachgeregelt. Daraus leitet sich der Begriff des regenerativ modengekoppelten Lasers ab [103].

Zur Kompensation der in den optischen Elementen des Resonators auftretenden Gruppengeschwindigkeits-Dispersion ($\text{GVD} = \text{Group Velocity Dispersion}$) ist der Titan:Saphir-Laser mit einem resonatorinternen Prismenkompressor⁴ ausgestattet. Die Repetitionsrate des Lasers beträgt 80 MHz. Mit einem Spiegelsatz ist der Laser zwischen $\lambda_0 = 750$ und 840 nm durchstimmbar. Die hier vorgestellten Messungen wurden bei Wellenlänge um $\lambda_0 = 770$ nm und $\lambda_0 = 834$ nm durchgeführt. Die zeitliche Länge der Pulse kann mit einem kommerziellen Auto-

³Zur Theorie der Modenkopplung siehe z.B. [98, 99]. Eine gute Darstellung findet sich auch in [100].

⁴Zur Rekompensation dispersionsverbreiteter Pulse siehe Kapitel 5.4.

| Pulseigenschaft | Symbol | Größe |
|--|------------------------------|-------------------------|
| Durchschnittsleistung des TiSa | $\overline{P}_{\text{TiSa}}$ | 2,2 W |
| Durchschnittsleistung am Experiment [§] | $\overline{P}_{\text{Exp}}$ | 800 mW |
| Repetitionsrate | ν | 80 MHz |
| Zentralwellenlänge | λ_0 | 770 nm |
| Spektrale Breite | $\Delta\lambda$ | 8,5 nm |
| Pulslänge | Δt | 80 fs |
| Pulsenergie [§] | E_{Puls} | 10 nJ |
| Pulsleistung [§] | P_{Puls} | 125 kW |
| Pulsleistungsdichte im Fokus [§] | A_{Puls} | 1.6 GW cm ⁻¹ |

Tabelle 3.1: Übersicht über die wichtigsten Parameter des Titan:Saphir-Lasers. Die Werte für die geformten Pulse sind mit [§] gekennzeichnet.

korrelator (SPECTRA PHYSICS Scanning Autocorrelator Model 409) kontrolliert werden [104]. Die spektrale Breite der Pulse wird mit einem Spektrometer (JOBIN YVON HR250) gemessen und beträgt durchschnittlich $\Delta\lambda = 8.5$ nm. Die durchschnittliche Autokorrelationsbreite ergibt sich zu $\Delta t = 125$ fs. Unter der für den Titan:Saphir-Laser guten Annahme [103], dass die Pulsform einem secans hyperbolicus Quadrat (sech²) entspricht, folgt eine durchschnittliche Pulslänge von $\Delta t = \frac{\Delta\tau}{1.55} = 80$ fs.

Die Bandbreite $\Delta\nu$ und die zeitliche Länge eines Pulses Δt sind über die Fouriertransformation miteinander verknüpft. Es existiert ein minimales Bandbreitenprodukt [102]:

$$\Delta\nu\Delta t \geq \text{const.} \quad (3.1)$$

Die Konstante ist abhängig von der Pulsform. Gleichheit besteht für ungechirpte, d.h. transform-limitierte Pulse. Für einen zeitlichen Pulsverlauf in Form eines sech² gilt im transform-limitierten Fall $\Delta\nu\Delta t = 0.315$ [105] (siehe auch Tabelle 4.2). Damit folgt aus der spektralen Breite von $\Delta\lambda = 8.5$ nm eine transform-limitierte Pulslänge von 73 fs.

Die Leistung des Pumpasers beträgt $P_{\text{pump}} = 10$ W. Damit besitzt der Titan:Saphir-Laser eine Leistung von $P_{\text{TiSa}} = 2.2$ W. Die Leistung des Laserstrahls nach dem Pulsformer direkt vor dem Experiment beträgt $P_{\text{geformt}} \approx 800$ mW. Bei einer Repetitionsrate von 80 MHz erhält man eine Energie von 10 nJ pro Puls, bei einer Pulsdauer von 80 fs also Pulse der Leistung 125 kW. Die Pulse werden mit einer Linse der Brennweite $f = 200$ mm auf den Clusterstrahl fokussiert, so dass ein Fokus mit dem Durchmesser von etwa 100 μm entsteht. Damit ergeben sich Pulsleistungsdichten von etwa 1.6 GW cm⁻². Tabelle 3.1 stellt die wichtigsten Parameter des Lasersystems zusammen.

3.3 Steuerung des Experiments und Meßwerterfassung

Die Steuerung der Experimente und die Aufnahme der Messdaten erfolgt über drei Rechner:

1. Mit Rechner A lassen sich die Pump-Probe-Experimente und die Aufnahme von Massenspektren steuern. Eine IEEE Schnittstellenkarte sorgt für die Kommunikation mit

dem Analog-Digital-Wandler SR 245 (STANDFORD RESEARCH), der das analoge Ionensignal des Hauptverstärkers digitalisiert. Das Quadrupol-Massenspektrometer wird über die serielle Schnittstelle angesprochen. Die Ansteuerungs-Software ist in der Entwicklungsumgebung LABVIEW 4 von S. Rutz entwickelt worden [28].

2. Von Rechner B werden sowohl die Pulsformungs- als auch die Optimierungsexperimente vorgenommen. Mit einer ebenfalls eingebauten IEEE Schnittstellenkarte werden auch hier die analogen Meßsignale über den SR 245 A/D-Wandler eingelesen. Eine IEEE-Weiche ermöglicht, dass beide Messrechner den SR 245 auslesen können. Zu den von Rechner B verarbeiteten analogen Meßsignalen zählen
 - das Ionensignal des Hauptverstärkers
 - das Ionensignal des Lock-In Verstärkers
 - die SHG-Intensität des Photomultipliers
 - das Kreuzkorrelationssignal des Photomultipliers und
 - die spektrale Intensität des Spektrometer-Photomultipliers.

Ebenfalls über die IEEE-Schnittstelle wird der Controller des Pulsform-Modulators und die Steuerung des DC-Verschiebetisches für die Kreuzkorrelation angesprochen. Die Software-Programme

- zur Pulsformung,
- zur Aufnahme der Kreuzkorrelationsspuren und
- zur Aufnahme der XFROG-Spuren, sowie
- die Optimierungsalgorithmen und
- die implementierte Rückkopplungsschleife

sind in der Entwicklungsumgebung LABVIEW 5.1 entstanden.

Von Rechner B lässt sich ebenfalls die CCD-Kamera des SHG-FROG (KAPPA) über die Frame-Grabber Karte mit der kommerziellen Software KAPPA IMAGEBASE ansteuern und auslesen.

3. Rechner C gestattet das Auslesen des Faserspektrometers, mit dem das Spektrum des Titan:Saphir-Pulses online kontrolliert wird.

In diesem Kapitel sind die Grundlagen des apparativen Aufbaus und des Lasersystems besprochen worden. Im folgenden Kapitel wird auf die Formung der Femtosekundenpulse eingegangen.